

## 環境中のトリチウム (第1報)

殿内 重政・高橋 斉・斉藤 真一

## The concentration of tritium in precipitation and tap water samples (I)

Shigemasa Tonouchi, Tsuyoshi Takahashi and Shinichi Saito

Tritium in precipitation and tap water samples were measured by liquid - scintillation counting.

The ranges of tritium concentration (average monthly concentration) in these samples are 11.5~31.9 pCi/l and 19.8~56.1 pCi/l, respectively.

At April - June 1985 and February - March 1986, contents of tritium in precipitation were high compared with the others, which was estimated due to the effect of the spring peak phenomena. The similar tendency was observed for tap water, and the another peak was observed at August.

## 1 はじめに

環境中に存在するトリチウムは、成層圏において主として $^{14}\text{N}(n, ^{14}\text{C})^3\text{H}$ の反応で作られる。このトリチウムは12.26年の半減期で $\beta^-$ 壊変して安定同位体 $^3\text{He}$ となるため、地球全体では生成と壊変が平衡となっていてその存在量は一定である。このトリチウムは人工的にも生成され、特に核実験が盛んであった1960年代には降水中のトリチウムは急激に増加し、数千pCi/lにも達した。現在では、大気圏内の核実験が行われなくなったこともあり、トリチウム濃度は減少し、天然のレベルにまで戻ってきている<sup>1)</sup>。天然の循環水中には30pCi/l程度含まれている。

現在の環境中のトリチウム濃度を把握するため、今年度は主として新潟市で採取した降水、水道水中のトリチウムについて1年間にわたり調査を行った。これらの結果は、昭和60年9月に営業運転を開始した東京電力柏崎刈羽原子力発電所周辺と、それ以外の地域とでトリチウム濃度に違いがあるかどうかの判定に役立つものと思われる。その他、柏崎刈羽地域で採取した水道水、河川水及び海水中のトリチウムとの比較も行った。さらに降水物中の $^7\text{Be}$ 、 $^{40}\text{K}$ 、降水量等についても分析を行い、各項目間の相関についても調べた。

## 2 実験方法

## 2.1 試料採取法

降水は放射線監視センター屋上で雨水採取器<sup>2)</sup>を用い

原則として1週間分まとめて採取した。その間降雨がなかった場合には、次週採取した。水道水は当研究所車庫より週1回ずつ採取した。柏崎刈羽地域では、年度計画<sup>3)</sup>に従い、水道水、河川水及び海水を採取した。

降水物については、大型水盤(円型5000cm<sup>2</sup>)を用い1カ月分の雨水ちりを採取した。

## 2.2 装置

蒸留器：科学技術庁マニュアル<sup>4)</sup>に準じ、容量500mlの硬質ガラス製三角フラスコを冷却器及びマントルヒータを組み合わせたもの。

低バックグラウンド液体シンチレーション装置：アロカ製LSC-LB1

ガンマ線分光分析装置：キャンベラ社製高純度Ge検出器を多重波高分析器(シリーズ85)に接続したもの。

データ処理装置：デック社製PDP11/23

定温乾燥器：ヤマト科学製DS-64型

## 2.3 試薬

過酸化ナトリウム：メルク社製

過マンガン酸カリウム：和光純薬製精密分析用

乳化シンチレータ：New England Nuclear社製アクアゾールII

## 2.4 分析法

水試料中のトリチウムの分析法をFig. 1に示した。

1回に測定する試料は、バックグラウンド水を含め13試料程度とした。各試料につき50分計数を10回繰返し、それを3サイクル行う。得られたデータの中から、2及び3サイクル目の5から10回までの分を採用し、異常値検

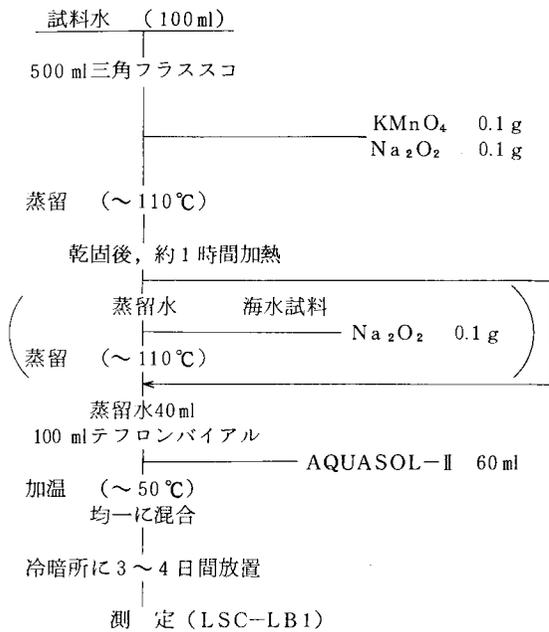


Fig.1 Method of determination

定(平均値 $\pm 3\sqrt{\text{平均値}}$ をはずれるデータを除くこと)を行った。クエンチング補正は、外部標準線源(Cs-137)を用い、 $\gamma$ 線チャンネル比法で行った。

この方法で、検出限界値を求めると、バックグラウンド1.8 cpm, 計数効率12%とすると、標準偏差は約7 pCi/l となり、検出限界値は1 $\sigma$ で7 pCi/l, 3 $\sigma$ で21 pCi/l となる。

### 3 結果と考察

#### 3.1 降水

1985年4月から1986年3月までの降水中のトリチウム濃度について採取ごとの測定値及び平均値について分析した結果を降水量とともにFig.2に示した。月平均濃度の算出法は、採取ごとのトリチウム濃度(TC)<sub>i</sub>と降水量(RW)<sub>i</sub>とすると、月平均値= $\frac{\sum_i (TC)_i (RW)_i}{\sum_i (RW)_i}$ として求めた(iは採取回数)。

月平均値では、4~6月及び2~3月に高く、7~9月及び12~1月に低い濃度を示した。ただ、これらの値は最大でも30 pCi/l程度であり、大部分が天然に生成されたものと推定される。

5~6月に高い値を示したことは、スプリングピーク

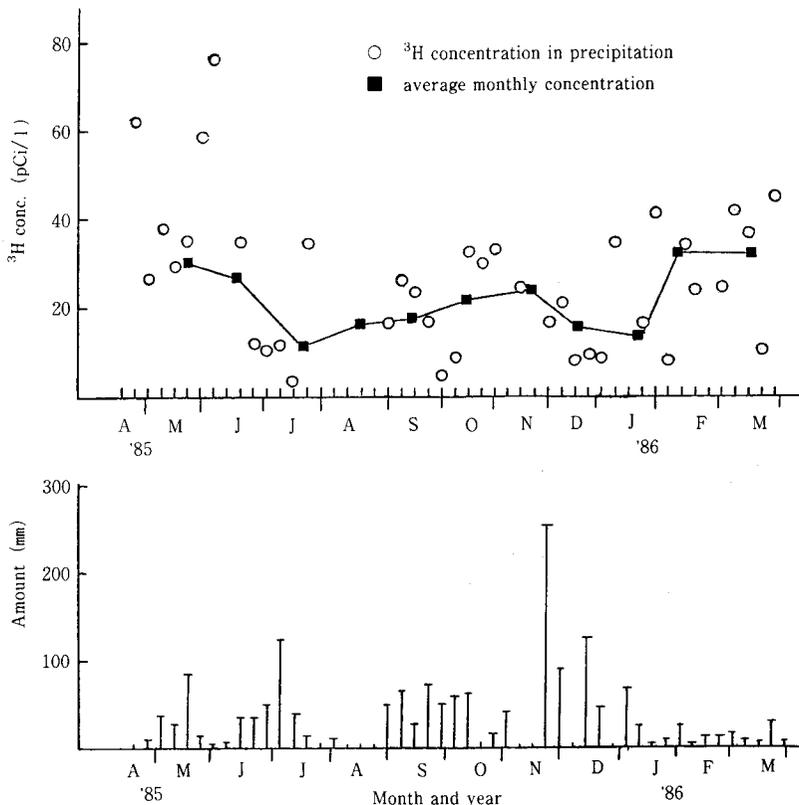


Fig.2 Variations of <sup>3</sup>H concentration in precipitation and of amount of precipitation

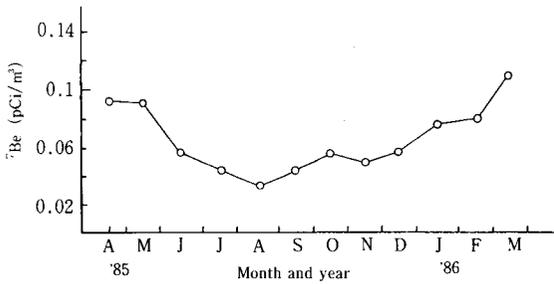


Fig. 3 Concentration of <sup>7</sup>Be in airborne dust (Kashiwazaki C.)

といわれる現象と思われる。これは、成層圏に比較的高濃度に存在する放射性核種が春に対流圏に入り込む現象のためといわれている。スプリングピークの現象を確認するため、トリチウムと同じように成層圏で生成される<sup>7</sup>Beについても、その変動を調べた。柏崎市採取した1985年4月から1986年3月までの浮遊じん中の<sup>7</sup>Be濃度の測定値をFig. 3に示したが、トリチウムとほぼ同じ傾向を示していた。ただ、トリチウムは12~1月にかけて低値を示したが、<sup>7</sup>Beではむしろ漸増傾向を示した。これは、降水（大部分が雪）の源として比較的トリチウム濃度の低い海水が水蒸気となり、再び雪の形で降下するためと推定された。

採取試料ごとの測定値については、4月末並びに5月末から6月初めにかけて高い値を示したが、このときの天気図は類似して、本州に低気圧、オホーツク海と九州に高気圧、太平洋側に前線が停滞しているという気

圧配置を示していたが、今後さらにデータを集めて気象因子との相関についても解析を行いたい。

3.2 水道水

1985年4月から1986年3月まで週1回採取した水道水中のトリチウム濃度を柏崎地域で採取した水道水、河川水及び海水と併せてFig. 4に示した。水道水中のトリチウムは、雨水に比べ5~40 pCi/l程高い値であった。この原因として、水道水は信濃川から原水を採取しているが、一般に河川水中のトリチウム濃度は降水に比べ高い値である。この原因として、河川水には現在の降水のみならず、過去のトリチウム濃度が高い頃の降水が地下に貯えられていて、伏流水として出てくるものと推定される。月平均値についてみると、8月に高値を示していたが、これは夏には降雨が少ないため比較的トリチウム濃度が高い水が伏流水として出てきたものと思われる。

3.3 柏崎刈羽地域の水道水等のトリチウム

柏崎刈羽地域で採取した水道水及び河川水中のトリチウム濃度は22~54 pCi/lであり、新潟市の水道水と同程度の値であった。

海水については、かなり低い値を示していて、10 pCi/l以下であった。

3.4 降水中のトリチウムと降下物中の放射性核種の相関

降水中のトリチウム並びに降下物中の<sup>7</sup>Be, <sup>40</sup>K, <sup>137</sup>Cs等の間で相関を調べた。(Table. 1) その結果、雨水中のトリチウム濃度と相関がみられた項目は、刈羽村で採取した浮遊じん中の<sup>7</sup>Beのみであった。トリチウム降下量

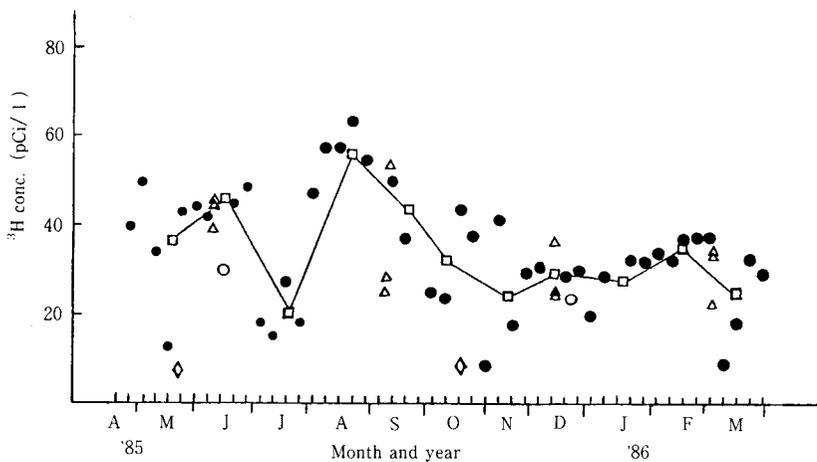


Fig. 4 Variation of <sup>3</sup>H concentration in each water

- tap water (Niigata C.)
- average monthly concentration in tap water
- △ tap water (Kashiwazaki-Kariwa area)
- river water (the Sabaishi R.)
- ◇ sea water (Kashiwazaki-Karia area)

Table.1 Correlation coefficient

No.	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10	11	12	13	14	15	16
1	—															
2	0.870**	—														
3	0.571	0.675*	—													
4	0.676*	0.363	0.240	—												
5	-0.047	-0.196	0.073	-0.132	—											
6	0.972**	0.820**	0.595	0.756*	-0.066	—										
7	0.899**	0.909**	0.593	0.607	-0.389	0.906**	—									
8	0.582	0.508	0.317	0.300	-0.199	0.646	0.681*	—								
9	0.771*	0.534	0.350	0.963	-0.232	0.827**	0.731*	0.293	—							
10	0.299	0.363	0.720*	-0.024**	0.564	0.287	0.120	-0.150	0.087	—						
11	0.788**	0.609	0.238	0.739*	0.017	0.852**	0.724*	0.526	0.786**	0.159	—					
12	0.658*	0.771*	0.597	0.469	-0.230	0.756*	0.831**	0.575	0.594	0.305	0.768*	—				
13	0.512	0.433	0.190	0.137	0.164	0.384	0.387	0.448	0.096	-0.090	0.113	-0.017	—			
14	-0.086	-0.146	-0.223	0.411	-0.338	0.087	0.169	0.342	0.295	-0.539	0.330	0.365	-0.199	—		
15	0.197	-0.021	0.041	0.626	0.186	0.388	0.185	0.245	0.530	0.060	0.670*	0.498	-0.339	0.683*	—	
16	-0.247	-0.242	0.039	-0.217	0.688*	-0.136	-0.378	-0.096	-0.281	0.479	0.107	0.081	-0.411	0.019	0.511	—
17	-0.544	-0.248	-0.319	-0.687*	0.132	-0.583	-0.461	-0.175	-0.753*	-0.249	-0.536	-0.357	0.122	-0.036	-0.342	0.243

No.1	<sup>7</sup> Be concentration in a monthly deposition (Kariwa V.)
2	<sup>40</sup> K " "
3	<sup>137</sup> Cs " "
4	amount of precipitation (mm, Kariwa V.)
5	<sup>7</sup> Be concentration in airborne dust
6	<sup>7</sup> Be " in a monthly deposition (Kashiwazaki C.)
7	<sup>40</sup> K " "
8	<sup>137</sup> Cs " "
9	amount of precipitation (mm, Kashiwazaki C.)
10	<sup>7</sup> Be concentration in airborne dust (Kashiwazaki C.)
11	<sup>7</sup> Be " in a monthly deposition (Niigata C.)
12	<sup>40</sup> K " "
13	<sup>137</sup> Cs " "
14	amount of precipitation (mm, Niigata C.)
15	<sup>3</sup> H concentration in precipitation (pCi/m <sup>2</sup> ) (Niigata C.)
16	<sup>3</sup> H " " (pCi/l) ( " )
17	<sup>3</sup> H " in tap water (pCi/l) ( " )

と相関がみられた項目は、<sup>7</sup>Be 降下量と降水量であった。

### 5 ま と め

今年度は、新潟市内で採取した雨水、水道水中のトリチウム分析を中心に行った。その結果、雨水中のトリチウムは4～6月及び2～3月が高く、水道水については雨水より高い値であった。

雨水及び海水中のトリチウム濃度はかなり低い値であるので、より正確な濃度を把握するためには、今後測定法についても検討する必要がある。

### 参 考 文 献

- 1) 茶谷邦男：環境と人体におけるトリチウム研究の諸問題，雨水，河川水のトリチウム濃度，p.57～73，(1983)。
- 2) 科学技術庁：放射能測定シリーズ1，「全ベータ放射能測定法」，(昭和51年)。
- 3) 新潟県：昭和60年度柏崎・刈羽原子力発電所周辺環境放射線監視調査年度計画書。
- 4) 科学技術庁：放射能測定シリーズ9，「トリチウム分析法」，(昭和52年)。