表面水流れ測定へのアイソトープの利用^{†,‡}

佐藤乙丸*, 堀口泰裕**

日本アイソトープ協会理工学部会

流れの測定に関する専門委員会

表面水ワーキング・グループ

1. まえがき

表面水の流れの測定の基本は流速と流量の測定にある。放射性同位元素を用いたこれらの測定法^{1~5)}およびそのさいの安全取扱法⁶⁾に関しては、多くの解説が行われており、これらからその大要を知ることができるが、ここでは、その要点を最近の研究成果を考慮してまとめることとする。なお、底質の流れや湖水の挙動への利用等については割愛し、河川と水路の流れ測定への利用に焦点を絞った。

2. 流量測定の問題点

河川などの流量測定法として最も一般に用いられている方法には、流れの断面積を細分しその各々の流速を流速計で測定し、それぞれの小部分の流量を求めて積分する方法、流れをセキ止めし特定の形のセキを越流する水量から流量を求める方法、および放射性同位元素のみならず、食塩水などの塩類、蛍光染料、バクテリアなどをトレーサーとして求める方法がある。

放射性トレーサー法は、検出感度が大きいこと、測定精度が高いこと、汚濁水にも適用しうること、自然計数レベルが低いこと、測定が簡易であることなどの特長を持つが、実験に先立って許可を得、かつ一連の放射線障害防止策を講ずる必要があるなどの欠点を伴う。したがって、正確な流量を知りたいとき、または流量の較正が必要なときに限定して利用すべきであろう。

[†] 本資料は、理工学部会流れの測定に関する専門委員会（委員長 竹内雅）表面水ワーキング・グループがまとめたものである。

*東京大学生産技研, **東京都立アイソトープ研

[‡] Surface Water Flow Measurement Using Radioisotope and Activable Tracers. Otomaru SATO and Yasuhiro HORIGUCHI: Working Group on Surface Water Flow, Subcommittee on Flow Measurement, Physical Sciences and Industry Committee, Japan Radioisotope Association.

3. 放射性トレーサー法の原理

3.1 連続注入法

測定区間の上流のある断面の流心部で、一定流量 q で濃度 c_1 のトレーサー溶液を注入する。このトレーサーが完全に混合している下流の測定点の濃度を c_2 とすれば、流量 Q は次式から求められる。

$$Q = q(c_1/c_2)$$

この方法は連続定量注入装置を野外で操作するため、技術的にも放射線防護上も一定の困難さを伴う。

また、拡散の激しい河川や流量の大きい河川の場合、1～2時間の連続注入に大量の放射性トレーサーが必要となり、かつ測定点での採水も濃度が一定となったときに行なう必要があるなどの問題点がある。

最近では、トレーサー溶液の一部を正確に採取しておき、これを採取した測定試料と同等のオーダーまで希釈して一定容積の計数容器に入れ、時間をかけて測定した計数値をそれぞれ N_1 , N_2 とし、このときの希釈率を φ とすれば

$$Q = q\varphi(N_1/N_2)$$

すなわち、 q , φ , N_1/N_2 から流量 Q を求める方法が用いられている。

3.2 瞬間注入法

放射能 A 、容積 V_1 のトレーサー溶液を河川断面の流心部で瞬間的に注入し、河川水と十分に混合した下流の測定点で、トレーサー水塊の濃度変化を記録または採水する。トレーサー溶液の濃度を c_1 、時間 t における流れ中の単位体積 dV のトレーサー濃度を c とすると、

$$c_1 V_1 = \int c dV$$

この地点を通過する全容積を V とすると、 $V = Qt$ 、また $c_1 V_1 = A$ だから、

表1 積分値の求め方

測 定 方 法	Qの求め方とトレーサー曲線
a. トレーサー濃度の時間的変化曲線を連続記録または採水試料から求めて積分する。
b. 一定時間間隔で一定量を採水貯水し、その平均濃度 $\bar{c}$ を求めて $\bar{c}(t_2 - t_1)$ から計算する。 (採水濃度平均法)
c. 一定流量 p で連続採水貯水し、その放射能 a から積分値を求める。(トレーサー積分法)
d. トレーサー水塊からの放射線を全計数する。 (全計数法)

$$Q = A / \int c dt$$

したがって、 $\int c dt$ が測定点の断面上の各点で一定であれば、この積分値を求めることにより Q を算出することができる。

瞬間注入法は、放射性トレーサーの連続注入装置が不要で使用放射能も少量で済むため、経済的であるばかりでなく、放射線障害防止上からも有利である。ただし、測定中に流量が変化するような場合には、連続注入法に頼らざるを得ない。積分値の求め方に表1のような方法があり、主として c, d が用いられる。また断面積が一定のときは、2点間の平均流速に断面積を乗じて流量を求める方法も利用されている。

3・3 放射性トレーサー法適用条件

つぎの条件を満たしていないと正確な結果は得られない。第1に瞬間注入の場合測定中流量不変であること、第2にトレーサーの損失がないこと、第3に測定点で混合が完全であり、瞬間注入法では断面の各点で $\int c dt$ が一定、連続注入法ではトレーサー濃度が一定であることが大切である。

さて、連続注入継続時間を T とし、瞬間注入時と連続注入時のトレーサー濃度曲線を描くと図1となる。ここで θ は瞬間注入時の $t_2 - t_1$ に相等し、一定濃度となる時間は $T - \theta$ であらわされる。連続注入時間 T は普通1.5～2時間に選定され、このときの測定点

図1 トレーサー濃度曲線の変化

はトレーサーが完全に混合しているいわゆる混合距離より下流でしかも $T > \theta$ の地点に設定すればよい。

4. トレーサー溶液の特性

放射性トレーサーは、河川や水路の浮遊物質、構成材などと反応しないこと、放射能濃度が容易に MPC 以下となりかつ魚や水棲動物の生命に害を与えないように短半減期であること、希釈された試料が正確に定量できる濃度であること、トレーサーの損失を避けるため自然水中に存在する元素が望ましいことなどの性質が要求される。

一般に用いられている放射性トレーサー物質は表2のとおりであるが、実験場所が放射性物質の供給場所

表2 流れの測定に有用な放射性トレーサーの特性

核 種	半 減 期	β 線 エネルギー (MeV) 放出率 (%)	γ 線 エネルギー (MeV) 放出率 (%)	水中許容濃度 (MPC) ($\mu\text{Ci/ml}$)	化学的 形状
^{82}Br	36時間	0.44 100	0.55 75	4×10^{-4}	NH_4Br
			0.62 42		
			0.7 28		
			0.78 83		
			0.83 25		
			1.04 29		
			1.32 28		
			1.48 17		
^{24}Na	15時間	1.39 100	1.37 100 2.75 100	3×10^{-4}	NaHCO_3
^{51}Cr	27.8日		0.323 ~ 8	2×10^{-2}	Cr-EDTA
^{131}I	8.04日	0.25 3	0.8 2	2×10^{-5}	沃化物
		0.33 9	0.28 5		
		0.61 87	0.36 80		
		0.81 1	0.64 9		
			0.72 3		
^{132}I	2.26時間	0.73 15	0.53 27	6×10^{-4}	沃化物
		0.90 20	0.62 7		
		1.16 23	0.67 100		
		1.53 24	0.78 85		
		2.12 18	0.96 21		
			1.16 9		
			1.40 12		
			1.96 5		
			2.20 2		
^3H	12.26年	0.018 100		3×10^{-2}	HTO

から離れている場合には, ^{140}Ba (12.8日) $\rightarrow$ ^{140}La (40.2時間), ^{132}Te (77時間) $\rightarrow$ ^{132}I (2.26時間) などの娘核種を用いればよい。

トレーサーの水中損失⁷⁻⁹⁾は, 水中の諸成分との化学的反応のほか, 沈積物による吸着やイオン交換などによっても生ずる。一般に陰イオンの方が陽イオンより損失が少なく, また金属のキレート化合物も有利である。担体を多くすると損失を減らすことができる。THO のほか $\text{NH}_4^{82}\text{Br}$ が最も損失の小さいトレーサーといえよう。加藤ら¹⁰⁾の空知川における ^3H と ^{82}Br , ^{24}Na のダブルトレーサー実験によれば, ^{24}Na は約6 kmで明らかに損失が生じ, ^{82}Br も10km下流では少量の損失が見られた。

放射性トレーサーの最大使用数量は, 測定地点の濃度が0.1MPC 以下でなければならないことから限定

される。いま円筒状パイプを流れる乱流中に瞬間的に全断面にわたり放射能 A のトレーサーを注入し, x だけ下流の地点の濃度 $c(x, t)$ を求めると¹¹⁾

$$c(x, t) = A / S \sqrt{4\pi K t} e^{-(x - Ut)^2 / 4 K t}$$

ここで, S : 断面積, K : 拡散係数, v : 平均流速である。この式によるトレーサー濃度曲線は河川や水路のそれとほぼ一致するので, 河川等に適用しても差しつかえない。上式から, $c(x)_{\max}$ を求めると, $x = vt$ から,

$$c(x)_{\max} = A \sqrt{v} / 2 S \sqrt{\pi K x}$$

$c(x)_{\max}$ を水中における MPC (M とする) とすれば, $A_{\max} = 2 S M \sqrt{\pi K x} / \sqrt{v}$

ここで K は, トレーサー濃度曲線の最大計数率を $R_{\max}$, 全計数値を N とすれば次式から求められる。

$$K = v^3 N^2 / 4 R_{\max}^2 \pi x$$

各地の河川について計算した K の値が表3で, 約80倍

表3 4つの河川の拡散係数

河 川 名	平均流量 $Q(\text{m}^3/\text{sec})$	平均流速 $v(\text{m}/\text{sec})$	平均断面積 $S(\text{m}^2)$	河川の曲折	断面積の 変化	河底粗度	縦拡散係数 $K(\text{m}^2/\text{sec})$
Yuma Mesa 水路	9.05	0.406	22	小	小	小	0.41
East Fork Poplar 水路	0.955	0.248	3.84	小	中	中	2.42
American 川	29.7	0.76	40	中	大	大	24.2
空 知 川	35.0	0.746	47.6	大	大	大	30.2

の差があるが平方根できいてくるので $A_{\max}$ に与える影響はそれほど大きくない。また x, v も平方根できいてくるので、大略値でよい。空知川の例をあげると、 $x=1\text{ km}$, $M=0.1\text{ MPC}$ とすると、 ^{24}Na で $A_{\max}$ が 1 Ci , ^3H で 100 Ci 以下となる。

一方使用数量は、測定誤差から最小数量が制約される。全計数法で流量を求める場合、全計数値 N の統計誤差 $\Delta N = \pm\sqrt{N+B}$ によって左右される。ここで B は自然計数であり、 $\Delta Q/Q = \Delta N/N = k$ とすれば

$$k^2 N^2 - N - B = 0$$

$$\text{故に, } N = (1/2k^2) (1 + \sqrt{1 + 4k^2 B})$$

したがって、 $A = QN/F = (Q/2k^2 F) (1 + \sqrt{1 + 4k^2 B})$
 t_1 までの自然計数率を n_0 , 全計数時間を $t_2 - t_1$ とすると、 $B = n_0(t_2 - t_1)t_2/t_1$

B, Q, F の値を代入して、最小注入数量 A を概算することができる¹²⁾。

ケニアのタナ河（流量 $100 \sim 550 \text{ m}^3/\text{s}$ ）で数 1000 Ci の ^3H 水をトレーサーとして流量を求めているが、このときの所要数量 A の試算¹³⁾法は以下のとおりである。

^3H 水の測定に好都合な濃度を $10^3 \sim 10^5\text{ TU}$ ($1\text{ TU} = 3.24 \times 10^{-9} \mu\text{Ci}/\text{ml}$) とする、この値は 0.1 MPC 以下である。採水濃度平均法を用いることにすると、

$$Q = A/3.24 \times 10^{-9} \bar{c}(t_2 - t_1)$$

ここで $t_2 - t_1$ をトレーサー到着時刻 t_1 の3倍とし、フロート観測による平均流速を v , 混合距離に相当する測定区間距離を L とすると、

$$t_2 - t_1/3 = t_1 = L/v$$

この河川では $L = 200Q^{1/3}$ ¹⁴⁾ がほぼ成立するので、 $\bar{c} = 5 \times 10^3\text{ TU}$ のとき

$$A = Q^{4/3}/v \times 10^{-2}$$

$v = 0.3Q^{1/3}$ と考えれば、

$$A \div 0.03Q$$

すなわち、流量 $100 \text{ m}^3/\text{s}$ あたり 3 Ci の ^3H 水が必要となる。

5. トレーサー実験区間の選定

放射性トレーサー法による流量測定では、全断面積にわたりトレーサー溶液が十分に混合している地点に測定点を設けなければならない。この距離を混合距離と称しているが、断面上のすべての微小体積を通過する質量変動分とトレーサー濃度の変動分が等しい、すなわち $\Delta m/m = \Delta c/c$ が成立する地点までの最短距離と定義されている。

測定地点の断面上の n 個所から試料を採取し、それぞれの濃度を c_n , 全体の平均濃度を $\bar{c}$ とすると、河川の混合度 $m\%$ は次式で表わせる¹⁵⁾。

$$m = 100 \left\{ 1 - \sum_{i=1}^n |c_n - \bar{c}| / n \cdot \bar{c} \right\}$$

この値が99%とか95%になる地点までの距離を、それぞれの%の混合距離と考えればよい。Cole は非放射性トレーサー法により表4の河川や水路を利用し、3～4か所の測定断面あたり6～15個の試料を採取し上式を用いて図2を描き、 $m=99\%$ になる距離を外挿法によって求め、表4の実測値を得ている。

Rimmer¹⁶⁾ は深さ方向の拡散が横拡散よりはるかに大きいと仮定して拡散式を解き、つぎの混合距離 L

表4 混合距離の比較

実験 No.	河川・水路名	流量 (ft^3/s)	混 合 距 離 (ft)			
			実測値	Rim- mer	André	Cole
1	Brenig 川	12.1	260	211	1,255	1,070
2	Alwen //	8.2	890	570	680	605
3	Alwen //	5.3	320	280	555	635
4	Alwen //	5.3	620	570	582	735
5	Alwen //	25.5	2,950	2,420	2,750	2,400
6	Wye 水路	59.0	1,260	4,620	1,985	1,980
7	Devon 川	170.0	1,100	1,790	5,570	1,605
8	Whitewater 水路	17.5	660	750	1,730	1,330
9	Hambleden 水路	4.6	240	49	300	357

図2 Cole による実測混合度の変化
(破線は外挿した部分)

(99%) を求めた。

$$L = 0.13 B^2 C (0.7c + 6) / gd \quad (\text{単位m})$$

ここで、 d, B は平均水深と河幅、 C は Chezy 係数で河床によって変わり、粗度係数 n のとき $C = (1/n)d^{1/6}$ 、一般には $15 < C < 50$ 、 g は重力加速度である。

この式は流れの軸上の 1 点で注入した場合のものであるから、多点注入を行なえば L の値はさらに短くなる。一般に河幅 5 m 程度の河川では L が小さく、また 50m の河川では大きくなりすぎる傾向が見られる。

André は ft, s 単位のときの比例定数を 25 とし、次式を提案した。

$$L \propto BQ^{1/3}$$

また、P.R.B. Ward¹⁷⁾ は水路の流心部から岸边にわたり瞬間注入したときの 95% 混合距離として次式を導いた。

$$L = 8K_1 B^2 / K_1' f d$$

図3 直線状水路の混合距離

図4 弯曲している水路または河川の混合距離

ここで、 K_1 は注入位置の関数、 K_1' は定数で水路が直線のとき 0.2、弯曲しているとき 0.6、 f は Darcy-Weisbach 摩擦係数で河川のとき 0.8 である。

この式から、直線水路と弯曲水路の場合の B/d に対する L/B の変化を図 3、4 のように Z/B (Z は水路の中心から岸边方向への距離) をパラメーターとして描き、 L を求めることができる。図 3、4 から明らかなようにトレーサー注入点が流心部 ($Z/B=0$) からわずかにずれた場合すなわち $Z/B=0.1$ のときの L の値は流心部の場合の約 2.4 倍となる。混合距離を短

表5 各種河川の実験区間距離と計算した混合距離

河 川 名	流 量 $Q(\text{m}^3/\text{sec})$	B/d	注入箇所 Z/B	混合距離 (図3より計算)	混合距離 (図4より計算)	実験時の測定点までの距離(m)
Alwin 川	0.23	18.5	0.5 0.1		525 340	525
Inyagi 川	3.9	22.9	0		512	870
Munenga 川	0.22	12.5	0.1		230	240
Yuma Mesa A 水路	9.3	4.9	0	370		700
Yuma Mesa A 水路	17.5	4.4	0.1	1160		920
American 川	30.6	10.0	0.5		1200	3300
Inyagi 川	57	28.0	0.1		3610	1680
Tana 川	550	15.7	0.5		4950	4000
Danube 川	1740	40.4	0.1		25500	13000

くするためにも流心部の位置を確かめてからトレーサーを注入することが大切である。

この方法の有効性に関し、表5のように放射性トレーサー実験が行なわれた9つの河川に当てはめてみたところ、2例を除き、計算値が実際の測定区間距離とほぼ同じかまたは小さかった。この事実からきわめて信頼性の高い方法といえる。

Cole¹³⁾は、Wardらの式を99%混合距離に書き直し、中心部注入の直線水路の場合は下式を、また弯曲

$$L=0.135 B^2/0.02 d$$

水路の場合はこの $\frac{1}{2}$ の値とした。表4の最右欄がその結果である。この表の河川流量は比較的小さいが、 B と d だけから L を求めることができるという特長を持ち、かつColeの実測値(表4の最左欄)に最も近い値が得られることから、目安をつけるのに十分な信頼性を有するものと考えてよい。

6. 注入、採水、測定

連続注入には図5のように同期電動機で駆動する定量注入装置を用いる。このポンプの容積は1 lで、0.1~0.5 ml/sで注入できる。図6の簡単な容器を用いてもよいが、注入前後に送り出し流量を校正し±1

図5 一定流量注入器

%以下に押える必要がある。

瞬間注入する場合、注入速度が注入地点の平均流速と比べて十分に短かければ問題ない。この意味で、図7のような高速度注入器が開発された。1 mlの溶液を

図6 アイソトープ溶液注入用マリョット容器

図7 高速度注入器

図8 トレーサー溶液注入器

15mS で注入できる。しかし普通の河川では図8のように、アンプルやフラスコを破碎する方式のものでもさしつかえない。

注入液中の担体濃度は15mg/l 以上とし、注入前後に正確に計量した注入液の少量を採取し保管しておく。流れからの採水はびんを水中に入れたり、ポンプで吸引したりして行なう。トレーサー濃度変化曲線を正確に求めるには、トレーサー通過時間内に最低20個の採水が必要である。一般にトレーサー通過時間を到着時間の2～3倍と考えると採水間隔を決めればよい。

採水容量を一定に保つのに、図9のような装置が利用される。図は約2 l のシンチレーション計数用凹入

図9 測定容器中の液体のレベルを一定に保持する装置

図10 全計数法で幾何学的計数効率を一定に保つ装置

容器の液量を調節しているところである。

連続採水する場合は、定量ポンプが用いられる。図10はポンプと凹入容器を組み合わせ、幾何学的計数効率を一定にして全計数法により測定するときのものである。

トレーサー濃度曲線からトレーサー水塊の到着時刻を求めるのに、曲線の重心、最大値および最大値の1/2の値の中心の3つの方法がある。一般に曲線がなだらかで尾を引くようなときは重心を、ピークの幅が狭く左右対称に近い場合は最大値をとるのが望ましい¹⁸⁾。

しかし、英国では第3の方法を推奨しているようであ

図11 積分型レートメータの記録

る。また図11のように積分型レートメーターを用いて到着時刻を求めることもできる¹⁹⁾。

7. 測定誤差

瞬間注入法の場合も、同様な考え方で誤差を求めることができるので、まず連続注入時の流量測定誤差^{19), 20)}について考えてみる。このときの誤差としては、注入トレーサー量の誤差 σ_A 、校正試料の希釈に伴う誤差 σ_B 、放射能計数に伴う統計誤差 σ_C 、採取試料の計数値の平均値からの誤差 σ_D 、および場合により半減期の不確かさによる誤差 σ_H が考えられる。したがって、全体の誤差 σ_Q は

$$\sigma_Q^2 = \sigma_A^2 + \sigma_B^2 + \sigma_C^2 + \sigma_D^2 + \sigma_H^2$$

σ_A には、注入用モーターの電源周波数の変動、注入流量および計量時の液の密度変化の3つの誤差が含まれるが、それぞれを0.04、0.05および0.1%以下にすることができるので、95%の信頼度で

$$\sigma_A = 2 (0.04^2 + 0.05^2 + 0.1^2)^{1/2} \div 0.24\%$$

σ_B は希釈率を求めるときの誤差であり、いま注入液から n 個の希釈試料を作って計数したときの平均計数率に伴う誤差は、自由度 $n-1$ 、信頼度95%の学生t値を t' とすれば

$$\sigma_B = t' S / \sqrt{n-1} (\%)$$

ここで S は希釈率と計数率の積 (n 個求める) の平均値からの標準偏差%である。 $n=5$, $S=0.2\%$ のときは $t'=2.776$ であるから $\sigma_B \div 0.277\%$ となる。

$\sigma\sigma$ は放射能計数に伴う統計誤差で、計数値を N とすれば95%の信頼度で

$$\sigma\sigma = 200/\sqrt{N} (\%)$$

採取した試料の測定誤差を減らすには、試料数を増やして測定時間を長くすればよい。 n 個の試料の平均値からの誤差 σ_D は、自由度 $n-1$ 、信頼度95%の学生 t 値 t' 、計数率の平均値からの標準偏差 S' とすれば、

$$\sigma_D = t' S' / \sqrt{n-1} (\%)$$

半減期による誤差 σ_H は、 $t(h)$ を半減期、 $\Delta t(h)$ を95%の信頼度での誤差とすると時間当りの%で表わせる。すなわち、

$$\sigma_H = 69.3 \cdot \Delta t / t^2 (\%)$$

^{24}Na の半減期を $15 \pm 0.1 \text{ h}$ とすれば $\sigma_H \doteq 0.03\%/h$ となる。この誤差を基準とし、各試料測定時の時間のずれを求めて σ_H に乗じ全体の誤差を算出する。 ^{24}Na の場合 $\pm 0.1\%$ 以下に押えることができる。なお、半減期による誤差の中には、物理的定数の誤差だけでなく、 ^{24}Na の場合のように ^{40}K の混在によってみかけ上の半減期が変わることもあるので注意せねばならない。

瞬間注入の場合は、まず注入するトレーサー量の計量誤差があり、通常 $\pm 0.03\%$ 以下にできる。注入液から希釈試料を調製する場合の誤差は $\pm 0.1\%$ 程度に押えることができる。試料採取時刻に伴う誤差は、自動的に時間を記録するようにすれば $\pm 0.1\%$ 以下になる。放射能計数による統計誤差は、希釈試料の場合は比較的濃度が大きいので誤差が小さく $\pm 0.4\%$ 以下にすることが容易である。しかし、採取試料は濃度が小さい場合が多いので、長時間測定するかまたは、採取試料が1個ですむ場合も数個の平均をとるとかして誤差を $\pm 0.5\%$ 以下に減らすようにする。こうして全体の流量測定誤差を1%以下に押えることは、それほど困難ではない。

8. アクチバブルトレーサー法

8.1 アクチバブルトレーサー利用の目的

前述の7項までに記した放射性トレーサーの流れ測定への利用は多くの利点をもっているが、放射線に対する安全性の点で、かなりの考慮を要する。すなわち、開放河川などについて放射性トレーサーを使用し流れの調査をおこなうさいには、実験担当者以外の河川流域の人々の放射線に対する安全性を十分に考慮したうえで実施することが必要である。とくに近年各種の環境汚染が深刻化するに伴って、放射線に対する

安全性の確保が重要視されるようになってきた。このため、放射性トレーサーの利点のある程度犠牲にしても安全性の点から、放射化分析法を利用したアクチバブルトレーサーによる流況測定がおこなわれるようになってきた。

この方法は原子炉または加速器を使用して放射化分析をおこなうため、あらかじめ放射化に適した安定同位元素をトレーサーとして流れに添加し、任意の地点で採水し、これを試料として放射化分析し、測定結果を求める方法である。したがって、実験担当者以外の一般の人々には放射線に対する安全性について考慮する必要はない。

また、放射性トレーサーと異なり直接その場で結果を求めることは不可能であるが、半導体検出器、多重波高分析器などの発達とともに測定精度の点で同等の結果が得られるようになってきた。さらに放射性トレーサーによる測定と異なり、試料から、くり返して情報を求めることが可能であるなどの利点もある。

8.2 利用の方法

アクチバブルトレーサーによる流況の求め方は放射性トレーサー法と原理的に異なるところはない。

河川の流れ測定においては上流の地点からその河川に適したアクチバブルトレーサーを瞬間または連続投入し、下流の任意の地点においてトレーサー到着予定時刻からサンプリングを開始し、採水試料を放射化分析してトレーサー濃度を求める。得られた濃度変化曲線から放射性トレーサー法と同一の方法で希釈率、流量を求めることができる。

しかし、実際の河川などでのアクチバブルトレーサーによる流れ測定においては、放射性トレーサー法に比較し、あらかじめ被測定流系の状況をかなり精密に調査しておく必要がある。また、アクチバブルトレーサー法は放射性トレーサー法と異なり、トレーサー流下過程の情報を得ることが不可能なため、採水開始時刻、終了時刻などある程度予想しておく必要がある。さらに、流水系中の含有元素の組成に応じて使用トレーサーを考慮しなければならない。

8.3 トレーサーの選定および放射化分析

アクチバブルトレーサー法は、放射性トレーサー法と比較してかなり大量のトレーサーを必要とし、試料採取後に放射化分析により濃度を求めることが前提とされる。このためトレーサーの選定にさいしては十分な配慮を必要とする。トレーサーの必要条件を列記す

れば、

(1) 放射化しやすく、生成した核種の放射能分析が容易になし得る元素、化合物であること、

(2) 大量のトレーサーを水溶液として使用するため水に対する溶解度が高く、人体をはじめ各種生体に対し毒性のない元素、化合物であること、

(3) 被測定流系中に天然の含有量が少なく、放射化分析にさいし他の生成核種による妨害が少ない元素であること、

(4) 流下過程において吸着損失をはじめとして、トレーサー損失が少ない元素、化合物であること、

(5) 安価であること、

などがあげられる。

以上の条件を完全に満たすトレーサーを見出すことは困難であるが、上記条件のいくつかを満足するトレーサーが使用されなければならない。

これらの条件のうちとくに(2)は、もっとも重要であり、厳重に守らなければならない。ついで(1)、(3)、(4)(5)があげられるが、放射化分析の手法または、その結果と関連して定められる。

現在、水試料についての放射化分析は単純な濃縮などの前処理のみを行なったのち放射化し、測定して定量する非破壊放射化分析法と、前処理後に放射化し、さらにその後に化学分離などを行なって測定、定量する分離法に大別される。

アクチバブルトレーサー法においてもこの両者のいずれを取るかは、使用可能な測定機器に左右され、また目的核種の核データ、さらには定量限界に左右される。

1例として人工汚染や海水の影響のきわめて少ない地域の河川の流況を求める場合ではNaCl, NH₄Brなどを使用し、非破壊放射化分析法によって、かなり採取試料水が低濃度となる下流域までの流況を求めることが可能である。しかし、汚染の激しい流系や水中含有元素が時間的に変動する流系、たとえば海水が逆流してくる河川などでは、前もって流系の含有元素を放射化分析法により求め、損失などを考えに入れてトレーサーの種類を選定すると同時に放射化分析法についても十分な考慮をはらう必要がある。すなわち、かかる流系では通常、NaCl, NH₄Brなどのありふれたトレーサーの使用は不可能なため、検出感度のすぐれたIn, Euなどの特殊な元素の化合物が必要となる。このような元素を使用するさいには、バックグラウンドの濃度ならびに採取試料のトレーサー濃度測定に当たっては、放射化時間の選定、化学分離、ガンマ線スペ

図12 ガンマ線スペクトロメトリのブロックダイアグラム

表6 アクチバブル・トレーサーとして使用できる代表的元素の感度と費用

元素	核種	感度 (10 ⁻⁹ g) ①	トレーサーの 化学形	値段 (円/g) ②	①×②
In	^{116m} In	0.006	InCl ₃ ・4H ₂ O	108	0.65
Eu	^{152m} Eu	0.02	EuCl ₃ ・6H ₂ O	3,400	680
Dy	¹⁶⁵ Dy	0.02	DyCl ₃ ・6H ₂ O	1,000	2.0
Mn	⁵⁶ Mn	0.03	MnCl ₂ ・4H ₂ O	1	0.03
La	¹⁴⁰ La	0.04	LaCl ₃ ・7H ₂ O	24	0.96
Au	¹⁹⁸ Au	0.07	NaAuCl ₄ ・2H ₂ O	1,300	91
Sm	¹⁵³ Sm	0.1	SmCl ₃ ・6H ₂ O	1,000	100
W	¹⁸⁷ W	0.3	Na ₂ WO ₄	4.1	1.2
Cu	⁶⁴ Cu	0.4	CuCl ₂ ・2H ₂ O	1.8	0.72
Br	⁸² Br	0.7	NH ₄ Br	1.4	0.98
Na	²⁴ Na	1	NaCl	0.44	0.44
Cl	³⁸ Cl	3	NH ₄ Cl	0.5	1.5
Co	⁶⁰ Co	20	CoCl ₂	2.0	40

(注) 1) 値段は試薬として購入したときの1gあたりの価格。

2) 表中の最右欄は核種の検出感度と試薬の価格との積を示したもので、トレーサー選定の目安となる。

クトロメトリなどについてもかなり細心の注意を必要とする。

そこで参考として図12に現用のガンマ線スペクトロメトリのブロックダイアグラム、表6にアクチバブルトレーサーの代表例²¹⁾を示す。

8・4 測定の実際例

わが国においては放射性トレーサーの利用に対する規制が他国に比較してきびしいため、アクチバブルトレーサーの利用はかなり早期から試みられており、今後はトレーサーの流れ測定への利用においてもアクチバブルトレーサー法が主となるものと考えられる。

初期の実験例としては小林らが東京都日原川におい

て行なった実験²²⁾があげられる。この実験では NH_4Br 約40kgを使用し点投入、または連続投入による流況の測定を試みている。測定区間は約15km、採取地を4か所設置して各区間の流速、各地点の流量などを算出している。また、この測定では放射性トレーサーによる測定も行なってアクチバブルトレーサーと比較している。

つぎに、汚濁河川の例としては堀口らの実験例²³⁾がある。汚濁河川では NaCl などのトレーサーは使用できないため、また汚濁物による吸着損失を防ぐため、ここでは Eu-DTPA などをトレーサーとした測定を試みており、さらにトレーサー損失を防ぐため Na-DTPA を大量に添加して実験を行ない流況を求めている。

また、高瀬ら²⁴⁾の In-EDTA をアクチバブルトレーサーとする試みも報告されている。 In-EDTA は Eu-EDTA よりも良好なトレーサーであることが確かめられている。

外国の例として、J.B. Dahl らが行なった測定例²⁵⁾によれば、 $\text{In}(\text{NO}_3)_3$ を海中において400ml/hの投入速度で約3日にわたり、図13のような投入器を用いて

図13 水中トレーサー注入装置

連続投入を行ない、トレーサー放出後、各地点で試料を採取し、前処理後に放射化し、定量を行なって汚染の拡散状況を求めた。

以上、簡単に開放水系へのアクチバブルトレーサー法の概略を記したが、アクチバブルトレーサー法は今後、環境汚染の増大とともに河川などの開放水系の測定から、都市排水、処理施設などの水系の測定へとその利用が広がるものと期待されている。

9. むすび

表面水の流れへの放射性トレーサーの利用は、国内では数年前から行なわれていないが、諸外国では数は

多くないが依然として行なわれている。一般にアクチバブルトレーサー法もふくめて、この種のトレーサー技術はほぼ確立されたといっても過言ではない。この意味で現在までの到達点を取りまとめたものである。

放射性トレーサー法については佐藤が、またアクチバブルトレーサー法については堀口がまとめた。なお、専門委員会のまとめの時点から2年余の時間を経過しているので一部新しい資料で補足したことをことわっておきたい。

文 献

- 1) R.H. Rafferty, Jr.: *Isotope and Radiation Tech.*, 8, (3) 287~309 (1971)
- 2) Guidebook on Nuclear Tech. in Hydrology, IAEA (1968)
- 3) 佐藤: 生産研究, 19, (11) 5~10 (1967)
- 4) W.R. Ellis: *J. of Hydrol.*, 5, 233~57 (1967)
- 5) Draft of British Standard "Methods of Measurement of Liquid Flow in Open Channels Using the Radioisotope Dilution Techniques" (1966)
- 6) Guide to the Safe Handling of Radioisotopes in Hydrology, IAEA (1966)
- 7) 堀口, 他: 第4回理工学同位元素研究発表会要旨集 19a-III-1 (1967)
- 8) G.E. Eden, et al.: Proc. of IAEA Symp. on the Use of Isotopes in Hydrology, 191~205 (1966)
- 9) C.G. Clayton: Proc. of IAEA Symp. on Radioisotopes in Hydrology, 1~23 (1963)
- 10) 加藤, 他: *Radioisotopes*, 15, (6) 310~16 (1966)
- 11) R.P. Gardner: *Int. J. Appl. Rad. & Isotopes*, 16, 75~80 (1965)
- 12) M. Moser, et al.: *Atomkernenergie*, 5, 462~71 (1960)
- 13) T. Florkowski, et al.: *J. Hydrol.*, 8, 249~64 (1969)
- 14) D.E. Hull: *Int. J. Appl. Rad. & Isotopes*, 13, 63 (1962)
- 15) J.A. Cole: Proc. ASCE, HY-8, 1167~72 (1974)
- 16) G.M. Rimmer: *Trudy GGI*, 36, (90) 18~48 (1960)
- 17) P.R.B. Ward: Proc. ASCE, HY-7, 1069~81

- (1973)
- 18) K. Korbel, et al.: *Nukleonika*, XV, (4) 365
~70 (1970)
- 19) C.G. Clayton, et al.: Proc. IAEA Symp.
on Radioisotope Tracers in Industry and
Geophysics, 563~84 (1966)
- 20) AERE Report No. 131T/CGC/GVE (1968)
- 21) 繁田: *Radioisotopes*, 22, (6) 313~21(1973)
- 22) M. Kobayashi: *ibid.*, 15, (6)317~24(1966)
- 23) 堀口, 他: 工業用水, 157, (1971)
- 24) 高瀬, 他: 第7回理工学同位元素研究発表会要
旨集 18p-II-6 (1970)
- 25) J.B. Dahl, et al.: Proc. IAEA Symp. Nu-
clear Tech. in Environmental Pollution, 663
~71 (1971)
-