

## 博士論文要録

天然水中の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比に関する水文学的研究

中野(太田) 朋子

学位授与：明治大学 (2006 年 3 月 26 日)

河川水中の Ra 同位体の濃度は極低濃度であるため、観測例は非常に少ない。日本の地形は急峻で、地形勾配は大陸のものに比べて大きいため、地下水や河川水の滞留時間は短く、日本の河川水中の Ra 同位体の含有量は大陸のものより少ないので、日本の河川についてのラジウムの濃度及び  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比に関する報告例は見られない。しかし、日本の河川水の滞留時間が大陸のものより短いことが期待できることから、河川を形成する滞留時間の短い地下水中の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比に関する知見を得られる可能性がある。本論文は、滞留時間の短い本邦の河川水中の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比から、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比を地下水の滞留時間を計る時計として用いる手法を検討したものである。

第 1 章 “Mn-Fiber による天然水中の Ra の捕捉” では、河川水中の極微量のラジウム同位体の捕捉方法と測定方法について述べた。極低濃度の河川水中のラジウム同位体をマンガ化合物で被覆したアクリル繊維 (以下 Mn-Fiber) に捕捉した。河川水中のラジウム同位体の捕集方法は、硫酸バリウムにラジウム同位体を共沈させる方法が利用されてきたが、この方法は、大量の試料水を対象にする場合には回収効率が悪い。そのうえバリウム試薬にはラジウムの汚染があるため、低濃度のラジウムを対象にするには適当でない。そこで、ラジウム同位体が希薄である日本の河川水の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比を観測するために、Mn-Fiber を河川へ直接投入し、川の水の流れを利用することにより、大量の試料水を対象にすることを可能にした。この方法により、河川水中の極低濃度のラジウム同位体を捕捉し、非破壊  $\gamma$  線スペクトロメトリーによって河川水中の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比の測定を行った。 $^{228}\text{Ra}$  と  $^{226}\text{Ra}$  の放射能強度はそれぞれ  $^{228}\text{Ac}$  の 911 keV  $\gamma$  線と  $^{214}\text{Pb}$  の 351 keV  $\gamma$  線から求めた。Mn-Fiber は、pH 依存性と温度依存性が見られるものの極低濃度の河川水中のラジウム同位体を効率よく捕捉することが可能であった。

第 2 章 “河川、温泉水、帯水層に相当する岩石中の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ” は、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比から推測される地下水の滞留時間を推定したものである。天然水中のトリチウムの濃度は地下水の滞留時間の推定に使われている。しかし、トリチウムの半減期は 12 年であるので、トリチウム

の濃度から推測できる天然水の滞留時間は、数年から数十年のオーダーである。更に、降水中のトリチウムの濃度は非常に幅広くばらついているので、トリチウムを天然水の年代測定に用いるには適切ではない場合もある。一方、 $^{226}\text{Ra}$  と  $^{228}\text{Ra}$  はそれぞれ  $^{238}\text{U}$  と  $^{232}\text{Th}$  の壊変生成物であるので、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比は、接触する水の岩石中の Th/U や水の滞留時間に依存する。

河川水中の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比を次の 2 つの観点で議論した。

- (1)  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比を地下水の滞留時間を推測する時計として利用する。
- (2)  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比から推測された地下水の滞留時間をトリチウム年代測定法により求められたものと比較する。

岩石中のラジウム同位体の放射能比の平均値は、浅川河川周辺では  $1.3 \pm 0.1$ 、柿田川河川周辺では  $0.9 \pm 0.1$  であった。浅川河川周辺の岩石中の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比は柿田川周辺のものより高かった。柿田川河川水の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比は  $0.8 \sim 1.1$  の範囲にあり、これは浅川河川水のものより低かった。浅川河川水の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比の最高値は 3 であるので、最も若い地下水の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比が 3 であると仮定できる。最も若い河川水中の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比が帯水層に相当する岩石の 2 倍であると仮定できると、最も若い柿田川河川水の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比は 2.1 であると考えられる。岩石から地下水へ供給される  $^{228}\text{Ra}$  と  $^{226}\text{Ra}$  の量は飽和曲線に沿って時間とともに増加し、一定の時間がたつと  $^{228}\text{Ra}$  と  $^{226}\text{Ra}$  はそれぞれ飽和値に達する。 $^{228}\text{Ra}$  の半減期は 5.8 年であり、半減期が 1600 年の  $^{226}\text{Ra}$  より小さいので、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比は滞留時間が長くなれば長くなるほど小さくなり、7000 年以上たつと飽和に達する。 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比は滞留時間によって変わると考えられるので、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比は、地下水の滞留時間を推測する時計となりうる。滞留時間が長く地下深い水の温泉水中のラジウム同位体の放射能比は、観測された周辺河川のものより低かった。これは、滞留時間の長い温泉水中の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比は、河川を形成する滞留時間が短い浅い地下水のものより小さいと考えられる。もしも、この仮定が成り立つならば、柿田川河川水と関連する岩石中の  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  放射能比から推測される柿田川の滞留時間は  $12 \sim 20$  年である。 $^3\text{H}$ - $^3\text{He}$  年代測定法から推測された柿田川の滞留時間は 10 年のオ

ーダーであるので<sup>a)</sup>、河川水及び岩石中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比から推測された柿田川の滞留時間は $^3\text{H}-^3\text{He}$ 年代測定法から求められた年代と一致したことになる。

第3章“奥多摩の河川水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の変動と地下水中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度の変動”では、河川水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の変動と地下水中のラドン濃度の季節変動について述べた。海外の河川水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は、数人の研究者によって報告されているが、複数の河川のひとつの地点で1回の観測を行ったケース、同じ河川の数箇所を1回観測した、又は同じ川を1年に1~2回観測したものである。これらの報告では $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比と地質との関係に言及したものが多く、同一の河川の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の変動理由を議論した例はない。第3章では、河川水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の変動について議論した。

(1) 河川水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の変動：観測期間の1日前又は3日前から観測期間終了時点までの合計降水量に対する河川水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の変化を調査した。合計降水量が20 mm以下のとき、降水量の増加とともに $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は3から2に急速に減少した。一方、降水量が20 mm以上のときの $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の値は2で、ほぼ一定であった。河川水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は降雨量の多い夏期で1.7~2.7の範囲にあり、多量の降雨により減少し、その後回復する傾向が見られた。河川水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は20 mmを超える多量の降雨の後にも減少する傾向が見られた。この河川水中の $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の減少は、多量の降雨が地下深くに滞留していた滞留時間の長い地下水を河川へ押し出したためと考えられた。

し出したためと考えられた。

(2) 地下水中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度の変動：明治大学生田キャンパス内の井戸で地下水中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度と降水量の観測を行った。地下水中の $^{222}\text{Rn}$ の月平均の濃度は3~5 Bq/lであった。地下水中の $^{222}\text{Rn}$ の月平均濃度は降水量の季節変動パターンと同じ変動を示した。地下水中の $^{222}\text{Rn}$ 濃度は、降雨の多い夏期と秋期に高く、降雨の少ない冬季と春期に低くなる傾向が見られた。これは、多量の降雨が異なる起源の地下水を混合させたことを示唆していると考えられた。この変動パターンは、多量の降雨が地下水の混合をもたらし、多量の降雨が滞留時間の長い地下水を河川へ押し出すという考え方を支持した。

### 公表論文

- 1) T. Saito, H. Ueda, T. Ohta, J. Sato: *J. Balneol. Soc. Jpn.*, **52**, 3 (2002).
- 2) T. Saito, T. Ohta, J. Sato: *J. Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, **255**, 535 (2003).
- 3) T. Ohta, T. Saito, J. Sato: *Radioisotopes*, **53**, 1 (2004).
- 4) T. Nakano-Ohta, J. Sato: *Radioisotopes*, **54**, 531 (2005).
- 5) T. Nakano-Ohta, T. Saito, J. Sato: *Radioisotopes*, **54**, 593 (2005).
- 6) 中野 (太田) 朋子, 齊藤 敬, 佐藤 純: 分析化学 (*Bunseki Kagaku*), **54**, 1219 (2005).

### 引用文献

- a) 馬原保典, 五十嵐敏文, 田中靖治: 地下水学会誌, **35**, 201 (1993).

☆

## Digest of Doctoral Dissertation

### Hydrological Study on $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ Activity Ratio in Natural Water

Tomoko NAKANO-OHTA

Department of Nuclear Science and Engineering, Research Reactor Institute, Kyoto University,  
2, Asashironishi, Kumatori-cho, Sennan-gun, Osaka 590-0494

(Awarded by Meiji University dated March 26, 2006)

A variation of the  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  activity ratio of underground water suggested a monotonous decrease along with an increase in the residence time within an aquifer. Observation with hot-spring water samples showed that the  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  activity ratios in water from deeper aquifers with longer residence times tended to be smaller than those in river waters with a shorter residence time. The residence time of Kakita-gawa river water, estimated from the  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  activity ratios of river water and relevant rock, agree well with the  $^3\text{H}-^3\text{He}$  age, suggesting that the  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  activity ratio of underground water could be used as a tool for a residence-time estimation of underground water. The  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  activity ratios in the river-water sample showed that the activity ratios tended to decrease after heavier rainfall. The decrease suggested that heavy rainfall forced deeper underground water with a long residence time to discharge into river. The variation of the monthly averaged concentration of  $^{222}\text{Rn}$  in underground water was similar to that of precipitation. The variation pattern suggested that precipitation may give rise to the mixing of underground water components of different origins, which is consistent with the consideration that heavy rainfall forced the deeper underground water to discharge into the river.

(Received July 20, 2006)

**Keywords** : Ra-226; Ra-228;  $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$  activity ratio; river water;  $^{222}\text{Rn}$ ; underground water; Mn-impregnated acrylic fiber.