

JAERI-Research

99-053



JP9950600



大気から土壌へのHT沈着速度の
新しい測定方法

1999年9月

小嵐 淳・天野 光・安藤麻里子・駒 知孝*

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
人手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費領布を行っております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 1999

編集兼発行 日本原子力研究所

大気から土壌への HT 沈着速度の新しい測定方法

日本原子力研究所東海研究所環境科学研究部
小嵐 淳*・天野 光・安藤麻里子・駒 知孝*

(1999 年 7 月 29 日受理)

自然環境においては、土壌中の微生物による HT の HTO への酸化が重要なプロセスである。HT の土壌への沈着量を予測する場合、一般には HT 沈着速度を用いて評価するために、この値を測定することはモデル化などの目的に対して特に役立つ。HT フラックスを、アクリル製のチェンバーとトリチウムサンプラーを用いて野外で測定する手法を開発した。本手法を用いて、東海研究所における土壌への HT 沈着速度を推定し、 $7.3 \times 10^{-6} - 1.4 \times 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ の値を得た。これによって、本測定法の有効性を確認した。

本測定手法を用いることによって、トリチウムソースを使用することなしに HT 沈着速度を測定することが可能である。HT 放出実験のような大規模な実験を行わなくても、どのような場所でも、比較的容易に HT 沈着速度を得ることができる。

New Method for Measurement of HT Deposition Velocity from Atmosphere into Soil

Jun KOARASHI*, Hikaru AMANO, Mariko ANDOH and Tomotaka KOMA*

Department of Environmental Sciences
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received July 29, 1999)

In the natural environment, tritiated hydrogen (HT) is oxidized into tritiated water (HTO) by soil microorganisms. For modeling purposes, soil HT deposition is often parameterized as deposition velocity, which includes the uptake rate of HT by soil and the oxidation rate. A method for measurement of HT flux from the atmosphere into soil was developed. The flux is measured by using a chamber made of polymethylmethacrylate (PMMA) and two tritium samplers placed in the fields. The HT deposition velocity expressed by dividing HT flux by HT concentration near the ground surface was estimated to be $7.3 \times 10^{-6} - 1.4 \times 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ in Tokai site, JAERI. This demonstrates the effectiveness of the present method. This method enables to estimate HT deposition velocity without a large-scale experiment and tritium source.

Keywords: HT Flux, HT Deposition Velocity, Tritium Sampler, Chamber

※ Student Research Fellow : Nagoya University

* Japan Nuclear Fuel Limited

目 次

1. はじめに	1
2. 実験方法	3
2. 1 実験方法と測定項目	3
2. 2 実験場所	4
3. トリチウムサンプラー	6
3. 1 トリチウムの化学形別サンプリング方法	6
3. 2 トリチウムサンプラーの概要	6
3. 3 水の捕集	8
4. トリチウム濃度の定量方法	10
4. 1 トリチウム試料の回収方法	10
4. 2 トリチウム試料の測定	11
5. トリチウムフラックスの導出	12
6. 結果と考察	14
7. まとめ	19
謝辞	19
参考文献	20

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Procedure	3
2.1 Measurement Method	3
2.2 Measurement Field	4
3. Tritium Sampler	6
3.1 The Way for Sampling of HTO and HT	6
3.2 Outline of Tritium Sampler	6
3.3 Collection of Water	8
4. Determination of Tritium Concentrations	10
4.1 Recovery of Tritium	10
4.2 Measurement of Tritium Concentrations	11
5. Derivation of Expression for Tritium Flux	12
6. Results and Discussion	14
7. Summary	19
Acknowledgements	19
References	20

1. はじめに

トリチウム (^3H) は天然には上層大気中で宇宙線によって、 $^{14}\text{N}(\text{n},\text{T})^{12}\text{C}$ 、 $^{16}\text{O}(\text{n},\text{T})^{14}\text{N}$ 、 $\text{D}(\text{n},\gamma)\text{T}$ 等の反応で生成される^{(1),(2)}。1950年代～60年代にかけて大規模に行われた大気圏核実験により、環境中のトリチウムの存在量は飛躍的に増加した。核実験により環境中へ放出されたトリチウムの量は $242.8 \times 10^{18}\text{Bq}$ 、ピーク時の1963年には天然レベルの数千倍に達した。しかし今日では、1963年の部分的核実験停止条約の締結以来、トリチウムは減衰及び海洋・水圏による希釈によってその濃度は減少しつつある^{(2),(3)}。

現在の環境中トリチウム濃度は線量当量上問題とならないレベルである。核実験が停止された現在では、トリチウムの人工放出源として重水炉などの原子炉や使用済核燃料再処理施設、トリチウム製造施設などの原子力関連施設が挙げられる。しかし、将来的には、日本及び諸外国での原子炉の新增設や民間の大型再処理施設の稼働、さらに核融合利用、技術の進展などにより、その放出量は増大する可能性がある^{(4),(5)}。

トリチウムは環境中で様々な化学形で存在している⁽⁴⁾。人工の放出源である原子力施設では、施設により放出される化学形が異なる。トリチウムは原子炉では、PWRからはメタン状 (CH_3T) の形でも放出されるけれども、ほとんどはトリチウム水蒸気 (HTO) として放出される。再処理施設では気体・液体廃棄物として放出される。D-T核融合炉などでは、放出時には水素状 (HT) の形でも放出される。さらにメタン状の形でも放出される可能性があるが、実際には少ないことが報告されている^{(2),(6)-(8)}。

トリチウムは大気中で大きく分けて3つの化学形で存在している。それは、トリチウム水蒸気 (HTO)、トリチウム水素 (HT)、トリチウム炭化水素、主にトリチウムメタン (CH_3T) である。環境中でのトリチウムの移行挙動や人体への影響が化学形ごとでかなり異なるために、化学形ごとの移行挙動の解明が要求される。

野外環境において、HTは主に土壌中の微生物によってHTOに酸化される。HTOは、HTに比べて4桁も体内に取り込まれやすい。HTは水に溶けにくいので土壌中の間隙中の気相を移行し、水素酸化能を持つ土壌細菌によって酸化されて、HTOとして土壌中を移行することになる。地表面からは土壌水の蒸

発によって土壤中の HTO の再放出が生じ、トリチウムの挙動は地表面における種々の現象によって強く影響を及ぼされることが予想される^{(8),(9)}。

HT の土壌への沈着量を予測する場合、一般にはパラメーター化された HT 沈着速度を用いて評価されるために、この沈着速度の値を測定することはモデル化の目的に対しても大変重要である。これまでこの沈着速度がフランス (1986) やカナダ (1987) での HT 野外放出実験によって測定されてきた。沈着速度は、単位面積あたりのトリチウム沈着量と時間積分された空気中の HT 濃度の比から計算された。このときの沈着速度はそれぞれ $0.9 \times 10^{-4} \sim 5.5 \times 10^{-4} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $0.8 \times 10^{-4} \sim 12 \times 10^{-4} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ であった^{(8),(9),(21)}。また、F.S.Spencer and L.Vereecken-Sheehan は、土壌にチェンバーを被せ、チェンバーとトリチウムモニターを密閉ループで接続し、約 0.24TBq の HT を流して、HT 濃度の減少から沈着速度を計算した。その結果、沈着速度が $0.11 \times 10^{-4} \sim 3.33 \times 10^{-4} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ の範囲であることを報告している⁽²²⁾。

本報告では、チェンバーと 2 台のトリチウムサンプラーを用いた野外実験及びチェンバー内トリチウム濃度変動を表わす式によって、トリチウムソースを用いずに自然環境における土壌—大気間の HT フラックス及び沈着速度を推定する方法を述べ、得られた結果について考察する。

2. 実験方法

2. 1 実験方法と測定項目

150 cm×20 cm の底面積で 50 cm の高さの亚克力製チェンバーを土壌深さ 25 cm まで埋設した。Fig. 1 にトリチウムフラックスを測定するための実験装置配置図を示す。

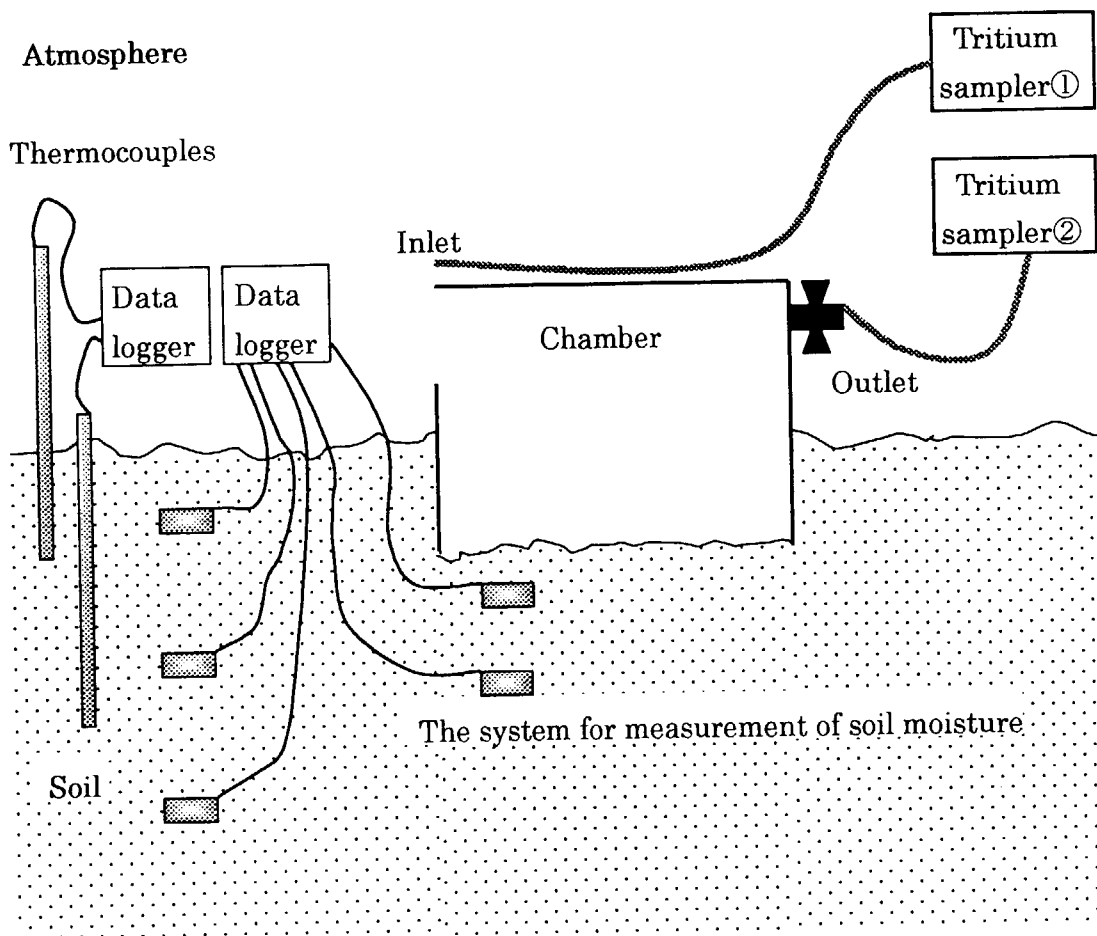


Fig. 1 The experimental setup for measuring the flux of tritium from the ground surface and various environmental conditions.

チェンバー内の空気をトリチウムサンプラーによって吸引するために、チェンバーの流出口としてチェンバーの短軸面にストップバルブを取り付けてある。チェンバーのもう一方の短軸面には、空気の流入口として 20 cm×12.5 cm の大きさの面積を開放してある。チェンバーの流入口周辺の空気を、ポリエチレンチューブを通してトリチウムサンプラー①に導く。また、チェンバー内の空気は、チェンバーの流出口のストップバルブを開き、ポリエチレンチューブを通してトリチウムサンプラー②に導く。

さらに、実験期間中熱電対を土壤に挿入し、土壤中深さ 25 cm と 50 cm の土壤温度を測定した。土壤の体積含水率を測定するために土壤水分測定システム (TRIME-SYSTEM、IMKO) を設置した。土壤の体積含水率を測定するためのプローブを地表面から深さ 20 cm、40 cm、60 cm 及びチェンバーを設置した地表面の下 5 cm、20 cm に埋めた。実験期間中、土壤温度と体積含水率を 1 時間間隔で測定した。また、温湿度計によって、地表面から高さ 2 m での空気中の温度及び相対湿度も連続的に測定した。

2. 2 実験場所

チェンバーは日本原子力研究所・東海研究所の構内に設置した。実験場所の写真を Fig.2 に示す。この場所を選んだのは、電源の確保、装置の運搬、保管などの融通性を加味した上である。この土壤は砂地であり、松の木を主体とした木々が生えている。

土壤を特徴づける要因として、100 cm³ の土壤を採取して土粒子密度を 2.65 g·cm³ として土壤の間隙率を間接測定した。土壤の間隙率は、土壤の相対的な間隙容積を示す指標となる。その結果、土壤の間隙率は、0.53±0.04 であった。一般的な砂質土壤の間隙率は 0.5 程度であると報告されているので^{(23),(24)}、この値は妥当な値である。

また、東海研構内で測定した土壤の粒度分布を Table 1 に示す⁽²⁵⁾。

Table 1 Soil particle size distribution in Tokai Research Establishment

Size [mm]	Depth [cm]			
	0—5	5—10	10—15	15—20
≥ 2	0.20	0.19	0.08	0.09
0.85—2	6.82	7.61	6.93	6.98
0.425—0.85	35.42	36.48	36.01	36.19
0.25—0.425	37.66	37.65	38.97	38.61
0.106—0.25	15.90	15.56	15.82	16.09
0.075—0.106	1.18	0.67	0.61	0.56
< 0.075	2.82	1.85	1.59	1.48



Fig.2 Surrounding environment set the chamber in Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute.

3. トリチウムサンプラー

3. 1 トリチウムの化学形別サンプリング方法

環境中のトリチウムの化学形別サンプリングでは、特に HTO に限った手法はいくつか報告されている⁽¹⁰⁾⁻⁽¹²⁾。具体的にはモレキュラーシーブ 4A、3A、シリカゲル、活性アルミナ、五酸化ニリン等の吸着剤を使用する手法、コールドトラップ法を用いて空気中の水蒸気を凝結させサンプリングする手法がある。しかし、HT を視野に入れた化学形別サンプリングでは、Pd 触媒などを用いて HT を水の形に酸化し、吸着剤により捕集する Ostlund などの手法が現在まで一般的に用いられており、また唯一の方法である⁽¹⁰⁾。本研究でもトリチウムの化学形別サンプリングで同様の手法を用いている。

3. 2 トリチウムサンプラーの概要

化学形別にトリチウム濃度を把握することは、それらの環境中での動態を知る上で、非常に重要である。本研究で着目している化学形は水蒸気状 (HTO) とガス状 (HT) である。トリチウムサンプラー⁽¹³⁾では、この 2 種の化学形を連続的かつ同時にワンスルー方式でサンプリングすることができる。同地点、同時間における化学形別濃度を定量することができ、作業面からもこれまでよりも効率化を図ることができる⁽¹⁴⁾⁻⁽¹⁶⁾。

Fig. 3 に、トリチウムサンプラーの流れ図を示す。

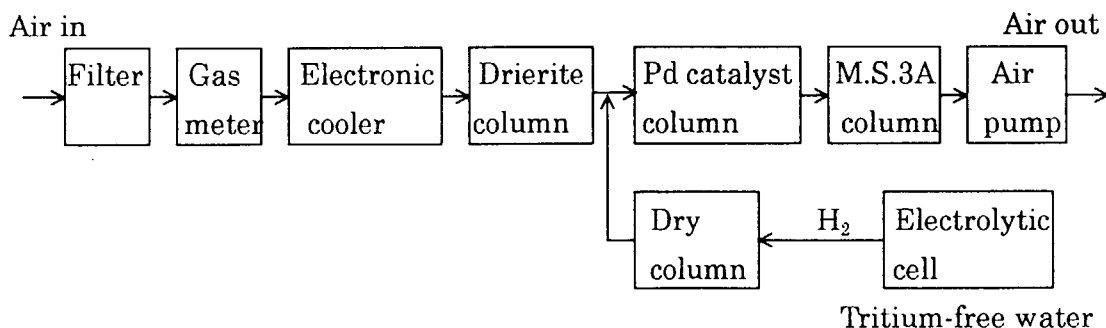


Fig. 3 Flow diagram of tritium sampler for collecting HTO and HT.

導入された空気は、まずフィルターを通ることによりエアロゾル、粒子が除去される。次に、流量計、積算流量計（乾式ガスメーター：DC-2C型、品川精機）を通り、電子冷却式除湿器（DH-26、協和科学）で3℃以下の露点まで冷却され、凝結水がフラスコ中に採取される。その後、サンプリング部分に空気が導入される。まず、硫酸カルシウムの無水物であるドライアライト（W.A.Hammond Drierite Co.Ltd., 10~20 mesh, 500 g）*で空気中の水分、すなわちHTOを捕集する。次に無トリチウム水を電気分解して得られる無トリチウム水素を添加し、Pdアルミナ触媒を用いて常温でHTを酸化し、水の形にする。ここで水素を添加するのは、空気中の水素の存在比が0.5 ppmと非常に低く、試料として得られる水の量が、空気1 m³あたり約0.4 mgと非常に少ないため、測定に十分な量の試料を確保するためである。ここで空気中のメタンは常温では酸化されない。HTに由来する水分は、触媒としても用いたPdアルミナ、その後段のモレキュラーシーブ3Aで捕集する。

トリチウムサンプラーに使用するカラム及び電解セルの容器、各カラム間の接続部分にはパイレックスガラスを使用し、各部位間の接続にはTygonチューブを用いている。無トリチウム水からH₂を生成する電解セルの電極にはニッケル電極を使用している。電解セル部分からのリークを防ぐために、シリコン製のゴム栓中に電極の端子部分及びガスの排気口が埋め込まれている。さらに、栓の上からテフロンテープを巻いて封をするようにしており、栓をすると排気口の部位以外は完全に密封状態となる。ここで用いる無トリチウム水は、一度もしくは複数回蒸留を行っているため、電解されやすいように電解質として過酸化ナトリウムを溶かし込み（無トリチウム水150 mLあたり0.75 g : 0.128M Na₂O₂）、弱アルカリ性としている。本装置ではガラスカラムを固定するために、塩化ビニル（PVC : PolyVinyl Chloride）製のカラムホルダーをサンプラー内に出し入れできる設計になっている。このホルダーは、電解セルカラムも含めて8本のカラムを固定することができる。

*ドライアライト

硫酸カルシウムの無水物である。吸着した水分の脱着には200~250℃で1~2時間、窒素で追い出すか、あるいは真空吸引する。脱着することにより繰り返し使用することが可能である。外見は無臭、無毒の白色の物質である。水分を吸収すると青色からピンク色へと変色するIndicatingドライアライトも市販されている。性能、性質はふつうのドライアライトと変わらない。（W.H.Hammond Drierite Co.Ltd. 技術資料）

3. 3 水の捕集

先にも述べたとおり、本研究で着目しているトリチウムの化学形は、水蒸気状 (HTO)、水素状 (HT) であり、これらはすべて水の形で捕集する。これは回収の容易さという点からはもちろん、そのまま液体シンチレーションの測定試料としても用いることができることから、その後のトリチウム測定においても有効である。

水の捕集方法としては、様々な手法が考案されている。その中でもトリチウムの化学形別サンプリングにおいては、固体吸着剤を使用した例が多く報告されている。固体吸着剤としてはその機械的強度、吸着性能などの点で優れているモレキュラーシーブ 3A、4A が一般的に用いられてきている。しかし、モレキュラーシーブは HT を酸化する傾向があることが最近報告された⁽¹⁷⁾。今回は HT の捕集も目的としており、空気中の水蒸気 (HTO) を捕集する箇所にモレキュラーシーブを使用した場合、通常的环境中では問題にはならないが、HT 濃度が HTO 濃度に比べて高い場合には、濃度を正確に評価することができなくなる。さらに、今後 CO₂ まで視野に入れて空気中の複数の化学形の分子をワンスルー方式で捕集することを考慮して、それらを吸着しないことが求められる。そこで今回 HTO 捕集に用いる吸着剤として、固体吸着剤のドライアライトを使用することにした。ドライアライトについては HT の酸化がほとんど見られないことが報告されている⁽¹⁷⁾。さらに、ドライアライトを充填したカラムに空気を流し、その排気中の CO₂ 濃度を赤外線式ガスモニター (CGT-7000 SHIMADZU, TG-1300A Bionic Instrument Co.Ltd.) で測定した結果から、ドライアライトが CO₂ を吸収しないことも確認している⁽¹³⁾。

HT 試料の捕集には、触媒としても用いている Pd アルミナ**とモレキュラ

**Pdアルミナ (N.E.ケムキャット社製)

Pd: 0.5wt%のペレット状を使用した。常温で水素酸化触媒として働くと共に、酸化により生じた水分の吸着剤としても働く。水分の脱着には 180~200°C で 1~2 時間加熱しながら、窒素ガスで押し出すか、真空吸引する。脱着を行うことで繰り返し使用することが可能である。しかし、低温でその酸化性能が低下することが報告されている。

ーシーブ 3A***を使用している。

***モレキュラーシーブ 3A、4A

ユニオンカーバイド社製の多孔質吸着剤で、有効分子径がそれぞれ 3A、4A 以下のものを捕集する。それ自体結晶構造なので機械的強度にも優れている。水分については最大で重量比約 20%まで、CO₂については 25°C、CO₂濃度 365ppmv の環境で 400g あたり約 8g まで吸着することができる。吸着物の脱着にはモレキュラーシーブを水の場合は 400~500°C、CO₂の場合は 350~400°C に加熱し、窒素ガスで押し出すか、真空吸引を数時間行う。しかしこの時間は分子の吸着量に依存する。脱着を行うことで繰り返し使用することが可能である。(ユニオン昭和(株)技術資料)

4. トリチウム濃度の定量方法

4. 1 トリチウム試料の回収方法

トリチウム試料はすべて水試料として捕集される。水試料を捕集する吸着剤には、HTO ではドライライトを、HT では Pd アルミナとモレキュラーシーブ 3A を使用している。吸着剤からの水分の回収は、まず吸着剤を加熱することにより吸着している水分を脱着する。その間高純度窒素 (N_2 : 99.999%) を流すことによって水分を押し流す。その後リービヒ冷却管に通し、水道水で冷却することによって凝結させて回収する。各吸着剤ごとの回収作業での温度は、ドライライトについては 200~225 °C、Pd アルミナについては 180~200 °C、モレキュラーシーブ 3A では 450 °Cで行う。モレキュラーシーブについては 400 °Cでかなり吸着量は減少する。しかし、管状炉内の温度勾配を考慮して高めの温度に設定した。回収作業に要する時間は吸着している水分量に依存し、1~2 時間程度である。この手法による取り漏れは全体の数%~30%程度までの幅である。この原因は回収時における回収場所の気温、湿度などと回収時間の関係から、冷却回収のために用いた水道水の水温によるものであると考えられる。回収率の全体の平均値は約 86%であり、回収率が 80%以上の場合の割合も測定回数の 86%を占めている⁽¹³⁾。さらにトリチウムの回収にあたっては、全体を通して測定に必要な量の 8 mL は回収できており、測定を行う上で問題はない。

なお、再使用のための吸着剤の乾燥を行う際にも、各種の吸着剤について上記と同様の条件、手法で行っている。

以下にトリチウム試料回収時の作業手順を示す。

1. あらかじめ使用するガラス器具を蒸留水で洗浄し、その後無トリチウム水でとも洗いし、よく乾燥させておく。
2. 使用するガラス器具、焼き出すカラムの質量をそれぞれ測定し、記録する。
3. 管状炉に焼き出しを行うカラムを置き、 N_2 ガスを流す。
4. ガラス器具をセットする。
5. N_2 ガスの流量を約 $200 \text{ mL} \cdot \text{min}^{-1}$ に設定する。

6. 冷却水を流し、管状炉の温度を吸着剤ごとに決めた値に設定する。
7. 脱着が終了したら管状炉内及びカラムが高温になっているため十分注意して、ガラス器具をはずし、各部位について質量を測定し記録する。
8. カラムが室温になるまで N_2 ガスを流しながら 2~4 時間待ち、室温になったらカラムの質量を測定し記録する。
9. カラムの質量変化から回収率を求める。

HT 試料は測定に必要な量を集めるために、Pd アルミナ、モレキュラーシーブ 3A に捕集された水分を合計して 1 試料としている。これに対して HTO 試料は電子冷却式除湿器から得られた凝結水とドライアライトカラム 2 本というように、測定を行う上で十分な量の 2 つの試料が得られる。この 2 つの試料間に測定上有意差が無いことが確認されている⁽¹³⁾。この結果から HTO 試料として、電子冷却式除湿器からの試料を HTO 試料として用いることでドライアライトカラムから試料を回収する手間を省くことができ、作業面での簡便化を図ることができる。

4. 2 トリチウム試料の測定

本研究では、水の形で得られたトリチウム試料を科学技術庁のトリチウム標準測定法⁽¹⁰⁾に従って測定している。液体シンチレーターとしては、キシレンベースの Aquasol-2 (New England Nuclear 社製) を用いた。水試料と液体シンチレーターをそれぞれ体積比 2 : 3 で混合し、3 日間安置した後、低バックグラウンド計数仕様の Aloka 社製液体シンチレーションカウンター LSC—LBⅢによって 50 分 22 回の繰り返し測定を行っている。試料調製後 3 日置くのは、ケミルミネセンスの影響を取り除くためである。22 回繰り返し測定のうち最初の 2 回を棄却する。これはサンプルに光をあてて直ちに測定するとりん光が発生し、計数が高くなることがあるためである。今回トリチウム試料の測定には、20 mL 低拡散 PE バイアル (Packard 社製) を使用している。

トリチウム試料測定におけるクエンチング補正法としては、標準試料として濃度既知のトリチウム水を液体シンチレーターと混合比を変えて混合した標準クエンチング試料を数サンプル用意し、外部標準線源比法 (ESCR 法) を用いている。ここでサンプルごとに水と液体シンチレーターの混合比を変えるのは、水自身がクエンチャーとして働くためである。

5. トリチウムフラックスの導出

Fig. 4 に示すモデルにおいて、チェンバー内のトリチウム収支について考える。

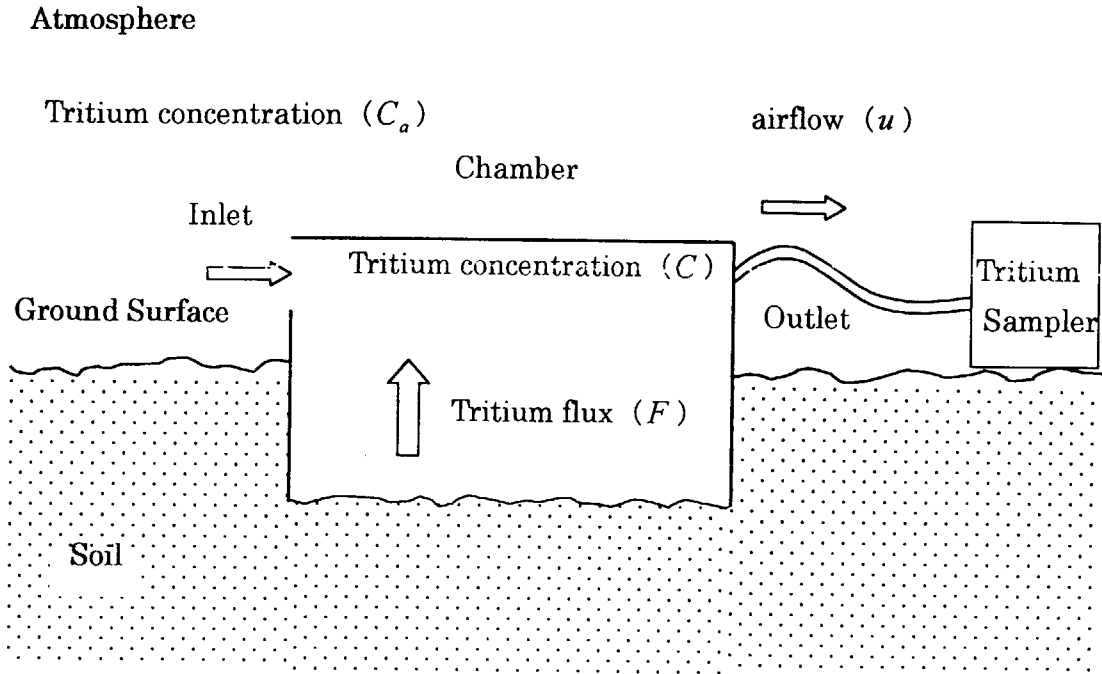


Fig. 4 Model for measuring the flux of tritium from the ground surface.

Fig. 4 に示すようなモデルにおいて、チェンバー内のトリチウム濃度の変動は次の式で記述できる。

$$\frac{dC}{dt} = \frac{F}{H} + \frac{C_a}{\nu} - \frac{C}{\nu} \quad (1)$$

ここで、 C [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]はチェンバー内のトリチウム濃度、 C_a [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]は周辺空気中のトリチウム濃度、 F [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$]は地表面からチェンバー内へのトリチウムフラックス、 H [m]はチェンバーの高さである。 ν [s]はチェンバー内の空気がトリチウムサンプラーの吸引によって交換されるのに必要な平均時間である。チェンバー内空気が交換される平均時間 ν は $\nu = V/u$ で表わされ、 V [m^3]はチェ

ンバーの体積、 $u [\text{m}^3 \cdot \text{s}^{-1}]$ はトリチウムサンプラーの吸引の空気流量である⁽²⁰⁾。

式 (1) は、チェンバー内のトリチウム濃度の変動が、地表面からのトリチウムフラックスと、周辺空気からチェンバー内へ流れ込むトリチウムと、トリチウムサンプラーへ吸引されるトリチウムに起因するということを示している。

野外環境では、時刻 0 でのチェンバー内のトリチウム濃度は周辺空気中のトリチウム濃度と等しいと仮定することができる。この仮定のもとで式 (1) を解き、次の解を得る。

$$C(t) = C_a + \frac{F}{H} v \left(1 - \exp \left[-\frac{t}{v} \right] \right) \quad (2)$$

式 (2) の両辺をトリチウムサンプラーによる空気のサンプリング時間 T まで積分して、次式を得る。

$$\int_0^T C(t) dt = \left(C_a + \frac{F}{H} v \right) T - \frac{F}{H} v^2 \left(1 - \exp \left[-\frac{T}{v} \right] \right) \quad (3)$$

ここで、サンプリング時間 T が、チェンバー内の空気が交換される時間 v に比べて十分大きい場合は、式 (3) の右辺第 2 項の $(1 - \exp[-T/v])$ を近似的に 1 とすることができ、左辺もサンプリング期間中の平均濃度 $\bar{C} [\text{Bq} \cdot \text{m}^{-3}]$ を用いて近似的に $\bar{C} \cdot T$ とすることができる。以上より、式 (3) を整理すると次のようになる。

$$\bar{C} = C_a + \frac{F}{H} v \left(1 - \frac{v}{T} \right) \quad (4)$$

式 (4) から、地表面からのトリチウムフラックス F について整理して、次の式を得ることができる。

$$F = \frac{H \cdot T}{v(T-v)} (\bar{C} - C_a) \quad (5)$$

6. 結果と考察

トリチウムサンプラー①、②による空気サンプリングを 1998 年 7 月 13 日から 17 日、1998 年 9 月 10 日から 14 日のそれぞれ 4 日間で行った。Fig. 5, 6 にそれぞれの実験期間の大気中の温度、土壌中の温度、大気中の相対湿度、気圧、土壌の体積含水率の変動を示す。7 月 13 日からの実験では、大気中の温度は 15 から 21 °C の範囲で日変動していた。地表面から深さ 25 cm ではわずかな日変動が認められるものの、50 cm の土壌中の温度は日周期の変化はなく、その範囲は 20 から 22 °C であった。9 月 10 日からの実験では、チェンバー内の温度、湿度、気圧も測定している。チェンバー内の温度、湿度ともに大気中よりも高い値で変動していた。両実験期間ともに大気中の相対湿度は大気の温度と反対の位相で日変動を示した。土壌の体積含水率は経過時間とともに徐々に減少した。これは実験期間中に降雨はなかったので、土壌水分の土壌から大気への水の地表面からの蒸発と重力による下方移動のためであると考えられる。

両実験期間のトリチウムサンプラーによって得られた結果を Table 2, 3 に示す。

HT 濃度は、空気 1 m³あたりの HT 濃度は流出口より流入口の方が高い値で得られた。上述のトリチウムフラックスの式 (5) と実験によって得られたトリチウム濃度から、土壌への HT フラックスはそれぞれの実験に対して $(4.2 \pm 2.6) \times 10^{-7} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $(6.6 \pm 3.8) \times 10^{-7} \text{ Bq} \cdot \text{m}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$ と算出された。

HT は水に容易に溶けないので、HT は土壌間隙中の気相を通過して移行する。環境中では、HT は主に土壌中の水素酸化能を持つ微生物によってすばやく HTO に酸化される^{(8),(9)}。この酸化作用には最適な温度や含水率があることが報告されている⁽⁸⁾。酸化速度は地表面表層に近づくほど大きくなる傾向があるので⁽¹⁰⁾、ほとんどの HT は、地表面近傍の土壌中で酸化され、その後、HTO として土壌中を移行する。

HTO を含む土壌水は、重力によって降下し、さらに土壌水は毛管力や植物の根による吸い上げなどによって深さ方向に混合される。地表面表層では、HTO の一部は蒸発によって地表面から大気中へ放出される。また、例えば土壌—大気間で正味の水分輸送が生じない場合でも、HTO は濃度の高いところから低いところに拡散する。

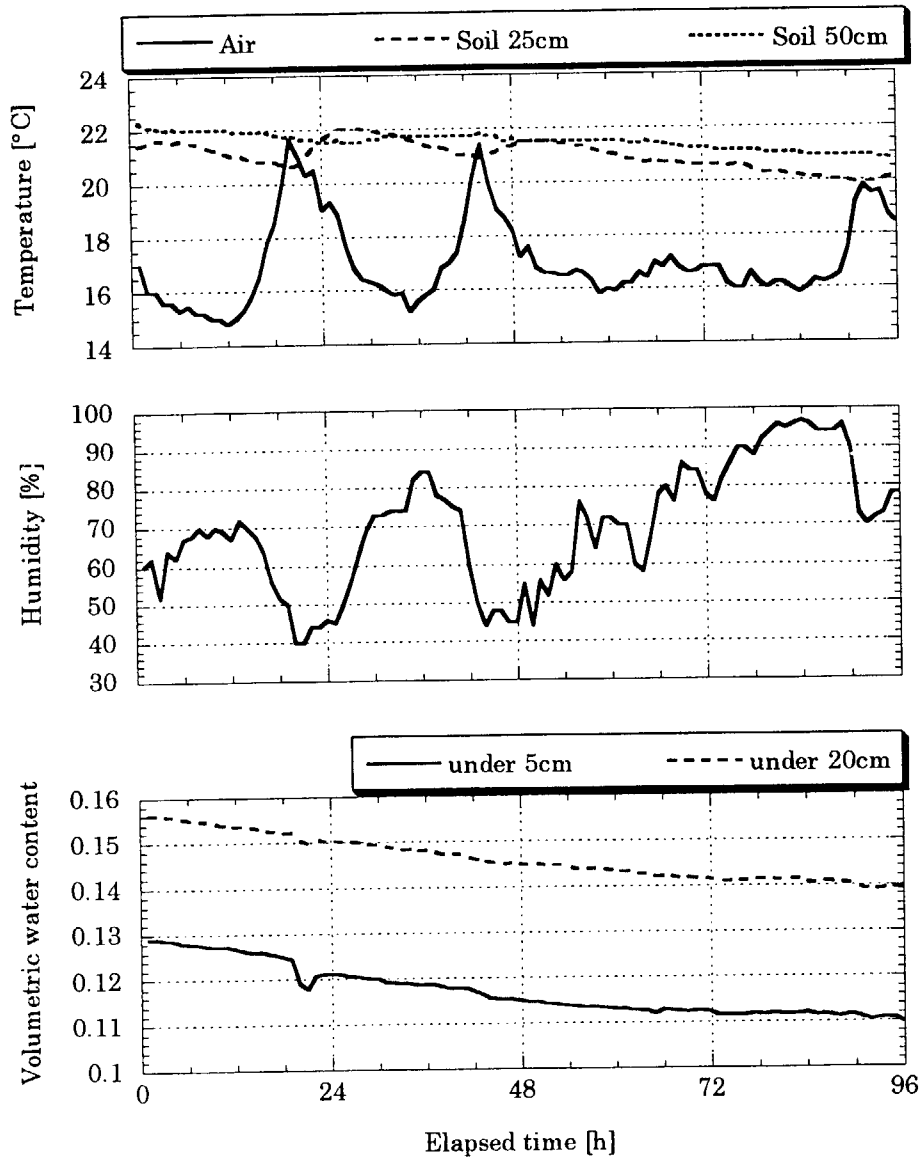


Fig.5 The variation of atmospheric and soil temperature, atmospheric relative humidity and volumetric water content in soil for the experimental period from 13 July 1998.

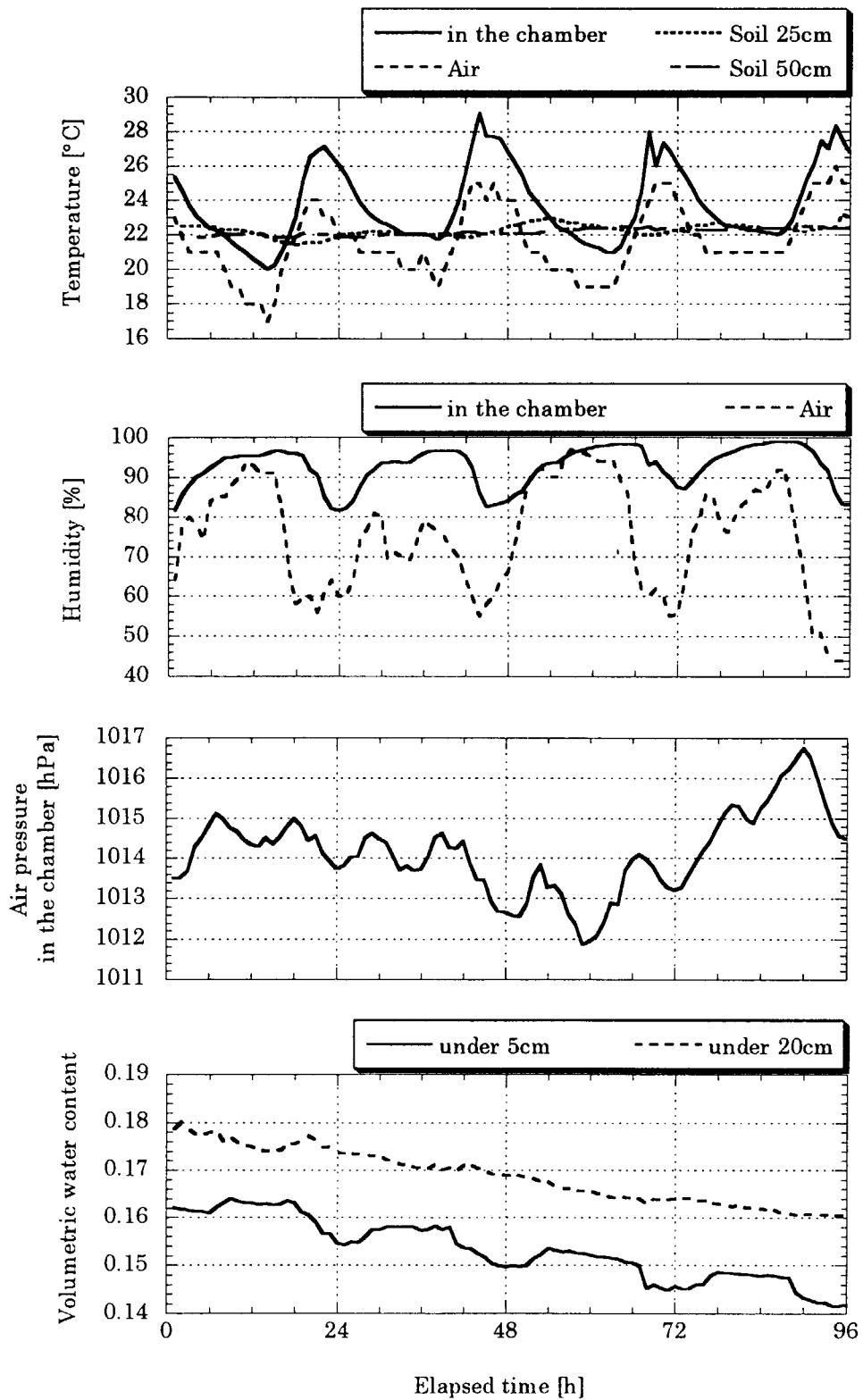


Fig.6 The variation of atmospheric and soil temperature, atmospheric relative humidity, air pressure and volumetric water content in soil for the experimental period from 10 September 1998.

Table 2 Experimental result for the period from 13 to 17 July 1998.

	Inflow gate (Sampler①)	Outflow gate (Sampler②)
The amount of collected water vapor [g]	17.7	38.5
The amount of water vapor per 1m ³ -air [g]	6.3	13.7
HTO concentration per 1L-water [BqL ⁻¹]	3.5±0.5	3.5±0.5
HTO concentration per 1m ³ -air [mBqm ⁻³]	21.8±3.3	47.7±7.1
HT concentration per 1m ³ -air [mBqm ⁻³]	57.8±2.3	43.0±6.9

Integrated air volume and air flow rate are converted into 2.82 m³ and 0.48 Lmin⁻¹.

Table 3 Experimental result for the period from 10 to 14 September 1998.

	Inflow gate (Sampler①)	Outflow gate (Sampler②)
The amount of collected water vapor [g]	—	—
The amount of water vapor per 1m ³ -air [g]	—	—
HTO concentration per 1L-water [BqL ⁻¹]	4.1±0.5	6.4±0.6
HTO concentration per 1m ³ -air [mBqm ⁻³]	—	—
HT concentration per 1m ³ -air [mBqm ⁻³]	46.7±11.3	19.7±4.4

Integrated air volume and air flow rate are converted into 2.36 m³ and 0.40 Lmin⁻¹.

地表面近傍における HT の挙動を評価するために、拡散によって HT が大気から土壌に取り込まれる速度と HT が土壌中の微生物によって HTO に酸化される速度を明確にする必要がある。これら 2 つの過程を含めた速度は、一般に土壌への HT 沈着速度と呼ばれている。今回の実験において、HT 沈着速度は、HT フラックスを地表面付近の空气中 HT 濃度で割ることによって得ることができ、その値は、それぞれ $7.3 \times 10^{-6} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $1.4 \times 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ であった。

これまで、フランスやカナダで HT 野外放出実験が行われている。このような HT を人工的に放出した場合での HT 沈着速度が、 $8.0 \times 10^{-5} \sim 12 \times 10^{-4} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ という値で報告されている^{(8),(9),(21)}。また、F.S.Spencer and L.Vereecken(1994)によるトリチウムソースを用いたチェンバー実験では、HT 沈着速度が $1.1 \times 10^{-5} \sim 3.3 \times 10^{-4} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ の値で報告されている⁽²²⁾。今回の実験によって得られた自然環境における HT 沈着速度は、HT 放出実験で得られた人工的に HT が放出された環境で測定された HT 沈着速度に比べて 2 桁程度低かった。また、トリチ

ウムソースを用いたチェンバー実験で得られている値の最低値とほぼ同じか幾分か小さな値であった。このように小さな値が得られた原因としては、今回土壌を 25 cm 掘り下げて測定したことが考えられる。土壌の微生物は表層土壌に多く存在する。土壌を掘り下げた状態で数ヶ月間放置した後に測定したが、新たな地表面での微生物の数が十分増えずに、HT 沈着速度が小さくなったのかもしれない。

また、Spencer らの実験土壌は、深さ 0—22 cm の土壌の水分量（土壌の乾燥重量あたりのパーセント）は 30 %前後であるのに対して、この土壌の深さ 5 cm、20 cm の水分量は 7 月 13 日の実験では 10.4 %、12.5 %、9 月 10 日の実験では 13.0%、14.3%と大変低かった。土壌のトリチウムガス酸化活性が水分量 20~30 %で最も大きく、10%程度では最大酸化活性の 1/10 程度であることが報告されている^{(8),(9)}。このように今回の HT 沈着速度が小さかったのは、土壌の水分量に依存している可能性も考えられる。

本測定手法では、これまで行われてきたような HT ソースを使用しなくても HT 沈着速度を測定することが可能であり、このことは大きなメリットである。また、HT 放出実験のような大規模な実験を行わなくても、どのような場所でも、比較的容易に HT 沈着速度を得ることができる。しかし、環境中の HT 濃度が低いため、沈着速度が小さい場所での測定は信頼性が乏しく、数回にわたって測定することが望まれる。以上のことから、本手法は HT 沈着速度の簡便な測定法として極めて有効であると言える。

7. まとめ

土壌—大気間の HT フラックスを測定するために、透明アクリル製のチェンバーと空気中の HTO 及び HT をそれぞれ同時に捕集することのできるトリチウムサンプラーを 2 台用いて、2 度の実験を行った。この実験で得られたトリチウム濃度とトリチウムの濃度変動式の解から、大気から土壌への HT フラックスを得ることができた。また、HT フラックスと大気中の HT 濃度より、HT 沈着速度を $7.3 \times 10^{-6} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $1.4 \times 10^{-5} \text{ m} \cdot \text{s}^{-1}$ という値で得ることができた。これは、HT 放出実験で得られた HT 沈着速度に比べてかなり低い値であった。また F.S.Spencer らによって行われた HT ソースを用いたチェンバー実験で得られた値よりも低い値であった。今回土壌を 25 cm 掘り下げて測定しているために、微生物の生息数や活動といった面で実際の地表面環境を反映していない恐れがある。この点が、HT 沈着速度が小さかった原因の一つであろう。また、土壌の水分量に依存している可能性も考えられる。

本測定手法を用いることによって、これまで行われてきたような HT ソースを使用しなくても HT 沈着速度を測定することが可能であることが示唆された。HT 放出実験のような大規模な実験を行わなくても、どのような場所でも、比較的容易に HT 沈着速度を得ることができる。一方、環境中の HT 濃度が低いため、沈着速度が小さい場合は信頼性が乏しく、数回にわたって測定することが望まれる。

謝 辞

本論文を作成するにあたり有益なご意見をくださった保健物理部 内部被ばく防護研究室の野口宏研究室長に感謝の意を表します。名古屋大学 工学部 飯田孝夫教授には、本研究の機会を与えて頂いたことに感謝致します。

参考文献

- (1) トリチウム資料集・核融合特別研究総合総括班事業.(1998).
- (2) 佐伯 誠道：環境放射能,ソフトサイエンス社(1984).
- (3) 坂上 正信：トリチウムの環境動態,核融合研究,第 54 巻第 5 号,498-511(1985).
- (4) 成瀬 雄二：トリチウムの大量取扱い技術について,保健物理,17,527-538(1982).
- (5) 吉田 芳和,成瀬 雄二：核融合研究におけるトリチウムの安全取扱いとモニタリング,Radioisotope,vol.27,No.3,40-52(1978).
- (6) 西川 正史,山本 行則,松永 総一：トリチウム化メタンの触媒酸化,日本原子力学会誌,vol.25,739-746(1983).
- (7) 村田 幹夫,野口 宏：自然環境未擾乱土壌中における HT ガス転換係数および HTO への転換速度定数の推定,日本原子力学会誌,vol.34,No.2(1992).
- (8) 特集 トリチウムの影響と安全評価,日本原子力学会誌,vol.39,No.11(1997).
- (9) 野口 宏,加藤 正平：環境中におけるトリチウムガスのトリチウム水への転換(文献調査),保健物理,20,49-59(1985).
- (10) トリチウム分析法,科学技術庁(1977).
- (11) 大気・環境水中長半減期核種の挙動・分布に関する調査研究,(財)原子力安全協会(1984).
- (12) 天野 光：大気中放射性核種の測定法の開発、環境動態、内部被曝に関する研究,JAERI-Research,96-029(1996).
- (13) 駒 知孝：空気中 ^3H 、 ^{14}C の化学形同時サンプリング装置の開発,名古屋大学大学院工学研究科修士論文(1997).
- (14) Yoshikazu INOUE, Bernd KAHN and Melvin W. CARER : Performances of an Atmospheric Tritium Sampler and its Application, Hoken Buturi, 18, 119-127(1983).
- (15) T.OKAI, Y.TAKASHIMA : Analytical Method for Atmospheric Tritium with A Portable Tritium Sampling System, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, articles, vol.130, No.2, 399-407(1989).
- (16) Y.Ichimasa, M.Ichimasa, H.Jiang and K.Katsuno : *IN VITRO*

- Determination of HT Oxidation Activity and Tritium Concentration in Soil and Vegetation During The Chronic HT Release Experiment at Chalk River, Fusion Technology, vol.28,877-882(1995).
- (17) W.J.G.Workman, R.M.Brown and M.J.Wood : Environmental HTO/HT Sampler Development, AECL-10446, CFFTP-G-91103(1992).
- (18) 石川 寛昭, 液体シンチレーション測定法, 南山堂(1977).
- (19) 低バックグラウンド液体シンチレーションシステム, LSC-LBⅢ取扱説明書, アロカ株式会社.
- (20) F.Di.Francesco, R.Ferrara and B.Mazzolai : Two ways of using a chamber for mercury flux measurement—A simple mathematical approach, The Science of the Total Environment, 213,33-41(1998).
- (21) DJERASSI Henri and GULDEN Werner : Overview of The Tritium Release Experiment in France, Fusion Technology, vol.14,1216-1221(1988).
- (22) F.S.Spencer and L.Vereecken-Sheehan : HTO Concentration Relationships Between Air, Soil and Vegetation and Seasonal Dependence of HT Deposition To Soil, Ontario Hydro Technologies Report No. A-NBP-94-36-K, COG 94-239(1994).
- (23) 中野 政詩 : 土の物質移動学, 東京大学出版会(1991).
- (24) Daniel HILLEN : 土壌物理学概論—土と水の科学—, 養賢堂(1984).
- (25) 野口 宏 : 私信.

This is a blank page.

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光束	ルーメン	lm	cd·sr
照度	ルクス	lx	lm/m ²
放射能	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV = 1.60218 × 10⁻¹⁹ J

1 u = 1.66054 × 10⁻²⁷ kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バル	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å = 0.1 nm = 10⁻¹⁰ m

1 b = 100 fm² = 10⁻²⁸ m²

1 bar = 0.1 MPa = 10⁵ Pa

1 Gal = 1 cm/s² = 10⁻² m/s²

1 Ci = 3.7 × 10¹⁰ Bq

1 R = 2.58 × 10⁻⁴ C/kg

1 rad = 1 cGy = 10⁻² Gy

1 rem = 1 cSv = 10⁻² Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局 1985年刊行による。ただし, 1 eV および 1 uの値はCODATAの1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクターも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N (=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s (N·s/m²) = 10 P (ポアズ) (g/(cm·s))

動粘度 1 m²/s = 10⁴ St (ストークス) (cm²/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg (Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal (計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1

1 cal = 4.18605 J (計量法)
 = 4.184 J (熱化学)
 = 4.1855 J (15 °C)
 = 4.1868 J (国際蒸気表)
 仕事率 1 PS (仏馬力)
 = 75 kgf·m/s
 = 735.499 W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

大気から土壌へのH₂T沈着速度の新しい測定方法