



2. 環境トリチウムの現状と分布

2.2 雨のトリチウム

百島則幸

九州大学アイソトープ総合センター

(原稿受付：2009年6月8日)

成層圏で宇宙線と大気中元素との核反応で生成した天然トリチウムは、対流圏へ移行し、もっぱら雨として地表に降下する。核実験で成層圏に注入されたトリチウムは1950-1980年代の雨に顕著に検出されたが、現在の雨のトリチウムレベルは天然レベルに戻ったと考えられる。天然トリチウムの生成量は11年サイクルの太陽活動に連動して変化しているはずであるが、その変動をはっきりと雨に見出すことはできない。これはトリチウムの半減期が長いことと地表面からの再蒸発というトリチウム独特の環境挙動によるためと考えられる。

Keywords:

tritium concentration in rain, natural production by cosmic ray, solar activity, contamination with nuclear explosion test, seasonal variation, air mass, back trajectory

2.2.1 天然トリチウムの生成と対流圏への移行

2次宇宙線と大気成分との核反応で生成したトリチウムは、大気中で安定な化学形にすみやかに変化する。大気中には水素、炭化水素、水蒸気などの化学形のトリチウムが存在しているが、核反応で生成したトリチウムの大部分は酸化物（トリチウム水）になると考えられている[1]。トリチウムの生成速度はターゲットとなる原子の数と中性子フラックスに依存することから高度と緯度で変化する。天然トリチウムの約2/3は成層圏で作られ、残りの1/3が対流圏で作られていると推定されている[2]。したがって成層圏で生成したトリチウムの対流圏への移行速度、すなわち成層圏におけるトリチウムの滞留時間は雨のトリチウム濃度を支配する一因となっている。圏界面は成層圏と対流圏の大気の混合を制限しているが、中緯度地帯では春先に圏界面にギャップができ成層圏と対流圏で大気混合が活発に起こることが知られている。このときにトリチウムに限らず成層圏から対流圏に物質が移動する。成層圏に注入された核実験起源のトリチウムが対流圏に降下して雨のトリチウム濃度と降水量が春先に増大する季節変化はスプリングピークとして知られている[3]。核実験で成層圏に注入された⁹⁰Srの地表面への降水量は中緯度に極大を示していることから、雨として地表に降下するトリチウム量も中緯度が大きいと考えられている。

トリチウムに限らず宇宙線起源である誘導放射性核種の生成量は**太陽活動***1で変動する。太陽活動が活発な時は大気に到達する銀河宇宙線が少なくなり、誘導放射性核種の生成量が減少する。半減期の短い大気中の⁷Be濃度には11

年サイクルで変動する太陽活動による生成量の変動が観測され、太陽活動の指標である黒点数と大気中⁷Be降下量は逆相関を示している[4]。半減期が長い大気中の¹⁰Be降下量は約2年遅れて太陽活動と逆相関を示し[4]、この遅れは成層圏における¹⁰Beの滞留時間と考えられている。天然トリチウムの生成量も太陽活動に伴い11年サイクルで変化しているはずであるが、グリーンランドで採取された核実験以前の氷柱のトリチウム分布に明確な変動は確認されていない[5]。トリチウムの半減期は、成層圏におけるトリチウムの滞留時間より長いので、雨のトリチウム濃度は太陽活動より遅れた濃度変動を示す可能性があるが、地表面からの水の蒸発散による影響を受けているため、粒子状の降下物ほど明確に生成量の変動を反映しないものと考えられる。

2.2.2 核実験と雨のトリチウム濃度の変遷

天然トリチウムが発見[6]された1950年には、すでに大気圏内核実験が開始されていたため、大気圏内核実験が開始される前の雨のトリチウムデータはない。1950年代前半の雨のトリチウム濃度の報告値を見ると、1954年春に行われた比較的大規模な大気圏内核実験の影響を受けたと考えられる高いトリチウム濃度の雨がシカゴで観測されている[7]。したがって、1954年以前の核実験の影響を受けていないと思われる雨や南半球の雨のトリチウムデータから天然起源の雨のトリチウムレベルは1 Bq/L以下と推定されている。わが国の雨に関しては1953年に採取された神戸の雨のトリチウム濃度が0.78 Bq/Lと報告されている[8]。

2.2 Tritium in Rain

MOMOSHIMA Noriyuki

author's e-mail: momorad@mbox.nc.kyushu-u.ac.jp

* 1 用語集参照

ちなみに1953年は太陽活動の極小期でトリチウム生成量は多かった年に相当する。1950年代後半以降、大気圏内核実験が活発に行なわれるようになったため、雨のトリチウム濃度は核実験の影響を色濃く反映するものとなった。1963年に大気圏内核実験停止条約が米国、ロシア（旧ソ連）、英国で結ばれたが、停止条約直前に大気圏内核実験が活発に行われ大量のトリチウムが環境へ放出された。東京と千葉で測定された雨のトリチウム濃度の経時変化を図1に示す[9]。1962-1964年の停止条約締結年の前後に高濃度のトリチウムを含む雨が降っていることがわかる。1963年3月に200 Bq/L、1964年3月に192 Bq/Lの高濃度の雨が観測されている。カナダでは1,200 Bq/Lのトリチウム濃度の雨が観測されている[10]。核実験停止後の1964年に観測された高濃度のトリチウムの雨は、核実験で成層圏に注入されたトリチウムが対流圏に降下したため、高濃度のトリチウムを含む雨は日本各地で観測され、太平洋側で高く日本海側で高い地域差が見られている[11]。1960年代後半以降は、成層圏の核実験起源のトリチウムが順次対流圏に移行し、雨のトリチウム濃度も減少していった1980年代後半以降は1 Bq/L以下のトリチウム濃度を示すようになったことから、もはや成層圏には核実験起源のトリチウムは残っていないと考えられる。

2.2.3 現在の雨のトリチウムレベル

熊本市で2001-2005年に採取されたひと雨ごとの雨のトリチウム濃度を図2に示す[12]。トリチウム濃度は0.11-1.04 Bq/Lの範囲にあり、平均は 0.36 ± 0.19 Bq/L ($n = 104$)であった。また、1996-1997年に福岡市で測定されたひと雨ごとの雨のトリチウム濃度は、0.26-2.19 Bq/Lで平均は 0.84 ± 0.40 Bq/L ($n = 43$)であった[13]。1980年代後半以降は核実験起源のトリチウムはもはや成層圏には残っていないと思われることから、これらのデータは天然トリチウムの雨の濃度を示していると考えられる。福岡市のデータが得られた1996-1997年は太陽活動の極小期に当たり、一方、熊本市のデータは2001-2002年の太陽活動の極大期か

ら極小期への移行中に得られたものである。熊本市の雨のトリチウム濃度の年平均値に増加傾向は見られていないことから、福岡と熊本の雨の濃度の違いは太陽活動に連動した天然トリチウムの生成量の変化を反映したものではなく、熊本市と福岡市に雨をもたらしている気団の移動経路の違いなどの地域差によるものと考えられる。2007-2008年に土岐市の核融合科学研究所で採取されたひと雨ごとの雨のトリチウム濃度を図3に示す。トリチウム濃度は0.24-0.70 Bq/Lの範囲にあり平均は 0.46 ± 0.14 Bq/L ($n = 23$)であった。2007-2008年は太陽活動が極小期に当たっているが濃度の増加は見られていない。

2.2.4 気団と雨のトリチウム濃度

核実験で成層圏まで注入されたトリチウムが卓越して春先に対流圏へと移行する現象が天然トリチウムでも起こっていることは、熊本市と土岐市の雨のトリチウム濃度の季節変化に確認できる。この春先の増加は成層圏から対流圏へ季節的なトリチウムの降下量の増大によるものであるが、成層圏と対流圏の混合は春に限らず不定期に起こることが知られている。例えば、発達した積乱雲が成層圏まで達するような場合がそうである[14]。一般的に海水のトリチウム濃度は低く、大陸の陸水のトリチウム濃度は高い。

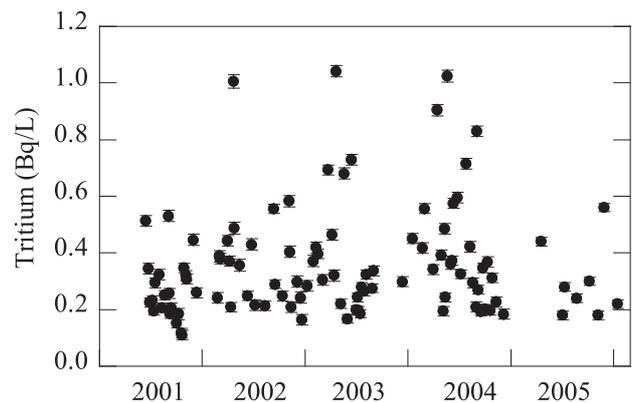


図2 最近の雨のトリチウム濃度（熊本）[12].

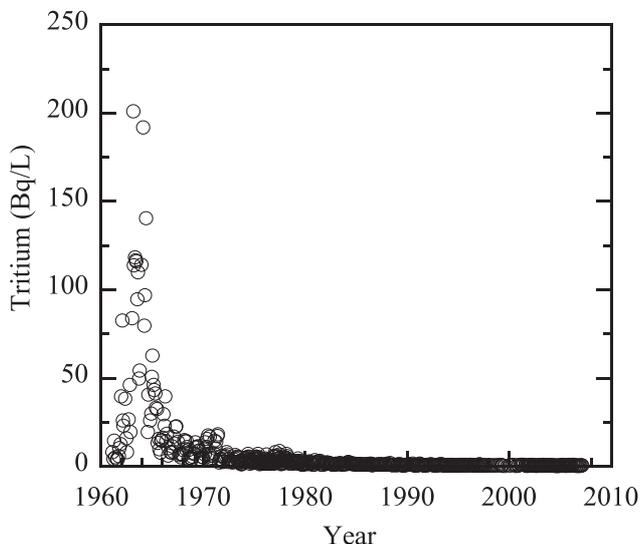


図1 雨のトリチウム濃度の経時変化（東京と千葉）[9].

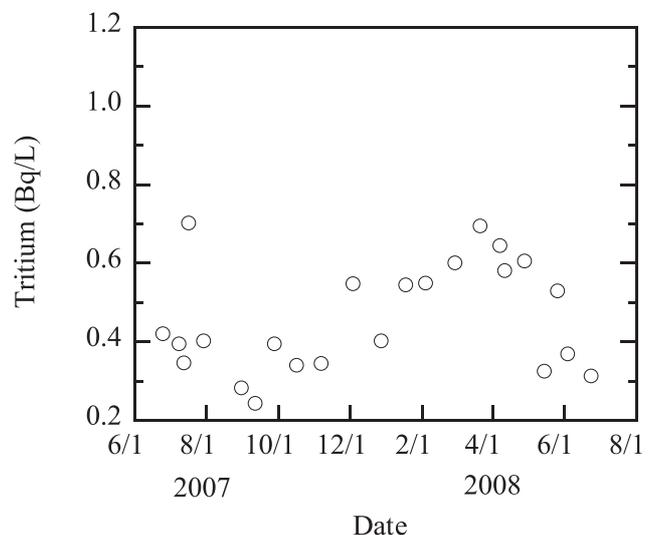


図3 最近の雨のトリチウム濃度（土岐）.

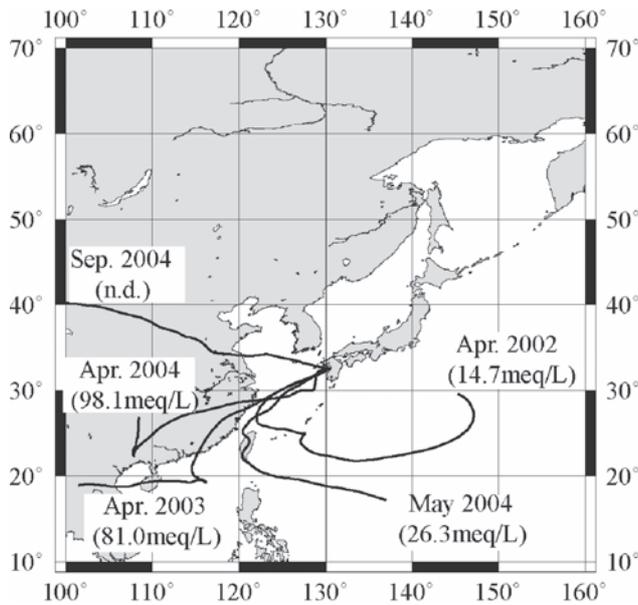


図4 熊本市で観測された雨のトリチウム濃度が0.8 Bq/L以上(図2参照)の気団の流跡線[12]。括弧内に非海塩性硫酸イオン濃度を示す。

したがって、海洋性気団の影響を受けた雨のトリチウム濃度は低く、大陸性気団の影響を受けた雨のトリチウム濃度は高い。雨のトリチウム濃度は、日本が中国大陸を経由してきた大陸性気団に覆われたときと海洋性気団に覆われたときでは異なることが知られている[15]。熊本市で観測された比較的高いトリチウム濃度の雨の流跡線解析の結果が図4に示されているが[12]、トリチウム濃度が高い環境である大陸を経由していない気団で高いトリチウム濃度の雨が降っている場合が見られる。これらの気団の1週間前までの流跡線は海洋上にあり、気団の非海塩性硫酸イオン濃度も低く陸域の影響が少ないことがわかる。海洋大気中の水蒸気状トリチウム濃度は一般的に低いにも関わらず、この気団がもたらした雨のトリチウム濃度が高いのは、成層圏トリチウムがこの気団に流入したためと考えるのが適当であろう。

2.2.5 まとめ

成層圏に核実験起源のトリチウムはもはや残っていないため、現在の雨は天然のトリチウムレベルを示している。

一般的に雨のトリチウム濃度は大陸を経由してきた大陸性気団が高く、海洋性気団が低い傾向が見られるが、これはトリチウムの環境分布を反映したものである。また、成層圏トリチウムの影響を強く受けた気団の雨のトリチウム濃度は高くなると考えられる。太陽活動の11年サイクルの伴う天然トリチウム生成量の変動は雨のトリチウムには見られていない。これはトリチウムの半減期が長く再蒸発という独特の環境挙動が生成量の変動を不明瞭にしているためと考えられる。

本研究の一部は、核融合科学研究所研究費(04KOBS008, 07KOBS011)によって遂行された。

参考文献

- [1] P. Harteck, J. Chem. Phys. **10**, 1746 (1954).
- [2] H. Craig and D. Lal, Tellus **XIII**, 85 (1961).
- [3] H. Morishima, H. Kawai, T. Koga and T. Niwa, J. Radiat. Res. **26**, 283 (1985).
- [4] H. Nagai, Proc. the Second Workshop on Environmental Radioactivity, p. 175-178 (Tsukuba, 2001).
- [5] D. Lal and B. Peters, Progress in Elementary Particles and Cosmic Ray Physics, edited by J. G. Wilson and S. A. Wouthuysen, Vol. 6, p.1 (1962).
- [6] V. Faltings and P. Z. Harteck, Z. Naturforsch. **5a**, 438 (1950).
- [7] F. Begemann and W.F. Libby, Geochim. Cosmochim. Acta **12**, 277 (1957).
- [8] H. Von Buttlar and W.F. Libby, J. Inorg. Nucl. Chem. **1**, 75 (1955).
- [9] NETS DB, <http://www.nirs.go.jp:8080/anzendb/NetsDB.html>
- [10] IAEA, Technical reports series No. 96 (1969).
- [11] T. Takahashi, M. Nishida, S. Ohno and T. Hamada, Radioisotopes **18**, 560 (1969).
- [12] N. Momoshima, S. Sugihara, T. Toyoshima, Y. Nagao, M. Takahashi and Y. Nakamura, Fusion Sci. Techno. **54**, 293 (2008).
- [13] Y. Hayashi, N. Momoshima, H. Kakiuchi and Y. Maeda, J. Radioanal. Nucl. Chem. **239**, 517 (1999).
- [14] L. A. Burchfield, J. D. Akridge and P. K. Kuroda, J. Geophys. Res. **88**, 8579 (1983).
- [15] N. Matsuoka, E. Hirai, H. Tagomori, N. Momoshima and Y. Takashima, Sci. Total Environ. **145**, 197 (1994).