

関東における降水のトリチウム濃度の近年の変動について

Recent Trend of Tritium Concentration in Precipitation in Kanto Plane, Japan

藪崎 志穂*・辻村 真貴**・田瀬 則雄**

Shiho YABUSAKI *, Maki TSUJIMURA ** and Norio TASE **

Abstract

Tritium concentration of precipitation have been collected at Ottawa from 1953 to 1960 and Tokyo from 1961 to 1971 ,which have been analyzed by IAEA ,at Tokyo from 1972 to 1976 and at Tsukuba from 1976 to 2002 . The results were compiled . The tritium concentrations of precipitation from 1950's to 1960's were increased due to the atmospheric nuclear weapon test , and these values decreased exponentially since atmospheric nuclear weapon test was almost finished in 1962 . After 1988 , the values became less than 10 TU , this result indicates that the tritium concentration of precipitation became the natural concentration level same as before the start of the nuclear weapon test . The monthly tritium concentration data showed that the tritium concentrations in spring period (from February to June) are relatively higher than those in other periods . This phenomenon is also confirmed at the site of Ryouri and Chiba in Japan . Accumulation of these data is important to estimate the residence time of groundwater and soil water .

はじめに

水素の放射性同位体であるトリチウム (^3H または T) は主に宇宙線の作用により上層大気中で生成され ($0.19 \sim 0.5 \text{ atom} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{s}^{-1}$), 成層圏でしばらく滞留した後, HTO ($^1\text{H}^3\text{HO}$) として対流圏に入る. 対流圏内で HTO は H_2O と混合し, 水の循環に加わる. 天然における濃度は 10 TU 前後とされている. トリチウム濃度の単位として使用されている TU は, Tritium Unit の略で, 1 TU は水素原子 10^{18} 個中にトリチウム原子 1 個が含まれていることを示している (山本, 1983). また, トリチウム

の半減期は 12.43 年である.

1952 年 ~ 1962 年において, 世界各地で行われた熱核爆発実験に伴い, 大量の人工トリチウムが大気中 (特に成層圏) に放出された. その結果, 特に北半球の各地で降水のトリチウム濃度は急激に上昇したが, 実験終息とともに指数関数的に低下した. 熱核爆発実験に由来するトリチウム濃度の高い降水は, 土壌水の降下浸透速度や地下水の滞留時間を指定する上で, 有効なトレーサーとして従来用いられてきた (例えば, 藪・樫根, 1987; Johnston *et al.* , 1998; De Vries and Simmers, 2002; Bolsunovsky and Bondareva, 2003; Marechal and

* 筑波大学大学院地球科学研究科

** 筑波大学地球科学系

Etcheverry, 2003 など)。

近年我が国では、降水のトリチウム濃度はほぼ天然レベルにまで戻ってきており、また、土壤水の浸透速度が速く、地下水の滞留時間の比較的短い日本のような地域では、上記のように降水のトリチウム濃度のピークをトレーサーとして用いる手法は、その有効性が希薄になってきている。しかし、難透水性の土壤が堆積している地域や、より深層部に存在している土壤水・地下水などには、現在でも比較的高いトリチウム濃度が検出される可能性が考えられる。

筑波大学地球科学系水文学分野では、前身の東京教育大学理学部水収支論講座時代の1972年以降現在まで約30年間にわたり、降水中のトリチウム濃度を月単位で測定してきている。この間、東京からつくばという場所の移動はあるものの、関東平野における降水のトリチウム濃度の長期データとして、公表する意義は高いものと考えられる。

本データのうち、1972年から1993年までのものは既に Shimada *et al.* (1994) に公表されている。本稿では、これに1994年～2002年までのデータを加えて公表するとともに、関東地方における降水のトリチウム濃度の最近30年間の変動傾向を指摘する。

研究方法

1. 降水の採取方法

1972年から1976年11月までは東京教育大学にて、1976年12月から1989年12月および2000年4月から2002年12月までは筑波大学の地球科学系棟の屋上にて、1990年1月から1998年7月までは同大学の水理実験センター（現陸域環境研究センター：TERC）で、1998年8月から2000年3月までは同大学の理科系修士棟の屋上にて降水を採取した。酸素・水素の安定同位体分析用については降水毎に採取し、トリチウム分析用については月毎にサンプルを採取した。

降水の採取は、Shimada *et al.* (1994) に基づき、10Lのポリタンクに直径12cmのロートを装着し、蒸発防止を施した採水装置を用いて実施している（写真1）。1ヶ月に1回、タンクに貯留された降水を計量した後、1000mlのポリ容器に満杯にして保管をした。月降水量および月平均気温のデータは、高層気象台（つくば市館野）で観測されているデータを利用した。

2. トリチウムの測定方法

トリチウムの測定手順は、嶋田（1992）に準じた。概略を以下に示す。まず、採取した降水サンプル500mlを、試料水の脱塩、不純物の除去のため、リービッヒの冷却装置を用いて一次蒸留をする。蒸留後のサンプル水を450ml計量し、電解質である Na_2O_2 を0.4%（=1.8g）投入し、溶解させる。続いて、ニッケル電極からなるガラス性電解セルに入れ、5に制御された冷却水槽に浸して電気分解を行い（付加電流は0.8～14A）、サンプル



Photo 1 Precipitation sampler which have been settled at the rooftop of the Geoscience building, the University of Tsukuba

結果・考察

水の濃縮を実施する．これは、近年の降水のトリチウム濃度が天然レベル程度まで低下し、そのままでは値を直接計測することが不可能であるためである．サンプル水 450 ml が約 18 ml になるまで電解した後、炭酸ガスで中和させ、その後真空蒸留を実施して精製を行う．精製された濃縮試料 10 ml を低カリガラス性バイアル (20 ml 容量) に入れ、液体シンチレーター (Packard 社製、Pico-Fluor LLT) 10 ml を加え密栓して攪拌させた後、低レベル放射能測定用液体シンチレーションカウンター (Packard 社製、2000CA 型) にて、100 分間計測を各々のサンプルについて 10 回繰り返し、カウントデータをトリチウム濃度値 (TU 値) に換算した．

降水採取量が 500 mL に満たない場合については、加える Na₂O₂ 量の調整を行い、後は同様の方法を用いて測定を実施した．

(1) 降水のトリチウム濃度

1972 年から 2002 年までのすべてのデータを第 1 表に、また第 1 図には、IAEA による Ottawa と東京のデータを加えた、1953 年 ~ 2002 年までのトリチウム濃度変化を示した．1953 年 ~ 1960 年は Ottawa で採取された降水の測定値 (IAEA) をもとにして、相関をとって求めた推定値である．1961 年 ~ 1971 年は東京で採取された降水 (IAEA, 1969, 1970, 1971, 1973), 1972 年 ~ 1976 年 11 月は東京で採取された降水, 1976 年 12 月以降は筑波大学構内で採取した降水のトリチウムデータである．また 1972 年 ~ 1993 年 7 月までのデータは Shimada *et al.* (1994) で公開済みである．

Table 1 Tritium concentration of precipitation from 1972 to 2002
(The data from January, 1972 to July, 1993 have been reported by Shimada *et al.* (1994))

	January	February	March	April	May	June	July	August	September	October	November	December	Average	Corrected ^{*1}
1972	22.8	45.1	35.8	46.1	65.4	54.6	19.0	25.9	18.5	15.3	12.6	10.4	31.0	5.8
1973	18.1	53.4	28.4	25.7	22.5	44.0	13.8	13.5	19.4	6.4	6.4	×	22.9	4.5
1974	16.6	16.5	43.2	32.9	23.8	41.8	26.0	19.5	15.1	16.9	9.1	9.1	22.5	4.7
1975	11.3	11.3	23.8	23.8	16.8	18.9	8.9	7.4	16.4	6.5	7.2	12.2	13.7	3.0
1976	×	11.5	20.8	10.6	20.1	10.4	12.0	8.0	7.2	8.2	7.0	7.3	11.2	2.6
1977	7.5	9.5	10.9	20.5	13.6	27.1	28.8	14.4	3.8	16.5	6.1	12.5	14.3	3.5
1978	11.5	6.8	14.9	34.1	26.7	13.7	13.1	13.2	13.2	14.8	10.3	21.0	16.1	4.2
1979	11.6	13.9	16.5	14.5	21.7	17.5	14.5	16.0	6.4	12.8	5.9	9.4	13.4	3.7
1980	9.7	17.5	15.8	28.3	10.4	8.8	10.8	9.3	7.7	4.2	6.0	7.1	11.3	3.3
1981	8.2	12.1	13.7	14.5	10.1	×	19.8	×	×	×	×	—	13.1	4.1
1982	×	×	10.1	7.2	9.8	14.1	4.0	5.3	4.4	4.8	4.7	6.2	7.1	2.3
1983	5.7	3.2	×	6.5	4.4	18.2	9.7	×	4.1	×	×	—	7.4	2.6
1984	×	×	6.3	5.4	4.9	4.8	5.8	5.3	7.6	6.3	4.0	3.7	5.4	2.0
1985	6.6	×	4.7	6.0	5.6	7.4	6.1	×	3.6	4.4	5.1	×	5.5	2.1
1986	×	×	6.4	×	7.4	6.7	6.4	3.1	9.2	—	—	3.7	6.1	2.5
1987	—	×	—	7.2	5.2	8.3	4.7	3.8	4.2	2.7	3.4	4.8	4.9	2.1
1988	3.8	7.2	8.9	7.2	10.0	7.5	4.5	5.3	3.8	4.9	5.0	—	6.2	2.8
1989	3.2	6.3	7.0	5.8	8.7	4.6	3.6	3.7	2.8	3.6	4.3	3.5	4.8	2.3
1990	3.7	3.6	4.2	4.1	4.3	3.0	3.1	5.5	3.4	3.4	3.7	6.3	4.0	2.1
1991	3.6	5.2	3.8	6.3	6.7	7.0	4.6	1.8	1.8	2.3	2.1	—	4.1	2.2
1992	3.8	—	4.8	4.3	6.5	5.0	5.9	—	3.1	3.4	2.7	2.6	4.2	2.4
1993	4.9	3.5	6.1	—	4.7	7.5	4.5	2.3	×	2.6	2.0	2.3	4.0	2.4
1994	3.7	×	3.3	6.9	3.1	7.6	3.9	3.9	2.3	×	×	×	4.3	2.8
1995	×	4.6	4.6	5.4	4.4	4.0	4.4	4.1	×	×	×	—	4.5	3.0
1996	×	×	4.6	×	6.2	×	5.3	×	2.2	4.9	4.7	2.3	4.3	3.1
1997	4.3	×	4.0	5.6	3.5	5.3	4.3	4.0	4.2	5.4	3.0	—	4.4	3.3
1998	3.7	4.6	—	3.9	5.3	4.0	2.8	1.9	1.2	2.5	—	2.9	3.3	2.6
1999	—	—	5.2	6.2	2.6	4.3	1.5	1.1	1.5	2.3	1.7	1.6	2.8	2.4
2000	2.5	6.7	3.0	3.9	4.1	3.3	1.3	4.6	3.0	2.2	1.8	—	3.3	3.0
2001	4.3	3.6	5.2	5.4	5.8	7.8	1.1	1.2	1.9	2.1	3.9	3.8	3.8	3.6
2002	2.0	5.4	5.9	7.2	5.4	6.5	2.1	3.7	4.6	3.5	2.6	3.7	4.4	4.4

— : No sample × : Not measured

*1 : Tokyo and Tsukuba (refer to Shimada *et al.* , 1994)

*2 : Tsukuba (refer to Shimada *et al.* , 1994)

*3 : Tsukuba

*4 : Corrected value which took attenuation into consideration on the basis of December , 2002

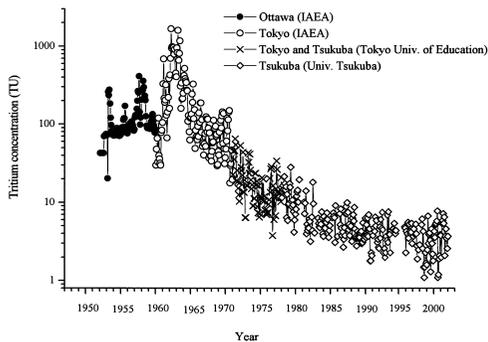


Fig.1 Secular variation of tritium concentration in precipitation at Tokyo (1961-1971), Tokyo and Tsukuba (1972-1978) and Tsukuba (1979-2002), and estimated value using liner regression function from Ottawa precipitation (1953-1960)

大気中で熱核爆発実験が実施された 1952 年以降, 降水のトリチウム濃度は急激に上昇して, 1963 年 3 月にピークが生じており, その値は 1680 TU となっている. しかし, 熱核爆発実験終了後は指数関数的に値が減少し, 1982 年以降では 10 TU 以下となっている.

1979 年 ~ 2002 年における降水のトリチウム濃度の年平均値の変化を, 第 2 図に示した. この間におけるトリチウム濃度の平均値は, 5.7 TU である. また 1989 年以降のトリチウム濃度はほぼ 5.0 TU 以下となっており, 若干の変動はあるもののほぼ一定の低い値であることが示されている.

さらに 1979 年 ~ 2002 年における降水のトリチウム濃度の各月の平均値をみると (第 3 図), 2 月 ~ 6 月にかけて, トリチウム濃度が相対的に高い値となる傾向が表れている. こうしたスプリングピークの存在は, 綾里や千葉で観測されたデータ (放射線医学総合研究所, HP 公開データ) でも確認され, 嶋田 (1978) や岡村ほか (1993) の福岡市の観測結果においても指摘がなされている. 岡村ほか (1993) は, 大陸性気団を起源とする降水のトリチウム濃度は, 海洋性のものと比較して相対的に高いトリチウム濃度であることを示し, 結果としてアジア大陸からの気団 (大陸性気団) が卓越する 3 月 ~ 5 月の降

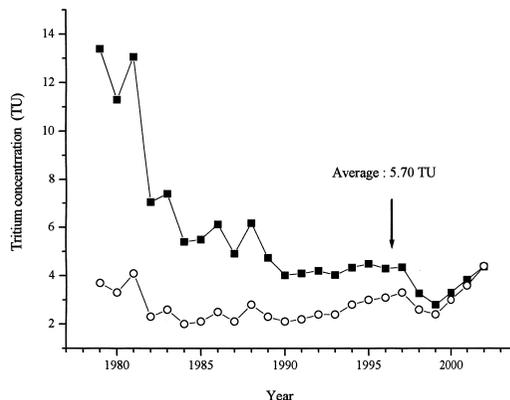


Fig.2 Annual mean of tritium concentration of precipitation at Tsukuba from 1979 to 2002

□ : Analyzed value
○ : Corrected value in consideration of radioactive decay of tritium at the time of December 2002

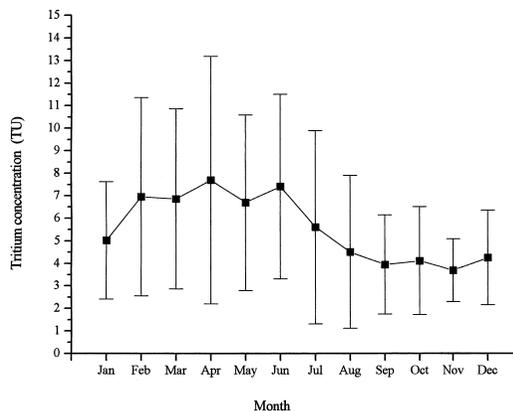


Fig.3 Monthly mean of tritium concentration in precipitation at Tsukuba from 1979 to 2002

水のトリチウム濃度が高くなり, このような降水の起源となる気団の違いがスプリングピークの形成要因であると考えている.

(2) TERC 圃場内の地下水のトリチウム濃度について 筑波大学陸域環境研究センター構内の圃場に設置された 2.2 m の観測井において, 2001 年 ~ 2002 年にかけて地下水採取を行い, そのトリチウム濃度の測定結果を第 4 図に示した. なお, この図には TERC 研究棟横に掘削された深度 2 m のトレンチ

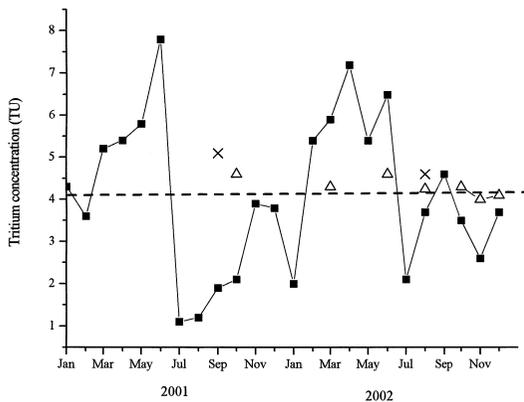


Fig.4 Temporal change of tritium concentration in precipitation and groundwater taken at TERC from 2001 to 2002
 : Monthly precipitation
 × : Groundwater at trench in TERC
 : Groundwater of the observation well (depth of 2.2 m) in TERC
 Broken line : Average of the precipitation (= 4.1 TU) from January 2001 to December 2002 .

において採取した地下水のトリチウム濃度についても、併せて表示した。

地下水のトリチウム濃度変動は、降水のそれと比較すると変動幅は非常に小さく、また年間を通じほぼ一定の値を示す傾向があり、その平均値は 4.3 ± 0.2 TU である。2001 年～2002 年における降水のトリチウム濃度の平均値は、 4.1 ± 0.3 TU であり、地下水の平均値とほぼ同じである。放射壊変を考慮した 2002 年 12 月時点における降水のトリチウム濃度をみると（第 2 図）、1982 年～2000 年までの年平均値は概ね 3 TU を下回る。一方、1970 年代以前の降水のトリチウム濃度は、2002 年時点でも 10 TU を上回る。以上のことから、TERC の地下水はここ数年（2～3 年）の間に涵養された水である可能性が強いことが示唆される。

また、第 4 図を詳細にみると、地下水のトリチウム濃度にも若干の季節変動が生じている傾向がみられるが、今回示したデータは期間が限られているため、地下水のトリチウム濃度の季節変動を明確に断定することは難しい。しかし、今後、地

下水や降水を通年を通して採取して、トリチウム濃度を測定することによって、得られたトリチウム濃度の季節変動から、地下水の涵養時期の推定を行うことができる可能性があると考えられる。

まとめ

関東において観測された、降水中のトリチウム濃度長期データを示し、若干の考察を加え、以下のことが明らかとなった。

1. 降水のトリチウム濃度は 1964 年をピークとしてその後減少しており、1982 年以降では 10 TU 以下、1989 年以降ではほぼ 5.0 TU 以下の値を示しており、近年では熱核爆発実験以前の自然レベルに戻っていることが示された。
2. 近年の降水において、2 月～6 月にかけて降水のトリチウム濃度が相対的に高くなる傾向がみられた。降水の起源となる気団の違いが、このような降水のトリチウム濃度の季節変動をもたらしていると考えられる。
3. 地下水のトリチウム濃度における季節変動は、降水のそれに比較して相対的に小さい。また、地下水のトリチウム濃度の年平均値は降水の値とほぼ一致しており、地下水は比較的最近の降水によって涵養されたものである可能性が高い。

謝辞

細部に渡り貴重なコメントを頂きました査読者の先生方に、心より御礼申し上げます。

文献

- 岡村正紀・平井英治・松岡信明（1993）：福岡市における降水中トリチウム濃度の最近の変動．地下水学会誌，35，87-93．

- 嶋田 純 (1978): 降水中のトリチウム濃度の時系列変化と降水の起源となる気団との関係 . *Radioisotopes* , **27** , 13-18 .
- 嶋田 純 (1992): 環境トリチウム測定のための新電解濃縮システムについて . 筑波大学水理実験センター報告 , **16** , 63-68 .
- 藪 相根・榎根 勇 (1987): 洪積台地における地下水の三次元的流動 - 環境トリチウムと水質による地下水の循環と滞留時間 - . 地下水学会誌 , **29** , 89-98 .
- 山本 莊毅 (1983): 新版地下水調査法 . 古今書院 , 490p .
- Bolsunovsky ,A . Ya .and Bondareva ,L .G .(2003): Tritium in surface water of the Yenisei River basin . *Journal of Environmental Radioactivity* , **66** , 285-294 .
- De Vries , J . J . and Simmers , I . (2002): Groundwater recharge : an overview of processes and challenges . *Hydrogeology Journal* , **10** , 5-17 .
- Johnston , C . T., Cook , P . G., Frappe , S . K., Plummer , L .N., Busenberg ,E .and Blackport ,R .J .(1998): Ground water age and nitrate distribution within a glacial aquifer beneath a thick unsaturated zone . *GROUND WATER* , **36** , 171-179 .
- IAEA(1969): Environmental isotope data No .1 .*Technical Report Series* , No.96 , 421p .
- IAEA(1970): Environmental isotope data No .2 .*Technical Report Series* , No.117 , 404p .
- IAEA(1971): Environmental isotope data No .3 .*Technical Report Series* , No.129 , 402p .
- IAEA(1973): Environmental isotope data No .4 .*Technical Report Series* , No.147 , 434p .
- Marechal , J . C . and Etcheverry , D . E . (2003): The use of ^3H and ^{18}O tracers to characterize water inflows in Alpine tunnels *Applied Geochemistry* ,**18** ,339-351 .
- Shimada J., Matsutani J., Dapaah-Siakwan S., Yoshihara , M., Miyaoka K and Higuchi A (1994): Recent trend of tritium concentration in precipitation at Tsukuba , Japan . *Annual Report of the Institute of Geoscience ,the University of Tsukuba* ,**20** ,11-14 .
- (2003年5月21日受付, 2003年7月24日受理)