# 自然環境中のトリチウム生成のシミュレーションとその評価

京都女子大学 水野義之 mizuno@kyoto-wu.ac.jp

**要旨**:福島原発事故後の廃炉処理では、トリチウム水が社会問題となっている。他方でトリチウムは天然に も存在する。環境中の天然トリチウムは、高エネルギーの宇宙線と大気中の原子核との核反応によって、常 時生成されている。しかし宇宙線は非常に高エネルギーにまで及び、そのような核反応は複雑である。この ため、その定量的理解は比較的困難である。今回、この理解の改善を目的として改めて自然環境中のトリチ ウム生成のシミュレーション計算を行った。その結果、定量的にもトリチウムデータはある程度再現できる ことが分かったので、その結果とその評価について報告する。

### 1. はじめに

宇宙から見た地球の自然環境は、強烈な放射線(宇宙線)が飛び交う動的な宇宙環境の中にある。このため自然環境中では、天然放射性物質も生成されている。廃炉で問題とされるトリチウム(3H)も、実は天然の放射性物質の一種である。天然トリチウムは、主に銀河中心から飛来する高エネルギー宇宙線(一次宇宙線、銀河宇宙線、GCR: Galactic Cosmic Rayとも呼ばれる。)によって、大気中で常時生成されている。しかしこれに加えて、原子炉内部でも運転中にトリチウムは生成される。トリチウムの天然の生成量を理解することは、社会的な判断の上でも必要である。社会的にはそれだけでは十分ではないが、環境の理解は前提であり、社会的にも必要と考えられる。

この論考では自然界に平衡状態として存在するトリチウムの、宇宙線による生成過程の理解を深め、定量 的解釈を目的として、宇宙線による大気原子核の核破砕反応のコンピュータ・シミュレーションを行った。 その結果、トリチウムの既知のデータは、今回のシミュレーションでほぼ再現できることが分かった。以下、 この計算の条件、方法、結果、解釈等について報告したい。

### 2. 計算の条件

#### 2.1 トリチウムの自然生成の過程

地球上で自然に発生するトリチウムは、主に大気上層での高エネルギー宇宙線(高エネルギー中性子、 高エネルギー陽子)と空気(窒素、酸素)の原子核との核反応の結果、生成されることが分かっている [1]。これ以外の天然トリチウムの生成過程もあるが、主成分はこれである。

大気上空の高エネルギー中性子の供給源は、一次宇宙線の主成分である高エネルギー陽子と大気中の窒 素または酸素の原子核との衝突(核反応)で引き起こされる核破砕反応(spallation)である。核破砕反応 の結果、2次宇宙線としての高エネルギー中性子が多数、生成され、それがまた次の核反応を引き起こす。 他にも太陽から放出される高エネルギー中性子が、地上に届くことがある(中性子のGLE、Ground Level Enhancementと呼ばれる)。しかしこれは年1回程度と、頻度が非常に低いため、ここでは扱わない。

大気上空の高エネルギー陽子の供給源は、一次宇宙線の陽子に加えて、中性子生成と同じ核破砕反応で 生成される二次的な陽子の高エネルギー成分である。

本報告の計算では、大気密度と一次宇宙線のエネルギー・スペクトルを既知データとして与える。また 核破砕反応と、その後の二次生成粒子の大気中での振る舞い(多数の核反応と素粒子反応で生成される多 重粒子発生)は複雑なため、モンテカルロ法を用いたコンピュータ・シミュレーションで扱う。

#### 2.2 トリチウムの環境動態と生成率

トリチウムの半減期は12.33年であり、最大エネルギー18.6keVのβ崩壊を経て<sup>3</sup>Heになる。文献[1]に よれば、大気中で生成したトリチウムの環境動態は、乱流拡散、地表への沈着、地中での移流や拡散、地 表からの蒸発等により、生成と崩壊の平衡状態にある。詳細なトリチウム分布として、地球上の地理的偏 りや季節変動があることも知られている。この報告では、第ゼロ近似のオーダー計算を目標にする。

トリチウムの年間の生成率[1]は、上記のような宇宙線により生成されるとして、7×10<sup>16</sup>Bq/年の程度である。天然水中には約1Bq/L、人体中(体重65kg)には約100Bqのトリチウムが含まれている。

トリチウムの生成と崩壊の平衡状態での存在量も知られている。大気圏内の原水爆実験の時代(1945~63年)には、環境中のトリチウムの存在量は、それ以前の約200倍程度に増加し、約1.8~2.4×10<sup>20</sup>Bq 程度となった。その後は自然減を経て、2010年の環境中におけるトリチウム存在量は、1.0~1.3×10<sup>18</sup>Bq 程度と推定されている。以下では、これらのデータの再現を目指す。

### 2.3 シミュレータとしてのPHITS

本報告で使ったシミュレータはPHITS (Particle and Heavy Ion Transport System)[2]のバージョン3.10 である。PHITSは様々な核反応過程のモンテカルロ・シミュレーションで利用されており、広い領域で各 種の二次粒子や複合原子核の生成確率(断面積)やエネルギースペクトルまで比較的よく実験値を再現す る。

特にバージョン2.52以降のPHITSでは、重陽子、トリチウム、<sup>3</sup>He、<sup>4</sup>He など、一般に生成率が比較的 小さな少数核子系を生成する核反応においても、再現性が大きく改善された[3]。

### 2.4 大気のモデル

計算に用いた大気上空の空気密度は、米国標準大気モデル[4]をもとにした。地上から高度65km(約千分の1気圧)までを計算対象として、ビーム軸方向に大気を層状に分割し、各層ごとに密度を一定値とした。 空気組成は<sup>14</sup>N、<sup>16</sup>O、<sup>40</sup>Arだけとし、成分比は海上付近と同じとした。

海面以下に至る2次宇宙線が海中で核反応を起こし、生成粒子が上空に戻ってさらに核反応を起こしてト リチウムが生成される場合もあるので、海面下1kmまでを水で充填して計算した。これは、地面から発生

するガンマ線の場合には、空気中で散乱して地 上に戻るという「スカイシャイン」があり、そ の「逆パターン」である。ガンマ線や中性子の 発生源が広域である場合には、これが無視でき ない。

### 2.5 入射する宇宙線(陽子ビーム)の条件

入射する宇宙線の陽子の運動エネルギーは、 ここでは代表的な値として2GeVとした。陽子の エネルギー・スペクトル分布と空間的拡がりを 当面は無視した。図1にはPDG(Particle Data Group)[5]から宇宙線(粒子種の成分ごと)の エネルギースペクトルを引用する。一次宇宙線 の陽子の運動エネルギーは、約1GeV前後でフ ラックスのピークを持つ。しかしそのスペクト ル分布は高エネルギー側に長いテールを持つ。 このためエネルギーの平均値は、最頻値より高 くなる。今回は平均エネルギーを2GeVとして計 算した。この仮定の妥当性は確認したので、そ の結果についても以下に記述した(3.3節)。

### 3. 計算の結果と議論

### 3.1 トリチウム生成の場所分布

このような宇宙線による大気(原子核)の核



図1: 一次宇宙線の粒子種ごとのエネルギースペクトル[5]

破砕反応を、上記のような代表的 な運動学的条件でシミュレーショ ンした結果を、図2に示す。

この例では宇宙線の陽子の運 動エネルギーを1GeV (図2の左2 枚)または2GeV (図2の右2枚) とした。図2の上2枚は入射陽子 または発生した陽子の空間分布 である。図2の下2枚は発生した 中性子の空間分布である。色の 違いは暖色ほどその場所での粒 子フラックスが高いことを示す。

陽子ビームは図の左から入って くるとしている(図2の上2枚の赤 い線が入射ビームである)。各図 のスケールは横軸の左端矢印が宇 宙空間、右端矢印が地上、中間 の矢印は高度15kmを示す。各 図の縦軸のスケールは、ビーム 軸から垂直に10km(±5km)で ある。

航空機国際線乗務員の業務被 曝研究から、高度10~15km付 近で中性子被曝が最大になるこ とがわかっている[6]。上の図2 右下はその結果と符合する。ま た銀河宇宙線(図1)の陽子の 平均エネルギーは約2GeV程度 であるが、2GeVの場合、発生 した中性子は地上付近にまで届 く。これも既知の結果[6]と符 合している。なお入射陽子の粒 子数は600イベントとした。

図3はトリチウムを含む各種 の2次的生成粒子が、大気上空 のどの辺りで生成されるかを示



図2:陽子エネルギー1GeVと2GeVの、陽子と中性子の空間分布。



図3:トリチウム、<sup>3</sup>He、重陽子、ガンマ線の生成場所の分布(各図の右端が地上)

す(陽子エネルギー2GeVの場合)。図3の4枚の図で、左上がトリチウム生成、右上は<sup>3</sup>He生成、左下が重 陽子生成、右下がガンマ線生成である。繋がった「線」に見える部分は、生成された二次粒子が空気中を 飛翔して止まるまでの軌跡を示す。

この計算結果(図3)から、銀河宇宙線によるトリチウム生成について次のことが分かる。

- 1) トリチウムも確かに上空で生成されている。
- 2) トリチウムは上空5km~30kmの付近で主に生成される。
- 3)トリチウムは荷電粒子であるため、生成後すぐ止まる(すなわち生成場所は局所的である)。このためこの図3左上では点で生成されるように見える(軌跡はこの空間分解能では見えない)。 従ってトリチウムの生成場所の分布は、生成要因である高エネルギー陽子・中性子の分布に近い。

- 4) トリチウムと<sup>3</sup>Heを比較すると、両者は比較的似た空間分布を持つ。この結果は、核反応の「コア レッセンス・モデル」[2]で理解できる。この意味で予測された結果であると言える。
- 5)地上から高度12km付近までが対流圏(国際線旅客機が飛ぶ領域の下までは雲海が広がる)である から、トリチウムの生成領域(上空5km~30km)の下部領域で生成されたトリチウムは、大気中の 「水」の一部に取り込まれ、雨として地上に循環すると予想される。すなわち地上で観測される天 然トリチウムの正体は、実はこの比較的狭い領域で生成されたトリチウムであることが分かる。

#### 3.2 トリチウムの生成率の推定

トリチウム生成率について、今回のシミュレーション結果とデータと比較する。

上記の2GeVの計算の場合、陽子の入射粒子数は600イベントとしたが、この計算では351個のトリチウムが生成されていた。この場合トリチウムの生成率は、陽子1個に対して、351/600=0.585(統計誤差±7%)、 すなわちトリチウム生成率は約0.6程度(有効数字1桁)である。

他方で、一次宇宙線の陽子のフラックス自体は、下記に引用した文献[5]の式(29.2)を参考にして、見積る ことができる:

 $I_N(E) \approx 1.8 \times 10^4 \; (E/1 \; {\rm GeV})^{-\alpha} \; {{\rm nucleons}\over {{\rm m}^2 \; {\rm s \; sr \; GeV}}} \; ,$ 

ここでパラメータ $\alpha$ の値は2.7、またこの式でEは宇宙線の陽子の運動エネルギーに加えて質量エネルギー も含む全エネルギーである。この式で運動エネルギー2GeVの場合には、仮に立体角を上半面2 $\pi$  [sr]、エ ネルギー幅を1GeVとすれば、結果は 0.42[nucleons/cm<sup>2</sup>/s]~0.4[nucleons/cm<sup>2</sup>/s] (有効数字1桁)とな る。トリチウムの生成率は、陽子フラックスの約0.4[nucleons/cm<sup>2</sup>/s]と、トリチウム生成率の約0.6を掛 けて、0.4[nucleons/cm<sup>2</sup>/s]×0.6~0.2[nucleons/cm<sup>2</sup>/s]という結果が得られる(有効数字1桁)。これは 文献[7]のトリチウム生成率の値 0.20 [atom/cm<sup>2</sup>/s] に近いという結果である。

トリチウム生成率について、上に略記した程度の簡易な計算でここまでの一致が得られれば十分と判断 することは可能である。逆により精度を上げた計算は有用であり、意味があることを示唆する結果である。

#### 3.3 トリチウムの存在量の推定

地球上のトリチウムの存在量は、次のようにして推定される。まずトリチウムの生成は、地球の全表面 で一様に上記の生成率: 0.20 [atom/cm<sup>2</sup>/s]で起こると仮定する。すると年間の地球上の全トリチウム生成 量(生成率)は $3.2 \times 10^{25}$ [atoms/year]となる。他方でトリチウムの崩壊率は、半減期12.33年を使って  $0.693/[半減期]=1.78 \times 10^{-9}/s$ となるから、年間のトリチウム原子の生成数は(ベクレル単位で)次のよう になる。すなわち、 $1.78 \times 10^{-9}$ [/s] ×  $3.2 \times 10^{25}$  [atoms/year]= $5.7 \times 10^{16}$ [Bq/year]。これは既存の文献[7]の 値:  $(5.7 \sim 7.2) \times 10^{16}$ [Bq/year]とよく一致している。

トリチウムは宇宙線で生成される端から放射性崩壊し、放射平衡に達する。この平衡状態の存在量(ベクレル数)は、簡単な計算から、(5.7~7.2)×10<sup>16</sup>[Bq/year]/(0.693/12.33[year]) = (1.0~1.3)×10<sup>18</sup>[Bq] となる。これも既存の文献の値と一致している。

#### 3.4 宇宙線の陽子エネルギー2GeV(仮定)の妥当性

図4には、今回のシミュレーションにおいて、陽子の入射エネルギーを様々に変えたときの、各種の二 次的発生粒子の多重度(1個の入射陽子に対する発生数)のエネルギー依存性を示す。ここで扱った発生粒 子は(入射エネルギー80GeVの場合の発生数が多い順に)電子、ガンマ線(photon)、陽電子、中性子、 陽子、その他(重い原子核)、<sup>4</sup>He、重陽子、パイ<sup>0</sup>中間子、μ<sup>-</sup>粒子、μ<sup>+</sup>粒子、パイ<sup>-</sup>中間子、パイ+中間 子、<sup>3</sup>He、トリチウム(triton)、K<sup>+</sup>中間子、K<sup>0</sup>中間子、K<sup>-</sup>中間子である。

この図4の視察により、発生多重度のエネルギー依存性の勾配は、次の4種類に明確に分かれる。第1 に、電子、陽電子、ガンマ線のグループであり、勾配は最も急峻である(静止質量が最も軽いため)。第 2に、π中間子とμ粒子のグループであり、エネルギー勾配の急峻さは2番目である(静止質量が2番目 に軽いため)。第3は、K中間子のグループであり、これは第2グループのそれを横に平行移動させた形状 を持つ。そして第4に、ハドロン系(重粒子・原子核)のグループ(合計7種類)であり、陽子、中性子、

その他(重い原子核)、4He、重陽子、 <sup>3</sup>He、トリチウム (triton) である。これら の発生多重度のエネルギー依存性は全て似 た勾配を持っており、4グループ中で最も 「なだらか」である。これは計算上で仮定 された粒子発生のモデルや生成メカニズム (前述の「コアレセンス・モデル」[2]など) から予想される傾向と一致している。

そこで図5には、図4のトリチウムの場合 の発生多重度のエネルギー依存性だけを抽 出して赤線で示し、また同じ図5には図1の 宇宙線の陽子のエネルギー依存性を青線で 示し、加えて図5にはそれらの積のエネルギー 依存性を緑の線で、それぞれプロットした。

この図5から、トリチウム生成の収率は 入射陽子エネルギーが約2GeV付近で最大と なることが分かる。このことは本報告で当 初から2GeVの陽子入射を仮定して、トリチ ウムの生成率と存在量を計算した結果の妥 当性と、矛盾しない。

## 4. おわりに:まとめの議論と今後の 課題

本報告では、もともと自然界に存在して いた天然トリチウムに着目し、その存在量 の再現を試みた。ここではトリチウムの高 エネルギー宇宙線による複雑な生成過程 を、計算機でシミュレーションするという 方法を用いた。本計算で用いたシミュレー タはPHITSバージョン3.10 (PHITS2.52以 降で少数核子系の再現性が改善されたもの) である。計算の結果、天然トリチウムの生 成率も存在量も、定量的に、ほぼ再現可能・ 理解可能であることが示された。

この計算で新たに分かったことは、トリ チウムの生成場所が高度5km~30km程度と いう比較的狭い範囲であることだ。この理 由は高度30kmより上では宇宙線の二次粒子 数(シャワー)の発達が十分ではないため、 トリチウム生成を引き起こす核破砕反応自 体の頻度が、低いからであろう。また高度 5kmより低い場所では、宇宙線シャワーの 二次粒子のエネルギー自体が平均として下 がり、従って核破砕やトリチウム生成にま で至らない場合が増えるからであろう。

宙線で生成されたトリチウムの全部が循環するわけではない。



図4:宇宙線と大気原子核の核反応で生成される2次粒子の多重度。



**図5**:宇宙線の陽子フラックスのエネルギー依存性(青)、発生ト リチウムのエネルギー依存性(赤)と、それらの積(緑)。

トリチウム生成が高度5km~30kmの場合、大気の対流圏は高度12km程度までであるから、トリチウ ム生成の下部の部分だけが、大気循環(対流)に乗って雨中や地上や海水中に循環する。逆にいうと、宇 従って、仮にこの計算が正しければ、 大気上空の高度15km~30km付近には 「トリチウム層」とも呼ぶべき層が存在 しているはずである。この「トリチウム 層」では、地上付近や海水中に比べて、 天然トリチウム濃度が同等かむしろ高く なると予測できる。なぜなら、この層で のトリチウムは、生成され続けるが対流 では持ち去られないからである。従って、 ちょうど成層圏(図6参照)の「オゾン 層」が太陽紫外線で生成され続け、しか し対流では移動できないため蓄積され続 けるのと同じである。「トリチウム層」 も「この高さの層」(主に成層圏)に蓄 積され続けると予言できる。

そこで今後の課題として、このよう な予測精度の向上も含めて、今回試行し たシミュレーション計算の精度を上げる ことは有用である。またこれは比較的容 易であろう。今後は、飛翔体実験などで この「トリチウム層」の予言を検証する ことも可能かもしれない。なぜなら適切 なサンプル収集を行えば、トリチウムの



図6:大気の鉛直分布(出典:『理科年表』[4])

検出は微量でも可能だからである。同じことは例えば炭素14(半減期5730年、同じく銀河宇宙線で生成される。)でも起こっている可能性がある。これらの天然放射性核種の生成率や環境動態の研究において、 それらの比較も興味深い課題を提起することになるかもしれない。

### 謝辞:

大阪大学医学部放射線基礎医学の中島裕夫博士には有益な示唆と議論をいただいた。またNPO法人「あい んしゅたいん」坂東昌子博士には発表の激励と機会とをいただいた。もって感謝したい。そもそも本研究 は同法人の「市民と科学者の放射線コミュニケーションネットワーク」に著者が参加する中で、触発され 醸成されたテーマであった。参加者各位の議論に感謝したい。また私は1984年にフランスSaclay研究所に て、液体トリチウム数mlを使った核物理学実験を行ったことがあった("Tritium Electromagnetic Form Factors", Phys. Rev. Lett. 55(1985)2261.)。その35年後に、このトリチウムの原子核自体の生成過程を計算 するとは思わなかった。当時のトリチウム研究を提案されたSaclay研究所のB.Frois博士に感謝する。

### 参考文献

- [1] 原子力百科事典 Atomica「トリチウムの環境中での挙動」;経産省「トリチウム水タスクフォース報告書」 (平成28年6月).
- [2] PHITS: T.Sato et al., J.Nucl.Sci.Technol.55, 684-690 (2018); INCL model: A. Boudard et al., Phys. Rev C87, 014606 (2013); KUROTAMA model: K. Iida, A. Kohama, and K. Oyamatsu, J. Phys. Soc. Japan 76, 044201 (2007).
- [3] PHITS開発グループ「PHITS 2.52の特徴」.
- [4] 米国標準大気、国立天文台『理科年表』、丸善出版.
- [5] PDG (Particle Data Group), The Reviews of Particle Physics (2019), Section 29, "Cosmic rays".
- [6] EXPACS; T. Sato, Analytical Model for Estimating Terrestrial Cosmic Ray Fluxes Nearly Anytime and Anywhere in the World: Extension of PARMA/EXPACS, PLOS ONE, 10(12): e0144679.
- [7] B.J. Teegarden, J. Geophys. Res. 72, 4863 (1967); D. Lal and H.E. Suess, Ann. Rev. Nucl. Sci. 18, 407 (1968); 百島則幸「解説 トリチウムの環境動態」、『富山大学水素同位体科学研究センター研究報告』20: 1-10, 2000.