

〔短 報〕

環境水中のトリチウム — 水道水, 降水 —

石川県保健環境センター 環境科学部

岡田 真規子・山岸 喜信・河野 隆史・
牧野 雅英・内田 賢吾

〔和文要旨〕

本県では、1990年度から志賀町の2地点で、水道水（水源が地下水、表流水）のトリチウムの調査を行っている。調査開始以降、トリチウム濃度は徐々に低下し、2018年以降検出されたのは水道水（水源が表流水）のみであり、検出下限値程度の低い濃度レベルであった。

2020年1月から降水中トリチウムの調査を行った結果、水道水（水源が表流水）と同程度のトリチウムが検出された。水道水から検出されたトリチウムは、過去の大気圏内核実験や原子力発電施設等によるものではなく、宇宙線生成核種として生成されたトリチウムが降水により、もたらされたものと考えられた。

降水中トリチウムと大陸起源の黄砂などの土壌粒子の評価指標に用いられるnss-Ca²⁺濃度との相関性から、大陸性気団等の影響を受けてトリチウムが移流していると考えられた。

キーワード：トリチウム, 水道水, 降水, 季節変動

1 はじめに

トリチウム (³H) は、水素の放射性同位体（半減期12.32年）で環境中にはH₂Oの形で多く存在する。主な起源は、宇宙線による窒素、酸素原子の核破砕反応による生成（宇宙線生成核種）及び過去の大気圏内核実験によるフォールアウト、原子力発電・核燃料再処理に伴う放出である。

本県では、1990年度から志賀原子力発電所監視事業¹⁾において、水道水中トリチウムを志賀町内2地点（水源：地下水、表流水）で調査している。今回、この結果をとりまとめ、全国の陸水中のトリチウムと比較したので報告する。

2地点の水道水のうち2018年以降トリチウムが検出されたのは水源が表流水の水道水のみであった。表流水の主な起源は降水であることから、2020年1月から降水中トリチウムについて調査を行ったので、その結果もあわせて報告する。

2 調査方法

2.1 試料採取

採取地点を図1に示す。

水道水は、地下水（深井戸）を水源とする志賀町末吉の水道水（以下「水道水（水源が地下水）」という。）と表流水を水源とする志賀町富来領家の水道水（以下「水道水（水源が表流水）」という。）の2地点で、1990年度から年4回（4月、7月、10月、1月）採取した。

降水は当センター屋上（金沢市太陽が丘）で、環境放射能水準調査（原子力規制庁委託事業）の全ベータ放射能調査として、平日（祝日除く）の毎朝9時（降水が観測された場合のみ）に採取している定時降水試料（以下「定時降水試料」という。）を用いた。採取期間は2020年1月から2021年3月で、調査試料数は142件であった。

2.2 調査項目

調査項目として、水道水はトリチウムを、降水はト

Study of Tritium in Environmental Water. by OKADA Makiko, YAMAGISHI Yoshinobu, KAWANO Takafumi, MAKINO Masahide and UCHIDA Kengo (Environmental Science Department, Ishikawa Prefectural Institute of Public Health and Environmental Science)

Key words : Tritium, Tap Water, Precipitation, Seasonal Variability

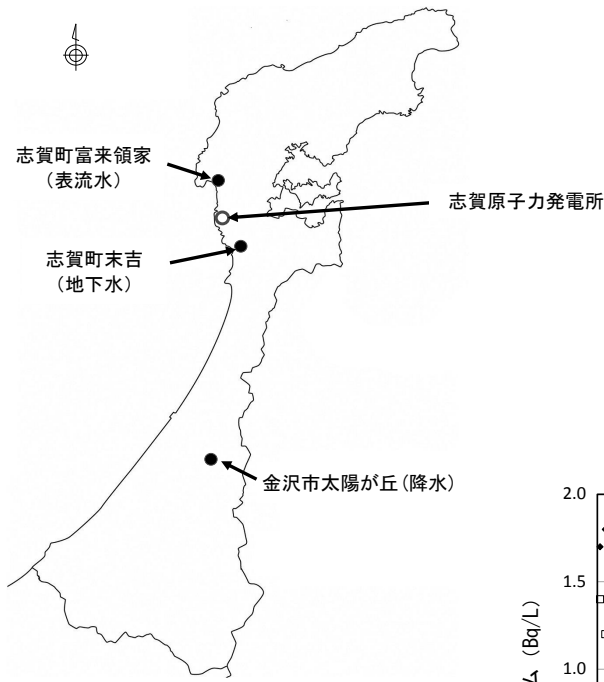


図 1 試料採取地点

リチウム及び各種イオン成分 (Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} , NO_3^-) を対象とした。

2・3 試料の前処理及び測定

(1) トリチウム

試料の前処理及び測定は放射能測定法シリーズ9「トリチウム分析法」²⁾に基づき行った。

試料水100mLに対し過酸化ナトリウム(富士フィルム和光純薬(株)製,化学用)及び過マンガン酸カリウム(和光純薬工業(株)製,有害金属測定用)を各0.1gずつ加え,ロータリーエバポレーター(ウォーターバス:55℃)を用いて減圧蒸留した。蒸留した試料水50mLを100mLのテフロンバイアルに採り,乳化シンチレータ(Perkin Elmer Japan製,Ultima Gold LLT)を50mL加え混合し測定試料とし,測定器内に約1週間静置後測定した。バックグラウンド水は,(公財)日本分析センターから提供された無トリチウム水を用いた。

測定は,液体シンチレーションカウンタLSC-LB7(株日立製作所製)及びLSC-LB5(アロカ(株)製)を用いた。

測定時間は2,550分(50分×17回×3サイクル)とした。

化学ルミネッセンスの影響を排除するため,6回目以降の測定データ12個について,カイ2乗検定及びKシグマ検定を用いて異常値等を棄却し,計10個のデータを採用した。

検出下限値は,試料水及びバックグラウンド水の測定時の計数誤差(3σ)から算出する 3σ 法により求めた。(おおよそ0.3~0.4 Bq/L)

(2) 各種イオン成分

採取した試料水を孔径0.2 μm のクロマトディスク(株ジーエルサイエンス製)を用いてろ過して測定試料とし,イオンクロマトグラフProminence HIC-SP(株島津製作所製)を用いて測定した。 Na^+ , K^+ , Ca^{2+} , Mg^{2+} , Cl^- , SO_4^{2-} , NO_3^- の各標準溶液(100mg/L)はキシダ(株)製を用いた。

3 結果及び考察

3・1 水道水中トリチウム

水道水中のトリチウム濃度の経年変化(1990~2020年度)を図2に示す。

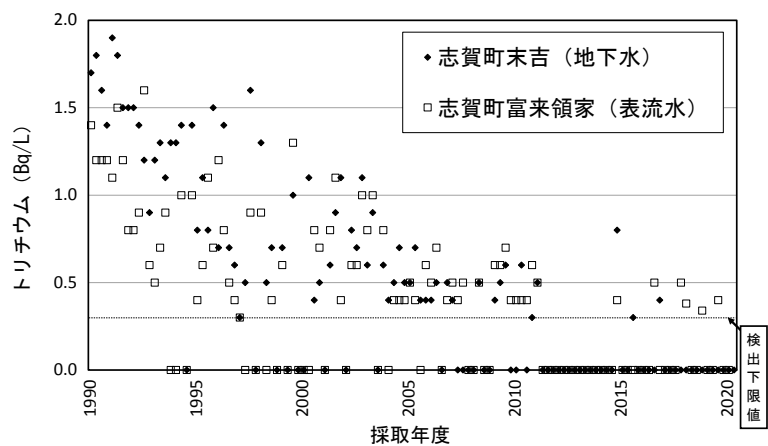


図 2 水道水中のトリチウム濃度の経年変化

水道水(水源が地下水)は1991年に1.9Bq/L,水道水(水源が表流水)は1993年に1.6Bq/Lの最高値を観測し,その後,濃度が低下,2004年度以降両者とも1.0Bq/L未満となった。2018年以降トリチウムが検出されたのは水道水(水源が表流水)のみであり,0.5Bq/L以下と検出下限値程度の低い濃度レベルとなっている。

2011年3月の福島第一原子力発電所事故により環境中にトリチウムが放出されたが,この調査結果からは事故による明らかな影響は見られなかった。

3・2 降水中トリチウム

3・1において水道水(水源が表流水)のみで近年トリチウムが検出されていることから,表流水の主な起

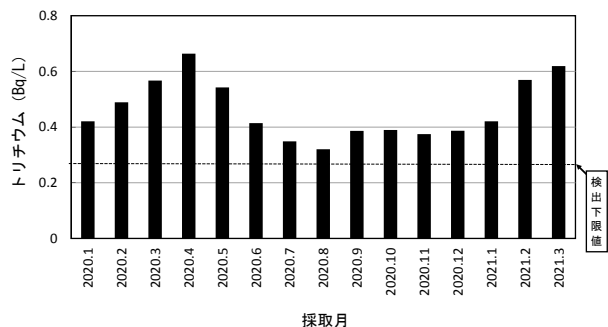


図 3 降水中トリチウムの月別平均濃度

源である降水中のトリチウムについて調査を行った。

降水中トリチウムの月別平均濃度を図3に示す。(なお、検出下限値未満は検出下限値として平均値を算出した。)

降水中トリチウムの月別平均濃度はND(8月)～0.66Bq/L(4月)であり、2～5月に高く、7～8月に低い季節変動が見られた。これは同じ日本海側の北陸地域である新潟県内の降水中トリチウム濃度の季節変動³⁾と同様の結果であった。

降水中トリチウムに季節変動が見られることから、トリチウムの起源について検討を行った。

原子力規制庁所管のデータベース⁴⁾により作成した全国の陸水中トリチウム濃度の経年変化を図4に示す。

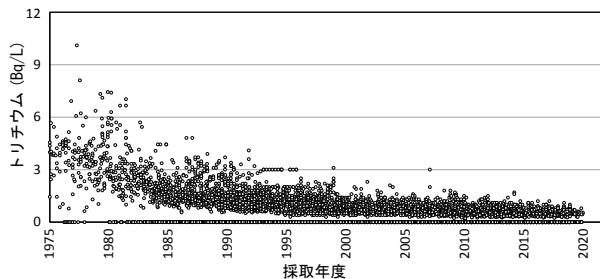


図4 全国の陸水中トリチウム濃度の経年変化
(原子力施設周辺環境放射線モニタリング調査の陸水のデータを参照)

過去の大気圏内核実験の影響を強く受けた1970年代は4.0Bq/L以上であることが多く、最大値は10.1Bq/Lであった。2019年以降はほとんどが1Bq/L未満となっており、126件中84件が検出下限値未満であった。1980年に大気圏内核実験が終了してから40年が経過し、トリチウムの半減期で3半減期以上を経過していることから、大気圏内核実験由来のトリチウムは当初の8分の1以下に低下したことになる。更に地球上にある大量の水により希釈されていることから、降水中トリチウムは過去の大気圏内核実験起源とは考えにくい。

原子力発電・核燃料再処理からもトリチウムが放出されるが、施設の点検に伴う増減はあるものの、季節的な変動は考えられない。このことから、降水中トリチウムは原子力施設・核燃料再処理施設起源とは考えにくい。

既報⁵⁾において、国立環境研究所のMETEX⁶⁾を用いて気塊の移流の計算を行い、11～5月は宇宙線によるトリチウムの生成が多い高緯度地域の大陸起源である気塊の移流が約8割以上を占め、6～9月はトリチウムが少ない海洋起源の気塊の移流が約6割以上を占めていると報告している。また、トリチウムの分布は赤道から両極に向かって濃度が増加する⁷⁾とされていることから、トリチウムの生成が多い大陸の高緯度地域から移

流した気塊により、降水中トリチウムが1～5月に高くなったと報告している。この傾向は降水中のトリチウムの季節変動と一致していた。

今回降水を採取した当センターは金沢市に立地し、水道水を採取した志賀町と南北方向で約50km離れている。既報⁵⁾では、志賀町地内の水産総合センター志賀事務所と当センターの降水中トリチウム濃度は同程度で、季節変動も同程度に推移しているとしている。また、今回の結果でも降水中トリチウムと水道水(水源が表流水)から検出されたトリチウムは、ともに検出下限値程度の濃度レベルで一致していた。

以上から降水中トリチウムの季節変動は、過去の大気圏内核実験や原子力発電施設等に由来するものではなく、大陸の高緯度地域で生成された宇宙線生成核種のトリチウムを多く含む気塊の移流により2～5月に降水としてもたらされたものと考えられた。

3.3 水道水中トリチウムの起源

3.1で調査を行った志賀町の水道水中のトリチウムは、全国の陸水と同様に濃度が低下し、近年では水道水(水源が表流水)からのみ検出され、検出下限程度の低い濃度レベルとなっている。

3.2で表流水の主な起源となる降水の調査を行った結果、水道水(水源が表流水)と同程度のトリチウムが検出されている。

これらのことから、水道水(水源が表流水)でトリチウムが検出されたのは、大陸の高緯度地域で生成された宇宙線生成核種のトリチウムが移流し、降水とともに地表面にもたらされたものと考えられた。

なお、水道水(水源が地下水)ではトリチウムが検出されなかったが、降水が地下に浸透し地下水(深井戸)となるまでに年単位での時間を要することから、検出されない濃度までトリチウムが減衰したことが一因と考えられた。

3.4 降水中の各種イオン成分

3.2で降水中トリチウムを測定した試料を用い、 Na^+ 、 K^+ 、 Ca^{2+} 、 Mg^{2+} 、 Cl^- 、 SO_4^{2-} 、 NO_3^- の各種イオン成分を測定した。 Na^+ が全て海塩に由来すると仮定し、 SO_4^{2-} より非海塩由来硫酸イオン(以下、 nss-SO_4^{2-})、 Ca^{2+} より非海塩由来カルシウムイオン(以下、 nss-Ca^{2+})を算出した。

降水中イオン成分の月別平均濃度を図5に示す。イオン成分濃度は、降水中トリチウムと同様に季節変動が見られた。

降水中トリチウム濃度と各種イオン成分濃度との相関係数を表1に示す。

NO_3^- 、 Ca^{2+} 及び nss-Ca^{2+} は、トリチウムとの相関係数が0.5以上で他のイオン成分濃度に比べ高い相関がみら

れた。nss-Ca²⁺は酸性雨調査において大陸起源の黄砂などの土壌粒子を評価する指標に用いられている。高橋ら⁸⁾はnss-Ca²⁺が他のイオン成分濃度に比ベトリチウムと相関性が高いと報告しており、同様の結果となった。

このことから、3・2同様、降水中トリチウムは大陸性気団等の影響を受けていると考えられた。

4 まとめ

- (1) 1990年度から志賀町の水源が異なる水道水2地点(水源：地下水,表流水)においてトリチウムの調査を行っている。その結果,調査開始以降濃度が徐々に低下し,2018年以降検出されたのは水道水(水源が表流水)のみであり,検出下限値程度の低い濃度レベルであった。
- (2) 2020年1月から当センター屋上で採取した降水中トリチウムの調査を行った。その結果,水道水(水源が表流水)と同程度のトリチウムが検出された。また,2～5月に高く,7～8月に低い季節変動がみられた。
- (3) 水道水(水源が表流水)から近年検出されるトリチウムは,過去の大気圏内核実験や原子力発電施設等に由来するものではなく,大陸の高緯度地域で生成された宇宙線生成核種のトリチウムが移流し,降水とともに地表面にもたらされたものと考えられた。
- (4) 降水中トリチウムと各種イオン成分濃度を比較したところ,トリチウムと大陸起源の黄砂などの土壌粒子を評価する指標に用いられるnss-Ca²⁺濃度との相関性が他のイオン成分濃度に比べ高いことから,降

水中トリチウムは大陸性気団等の影響を受けていると考えられた。

文 献

- 1) 石川県：志賀原子力発電所周辺環境放射線監視結果報告書(平成2年度から令和元年度)
- 2) 文部科学省:放射能測定法シリーズ9,「トリチウム分析法」(2002)
- 3) 山崎興樹,長谷川祥,清野詩子,鴻巣祐也,丸田文之:新潟県内の環境水中トリチウム濃度レベル,新潟県放射線監視センター年報,13,28-41(2014)
- 4) 原子規制庁ホームページ,環境放射線データベース,<https://www.kankyo-hoshano.go.jp/data/database/>,(参照2021-01-10)
- 5) 川畑俊之,小浦利弘,小森正樹:志賀地区における大気中トリチウム濃度について,石川県保健環境センター研究報告書,44,60-66(2007)
- 6) METEXホームページ:<https://db.cger.nies.go.jp/metex/web-metex.jp.html>(参照2021-03-02)
- 7) 百島則幸:IV-1 グローバルおよび我が国における環境中トリチウムの分布と挙動,日本原子力学会誌,39,923-925(1997)
- 8) 高橋優太,今泉洋,狩野直樹,斎藤正明,加藤徳雄,石井吉之,斎藤圭一:降水中におけるトリチウムとカルシウムイオンとの間の濃度相関性,RADIOISOTOPES,57,375-383(2008)