

平成21年 5月29日現在

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2007～2008

課題番号：19740298

研究課題名（和文）天然放射性核種をトレーサーとした陸域水循環の新測定の開発と応用

研究課題名（英文）A New Analytical Application for the Inland Water Cycle by Natural Radioactive Nuclide

研究代表者

齊藤 敬 (SAITO TAKASHI)

大阪大学・安全衛生管理部・特任研究員

研究者番号：00343616

研究成果の概要：

環境水中の天然放射性核種をトレーサーとして、水循環に関する知見を得るための新しい測定方法の開発を試みた。主に秋田県玉川温泉の温泉水を対象試料にして開発・測定を行った。その結果、ウラン・トリウム濃度には大きな変動があり、これらの変動の一部は温泉沈殿物(北投石)に由来していることがわかった。また、宇宙線生成核種ベリリウム-10 フラックスとベリリウム同位体比 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ から、環境水中の集水域や水の由来等についての知見を得られることがわかった。

交付額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2007年度	800,000	0	800,000
2008年度	1,000,000	300,000	1,300,000
年度			
年度			
年度			
総計	1,800,000	300,000	2,100,000

研究分野：数物系科学

科研費の分科・細目：地球惑星科学・気象・海洋物理・陸水学

キーワード：宇宙線・加速器質量分析・環境変動・水循環・放射線・天然放射性核種・ベリリウム

1. 研究開始当初の背景

秋田県の玉川温泉と台湾の北投温泉では、含鉛重晶石($\text{Ba}(\text{Pb})\text{SO}_4$)である北投石が産出することで知られている。この北投石は、塩化物イオンおよび硫酸イオンが多い pH=1 前後の温泉のみで生成する鉱物であり、世界中で3カ所でしか産出しない。そのため、我が国でも特別天然記念物に指定されている。

これらの北投石には不純物としてごく微量のラジウムが含まれている。これらのラジウム同位体 ^{226}Ra (半減期 1600年)と ^{228}Ra (半減期 5.75年)の半減期の差を利用することにより数10～100年レベルの年代測定が可能である。しかし、測定技術の難しさや生成年代の

わかった北投石が存在しなかったため現在まで殆ど研究が進んでいなかった。

そこで、玉川温泉において生成年代の明らかな北投石のラジウム濃度と同位体比の測定を行い、北投石の成長速度や年代測定の基礎となる研究を行ってきた。これより、北投石表面のラジウム同位体比と温泉水ラジウム同位体比との間には密接な関係があることがわかってきた。また、これらの研究の一環として、温泉水中に含まれるラジウムとその親核種であるウラン・トリウム濃度の連続観測を行ったところ、温泉水中の天然放射性核種は放射非平衡であり、一部の核種の濃度は1桁近い変動を示していた。Fe, Al, Ca, Si等の他の溶存主要元素の濃度はこの間殆ど

変動しておらず。これらの放射性核種のみが変動するという非常に興味深い結果が得られた。また ^{232}Th , ^{230}Th の濃度が季節変動しているのに対し、同じトリウム同位体である ^{228}Th の挙動が殆ど変化しておらず、同位体効果だけではうまく説明のつかない現象も観察された。これらの原因は天水、地下水、火山ガス、マグマ水等の複雑な相互作用によるものと推測されるが、何が原因となっているか明らかになっていない。

また、近年本研究者は加速器質量分析(AMS)を用い、海底堆積物中の宇宙線生成核種 ^{10}Be (半減期 150 万年)の測定を行っている。この測定法を温泉水に適応し玉川温泉の温泉水中の ^{10}Be を試験的に測定したところ $3.5 \times 10^7 \text{ atoms} \cdot \text{kg}^{-1}$ という通常では考えられない量の ^{10}Be が溶解していることがわかった。 Be-10 の起源は対流圏上部～成層圏下部であり、エアロゾルに付着し降雨等とともに地表に到達する。地表に到達した ^{10}Be はその長い半減期のため定常状態のまま地下水まで到達するものと考えられている。そこで、大気からの ^{10}Be のフラックス等を用いると、温泉水の集水域等の知見が得られる可能性があることがわかった。

以上のことから、環境水中のこれらの放射性核種の濃度を連続的に観測することにより、従来しばしば用いられてきた安定同位体等による水循環の測定と異なり、「数年～数100年オーダーの時間軸」、「水循環の影響の範囲」などを含めた新しい観点からのアプローチが可能となるものと考え、本研究の着想に至った。

2. 研究の目的

本研究では、まず従来までフィールドにしてきた秋田県玉川温泉およびその周辺の八幡平の温泉水地下水を測定することから始める。これは、周辺の地理に明るい事はもちろんのこと、八幡平周辺の温泉には酸性泉が多いため、放射性核種の濃度も高く比較的短時間かつ少量の試料で放射能の測定が可能となり、期間内での研究の完遂にも有利に働くためである。その後、他の環境水(河川水・湖沼水・地下水)等に応用範囲を広げて測定を行う。これらをふまえ、研究期間内に明らかにしようとするのは以下の通りである。

- (1) 環境水(特に玉川温泉の温泉水)中のウラン、トリウム、ラジウム同位体比・主成分イオン濃度およびその他の放射性核種の濃度を連続測定し、その変動およびウラン系列核種およびトリウム系列核種の放射平衡・非平衡を調査する。
- (2) 環境水中の宇宙線生成核種 ^{10}Be の測定方法の確立および ^{10}Be 濃度の連続測定。可能であれば ^{36}Cl , ^{26}Al などの宇宙線生成核種の測定方法を環境水へ応用する方法の確立。
- (3) (1)、(2) の結果と従来測定法結果の比較および、新しい観点での水循環の解釈の確立。

- (4) 八幡平周辺以外の環境水の(1)、(2)の測定。

3. 研究の方法

(1) 試料水のサンプリング

環境水中のサンプリングは、1サンプル 20-100L程度行う。酸性泉の場合は15L程度で十分であるが、酸性度が低い試料水にはそれらの5倍以上の試料が必要となる。そこで、一部の試料はイオン交換樹脂にて必要な元素を捕集し、樹脂のみを実験室に持ち帰る方法を用いる。

(2) 環境水中のウラン・トリウム・ラジウムの測定

環境水中のウラン・トリウムは収率を確認するスパイク溶液等を添加し、陰イオン交換と抽出クロマトグラフ物質を用いた分析法を応用し、ウランとトリウムを単離し、それぞれをアルファ線スペクトロメトリーで直接アルファ線を測定する。これより、 ^{238}U , ^{235}U , ^{234}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th の核種の定量が可能となる。

ラジウムの測定は、陽イオン交換樹脂を用いた連続バッチ法により、ラジウムと放射平衡になった娘核種の放射能をガンマ線スペクトロメトリーで測定し、ラジウム量を算出する方法を用いる。本分析法では、 ^{228}Th の濃度が同時に測定できるため、アルファ線スペクトロメトリーで得られた ^{228}Th の結果とクロスチェックし、得られた濃度の信頼性を確認する。

(3) 環境水中の ^{10}Be の測定

Be-10 の分離方法は、通常は濃度既知の ^9Be 担体(0.5-1mg)を添加し、鉄共沈、イオン交換、溶媒抽出を経て、ベリリウムを単離しその後 BeO として東京大学原子力総合センタータンデム加速器施設で加速器質量分析(ASM)を行い $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ を測定し ^{10}Be の濃度を算出する。

さらに、 Be の収率を改善させるために、プレ濃縮、イオン交換、溶媒抽出の最適条件を決定する。これより、より少ない試料水での測定法の確立をめざす。

4. 研究成果

- (1) 環境水中のウラン・トリウム・ラジウム対象試料水として玉川温泉の温泉を用い、2003年6月から2005年6月までの温泉水中のウラン・トリウム・ラジウム同位体の濃度を測定した。結果を Fig.1 に示す。

Figure 1 より、ウラン系列は親核種である ^{238}U の濃度がほとんど変動していない結果に対し、 ^{238}U の娘核種である ^{230}Th 、 ^{226}Ra は一桁近い濃度変動を持っていることがわかった。また、トリウム系列は親核種の ^{232}Th と娘核種の ^{228}Ra が大きな変動を示しているのに対し、 ^{228}Th が変動していない結果になった。いずれの系列でも、濃度変動がある核種は夏季に高くなり、冬季に低くなる傾向があった。

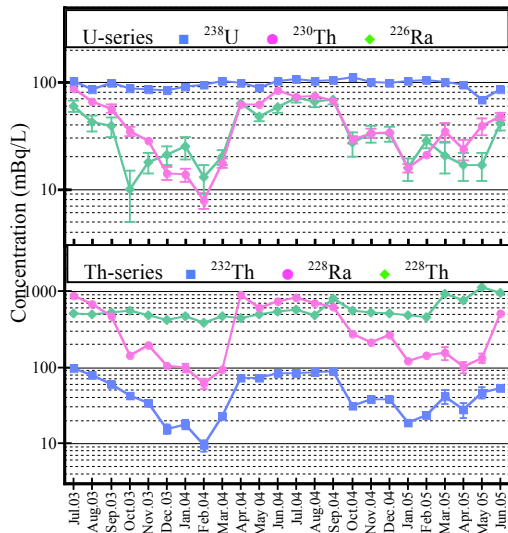


Fig.1 Concentration of U- and Th-series nuclides in Tamagawa hot spring water.

ここで、トリウム同位体に着目する。トリウムは硫酸イオンと錯体を形成し易く、硫酸イオン濃度の高い温泉水玉川温泉の温泉水では、イオンとして存在するため ^{232}Th , ^{230}Th および ^{228}Th の同位体の挙動は同じになるはずである。しかし、 ^{228}Th のみが違う挙動を示している。これは ^{228}Th がイオンとして存在していない、または供給源が他のトリウム同位体と異なる可能性を示唆している。

Th-228 の供給源として考えられるのが親核種である ^{228}Ra である。ラジウムは玉川温泉水によって生成する鉱物である北投石に豊富に含まれている。また、玉川温泉には大量の硫黄の沈殿物である湯花が生成しており、これらの湯花の中に微小の北投石が存在していることが報告されている。そこで、玉川温泉の湯花中の放射能を調べてところ、強い放射能があり、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra および ^{228}Th とその娘核種の放射能のみが検出され、 ^{232}Th , ^{230}Th は検出されなかった。これより、温泉水中の ^{228}Th の異常な挙動の違いの原因が微小の北投石に由来することがわかった。

(2) 環境水中のベリリウム同位体の測定

対象試料水として玉川温泉の温泉を用い、2003年6月から2007年6月までの1ヶ月毎の温泉水ベリリウム同位体の濃度および、同位体比 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ を測定した。結果を Fig. 2 に示す。

Figure 2 より、 ^{10}Be , ^9Be 濃度および $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ はそれぞれ $(3.60 \pm 0.38) \times 10^7 \text{ atoms} \cdot \text{kg}^{-1}$, 2.52ppb および $(2.14 \pm 0.44) \times 10^{-10}$ となり、 ^{10}Be の濃度は雨水中より2倍高いことがわかった。また、玉川温泉の湧出量 ($9000 \text{ L} \cdot \text{min}^{-1}$) から求めた ^{10}Be フラックスは $(3.24 \pm 0.34) \times 10^{11} \text{ atoms} \cdot \text{min}^{-1}$ となった。

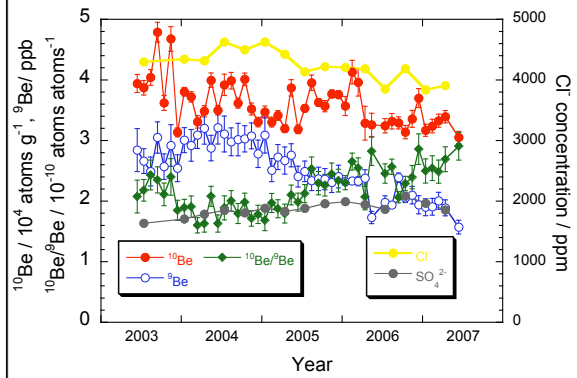


Fig. 2 Concentration of ^{10}Be , ^9Be and isotopic ratio of $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ in Tamagawa hot spring water.

玉川温泉の ^{10}Be フラックスと雨水による ^{10}Be フラックス (東京 $2.4 \text{ atoms} \cdot \text{cm}^{-2} \cdot \text{min}^{-1}$) を用いることで、温泉水の集水域を求めると、 13.5 km^2 以上と計算された。これは過去に報告されている玉川温泉の集水域 14.9 km^2 と矛盾しない。

各種の環境試料におけるベリリウム同位体の濃度と同位体比を Table に掲げる。

Table Concentration of ^{10}Be , ^9Be and isotopic ratio of $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ in various environmental samples.

	$^{10}\text{Be}(\text{a} \cdot \text{kg}^{-1})$	$^9\text{Be}(\text{ppm})$	$^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$
This work	3.6×10^7	2×10^{-3}	2×10^{-10}
Soil	$(0.8-7) \times 10^{12}$	0.7-6.5	$(0.9-1.8) \times 10^{-8}$
Volcanic rock	$(0.3-1.3) \times 10^9$	0.4-0.6	$(0.9-1.6) \times 10^{-11}$
Sea sediment	$(4-6) \times 10^{12}$	2-3	$(3-5) \times 10^{-8}$
Rain water	1.2×10^7	n.d.*	-

*) Not detected

玉川温泉水中の ^{10}Be は、地下水が火山ガスを吸収して酸性になった時点から周囲の火成岩や土壌から溶出してきた成分と考えられている。特に土壌の ^{10}Be 濃度は火成岩より3桁大きいため、玉川温泉水中の ^{10}Be の由来は、土壌由来であると予想されたが、Table より、 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ は土壌より2桁低く、むしろ火成岩に近いことが明らかになった。これより、玉川温泉水中のベリリウム同位体は火成岩と土壌から溶出されたと仮定すると、98%以上が火成岩由来であることが産出できた。

以上より、宇宙線生成核種 ^{10}Be を利用することにより、環境水の集水域や水の起源を推定できる可能性があることがあきらかになった。現在、さらに玉川温泉以外の秋田県八幡平付近の温泉水、地下水などのベリリウム同位体を測定中である。これらのデータをさら蓄積させることにより、より詳細な水循環の情報が得られることが期待される。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 1 件)

- ① 齊藤 敬, 山形武靖, 永井尚生, 玉川温泉の湯花中の放射能, 温泉科学, **57**(4), 206-214 (2008). (査読有)

[学会発表] (計 4 件)

- ① 山形武靖, 玉川温泉の Be 同位体の起源, 第 11 回 AMS シンポジウム, 2009 年 1 月 14 日, 名古屋大学
- ② 山形武靖, 宇宙線生成核種をトレーサーとした玉川温泉の起源の推定, 2008 年日本放射化学会・第 52 回放射化学討論会, 2008 年 9 月 27 日, 広島大学
- ③ 丸山匡臣, 秋田県八幡平における温泉水、地下水中の宇宙線生成核種 ^{10}Be , ^{36}Cl , 日本温泉科学会第 61 回大会, 2008 年 9 月 25 日, 五浦温泉
- ④ 齊藤 敬, 玉川温泉産湯花中の放射能の起源, 日本温泉科学会第 60 回大会, 2007 年 9 月 21 日, かごしま県民交流センター

6. 研究組織

(1) 研究代表者

齊藤 敬 (SAITO TAKASHI)

大阪大学・安全衛生管理部・特任研究員

研究者番号: 00343616