

## 小特集 施設起源トリチウムの移行モデルと環境トリチウム分布

### 2. 環境トリチウムの現状と分布

#### 2.5 トリチウム+ヘリウム-3による地下水の年代測定と実測例

馬原保典, 太田朋子

京都大学原子炉実験所

(原稿受付: 2009年6月8日)

同一地下水試料に含まれるトリチウムとトリチウムの $\beta$  壊変によって地下水中に蓄積されたトリチウム起源のヘリウム-3を計測することによって、地下水が涵養された時点でのトリチウムの初期濃度を決定し、トリチウムの壊変時間から地下水年代を決定する。その際、地下水の流れはピストン流を、地下での地下水の混合はないものと仮定する。実測例として、富士溶岩流内を流れる静岡県三島市の柿田川で10年、六ヶ所サイトの台地浅部で0-40年と深度方向に古くなる傾向が計測されている。

**Keywords:**

Tritiogenic He-3, groundwater residence time, mass spectrometer, piston flow, mantle He

#### 2.5.1 地下水年代の定義

地下水の場合、地下での水 ( $H_2O$ ) の滞留時間 (Residence time) を地下水年代と呼ぶ。地下水の地下水年代は、次のように定義される。「地下水は、降水が地下に浸透して造られる。その過程で浸透してきた降水が地下水面上に到達して、大気との接触を遮断されてからの経過時間」。具体的には図1に示すような、地下水が上下を不透水層 (水を通さない地層) で仕切られた言わばパイプの中を乱れのない栓流 (Piston flow) あるいは押し出し流れで流れていると考えている。したがって、地下水の元となつた地下に浸透した降水は、ひと雨ごとに塊となってこのパイプの中を流れるものと仮定している。その際、流路の異なる地下水の混合、あるいは地下水年代を測定する際の指標としているトリチウム (Tritium) とその $\beta$  壊変で生成されるトリチウム起源 He-3 (Tritiogenic  $^3He$ ) の拡散は考えない。

地下水年代は、直接水分子の年代を決めているのではなく、あくまでも地下水に含まれ地下水と一緒に挙動をとると仮定される指標（通常地下水トレーサと呼ばれる）の時間経過に伴う濃度減少を基に時間を推定しているのである。

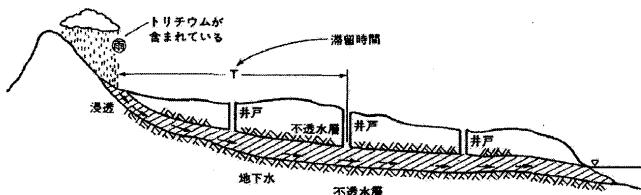


図1 地下水の流れと地下水年代測定の考え方。

2.5 Groundwater Dating by the Tritium and Helium-3 Method and Its Application

MAHARA Yasunori and OHTA Tomoko

\* 6 用語集参照

#### 2.5.2 $^3H + ^3He$ 年代測定原理

地下水の年代を測定する手法には、種々の方法が提案されている。その中で、直接時間を推定できる方法は、環境放射能（放射能が持つ時計性能を活用:  $C = C_0 e^{-\lambda \cdot T}$ ,  $T = -\frac{1}{\lambda} \cdot \ln\left(\frac{C}{C_0}\right)$   $T$ : 地下水年代,  $C_0$ : 初期の放射能 ( $T=0$ ),  $C$ : 時間  $T$  での放射能,  $\lambda$ : 放射性核種の壊変定数）を用いるものである。ここでは、地下水トレーサとして水 ( $H_2O$ ) とほぼ同じ挙動をとると考えられる環境トリチウムとその娘核種である溶存ヘリウム-3を組み合わせた $^3H + ^3He$  法である。

この手法の特徴は地下水の循環が速い若い浅層地下水の滞留時間の推定に対して有効な手法である。 $^3H + ^3He$  法とは、「 $^3H$  を含む降水が地下に浸透したときの初期濃度を決めるに当たり、 $^3H$  が $\beta$  崩壊して $^3He$  に変わることに着目し、地下に浸透した降水が地下で混合も拡散もしない栓流で流れる。また周辺地盤内で発生する微弱な中性子と $^6Li$  の核反応 ( $^6Li(n,\alpha)^3H$ ) からの $^3H$  の供給は無視できる程度である[1]。また、 $^3He$  濃度の高いマントル He 成分<sup>\*6</sup>の混入はないものと仮定し、測定した $^3He$  はすべて降水中の $^3H$  から壊変生成されたものと考え、同一地下水試料の $^3H$  濃度と $^3He$  濃度を測定し、年代を推定する。」ものである。この手法の利点は、涵養時の初期トリチウム濃度を種々の仮定のもとに推定する必要がなく、降水が地下に涵養した時点での初期 $^3H$  濃度を一義的に決めることができる点にある。その手法による地下水年代は、次式で与えられる。

$$\tau (\text{Years}) = 17.69 \ln [4.01 \times ({}^3\text{He}_{\text{tri}}) / (\text{HTO}) \times 10^{14} + 1.0] \quad (1)$$

$({}^3\text{He}_{\text{tri}})$  : トリチウムの  $\beta$  壊変によって生じた  ${}^3\text{He}$  (ccSTP/g)  
 $(\text{HTO})$  : 地下水のトリチウム濃度 (TU)

本手法は、数ヶ月からトリチウムの 5 半減期程度 (60 年程度) の地下水年代を推定することが可能であり、地球上の水循環に大きく寄与し、水資源として重要な通常我々が、普段の生活や産業活動に利用している地下水の大分を占める浅層地下水の年代推定には有効である。また、この手法は、欧米ではすでに多くの測定事例が報告され、詳細な地下水解析との比較も行われ、かなり精度の良い結果を与える手法として認知されつつある。

この手法における地下水試料中の  ${}^3\text{H}$  濃度は、約 1 L の地下水を Ni/Fe 電極で約 40 mL に電解濃縮後、100 mL テフロンバイアルに移し 60 mL 液体シンチレーション・カクテルと混合し、低バックグラウンド・液体シンチレーションカウンタで 1000 分測定により濃度を決定する。溶存  ${}^3\text{He}$  濃度測定には、まず地下水試料の採水にあたり、大気の混入を防ぐための採水装置を用いる。焼きなまし銅管を地下水で十分にフラッシングし銅管の内側に付着した大気を排除した後、地下水を流しながら銅管の両端を鋼製クリンプで十分に絞めることで、なまし銅管を延伸させ圧着させて大気の浸透を防ぐ。分析では  $10^{-14} \text{ cc/STP}\cdot\text{g}^{-1}$  程度の  ${}^3\text{He}$  濃度を測定する必要があるために、前述の方法により慎重に銅管に封入した地下水試料中のガスを希ガス分析用の質量分析器 (VG-5400 (Micro Mass Co.)) を用いて、総 He 量、総 Ne 量、Ne 同位体比、 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$  比を計測する。地下水の涵養温度<sup>\*7</sup>の正確な推定のためには、Ar, Kr, Xe 濃度を測定することが望ましい。地下水試料の採取と  ${}^3\text{H}$  分析、希ガス分析については、後掲の参考文献[2-4]を参照のこと。

### 2.5.3 我が国における適用例

本手法を適用した地下水年代の推定結果について、三島溶岩流、および六ヶ所サイトの地下水について以下簡単に述べる。

#### (1) 三島溶岩流内地下水の滞留時間

玄武岩を主体とした三島溶岩流は、富士山南東斜面須山地に源を発し、愛鷹山、箱根山の裾合谷を流下し、表層は三島市楽寿園付近で止まっているが、一部はさらに南下し、柿田川さらに沼津方面に延びている。三島市内および柿田川の湧泉群は、溶岩流の末端部分に位置している[5, 6]。溶岩流の間隙率は伊豆島田付近で 30-40% であり、溶岩層全体の平均透水係数は 0.029 m/s と大きい[6]。溶存イオン量は少なく、浅層地下水の特徴を示す。また、環境同位体の測定結果 ( $\delta D$ ,  $\delta {}^{18}\text{O}$ ) は、溶岩流内の地下水は三島周辺の降水の ( $\delta D$ ,  $\delta {}^{18}\text{O}$ ) 値よりも軽い同位体に富んでいることを示している。このことから、溶岩流内を流れている地下水は、三島市周辺に降った降水を起源とするものではなく、もっと高度が高い場所 (つまり富士山麓) で涵

養された地下水であることを示唆している。また、溶存イオン濃度の分布から、三島周辺の湧泉の地下水には、大きく分けて、富士山麓で涵養された地下水の流れと箱根付近で涵養された地下水の流れが存在することを示唆している[7]。地下水の滞留時間は、溶岩流内の地下水では 10-11 年程度、溶岩流の外側で箱根方面に起源をもつ地下水では 13-16 年程度であった。三島市周辺での地下水滞留時間分布を図 2 に示す。詳細は、参考文献[7]を参照のこと。

#### (2) 六ヶ所サイト浅層地下水の滞留時間

六ヶ所村の低レベル廃棄物処分施設サイト内の地下水調査の一環として、台地部の浅層地下水の滞留時間を  ${}^3\text{H}+{}^3\text{He}$  法で推定した。台地部の地下水の多くは、台地上の降水によって涵養され、一部は周辺の沢および尾駆沼へ流出する。推定された地下水の滞留時間と地下水の採水深度の関係を図 3 に示す。推定された地下水の滞留時間は、0 ~ 40 年の範囲に分布し、表層から深部に向けて地下水の年齢は古くなり、ほぼ層状に分布している。このことは、台地上の地下水は涵養後、概ねピストン流として深部に向けて浸透していることを示唆している。台地部の浅層地下水と深部地下水の溶存 He 量と  ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$  比の分布を比較することによって、図 4 に示すように、浅層地下水中に 1950 年代後半から 1960 年代前半に大気圏核実験によって降水中の  ${}^3\text{H}$  濃度が著しく上昇した核実験の影響 (Bomb Pulse) がはっきりと認められる。また、深部の地下水中的溶存  ${}^4\text{He}_s$  量と大気平衡量  ${}^4\text{He}_{eq}$  の比 ( ${}^4\text{He}_{eq}/{}^4\text{He}_s$ ) と  ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$  比の関係から、六ヶ所サイトの地下水に蓄積されている地殻 He (Crustal He) の同位体的な特徴を推定すると、このサイトでのマントル He 成分の寄与率は 6 % 程度となる。台地部に層状に残っている過去の降水中の  ${}^3\text{He}$  濃度と六ヶ所サイトのような堆積岩中では  ${}^3\text{He}$  の拡散係数は自由水 (Free water) 中のものよりも 1/30 以下と小さく、また岩盤中で

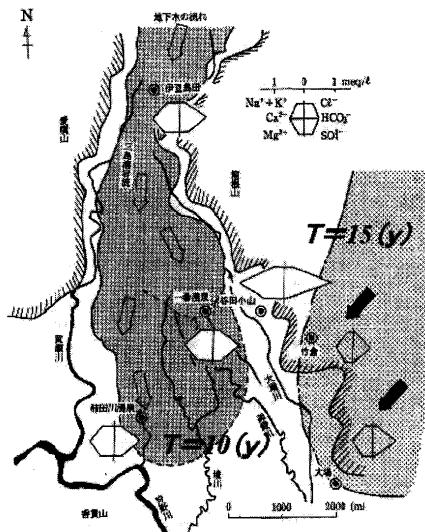


図 2 三島溶岩流とその周辺における水質区分による地下水流动場とそこで  ${}^3\text{H}+{}^3\text{He}$  法で推定した地下水年代分布—三島溶岩流内地下水の滞留時間は 10 年程度、箱根方面からの地下水の滞留時間は 15 年程度である。

\*7 用語集参照

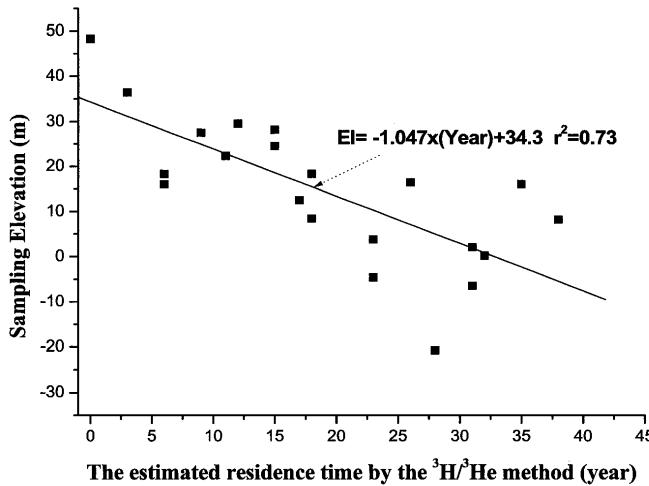


図3 六ヶ所サイトで $^{3}\text{H}+^{3}\text{He}$ 法で推定した地下水年代と地下水採水深度分布との関係。

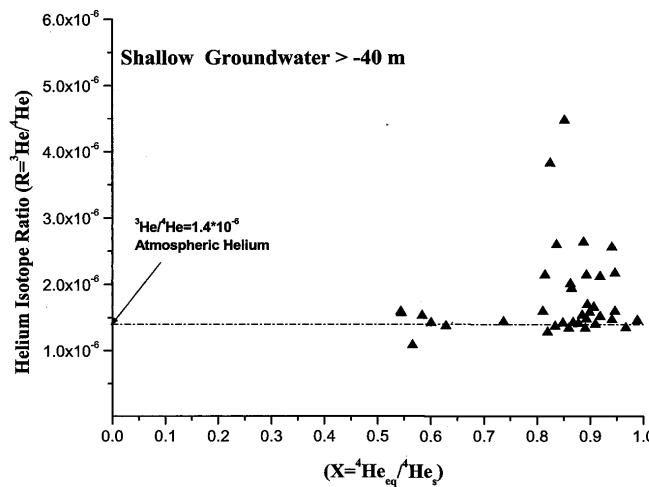


図4 六ヶ所サイトの浅層地下水で観測された大気圈核実験の影響による $^{3}\text{H}$  Bomb Pulseの壊変によって地下水で成長したトリチウム起源 $^{3}\text{He}$ のピーク。

生成される $^{3}\text{H}$ のレベルが  $8.5 \times 10^{-6} \text{ TU/g}_{(\text{water})} \cdot \text{y}^{-1}$  と無視できるほどに小さい[1]ことを考慮すると、核実験以前の降水中の天然レベル $^{3}\text{H}$ は、六ヶ所サイトが位置する北緯42度付近では 6 TU であったと推定される。これらに関しての詳細は、参考文献[8]を参照されたい。

## 2.5.4 $^{3}\text{H}+^{3}\text{He}$ 法適用にあたっての問題点

大気トリチウム起源 (tritiogenic) の $^{3}\text{He}$ を測定対象としている本手法は、我が国のように火山性の帶水層が多く見られる地域での適用には、マントルや地殻で生成供給される $^{3}\text{He}$ を総 $^{3}\text{He}$ の中から分別する必要がある。

特に、浅層地下水のように滞留時間が短いものについては、Lehamnn and Loosli[1]によれば、地下水へ付加される岩石中で生成される放射壊変 He 成分からの寄与量は  $2.1 \times 10^{-20} \text{ ccSTP/g}_{(\text{water})} \cdot \text{y}^{-1}$  程度で無視できるほど少ない。一方、マントル起源 $^{3}\text{He}$ は、大気平衡量を総 He 量から差し引いた残りの He 量からさらに補正を行う必要がある。実際には、それらの補正是ほとんど行われていないのが現実である。なぜならば、先ほどの六ヶ所のように詳細に深層地下水まで含めた溶存 He 量とその同位体比分布が把握され、地下水中に蓄積する地殻 He に占めるマントル He 成分と放射壊変 He 成分の割合、および地下水中に蓄積する He の蓄積速度 ( $\text{He ccSTP/g}_{(\text{water})} \cdot \text{y}^{-1}$ ) がわかつていなければ、厳密な補正是できないからである。

浅層地下水の場合、降水の涵養に伴い地下水表面が急激に変動することにより、不飽和層<sup>\*8</sup>中に残された大気を泡状で取り込む現象が起こる。これら過剰大気量の補正も、涵養温度を厳密に決めるためには必要であり、そのためには Ar, Kr, Xe のデータが必要となる。これらのデータが得られない場合には、地下水涵養温度は、通常はその場の年平均気温を用いて行われ、過剰大気量の補正是 Torgersen [9]の補正モデルを用いて行われる。

## 参考文献

- [1] R.E. Lehmann and H.H. Loosli, *Applied Isotope Hydrogeology* (Elsevier, 1991) p 439.
- [2] Y. Mahara, Environ. Geol. 25, 215 (1995).
- [3] Y. Mahara, T. Igarashi, T. Hasegawa, K. Miyakawa, Y. Tanaka and K. Kiho, Appl. Geochem. 16, 291 (2001).
- [4] Y. Mahara, T. Hasegawa, K. Miyakawa and T. Ohta, Appl. Geochem. 23, 3305 (2008).
- [5] 蔵田延男：工業用水 43, 39 (1962).
- [6] 落合敏郎, 川崎宏直：農業土木試験場報告 8 号 67 (1970).
- [7] 馬原保典, 五十嵐敏文, 田中靖治：地下水学会誌 35, 201 (1993).
- [8] Y. Mahara and T. Igarashi, Appl. Geochem. 18, 719 (2003).
- [9] T. Torgersen, W.B. Clarke and W.J. Jenkins, *Isotope Hydrology* 1978, Vol. II, 917 (1979).

\* 8 用語集参照