福島県における大気水蒸気と雨水のトリチウム濃度（2013・2014 年）

（一財）九州環境管理協会　調査分析部分析技術課　**田籠　久也**
調査分析部分析技術課　**玉利　俊哉**
調査分析部分析技術課　**川村　秀久**

1．はじめに

トリチウム（三重水素，^{3}H，T）は，半減期 12.3 年のベータ線放出核種である。トリチウムは，環境中で宇宙線と大気中に含まれる窒素や酸素との核反応により定常的に生成されている。また環境中に存在するトリチウムには，過去に行われた大気中核実験などにより放出された人為的なものも含まれている。環境中では，主にトリチウム水（HTO）などとして存在しており，水文学の分野では水のトレーサとしても利用されている。

東京電力福島第一原子力発電所（以下,「福島第一原発」という）の事故後，発電所内の汚染水中トリチウム濃度が高濃度であることが報告されている [1)]。福島県内における環境中トリチウム濃度は，河川水，湖沼水，海水等について調査された結果，現在は発電所近傍の海水を除く殆どが事故前と同程度であることが報告されている [2)]。一方，事故後の福島県内における大気中のトリチウムに関するデータは極めて限られている。

図１　調査地点

本研究では，大気中水蒸気状トリチウム（以下「大気 HTO」）濃度と雨水トリチウム（以下「雨水 HTO」）濃度を把握するため，福島県内 2 地点と福岡市内 1 地点（対照地点）において，2013 年 10 月から大気水蒸気と雨水を 1 ヶ月毎に採取し，トリチウム濃度を測定した。本稿ではその一部の結果を紹介する。

2．方法

2．１　調査地点

調査地点は,**図１**に示す福島第一原発から西北約 30km に位置する福島県田村市船引町及び常葉町である。対照地点として福岡市（九環協敷地内）も選定した。

2．２　採取期間及び採取方法

大気 HTO の採取期間は，2013 年 10 月から 2014 年 12 月である（2014 年 4 月以降の福島県調査地点は，田村市船引町のみ）。大気 HTO は 1 ヶ月間毎にモレキュラーシーブ（MS-3A）に連続捕集して採取した（**図２**）。さらに，田村市船引町及び福岡市では，1 か月間毎に雨水採取装置により雨水も採取した（天候と機材不調のため，一部欠測期間あり）。なお、2014 年 7 月以降に採取した試料は、現在分析中のため、本報告には含まない。

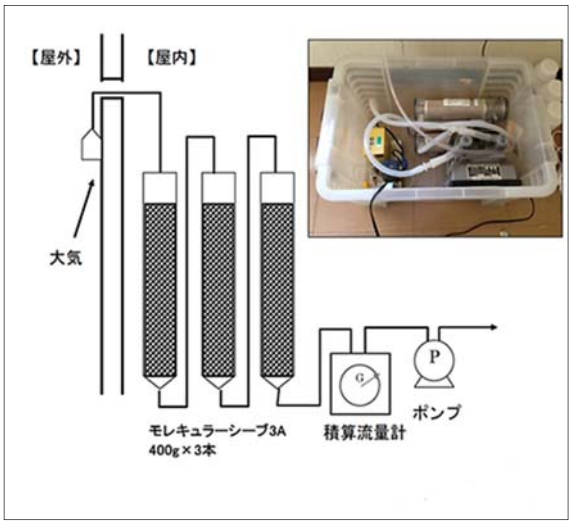

図２　大気 HTO 捕集装置

２．３　前処理と測定

大気 HTO を捕集したモレキュラーシーブは，窒素気流中で 400℃に加熱し，離脱した水蒸気をコールドトラップにて回収し，蒸留精製した。雨水は，蒸留精製後，電解濃縮した。前処理により得た水試料をシンチレータ(Perkin Elmer Ultima Gold uLLT)と混合し，数日静置した後，低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタ（Hitachi Aloka 製 LB-5 または LB-7）によりトリチウム濃度を測定した（**図３**）。

３.結果と考察

３．１　大気中水蒸気状トリチウム濃度

大気中水蒸気状試料水 1L 当たりの HTO 濃度を**図４**に示す。田村市常葉町では，0.29～0.74 Bq/L の範囲にあり，

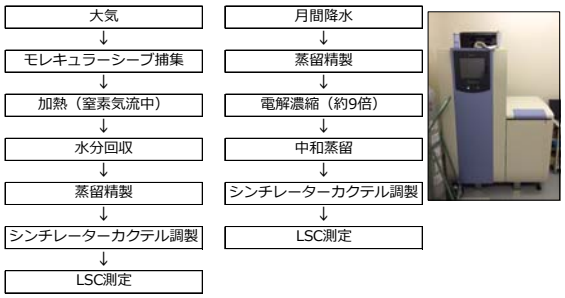

図３　大気 HTO 及び雨水 HTO の分析フロー

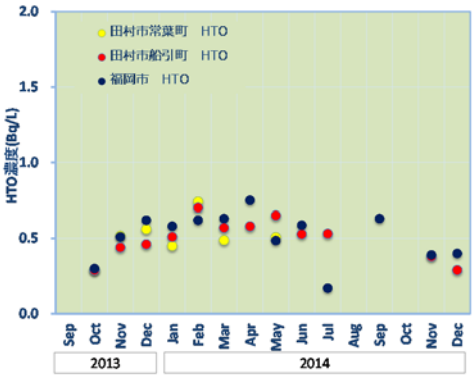

図４　大気 HTO 濃度（Bq/L）

平均値は 0.51±0.15 Bq/L であった。田村市船引町では，0.29～0.70 Bq/L の範囲にあり，平均値は 0.49±0.13 Bq/L であった。一方、参照地点である福岡市では，0.17～0.75 Bq/L の範囲にあり，平均値は 0.49±0.13 Bq/L であった。いずれの地点も春先に最大値を示していた。

大気 1m^3 当たりの HTO 濃度を大気水分量とともに**図５**に示す。田村市常葉町では，1.73～4.39 mBq/m^3 の範囲にあり，平均値は 3.20 mBq/m^3 であった。田村市船引町では，1.06～10.7 mBq/m^3 の範囲にあり，平均値は 4.03 mBq/m^3 であった。一方、福岡市では，2.23～12.8 mBq/m^3 の範囲にあり，平均値は 5.44 mBq/m^3 であった。

水分量は田村市常葉町で，3.84～14.5 g/m^3 の範囲にあり，平均値は 6.89 g/m^3 であった。田村市船引町では，3.10～20.3 g/m^3 の範囲にあり，平均値は 8.02 g/m^3 であった。福岡市では，5.59～26.2g/m^3 の範囲にあり，平均値は 11.9 g/m^3 であった。

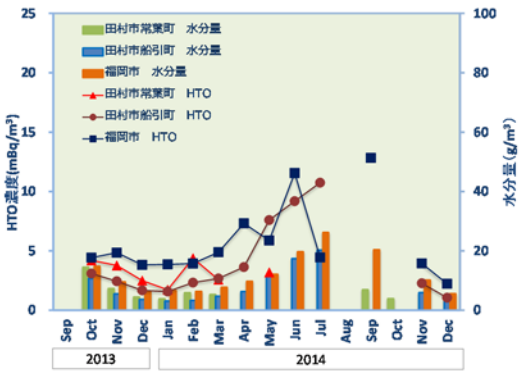

図５　大気 HTO 濃度（mBq/m^3）と水分量

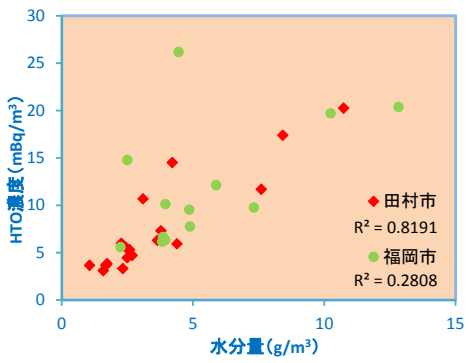

図６　大気 HTO 濃度（mBq/m³）と水分量

大気水分量と大気 1m³ あたりの HTO 濃度の関係を**図 6** に示す。大気水分量の増加に伴い，大気 1m³ あたりの HTO 濃度も増加する傾向があった。

３．２　雨水トリチウム濃度

雨水 HTO 濃度を**図 7** に示す。田村市船引町での雨水 HTO 濃度は 0.29～0.54 Bq/L の範囲にあり，平均値は 0.39 Bq/L であった。一方，福岡市での雨水 HTO 濃度は 0.25～0.71 Bq/L の範囲にあり，平均値は 0.41 Bq/L であった。田村市船引町の結果は，福岡市と大きな差異は見られず，また，これら結果は近年の千葉市における濃度レベル [3] と同等であった。なお，福岡市においては，春季に濃度がやや高くなる傾向が見られた。

３．３　大気 HTO による内部被ばく量の試算

本結果を用いて、大気 HTO の吸入による内部被ばくを試算 [4] した。その結果を**表 1** に示す。

大気 HTO 濃度は，最大値を示していた 2014 年 7 月の田村市船引町のデータと 2014 年 9 月の福岡市のデータを用いた。

試算した預託実効線量は，大気 HTO 最大濃度を 1 年間呼吸した場合の預託実効線量であり，福島県田村市及び福岡市のいずれも 10^{-6} mSv オーダーであった。

表１　大気 HTO による預託実効線量

	摂取量（m³/日）	実効線量係数（mSv/Bq）	最大濃度（mBq/m³）	**最大預託実効線量（mSv）**
田村市	22.3	1.8×10^{-8}	10.74	**1.57×10^{-6}**
福岡市			12.83	**1.88×10^{-6}**

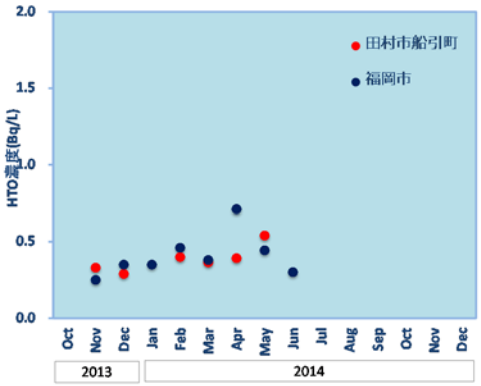

図７　雨水 HTO 濃度（Bq/L）

４．まとめ

- 2013 年 10 月から 2014 年 12 月までの大気 HTO 濃度は，田村市 2 地点と福岡市 1 地点との間で濃度に大きな差は認められなかった。
- 大気 1m³ あたりの HTO 濃度は，大気水分量と相関があった。水分量が最大となる夏季のデータで 10 mBq/m³ 程度であった。
- 雨水 HTO 濃度は，田村市 1 地点と福岡市 1 地点との間で濃度に大きな差異は認められなかった。
- 最大濃度を示す大気 HTO を 1 年間吸入した場合の預託実効線量は、10^{-6} mSv のレベルであった。

参考文献

1) 福島第一原子力発電所における汚染水処理とトリチウム水の保管状況、東京電力株式会社（http://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/pdf/140115/140115_01c.pdf）

2) 河川等の環境放射線モニタリング調査結果（トリチウム、2014 年度前期分）について、福島県（http://www.pref.fukushima.lg.jp/sec_file/monitoring/k-2/tritium140611-140905.pdf）

3) 原子力規制庁　環境放射線データベース（http://search.kankyo-hoshano.go.jp）

4) 環境放射線モニタリング指針（原子力安全委員会　平成 20 年 3 月）