

小特集

核融合炉内外におけるトリチウムの挙動

6. 自然環境中トリチウム挙動

新 麻里子, 天野 光, 一政満子¹⁾, 一政祐輔¹⁾, 柿内秀樹²⁾, 佐久間洋一³⁾, 野口 宏,
久松俊一⁴⁾, 百島則幸²⁾, 横山須美

(日本原子力研究所, 茨城大学理学部¹⁾, 九州大学理学部²⁾, 核融合科学研究所³⁾,
環境科学技術研究所⁴⁾)

(1997年11月11日受理)

Tritium Behavior in the Environment

ATARASHI Mariko, AMANO Hikaru, ICHIMASA Michiko¹⁾, ICHIMASA Yusuke¹⁾,
KAKIUCHI Hideki²⁾, SAKUMA Yoichi³⁾, NOGUCHI Hiroshi, HISAMATSU Shun'ichi⁴⁾,
MOMOSHIMA Noriyuki²⁾ and YOKOYAMA Sumi

Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute, Ibaraki 319-11, Japan

¹⁾*Faculty of Science, Ibaraki University, Mito 310, Japan*

²⁾*Faculty of Science, Kyushu University, Fukuoka 812, Japan*

³⁾*National Institute for Fusion Science, Toki, Gifu 509-52, Japan*

⁴⁾*Institute for Environmental Sciences, Rokkasho, Aomori 039-32, Japan*

(Received 11 November 1997)

Abstract

Many studies have been carried out on environmental tritium behavior, including tritium concentrations in the surface water and in the precipitation. You can read the results according to the references. In this chapter, we try to describe what is going on in this field. Especially, the chemical change of tritium gas into water vapor and tritium release experiments in the environment are explained with a discussion of the important in result conversion of tritium gas by microbes in the soil.

Keywords:

tritium, environmental tritium, OBT, FWT

6.1 はじめに

多くの核融合の研究者にとって環境トリチウムはあまりなじみがないかも知れない。環境中のトリチウム動態、特に地表水や降水のトリチウム濃度測定については多くの研究がなされ発表されている。参考文献を多くあげておくので詳しくはそれらを読んでいただきたい。したがって、ここではそれらについてはごく簡単に触れるにとどめ、現在行われている最先端の研究について研究者が自ら解説する。多くの研究者が書き、現在進行中の研究が多いので整合性に欠ける面もあることを容赦されたい。

6.2 環境トリチウム濃度

6.2.1 水圏・気圏のトリチウム濃度

環境中のトリチウムには、大気上層で起こっている大気と宇宙線の核反応により生成しているもの、1950-60年代に行われた大気圏内核実験により環境へ放出されたものおよび原子力発電所や核燃料再処理施設から放出されるものなどがある[1]。

核実験開始前に行われた環境トリチウムの測定結果を見ると、トリチウムレベルは、雨、河川水、海水の順に低くなり、大気上層の発生源を反映していた[2]。核実

験開始以降、環境トリチウムレベルは核実験の数と規模に支配されることになり、1963年の部分的核実験禁止条約締結までに天然起源の200倍以上のトリチウムが放出されたと推定されている。大気中に放出されたトリチウムの一部は成層圏に達し、天然起源のトリチウムと同様に雨として地表面にもたらされた。世界各地で行われた雨のトリチウム濃度の測定は、地球規模での大気循環に関する様々な知見を与えた。雨のトリチウム濃度は、条約が締結された年の1963年に最高値に達し、その後は減少していったが[3]、成層圏から対流圏へのトリチウムの移行に伴う季節変化が雨には認められ、春のトリチウム濃度の極大は“スプリングピーク”と呼ばれた。また、トリチウム濃度は極地方が高く赤道が低いという緯度効果や、海洋性気候の地域は、海洋の希釈効果により大陸性気候の地域よりトリチウム濃度が低いことなどが明らかになった[4]。

我が国でも、1950-1970年代に核実験に伴う大きなトリチウムレベルの変動が雨に見いだされている[5]。1980年代以降から現在までの変動を見ると、Fig. 1に示す岐阜県土岐市周辺の河川水のように、トリチウム濃度は1980年代中頃までは減少傾向にあった。しかし、その後は一定レベルを示している。同様な傾向は本邦各地で測定された雨にも見いだされている[6]。(最近の値は通常の液シン測定法の約 $0.85 \text{ Bq } \ell^{-1}$ の測定限界以下の値が多く、平均値が求められていないが、およそ $0.9 \text{ Bq } \ell^{-1}$ 程度と考えられる。) 1980年代中頃までの減少は、核実験により大気上層に注入されたトリチウムの降下によるものであるが、トリチウムレベルがその後は一定を示していることから、核実験由来のトリチウムはもはや大気上層にはほとんど残っていないと考えられる。最近の雨のトリチウムレベルが、核実験以前に測定された神戸の雨に近いことも、雨のトリチウムが天然レベルに戻ったことを示唆している。核実験由来のトリチウムの大部分はすでに深層地下水や海洋に移行しているが、大陸内部では蒸発と降雨の繰り返しにより水が長く滞留するため、海洋性気候のわが国よりトリチウムレベルが高い。中国大陸では高いトリチウム濃度の雨が観測されているが、最近のわが国の雨のトリチウム濃度は、大陸からの気団の影響を受けていることが報告されている[7]。

大気中にトリチウムは、水蒸気、水素、炭化水素(ほとんどメタン)として存在している。大気中の水蒸気濃度は湿度と気温で大きく変化するが、水素やメタン濃度の変動は少ない。わが国で測定された大気1立方メートル中のトリチウム濃度の年平均値は、水素、水蒸気、メ

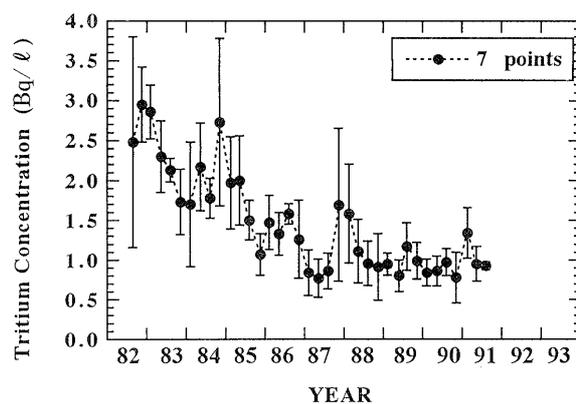


Fig. 1 Tritium concentrations in rivers at Toki.

タンの順で、3倍程度の違いがある[8]。しかし、それぞれの化学形の比放射能は大きく異なり、水素 = $10^5 - 10^6 \text{ TU}$ 、メタン = 10^4 TU 、水蒸気 = 10^1 TU ($1 \text{ TU} = 10^{-18}$ トリチウム/水素) の順で、オーダが違っている。3つの化学形でこのように大きく比放射能が違う理由は明らかではないが、水蒸気は陸水と同じ比放射能を示している。少なくとも大気中におけるこれらの化学形の相互変換は極めて遅いといえる。大気中の水素やメタンは第4節で詳しく述べるように、土壌表面の微生物活動により酸化されて水に変化している。土壌水のトリチウム濃度は生成した水により増加し、そして蒸発や雨により希釈される。このようなトリチウムサイクルが土岐の松林の表層に見いだされている[9]。環境水を光合成に利用する植物は、その時の環境トリチウムレベルを反映することが、樹木年輪のトリチウム測定から明らかになっている[10]。年輪中のトリチウム濃度は、雨のトリチウム濃度の経年変化に対応していた。

これまで、環境トリチウムは核実験由来のトリチウムの寄与を大きく受けていたが、今後は核エネルギーの平和利用に伴う寄与が増加していくと予想される。ITERのトリチウム量は、地球上に存在している天然起源のトリチウム量に匹敵すると見積もられている。

(百島則幸)

6.2.2 食品・人体中トリチウム

食品・人体中トリチウムは自由水トリチウム (FWT: Free Water Tritium) と有機結合型トリチウム (OBT: Organically Bound Tritium) に分類できる。自由水トリチウムは生体中の細胞内外の自由水に HTO の形で存在するトリチウムであり、水とほとんど同様の挙動を取る。

一方、有機結合型トリチウムは、有機物の C-C 骨格に直接結合している非交換型トリチウムと、 $-COOH$ や $-OH$ 基等の一部として存在し、容易に自由水と交換する交換型トリチウムからなる。ICRP [11]では、HTO を摂取した場合、97%は10日の生物学的半減期で減少し、3%が40日の生物学的半減期を持つとしている。この3%の部分はOBTに変換されたトリチウムであるが、OBTを直接摂取した場合には、50%が直ちにFWTに分解され、50%がOBTとしてそのまま代謝されるとしている。これらのパラメータを用いた場合、OBTはFWTと比較して体内に長く留まりやすく、同量のトリチウムを1回摂取した場合、OBTの線量はFWTの2.5倍となる。このため、線量評価上はFWTとOBTを分けて考えるのが望ましい。ただ、食品中の有機結合型水素が飲料水を含む全水素摂取量に占める割合は約10%と見積もられており[12]、食品中のFWTとOBTが平衡状態にあれば、トリチウム摂取量に占めるOBTの寄与は大きなものではない。また、FWTからOBTへの生物濃縮は認められておらず、むしろ、トリチウムは軽水素に比較して有機物に取り込まれにくい[13]。

しかし、大量トリチウム取り扱い施設の事故時のような場合には、食品中OBTの被曝線量への寄与は大きくなり[14]、食品からの線量の大部分をOBTが占めるようになる試算結果もある[15]。このため、食料となる動植物におけるFWTからOBTへの移行速度、動物がOBTを摂取した場合の代謝挙動などの重要なパラメータを整備する必要がある[13]。また、環境から農作物へのトリチウム移行を支配するパラメータについても同様である[16]。さらには、人体におけるOBTの代謝挙動についても[17]、より多くの知見を集める必要がある。

最近の人体中のトリチウム濃度レベルについては日本各地の血液試料を分析した結果が発表されており[18]、FWT、OBTの平均濃度はそれぞれ $1.4 \pm 0.4 \text{ Bq } \ell^{-1}$ と $1.0 \pm 0.4 \text{ Bq } (\ell\text{-燃焼水})^{-1}$ *であった。また、OBT濃度では、南に低く、北に高い緯度効果が認められている。

OBTの生物学的半減期が長いことを利用して環境トリチウムモニタリングの際に指標として用いることも可能であり、原子力施設周辺の松葉[19]などがよく用いられるが、Hisamatsuら[20]は米を用いた結果を最近発表している。それによれば、国内の原子力施設周辺で収穫された米のOBTを分析し、最大で $4.8 \text{ Bq } (\ell\text{-燃焼水})^{-1}$ と対照地域に比較して約4倍の濃度を観測している (Fig. 2)。なお、摂取するすべてのトリチウムの比放

*凍結乾燥試料を燃焼し、生成させた水のトリチウム濃度：FWT比放射能との比較のため、OBT濃度単位として一般的に使用されている。

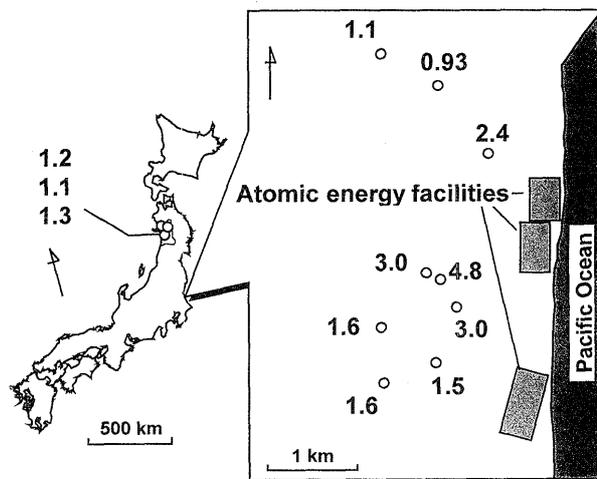


Fig. 2 Organically-bound ^3H concentration in rice samples collected around atomic energy facilities.

射能がHTO濃度換算で $5 \text{ Bq } \ell^{-1}$ になったとしても、その被曝線量は自然放射線の1/2,000以下である。また、現在では対象地域の4倍の濃度であるとはいえ、1960年代を中心に行われた核実験の結果、1964年には東京の降水中トリチウム濃度が $190 \text{ Bq } \ell^{-1}$ を記録しており[21]、 $5 \text{ Bq } (\ell\text{-燃焼水})^{-1}$ 前後の濃度は1979年産の対照地域の米OBT[22]でも認められていることが付け加えられている。(久松俊一)

6.3 環境におけるトリチウムの化学型変換

6.3.1 海水、湖水のトリチウムガスの酸化と酸化菌

国土の周辺を海に囲まれているにもかかわらず、トリチウムガス (HT) が事故時に環境へ放出された際に、沿岸海水や湖水面でどの程度の速度でトリチウム水 (HTO) に変換されるかに関する情報はまったくないことから、公衆の被曝線量を評価する上で酸化速度の研究は重要な課題である。一方微生物学的研究で、海水[23]や湖水から水素ガス酸化菌が分離され、同定されている。したがって日本の沿岸海水と茨城県霞ヶ浦および北浦の湖水を用いてHTの酸化活性を測定した。海水の採水は北海道苫小牧港、青森県泊港、秋田県秋田港、新潟県新潟港、茨城県大洗港、とし湖水は茨城県霞ヶ浦、および北浦で採水した。海水および湖水を実験室に持ち帰りHTの酸化活性を測定したところいずれの海水および湖水でも 8°C の温度条件で48時間まで生成するHTOはほぼ直線的に増加し、海水や湖水がHTを定量的に酸化することが明らかになった。湖水のHT酸化活性は海

水の11~15倍高く、地域によって海水の酸化活性に1~8倍の差異が見られた。この酸化活性の差異は沿岸海水への生活用水の河川を介しての流入の程度、また海水や湖水中の微生物の季節的な変化によっても考えられる。海水、湖水を高圧蒸気滅菌処理を行うことによってHTの酸化活性は著しく低下した。海水と湖水を高栄養培地と低栄養培地を用いて細菌数を計測したところ、海水、湖水ともに低栄養培地で細菌の出現数が多い傾向がみられた。また海水の菌数が $10^2 \sim 10^3$ 個/mlであるのに対して、湖水では 10^4 個/mlであった。HT酸化活性を持つ細菌は、海水では248菌株中から12菌株見つかり出現率は4.8%、湖水では371菌株中から62菌株見つかり出現率は16.7%であった。これらのHT酸化細菌を走査型電顕で観察した結果、多くは短桿菌であった。以上の結果から海水や湖水でのHT酸化活性は土壤に比較すると遥かに低いことが明らかになったが[24]、HTやHTOの海水や湖水への沈着移行係数が大きいことを考慮すると、環境を総合的に評価できる野外実験が行われるのが望ましい。(一政祐輔)

6.3.2 土壤・植物からのトリチウムガス酸化菌の分離・同定

環境中のトリチウムガスは主として土壤等の微生物の働きで酸化されてトリチウム水に変換される。土壤でのトリチウムガスの酸化は水素酸化酵素(ヒドロゲナーゼ)を持つ細菌によって起ること、酵素ヒドロゲナーゼの生化学的研究から細菌の細胞内では膜結合型のタイプと可溶性型タイプがあることも明らかになった。環境に放出されたトリチウムガスの環境動態を解明するためには、土壤でのトリチウム酸化菌の分布状態を知る必要がある。トリチウムガス酸化活性の土壤深度分布を測定すると、表層(0-5 cm)が最も高く、深さとともに活性が低くなり[25,26]、その活性は嫌気条件よりも好気条件下で活性が高くなった[25]。そこで表層土壤について多様な土壤細菌を分離するために栄養条件の異なる複数の培地を用いて好気条件下で多くの細菌を単離し、トリチウムガス酸化活性を持つ細菌を選別すると、富栄養培地では多くの細菌が分離されたが、トリチウムガス酸化菌は非常に少なく、貧栄養培地ではトリチウムガス酸化菌が茨城県などの水田や畑の土壤の場合平均すると18%程度の出現率で分離された。これらの酸化菌の酸化活性の程度は多様で低いものから非常に高いものまでであるが、そのほとんどがグラム陽性菌で、形態を見ると気菌糸と基生菌糸を持つ放線菌であった。放線菌はさまざまな形態分

化をした細菌類で非常に多くの属があり、そのなかのどの属であるかを同定するには、光学および走査電子顕微鏡による形態学的特徴と各種菌体成分の分析結果による化学分類が行われている[27]。さらに種の同定にはそれらに加えていろいろな生理生化学性状を調べた。トリチウムガス酸化活性の高い放線菌分離菌株について、細胞壁ペプチドグリカンのDAP異性体分析、菌体の糖成分とリン脂質成分の分析を行ったところ、その多くはDAP異性体はLL型で細胞壁タイプはI型、リン脂質タイプはPII型、気菌糸は互性で、分節胞子が形成されることから*Streptomyces*属と同定され、それらのほとんどが異なる種であった。一部の放線菌ではDAP異性体がmeso型で全菌体糖成分はC型で細胞壁タイプはIII型、リン脂質タイプはPII型で、化学分析の結果と形態学的特徴から一致する属が見当たらないものもある。

松葉など植物の葉は通常きわめて弱いトリチウムガス酸化活性しかないが、苔や地衣は土壤の1/10程度のトリチウムガス酸化活性を持つ[28]ので、苔からトリチウムガス酸化菌を分離した。分離菌株の一部について化学分類を行っているが、いずれも*Streptomyces*属の放線菌であった。今後さらに自然界におけるトリチウムガス酸化菌の微生物学的な特性と分布を明らかにすることによって、より合理的なトリチウムの環境動態モデルと公衆被曝線量評価システムを完成させ公衆の安全性を確保するとともに、これらの微生物の特異な能力を利用することによって環境保全の進展に寄与できる可能性がある。(一政満子)

6.4 トリチウムの野外放出実験

6.4.1 カナダ、チョークリバーでのトリチウムガス放出実験

6.4.1.1 大気中HTOの濃度変化

カナダ、チョークリバー研究所において、1994年7月27日から8月8日までの約12日間、トリチウムガス(HT)を連続的に放出する野外実験を行った。実験場と放出方法の詳細は既報されているので省略する[29,30]。ここでは、主に空気中トリチウム水(HTO)の濃度の時間変化と高さ分布に関する実験結果について述べる[30,31]。

HTの大気への放出量は実験場内の空気中HT濃度ができるだけ一定となるように風速に応じて調節されたが、大気安定度等の変化によると見られる細かい濃度変動が観測された。放出期間中の地上50 cm高さにおける平均HT濃度は約 1.4×10^5 Bq/m³であった。これら

の大気中 HT の一部は土壤中で HTO へ酸化された。この土壤中 HTO の一部は蒸発散や大気中水分との交換反応により大気中へ再放出された。

空気中 HTO は放出直後から検出され、その濃度は時間とともに徐々に増加した。実験期間中、数回の降雨があり、洗浄効果と土壤からの HTO 再放出の抑制効果のため、一時的な減少が見られた。しかし、降雨終了から約1日経過した後は、ほぼ元のレベルに回復した。空気中 HTO 濃度は放出開始から約10日後にはほぼ定常状態に達し、50 cm 高さの昼間の濃度は $3\sim 5 \times 10^3$ Bq/m³ となった。また、このときの表層土壤の水分中 HTO 濃度もほぼ平衡に到達していた。これらの定常状態は土壤への HT 沈着と大気への HTO 再放出などがほぼ釣り合ったためと考えられる。

空気水分中 HTO 濃度の高さ分布の時間変化を調べた結果、昼間は高さによる違いが少ないが、夜間は大きな濃度勾配が観測され、高さが高くなるほど、濃度が低くなることがわかった。たとえば、放出開始から約10日後の夜間では高さ 10 cm における空気水分中 HTO 濃度は高さ 50 cm の濃度の約 2 倍、100 cm の濃度の約 8 倍になった。このような濃度勾配と絶対湿度の日変動の結果として、空気中 HTO 濃度は高さ 50 cm では昼間高く、夜間低くなる日変動が見られた。(野口 宏)

6.4.1.2 植物における OBT 形成

環境に放出されるトリチウムが植物に移行するプロセスの解析は、食物連鎖、内部被曝の観点から重要である。

原子力施設から放出されるトリチウムの主要な化学形は水蒸気状 (HTO)、水素ガス状 (HT) であるが、環境中にはメタン状 (CH₃T) や植物による光合成生産物やその他種々の有機結合型の形態 (OBT) としてのトリチウムが存在する。

被曝線量としては、同じ量のトリチウムが人間に吸入摂取された場合 HTO は HT の 10⁴ 倍、CH₃T の 10² 倍であるが、植物組織等に有機結合した OBT の経口摂取線量は HTO 経口摂取のさらに 2.3 倍と評価されている。HTO の事故的放出では食物摂取による線量は吸入および皮膚から取り込まれるトリチウムによる線量の数倍～数十倍高いという評価もなされている [32]。こうしたことから、トリチウムの植物への移行、特に野菜や果物の可食部への移行プロセス、さらに光合成により有機化し有機生成物として可食部へ移行するプロセスの解析が重要である。また、植物葉中の HTO は比較的簡単に水により除去される [33] のに対して、植物に有機結合したト

リチウムは除去困難である。こうしたことから光合成による有機化プロセスの解析は重要である。

光合成は光の存在下で二酸化炭素と水により植物が有機物を合成するプロセスであるが、この時、水にトリチウムが含まれば、OBT が植物中に形成される。この光合成による OBT の形成は、植物の種類や成長段階により異なり、葉に生成された OBT が植物体内を転流し、植物体中のどこにどれだけ蓄積されるか等、詳細な解析が必要である [13]。このことは、例えば植物の成長段階に応じて事故等により放出されるトリチウムが植物に取り込まれ有機化する様子が異なるからである [13]。

1995年8月にカナダのチョークリバー研究所の敷地内野外実験場で、HT ガスの連続放出実験が行われた。放出期間は12日間で、小松菜、ミニトマト、ラディッシュ (はつか大根) への取り込みが調べられた [34]。HT が地表に棲息しているバクテリアにより HTO に化学形が転換し、HTO に転換したトリチウムが大気および土壤から植物に取り込まれた。Fig. 3 に、HT 放出開始から放出終了までにわたっての、植物可食部中および大気、土壤水中の HTO 濃度を示す [34]。HT 放出開始後、小松菜の葉およびラディッシュの根中 HTO 濃度は、大気および地表土壤水中 HTO 濃度とともに急激に上昇したが、トマトの実については、その上昇は緩やかであった。図中の縦矢印と数字は実験期間中に起こった降雨とその

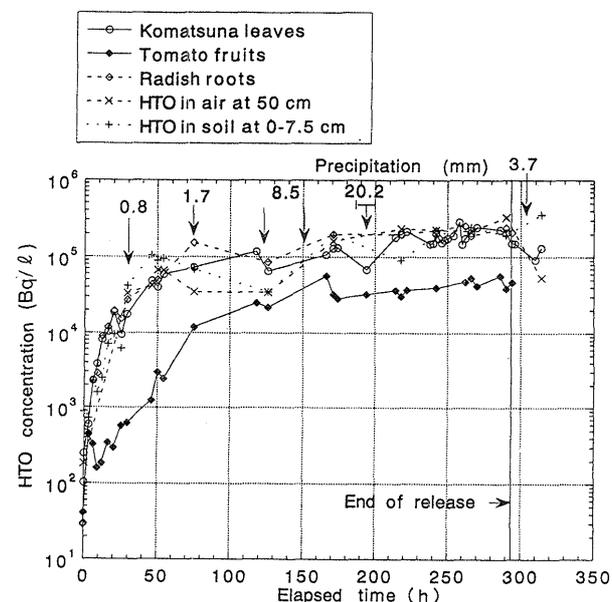


Fig. 3 HT concentrations in edible part of plants, air moisture at 50 cm height and soil water at 0-7.5 cm depth.

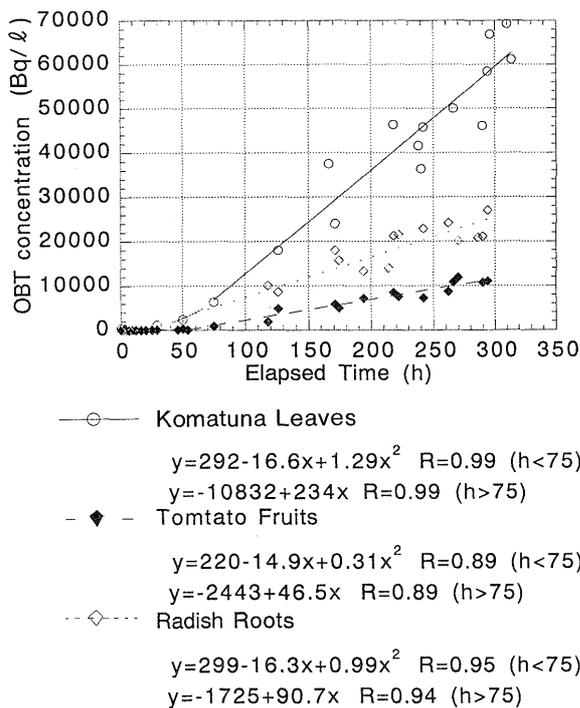


Fig. 4 Fitting of OBT production in edible part of plants.

降雨量であり、降雨があれば、トマトの実を除いて一時的に HTO 濃度が減少するがすぐ回復することがわかる。Fig. 4 に、HT 放出開始から放出終了までにわたっての、植物可食部（小松菜葉、トマト、ラディッシュ）中 OBT 濃度の経時変化を示す[34]。図中縦軸は、水に換算した OBT 濃度である（以下同様）。HT 放出開始後、3日目頃から OBT 濃度は直線的に上昇したが、12日の放出期間では平衡に達しなかった。また、Fig. 5 に、トマトの葉と果肉での OBT 濃度の違いを、Fig. 6 に、ラディッシュの葉と根との違いを示した。これらの差は光合成により葉で生成した OBT が果肉や根に転流するために生ずるものである。

前述したように、植物組織等に有機結合した OBT の経口摂取線量は HTO 経口摂取のさらに数倍であり、光合成による有機結合化、植物組織への転流に関しては、特に植物の可食部について定量的な評価が将来重要である。（天野 光）

6.4.1.3 土壌におけるトリチウムガスの酸化

トリチウムガス (HT) は酸化されてトリチウム水 (HTO) になると非常に体内へ取り込まれやすくなることから、トリチウムの線量を評価する際に環境での HT の酸化活性が重要な要因になる。HT の酸化は酸素、交

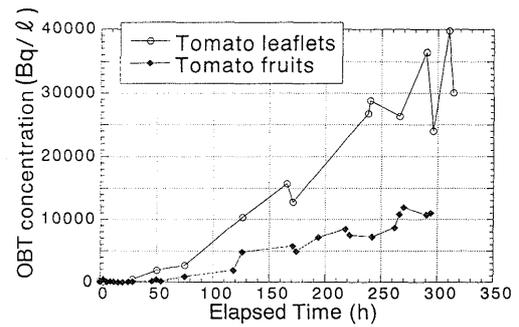


Fig. 5 OBT concentrations in tomato leaflets and fruits

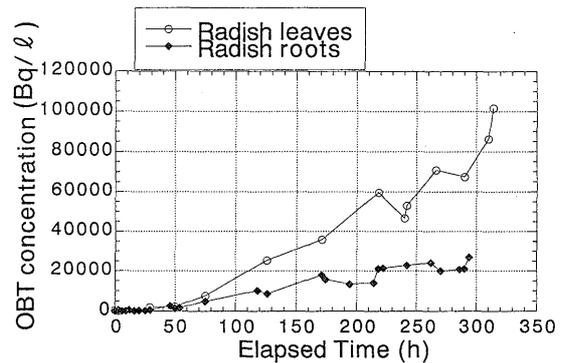


Fig. 6 OBT concentration in radish leaves and roots.

換反応、光化学反応、および土壌（微生物の酵素反応）などでおこる。土壌での反応は非常に速く、HT の環境中での酸化を左右する要因の研究では土壌微生物が極めて重要になる。1994年に行われたカナダのチョークリバーの野外実験場で実際に HT を環境中に定常的に放出する実験において、大気中の HT および HTO の濃度を測定して野外環境での HT から HTO への変換率を求めるとともに実験場の土壌の HT 酸化活性との関係を調べた[26,29]。実験場の土壌の HT 酸化活性を求めするために、自然地 1 区画と耕作地 2 区画の土壌について HT 酸化活性の土壌深度分布を検討した。実験では 5 cm 刻みで表層から 20 cm の深さまでそれぞれ 4 画分取り、2 mm の篩（ふるい）で 3 回篩った土壌試料について HT 酸化活性を調べたところ、自然地では表層 0-5 cm が最も高く、5-10 cm 土壌では 0-5 cm 土壌の 1/3、10-15 cm 土壌では 1/5、15-20 cm 土壌では 1/6 の HT 酸化活性が見出された。これに対して耕作地では自然地のような土壌深度に伴う HT 酸化活性の低下は見られずほぼ同じであった。これは耕作地が表層から 20 cm まで何回もすき起こされていることから均一になったと考えられる。各土壌試料について栄養条件の異なる 3 種類の培地を用いて土壌菌の分離を行った。自然地、耕作地

とも表層 0-5 cm の土壌では 3 種類の培地いずれを用いても 1 グラム土壌あたり 10^6 から 10^7 の生菌数があった。これらの土壌菌のうち HT 酸化菌がどのくらい土壌にいて、それらは土壌の HT 酸化活性を説明しうるであろうか。自然土壌の深さの異なる 4 画分について、3 種類の培地を用いて分離した 1,184 株の土壌菌について HT 酸化活性の有無を検討したところ、176 の分離株に活性が見られた。HT 酸化活性を持つ土壌分離菌株はほとんどがグラム陽性で、その約半数は活性の比較的高い放線菌で、形態学的特徴と化学分類により主に *Streptomyces* 属であった。土壌の生菌数は、表層の 0-5 cm 土壌が最も多く、3 種の培地いずれでもほぼ同じ $1.7 \sim 1.9 \times 10^7$ であったが、土壌の HT 酸化活性と同様に深さとともに減少した。一方 HT 酸化菌の出現率は表層から 22%, 9.9%, 8.1%, 4.8% と深さに伴って減少した。この出現率をそれぞれの深度の土壌の生菌数に掛けると各土壌に存在する HT 酸化菌の生菌数が推定される。その土壌深度パターンは土壌の HT 酸化活性の深度分布とほぼ同じであった。HT 酸化菌の酸化活性は菌株によって異なることを考慮に入れなければならないが、土壌中の細菌数がきわめて多いことから、平均的に扱うことが可能である。したがってこれらの細菌が土壌の HT 酸化の実体であることが示された。また実験場の土壌の HT の酸化活性は日本の土壌の平均的な酸化活性とほぼ同程度であることからチョークリバーでの HT の野外酸化活性は日本の環境においても適用できることが明らかになった。

(一政祐輔)

6.4.2 トリチウムを外挿した重水の放出実験

6.4.2.1 OBT 形成, 比放射能モデルの検証

事故時のトリチウム放出に対しては時間に依存した線量予測のための動的モデルが開発されているが、定常的な環境放出の線量評価（平常時評価モデル）には農畜産物中のトリチウム濃度の評価に比放射能法を用いたモデルが一般に使われている。比放射能法では大気中のトリチウム水 (HTO) 濃度に対する農作物や畜産物中の HTO 濃度の比が重要な因子である。植物でのこの値は、米原子力委員会 (NRC) モデル [35] では 0.5 が推奨されているが、戸川ら [36] の公衆被曝線量評価モデルでは 1.0 が使われている。原子力施設近傍の数年の環境データから、Hamby ら [37] は平均 0.54 ± 0.01 、Murphy [38] は湿潤な地区で約 0.8 と報告しており、実際には季節や気象条件により影響を受ける植物の特性の違いによりかなり異なると考えられる。日本の植物や気象条件ではどうか

ろうか。我が国ではトリチウムの野外放出実験を行うことは非常に困難であることから、安定同位体である重水素水を用いてトリチウム水の環境動態を外挿する目的の放出実験を 1995, 96, 97 年に茨城大学キャンパスで大学、核融合研, 原研, 放医研の参加で行った。実験は超音波加湿器で発生させた重水素水蒸気を除湿した空気を用いて 24.6 m^3 のビニールハウス内に導入し、持ち込んだポット植えの各種植物に 48 時間にわたり曝露した。イネの葉の自由水重水素 (FWD) の濃度 / 大気水分中重水素濃度 (比) は重水曝露 3 時間ではほぼ平衡に達したが、ミニトマト、イチジク、ブドウの葉では 6 時間、松葉や大豆の葉では 12 時間を要し、平衡に達してから曝露の終了までの比の平均値は、イネ、キンカン、イチジクの葉ではそれぞれ 0.76 ± 0.08 , 0.77 ± 0.10 , 0.72 ± 0.12 、大豆、ミニトマト、ブドウ、松の葉では 0.69 ± 0.08 , 0.66 ± 0.09 , 0.63 ± 0.10 , 0.66 ± 0.05 、湛水したイネの葉では少し低く 0.62 ± 0.11 であった。イネの籾米では 2 日目には比の値はほぼ平衡に達し、 0.46 ± 0.02 と 0.60 ± 0.07 (湛水したイネの籾米) であって葉の値に近かったが、他の果実類では 48 時間まで徐々に増加し、48 時間目の比の値はキンカンとミニトマトは最も低く 0.063 と 0.051、イチジクと大豆は 0.23 と 0.24、ブドウは 0.12 であった。葉に比べて可食部分である実の比に値が低く多様である。これは植物の実の成長段階の違いや水や有機物質の植物体内移動機構の差異を反映するためと考えられる。これらの可食部分の FWD と有機結合型重水素 (OBD) 濃度の経時変化は植物で異なり、イネ籾米の場合は曝露停止後 25 日目には FWD 濃度はほとんどゼロとなったが、OBD 濃度は緩やかに減少して曝露停止時の OBD 濃度の約 1/2 となった。ダイズの実では曝露停止後の FWD の減少はイネより緩やかであったが、25 日目にはゼロになった。しかし OBD 濃度は曝露停止後も増加し続け曝露停止後 25 日目には約 2 倍になった [39]。このような有機結合型トリチウム (OBT) の寄与をどのように線量評価モデルに反映させていくかは今後の大きな課題のひとつである。またより精度の高い線量評価を行うために、広範囲の農作物について季節や気象を加味したデータの集積が必要である。

(一政満子)

6.4.2.2 ダイナミックモデルの検証

大気中へトリチウム水蒸気が短期放出された場合の植物中トリチウム濃度の変化について述べる。短期放出の場合、植物の根が吸い上げる範囲の土壌水中トリチウム濃度の上昇は大気水分中濃度の上昇に比べ小さく、根を

通じての取り込みはほぼ無視できるため、植物による取り込みは主に葉表面を通じての交換によると考えられる。大気からの取り込みのみを考える場合、葉自由水中トリチウム水濃度 C_p の変化は一次元的モデル： $C_p = C_{\max}(1 - e^{-kt})$ で近似できることが報告されている[40]。トリチウムの代わりに重水をトレーサとして用いた放出実験の結果をこの式に当てはめ、各植物の時定数 k および平衡に達するまでの時間を調べた[41]。植物は小松菜、ラディッシュ、ミニトマト、ミカン、イネを用い、ラディッシュ、ミニトマト、イネについてはそれぞれ、根、実、穂の部位への移行も調べた。各植物は昼と夜の2回ビニールハウス内の空気中重水濃度がほぼ一定となった後に重水水蒸気に曝露された。曝露後初期の取り込みを調べるために、各植物試料を曝露開始から30分後までは10分おきに、その後1, 2, 4, 8時間後に採取し、重水濃度を測定した。

葉についての結果より、濃度変化が上記の式で表されることが明らかとなった。各植物で比較すると時定数 k はイネで最も大きく $3.6 \pm 0.3 \text{ h}^{-1}$ であり、続いて、ラディッシュ、ミニトマト、小松菜、オレンジの順であった。時定数の値についてはこれまで、豆の葉について $0.58 \pm 0.38 \text{ h}^{-1}$ [42]、また、トマトの葉について、古い葉で $0.104 \pm 0.067 \text{ h}^{-1}$ 、新しい葉で $0.024 \pm 0.023 \text{ h}^{-1}$ [43] という値が報告されており、今回のイネの結果は比較して大きな値となった。今回のミニトマトについては、トマトの古い葉の結果とほぼ同程度の値となった。イネについては穂の部位についても濃度の上昇が大きく、大気から簡単に取り込まれることがわかった。ラディッシュの根やミニトマトの実については、10時間程度の曝露では上昇の様子が明らかでなく、時定数を求めるためにはより長期の実験が必要である。また、それぞれの葉について平衡値に達するまでの時間は、小松菜で3.6~4時間、ラディッシュで2.1~3.3時間、ミニトマトで2.9時間であるのに比較してイネでは0.8時間と短時間で平衡に達した。

放出が昼であるか夜であるかにより植物中のトリチウム濃度は異なるが、それぞれの葉についてその比は植物の種類で異なっていた。ミニトマト、ミカンで昼夜の差が大きい。気孔の開閉に昼夜で差があるためと考えられ、曝露開始後初期の段階で、その比はミニトマトで3~4.5倍、ミカンで2.5~4倍に及ぶ。ラディッシュは比較して昼夜の差が少なく、初期でも2倍程度であった。

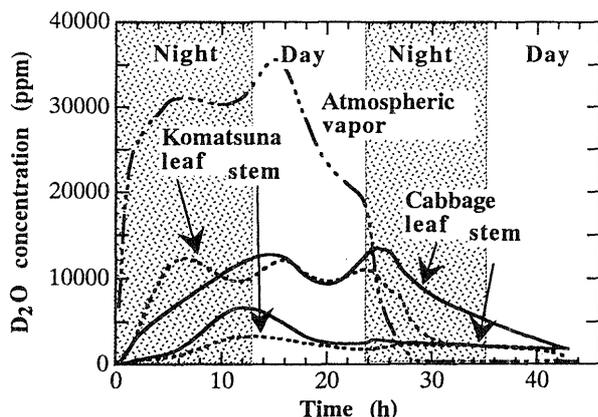
(新 麻里子)

6.4.2.3 土壌沈着重水の大气への再放出

トリチウム水（以下 HTO という）が大気中へ放出された場合、大気中を拡散し、一部は土壌表面層に沈着する。沈着した HTO の一部はより下層土壌へ拡散や移流により移動するが、蒸発や空気中の H_2O との交換により大気中へ再び放出されるものもある。後者の場合には、土壌表面は二次的な HTO 発生源となることから、土壌への HTO の沈着および再放出挙動の解明は、HTO の吸入による公衆の被曝線量を評価する上で重要である。これまでも HTO の土壌への沈着および再放出挙動が調べられてきた[44]。しかし、土壌、気象条件等は限られており、詳細なメカニズムも明らかにされていないため、様々な条件下でのこれらの挙動を予想することは困難である。1995年および1996年に HTO の代わりに重水をトレーサとして用いた野外実験が行われた。本実験で我々は、大気から土壌への重水の沈着と土壌からの再放出挙動の詳細を明らかにするため、曝露時間の長さおよび再放出開始時間（日中（午前8時）または夜間（午後8時））を変えて、土壌水分中重水濃度の深さ分布および再放出率の時間変化を調べた[45]。ビニールハウス内の空気水分中重水濃度がほぼ一定になったところで、土壌試料（横4.7 cm × 縦5 cm × 高さ12 cm）をハウス内に入れ、上部表面に2, 10または14時間重水水蒸気を曝露し、重水を沈着させた。その後、試料を重水汚染のない野外環境下に移して土壌水分中重水濃度の深さ分布および再放出率（単位時間あたりに土壌表面から大気へ放出された重水量/全土壌沈着重水量）の時間変化を調べた。

本実験により、以下のような結果が得られた。本実験条件下では、重水水蒸気曝露終了直後の土壌水分中重水濃度は、深さ方向にほぼ指数関数的な減少傾向を示した。このとき、曝露時間が短い方が土壌中重水濃度分布の勾配が大きく、より表層近くに沈着することがわかった。また、表層0-0.5 cmの土壌水分中重水濃度は、時間が経過するにしたがい急速に低下した。一方、下層では徐々に重水濃度が増加する傾向を示した。再放出率は曝露時間の長さや再放出開始が日中であるか夜間であるかに関係なく、再放出過程初期の値が最も高かった。さらに、この初期の再放出率は、曝露時間が短く、日中に再放出を開始した方が高くなることがわかった。また、土壌試料を10時間曝露した場合、再放出開始が日中か夜間に関わらず、再放出開始から24時間までの全再放出量はほぼ同じになり、これは全沈着量の約70~80%に相当した。

(横山須美)

Fig. 7 Change in D₂O concentrations.

6.4.2.4 小松菜・キャベツでの動態

小松菜とキャベツを野外に作ったビニール製温室内において、重水水蒸気に24時間曝露させたときの大気および葉の重水濃度の変化を Fig. 7 に示す。温室の大気中重水濃度は、重水水蒸気放出とともに上昇し、2時間程度で平衡濃度に達している。重水放出を止めビニールのおおいを取り除き外気にさらすと、大気中濃度は速やかに外気レベルに戻る事がわかる。小松菜とキャベツの重水濃度は大気と連動した形で変化しているが、その変化は大気と比べると時間的な遅れが見られ、さらにキャベツの葉の濃度変化の方が小松菜より遅いことがわかる。夜間に測定した気孔抵抗はキャベツの方が小松菜より大きく、キャベツは大気から葉への重水の移行が小松菜より起こりにくいことを示唆していた。キャベツと小松菜の葉の平衡濃度に違いはなく大気より低い値（濃度比；約0.4）を示した。土壌への重水水蒸気の沈着は遅く、濃度は表層が最も高く深部に向かって減少していた。蒸散活動に伴う土壌水分取り込みのため、日中に茎の重水濃度の減少が観察されている。放出開始44時間後に小松菜の葉の含有水と組織体の重水濃度が分析された。含有水の重水濃度は外気レベルより高く、土壌中に残留した重水の影響が見られた。一方、組織体の重水濃度は、曝露中に光合成された有機物により含有水の2倍を示した。

(柿内秀樹)

6.5 おわりに

核融合の研究が進むにつれてトリチウムの使用量も増加してゆく。これらの研究はトリチウムが環境に放出された際の人体影響について、貴重な知見を与えるものである。共著者とはなっていないが、九大工学部の岡井富雄氏、核融合科学研究所の山西弘城氏の研究成果も取り

入れている。

参考文献

- [1] S. Okada, and N. Momoshima, *Health Phys.* **65**, 595 (1993).
- [2] 核融合特別研究報告書, 核融合研究者の為のトリチウム安全取扱いの目安 - 1990, 72 (1990).
- [3] H. Morishima *et al.*, *J. Radiat. Res.* **26**, 283 (1985).
- [4] W.R. Schell *et al.*, *World Distribution of Environmental Tritium*, SM-181/34, 375 (1974), IAEA.
- [5] 茶谷邦男他: 陸水学雑誌 **42**, 131 (1981).
- [6] N. Momoshima and Y. Takashima, *Mem. Fac. Sci. Kyushu Univ., Ser. C*, **18**, 21 (1991).
- [7] N. Matsuoka *et al.*, *Sci. Total Environ.* **145**, 197 (1994).
- [8] T. Okai and Y. Takashima, *Appl. Radiat. Isot.* **42**, 389 (1991).
- [9] N. Momoshima *et al.*, *Liquid Scintillation Spectrometry 1994*, Radiocarbon (1996) p.89.
- [10] N. Momoshima, *Plant Ecophysiology*, John Wiley & Sons, Inc. (1996) p.457.
- [11] International Commission on Radiological Protection, *Report of the Task Group on Reference Man*, ICRP Publication **23**, Oxford: Pergamon Press, 1974.
- [12] International Commission on Radiological Protection, *Age-Dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 1*, ICRP Publication **56**, Annals of the ICRP **20** (2), 1989.
- [13] S. Diabate and S. Strack, *Health Phys.* **65**, 698 (1993).
- [14] W. Raskob, *Results for SEAFP-subtask A 10: Assessments of Individual and Collective Doses to the Public for Routine and Accidental Releases of Tritium and Activation Products*, FZKA 5512, Forschungszentrum Karlsruhe GmbH, Karlsruhe, 1995
- [15] W. Raskob, *personal communication*.
- [16] C.E. Murphy, *Health Phys.* **65**, 683 (1993)
- [17] M. Saito, *Radiat. Protec. Dosi.* **42**, 17 (1992).
- [18] S. Hisamatsu *et al.*, *Health Phys.* **68**, 499 (1995).
- [19] N. Momoshima *et al.*, *Radiochimica Acta* **54**, 129 (1991).
- [20] S. Hisamatsu *et al.*, *Health Phys.* *in press*.
- [21] International Atomic Energy Agency, *Environmental Isotope Data No.2: World survey of isotope concentration in precipitation (1964-1965)*. Vienna: IAEA; Technical reports series No.117, 1970.
- [22] S. Hisamatsu *et al.*, *J. Radiat. Res.* **35**, 112 (1994).
- [23] H. Nishihara *et al.*, *J. Ferment. Bioeng.* **72**, 358 (1991).
- [24] 一政祐輔他: 日本放射線影響学会第39回 講演要旨集 383 (1996).

- [25] M. Ichimasa *et al.*, *J. Radiat. Res.* **29**, 144 (1988).
[26] Y. Ichimasa *et al.*, *Fusion Technol.* **28**, 877 (1995).
[27] Bergey's Manual of Systematic Bacteriology vol.4 (1989).
[28] M. Ichimasa *et al.*, *J. Radiat. Res.* **30**, 323 (1989).
[29] P.A. Davis *et al.*, *Fusion Technol.* **28**, 840 (1995).
[30] H. Noguchi *et al.*, *Fusion Technol.* **28**, 924 (1995).
[31] 横山須美他：日本原子力学会1995年秋の大会予稿集, p.557 (1995).
[32] W. Gulden and W. Raskob, *Fusion Technology* **21**, 536 (1992).
[33] H. Amano and C.T. Garten, Jr., *Environm. International* **17**, 23 (1991).
[34] H. Amano *et al.*, *Fusion Technology* **28**, 803 (1995).
[35] U.S. Nuclear Regulatory Commission, *Regulatory Guide* **1**, 109 (1977).
[36] O. Togawa, *J. Nucl. Sci. Technol.* **27**, 360 (1990).
[37] D.M. Hamby and L.R. Bauer, *Health Phys.* **66**, 339 (1994).
[38] C.E. Murphy, Jr., *Health Phys.* **47**, 635 (1984).
[39] M. Ichimasa *et al.*, *Proc. 4th International Symposium on Fusion Nuclear Technology*, Tokyo, Japan, Apr. 6-11, p.381 (1997).
[40] Y. Belot *et al.*, *Health Phys.* **37**, 575 (1979).
[41] M. Atarashi *et al.*, *Proc. 4th International Symposium on Fusion Nuclear Technology*, Tokyo, Japan, Apr. 6-11, p.382 (1997).
[42] J.A. Garland and L.C. Cox, *Water Air Soil Pollut.* **17**, 207 (1982).
[43] F.S. Spencer, Ontario Hydro Research Division, OH-84-69-K (Mar. 1984).
[44] M. Taschner *et al.*, *Fusion Technol.* **28**, 976-981 (1995).
[45] S. Yokoyama *et al.*, *Proc. 4th International Symposium on Fusion Nuclear Technology*, Tokyo, Japan, Apr. 6-11, p.383 (1997).