

水道水中の自然放射性核種と地質・水質との関連について

小田切 幸次, 小林 浩, 薬袋 ゆい, 松本 愛美

The relation of the natural radioactive nuclide in tap water, and geology and water quality

Koji Otagiri, Hiroshi Kobayashi, Yui Minai, Aimi Matsumoto

キーワード: 自然放射性核種, 水道水, シームレス地質図, 主要イオン

はじめに

昨年 3 月に発生した福島第一原子力発電所事故に伴う放射線問題により、当所では安全性確保を目的として、人工放射性核種の挙動をモニタリングしている。その一方で、地球誕生以来から存在している自然放射性核種は大気・水・土壌・岩石といった中に極普通に含まれており、水循環の素過程を探る水文トレーサや火山活動度の推定など、地球科学分野では様々な場面で利用されている^{1) 2)}。

そこで本研究では水道水中の自然放射性核種を調査し、地域特性や地質・雨水等からの影響を明らかにすることを目的とする。またこれと同時に主要イオン等の元素分析を行うことで、自然放射性核種との関連性を探ることも検討している。今回は分析の結果から若干の知見が得られたので報告する。

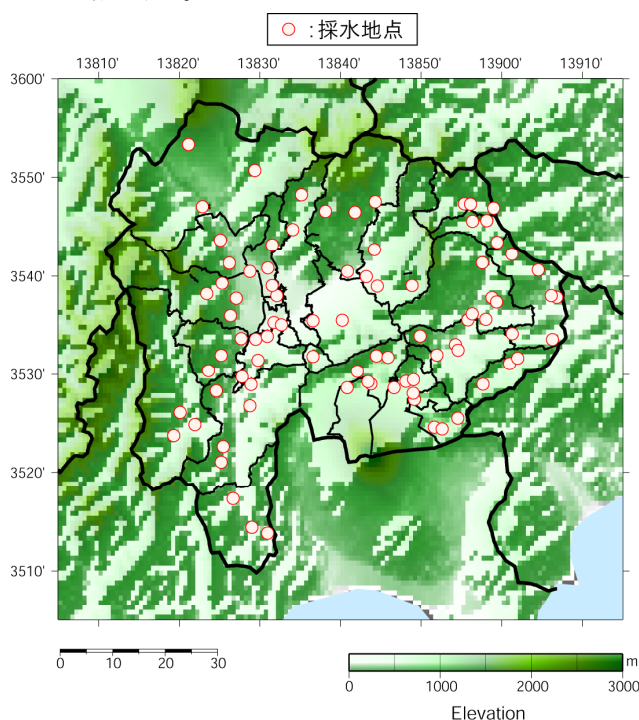


図 1 対象地点と緯度座標

調査方法

1. 対象地点

県内全市町村で 2011 年 8 月上旬(以下、**期間 A**)及び 2012 年 4~5 月(以下、**期間 B**)に採水された水道水を試料とし、採水地点は 86 地点、延べ 172 検体である(図 1)。

2. 使用データ

解析に用いたデータと分析方法は次のとおりである。

- ・自然放射性核種 — ゲルマニウム半導体検出器 (SEIKO EG&G (株) SEG-EMS)
- ・主要イオン (Na, K, Mg, Ca, F, Cl, NO₂, NO₃, NH₄, SO₄) — イオンクロマトグラフ装置 (島津製作所 (株) イオンクロマトグラフ LC20A)
- ・pH (東亜電波工業 (株) HM30S)
- ・電気伝導度 (EC) (東亜電波工業 (株) CM40S)
- ・20 万分の 1 日本シームレス地質図 (甲府)³⁾
- ・基盤地図情報 (縮尺レベル 25000)⁴⁾

3. 方法

1) ゲルマニウム半導体検出器を用いて、1 試料あたりの測定時間を期間 A では 2000 秒、期間 B では 3000 秒に設定し、水試料中の自然放射性核種の放射能を測定した。

2) 水試料中の EC、pH の他、主要イオンはイオンクロマトグラフ装置を用いて測定した。また炭酸イオン、炭酸水素イオンは、滴定法を用いて測定した。

3) 1) 及び 2) の方法で得られた各種データに基づき、自然放射性核種の検出状況や地域的特徴、地質・水質との関連性について、統計解析や地質データ等に基づいて調査した。なお解析ツールとして cygwin・GMT (プログラミング処理用)、QuantumGIS (地図描画・解析用) を用いた。

表 1 期間別の自然放射性核種の検出状況(期間A : 2011 年 8 月上旬、期間 B:2012 年 4~5 月)

	放射性核種	検出地点数	検出値範囲
期間A	Bi-214	18	1.18 ~ 11.6Bq/L
	Pb-214	14	2.05 ~ 11.0Bq/L
期間B	Bi-214	27	1.21 ~ 11.7Bq/L
	Pb-214	29	1.02 ~ 10.7Bq/L

結果と考察

1. 飲用水中の自然放射性核種について

1.1 自然放射性核種の検出状況

自然放射性核種の検出状況について表1にまとめた。延べ数では Bi-214 が 45 検体、Pb-214 が 43 検体と比較的によく検出された。また両核種が同時に検出される地点も期間 A では 10 地点、期間 B では 19 地点であった。これについては、Bi-214 と Pb-214 は同じウラン系列の壊変系列に属する点と、Pb-214 の娘核種が Bi-214 である点が原因であると考えられる。

また詳細を見ると、Bi-214 の検出地点数は期間 A では 18 地点で検出値の範囲は 1.18~11.6Bq/L、期間 B では 27 地点で検出値の範囲は 1.21~11.7Bq/L であった。

Pb-214 について、検出地点数は期間 A では 14 地点で検出値の範囲は 2.05~11.0Bq/L、期間 B では 29 地点で検出値の範囲は 1.02~10.7Bq/L であった。期間 A と期間 B とで比較をすると Bi-214、Pb-214 とともに期間 B において検出地点数は多く、検出値範囲の最小値は小さい結果となった。

これについては測定機器毎の相対効率や室温・湿度等の違いが影響している他、大きな因子としては測定時間の違いが考えられる。図 2 は測定時間の違いによる検出限界値の頻度分布と平均値である。Pb-214 は測定時間 2000 秒では最頻値が 1.7~1.8Bq/L、平均値が 1.75Bq/L であったが、測定時間 3000 秒では最頻値が 1.1~1.2Bq/L、平均値が 1.22Bq/L であった。また Bi-214 は測定時間 2000 秒では最頻値が 1.6~1.8Bq/L、平均値が 1.72Bq/L であったが、測定時間 3000 秒では最頻値が 1.1~1.2Bq/L、平均値が 1.28Bq/L であった。このことから測定時間が長いほど、より低い値まで測定できるため、上記の違いが生じたと推察される。

その他に検出された自然放射線核種としては、Th-234、Tl-208、Ra-226、K-40 などが挙げられるが、いずれの核種も数地点かつごく低濃度としてのみ検出された。

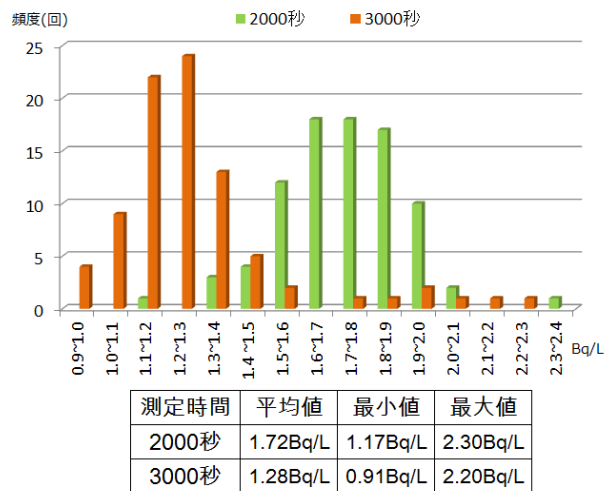
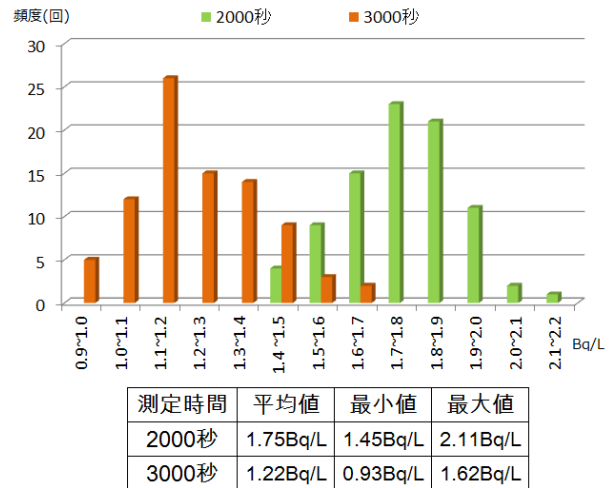


図 2 測定時間別の検出限界値ヒストグラム及び平均値・最小値・最大値 (上図：Pb-214、下図：Bi-214)

1.2 自然放射性核種(Bi-214, Pb-214)の検出地点

両核種の検出地点については、図 3 より県内のほぼ全域に渡って見られた。また検出頻度については Bi-214 が甲府盆地の西部、峡東地域の一部、富士北麓地域と小菅村で、Pb-214 が甲府盆地の西部、峡南地域の富士川沿い、富士北麓地域で高い傾向が見られた。

凡例 ● : a (2 期間とも検出) ● : b (1 期間でのみ検出) ● : c (2 期間とも不検出)

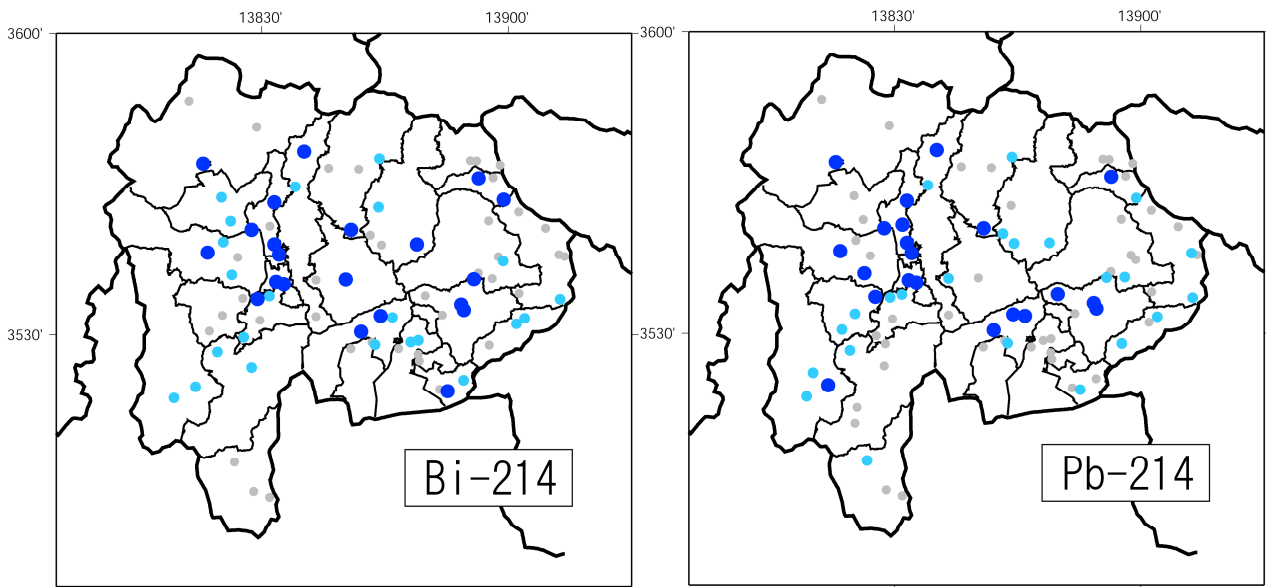


図 3 Bi-214・Pb-214 の検出地点と検出頻度

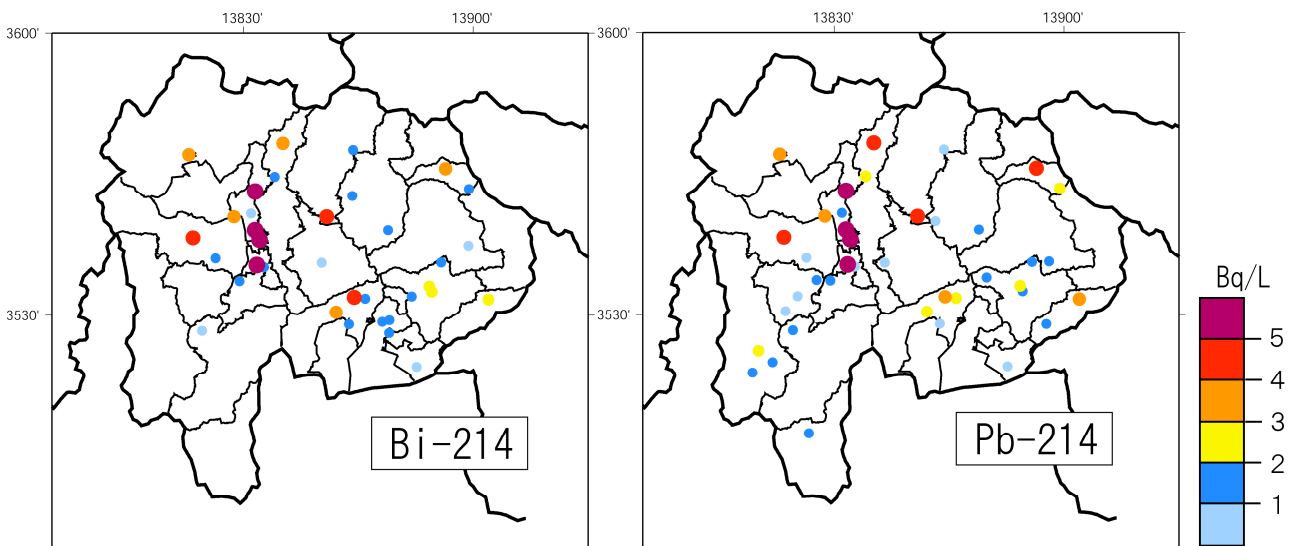


図 4 Bi-214・Pb-214 の検出地点と検出濃度(期間 B:2012 年 4~5 月)

これに関連して期間 B(2012 年 4~5 月)における両核種の検出濃度を図 4 で見てみると、両核種ともに甲府盆地西側の検出地点では検出濃度が高く、富士北麓地域の検出地点では甲府盆地西側の地点と比べるとやや低いことが分かった。また峡南地域の富士川沿いで見られた Pb-214 の検出地点の濃度についても低いことが読み取れた。

検出地点に地域的偏在が見られた点について、甲府盆地中央部~西部の地域に着目し、Bi-214 の検出地点と基盤地質との関連性を調べた(図 5)。Bi-214 が検出された地点の基盤地質の多くは、①または②の後期更新世から完新世の間に形成された扇状地や自然堤防の砂礫堆積

物で構成されている。さらに甲府盆地南西部の検出地点では③の後期更新世に形成された河岸段丘からなる地質となっており、概して河川による侵食と堆積の繰り返しによりできた地質において Bi-214 が検出されている。また一部地域においては中新世から完新世の間に地下深いところでマグマが冷えて固結した花崗岩地帯からなる地質で、Bi-214 が検出されている。

これに関連し、小林(1996)⁵⁾では山梨県内の空間線量率と地質との関係について調査を行い、甲府盆地とその周辺から南西部にかけての空間線量率は県内の平均値に近い値であったと報告されている。

- ①: 約1万8000年前～現在までに河川の周囲の自然堤防として形成された地層
- ②: 約1万8000年前～現在までに扇状地で形成された地層
- ③: 川沿いの低地に分布している約7万年前～1万8000年前に形成された段丘層
- ④: 約1500万年前～700万年前に噴火した火山の岩石(安山岩・玄武岩類)
- ⑤: 約1500万年前～700万年前にマグマが地下の深いところで冷えて固まった花崗岩
- ⑥: 約70万年前～15万年前に爆発的噴火により高速で流れ下った軽石や火山灰(火砕流)

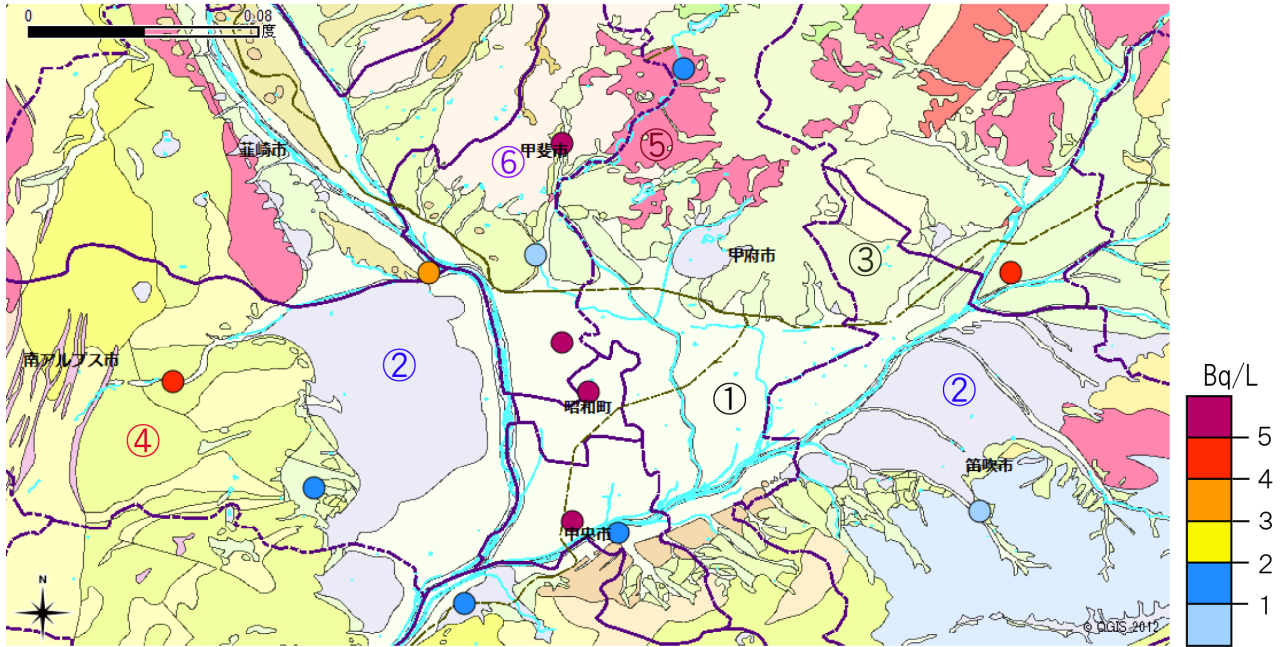


図5 期間BにおけるBi-214の検出地点濃度と基盤地質

また古川(1993)⁶⁾は空間線量率について、火成岩中では花崗岩類の分布地域で高く、火山岩類(主に安山岩)で低いと述べている他、湊(2006)⁷⁾は漸新世以降の地質年代が新しい堆積岩地域での空間線量は比較的低いと指摘している。以上のことから、現時点において甲府盆地西部での検出濃度が高い地点と基盤地質との関連性は既往研究のように必ずしも一致していない状況にある。甲府盆地西部も含め、県全域での採水地点の絶対数が少ない点や面的な把握が十分ではない点を踏まえ、今後調査地点を重点的に増やすことが急務である。その上で、地質と一致する部分としない部分について、地域差や原因等を究明していく必要がある。

1.3 自然放射性核種(Bi-214, Pb-214)と主要イオンとの関連性

県内86地点におけるEC、pH及び陽イオンと陰イオンの主要成分(Na, K, Mg, Ca, 硬度, F, Cl, NO₃, SO₄, HCO₃)について分析を行い、自然放射性核種の検出値との関連性を検討した。表2は検出頻度別の電気伝導度、pH、主要イオンの平均値である。まず自然放射性核種について、①2期間とも検出された地点、②1期間でのみ検出された地点、③2期間とも不検出であった地点の3グループに分けた。その上で各グループ間で平均値の差に有意な差があるか否かを、マン・ホイットニーのU検定を用いて検証した。

表2 検出頻度別の電気伝導度、pH、主要イオンの平均値(代表値)

単位: mg/L(ECのみμS/cm)	EC	pH	Na	K	Mg	Ca	硬度	F	Cl	NO ₃	SO ₄	HCO ₃	
Bi-214	① 2期間とも検出	136.60	7.45	6.32	1.02	3.15	16.90	55.16	0.03	3.90	4.93	13.33	52.08
	② 1期間でのみ検出	129.49	7.45	6.33	0.60	3.22	15.95	53.10	0.06	3.00	2.12	15.28	52.01
	③ 2期間とも不検出	96.51	7.37	4.41	0.49	1.83	11.79	36.99	0.03	2.29	2.15	10.76	38.22
Pb-214	① 2期間とも検出	139.61	7.43	6.47	0.85	2.93	17.88	56.69	0.04	3.65	4.21	16.06	51.56
	② 1期間でのみ検出	110.67	7.33	5.15	0.64	2.58	13.46	44.24	0.02	2.59	2.47	11.39	45.74
	③ 2期間とも不検出	105.79	7.44	5.07	0.58	2.33	12.68	41.27	0.05	2.70	2.22	11.67	42.15

なお、U 検定には次式(1)~(4)を用いた。
 帰無仮説 (H₀):「2者間の代表値に差がない」と仮定
 対立仮説 (H₁):「2者間の代表値に差がある」と仮定

$$U = n_1 n_2 + \frac{n_1(n_2 + 1)}{2} - R_1 \dots (1)$$

U : 検定統計量

n₁, n₂: 各標本のサンプル数

R₁: 群間変動の偏差平方和

$$E(U) = \frac{n_1 n_2}{2} \dots (2) \quad V(U) = \frac{n_1 n_2 (n_1 + n_2 + 1)}{2} \dots (3)$$

$$Z = \frac{|U - E(U)|}{\sqrt{V(U)}} \dots (4)$$

E(U) : U の平均値

V(U) : U の分散値

Z: 正規化検定の統計量

仮に棄却率を5%と設定した場合、Z 値より標準正規分布表から確率 P(Z) を求める。その際、P(Z) < 0.05 となった場合、帰無仮説を棄却できるので、有意水準5%で2群の代表値間において統計的に有意な差があると言える。

検証の結果(表 3)、Bi-214 については、EC(電気伝導度)、Mg、NO₃、HCO₃ の 4 成分においてグループ間で有意水準5%または1%で平均値の間に有意な差があることが認められた。具体的には、(c)の比較では有意な差のある成分が4つあり、(b)の比較では3成分について有意な差が認められた他、(a)の比較ではNO₃の1成分についてのみ有意な差が認められた。一方 Pb-214 についてはどのグループ間で比較をしても、有意水準 5%で有意差を示す成分が認められなかった。

このことから Bi-214 が回数に寄らず、1 期間でも検出されたグループであれば 2 期間とも検出されなかったグループと比べて EC、Mg、NO₃、HCO₃ などの値が高い傾向にあることが分かった。また Bi-214 の検出回数が 2 回と 1 回のみとでは、NO₃を除き今回測定した成分においては明瞭な差異は見られなかった。一方で EC、Mg、NO₃、HCO₃の濃度と Bi-214 の検出との因果関係については現段階では断言できないが、対象地域の農耕地で散布される施肥や河川堆積物中の自然放射性核種や主要成分等の分析を行い、多方面からの要因を考え、焦点を絞っていく予定である。

参考文献

- 1) 福井正美(2000): 環境放射能研究と水文トレーサ. RADIOISOTOPES, 49, 431-432.
- 2) 吉田則夫(1987): ²¹⁴Bi/⁴⁰K比を指標とした火山活動度の推定, 火山, 32(2), 144.
- 3) 産業技術総合研究所地質調査総合センター(編)(2005): 20万分の1日本シームレス地質図データベース. 産業技術総合研究所情報公開データベース DB084, 産業技術総合研究所地質調査総合センター. 産総研著作物番号: H17PRO-316.
- 4) 国土地理院: <http://www.gsi.go.jp/kiban/index.html>.
- 5) 小林規矩夫(1996): 山梨県における自然放射線の分布. 山梨県衛生公害研究所年報, 40, 43-46.
- 6) 古川雅英(1993): 日本列島の自然放射線レベル. 地学雑誌, 102, 868-877.
- 7) 湊進(2006): 日本における地表γ線の線量率分布. 地学雑誌, 115, 87-95.

表 3 検出頻度別の電気伝導度、pH、主要イオンの平均値(代表値)

- (a) “①2期間とも検出された地点のグループ”と “②1期間でのみ検出された地点のグループ”との比較
 (b) “②1期間でのみ検出された地点のグループ”と “③2期間とも不検出であった地点のグループ”との比較
 (c) “②2期間とも検出された地点のグループ”と “③2期間とも不検出であった地点のグループ”との比較

下表のうち、*がついたものは5%有意水準、**がついたものは1%有意水準を示す

棄却率 p (Z)	EC	pH	Na	K	Mg	Ca	硬度	F	Cl	NO ₃	SO ₄	HCO ₃
Bi-214 (a)	0.767	0.991	0.852	0.189	0.938	0.907	0.817	0.829	0.349	0.009**	0.991	0.869
(b)	0.037*	0.337	0.101	0.523	0.012*	0.562	0.073	0.236	0.646	0.764	0.428	0.043*
(c)	0.028*	0.399	0.061	0.057	0.025*	0.155	0.068	0.112	0.076	0.013*	0.368	0.028*
Pb-214 (a)	0.206	0.267	0.095	0.505	0.641	0.375	0.456	0.142	0.252	0.484	0.834	0.363
(b)	0.641	0.101	0.749	0.983	0.169	0.203	0.193	0.465	0.515	0.801	0.648	0.576
(c)	0.084	0.896	0.104	0.393	0.169	0.203	0.193	0.416	0.388	0.313	0.455	0.104