ミニレビュー

環境放射能研究と水文トレーサ[†]

福井正美

(京都大学原子炉実験所)

Key Words : water tracing test, artificial tracer, natural tracer, environmental isotope, hydrogeology, AMS

河川，湖沼，地下水などにおける水流動研究，水資源開発，水質汚染防止などの観点から，19世紀後半以降，多くの水溶性化学物質（蛍光および非蛍光染料，NaCl等の塩，界面活性剤，芳香族化合物）や浮遊性物質（植物胞子，バクテリア）などが水のトレーサとして用いられている¹⁾。しかしながら調査対象地区は化学物質に対する分析技術や再現試験の制約などから限定されてきた。他方，19世紀後半における放射能の発見以後，20世紀初頭にはすでにピッチブレンドを用いた地下水トレーサ実験がドイツで実施され，20世紀中頃からは放射性同位元素に対する高感度分析法が開発されたことから，その実用化とともに放射性物質および後放射化法を用いたトレーサ研究が進展した²⁾。このような放射能測定は水文研究に限定されず，周知のように大気中核実験により人工の放射性核種が環境汚染を誘起したことから，地球規模の生態圏における物質移動やその移行機構解明の重要な手段として用いられているが，その概要は別の機会に譲る。他方，核エネルギーの平和利用に対しても公衆の不安が誘発されている現在，環境放射能は来世紀においても重要な研究課題の一つであることに疑義はない。

水トレーサとしての放射性物質の特性は環境汚染の観点から、半減期が数日から数か月以下であること、検出されやすいこと（バックグラ

ウンドが低いことも含む) および化学的に安定 (錯体として使用する場合は $\log K_s$ が 20 以上であること) であり, 地質媒体との反応性の低いこと等が常識となっているが, 現在知られている約 1000 の放射性核種のうち, このような条件を満足する元素は 1% もなく, ^{51}Cr や $^{114\text{m}}\text{In}$ は EDTA と, ^{58}Co はシアンとの錯体として用いられてきた。ハロゲン元素のうち ^{82}Br はアニオンとしては安定であるが, 主要粘土鉱物の pH_{Zpc} より高い, 通常の pH 環境の地下水中では anion exclusion 現象が見られること, ^{131}I は酸化雰囲気で土壌有機物などに吸着され, conservative ではないこと等が知られている。

トリチウムは半減期が長く(12.35年),たとえばドイツでは1964年に 10^{12} Bq オーダーを湖に投入した拡散実験を実施した結果, 2半減期を経過し, 減衰や拡散過程を経ても周辺の地下水に汚染が検出されることが警告されているように³⁾, これを安易に用いることはできない。

以上のように人工トレーサとして放射性物質を用いる場合でも、調査対象地区スケールが広くなるほど多量のトレーサ（たとえば 10^8 m^3 以上）を投入することが必要とされ、それによる人為的な水理の攪乱、水質汚染が問題になるとともに、野外での観測期間が数か月以上も長期化する場合にコスト的にも実験が困難になる。そこで自然に賦存する環境中の同位体元素を観測することにより、より広範で長期間の移行機構を解明する研究が、1970年代以降、放射能測定器に加えて質量分析器による極低濃度測定の開発とともに発展してきた。

水文と関連する同位体は十数種類 ($^2\text{H}^*$, ^3H , $^3\text{He}^*$, $^4\text{He}^*$, $^{13}\text{C}^*$, ^{14}C , $^{15}\text{N}^*$, $^{18}\text{O}^*$, $^{34}\text{S}^*$, ^{36}Cl , ^{39}Ar , ^{85}Kr , ^{234}U : *印は安定同位体) であり, 最も典型的なトレーサは言うまでもなく通常の水分子 ($^1\text{H}_2^{16}\text{O}$) と同じ化学形で, 異なる同位体を含む分子 ($^2\text{H}^1\text{H}^{16}\text{O}$, $^1\text{H}_2^{18}\text{O}$, $^3\text{H}^1\text{H}^{16}\text{O}$) である。 10^6 個の $^1\text{H}_2^{16}\text{O}$ 分子に対して約 2 000 個の安定な $^1\text{H}_2^{18}\text{O}$ と約 320 個の安定な $^2\text{H}^1\text{H}^{16}\text{O}$ が存在し, これら分子のわずかな蒸気圧 (温度) の違いから, 蒸発, 凝縮, 凍結等の過程において環境中の同位体比 ($R = ^2\text{H}/^1\text{H}$, $^{18}\text{O}/^{16}\text{O}$) が標準試料の値に比べて変化する (δ 値: R 値としての相対

[†] Water Tracers Related to the Environmental Radioactivity Research. Masami FUKUI: Research Reactor Institute, Kyoto University.

誤差のパーミル表示)。この変化量は高度、緯度、降水量などによっても変化することから、 δ 値の解釈は複雑であるが、局所的な水系の違い⁴⁾あるいは降水中の濃度が季節により周期変動する場合は地下水の滞留時間などを類推することが可能とされてる⁵⁾。逆にこれら同位体の測定から採取地点の地質、水質、気候変動の経過を推定する地球科学研究が胎動し始めている。

トリチウムは ${}^6\text{Li}(n, \alpha){}^3\text{H}$ のような核反応や核燃料再処理、核関連工場⁶⁾等により局所的に環境へ放出されるが、これらは地球規模で濃度を増加させるほどの量ではない。それよりも1960年代の核実験により、たとえば降水中濃度は北半球中緯度で2桁以上も上昇した。この濃度は近年ようやく10 TU (1 TU = 0.118 Bq/kg H_2O) 程度と、主として宇宙線の ${}^{14}\text{N}(n, {}^3\text{H}){}^{12}\text{C}$ 反応に起因する核実験前のレベルに近づきつつある。このように人為的に環境濃度が変化する同位体には ${}^3\text{H}$ の崩壊生成物である ${}^3\text{He}$ を含めて他に ${}^{14}\text{C}$, ${}^{36}\text{Cl}$, ${}^{85}\text{Kr}$ がある。これらを水文トレーサとする場合は、核実験のみにより濃度が影響される ${}^{85}\text{Kr}$ を除いて、太陽活動による変化も含め、地上、地殻中での生成率の変化を事前に把握しておく必要がある。半減期からトレース可能な時間は ${}^{14}\text{C}$ が千年 - 数万年、 ${}^{36}\text{Cl}$ が5万年以上である。したがって ${}^{14}\text{C}$ は核実験により放出された ${}^{14}\text{CO}_2$ の海洋への吸収機構⁷⁾, ${}^{36}\text{Cl}$ は高レベル放射性廃棄物の処分対象地層における深層地下水の隔離性能を検証する手段⁸⁾として、今後加速器質量分析器(AMS)を用いたトレーサ研究の進展が期待される。 ${}^{40}\text{Ar}(n, 2n){}^{39}\text{Ar}$ 反応により生成される ${}^{39}\text{Ar}$ はその半減期(269年)から100 - 1000年をトレースする可能性を与える。しかし空気中だけでなくHeと同様に地殻中でも生成されるため、He濃度をNeにより補正するように、地殻中のU, Th, K分析等により地殻中での生成量を把握する必要がある⁹⁾。

タイムファクターを有しない安定な ${}^{34}\text{S}$ は、通常 SO_4^{2-} として地下水系に取り込まれる。これが沈殿物として地殻を形成した時期に固・液相間において固有の $\delta^{34}\text{S}$ 値を有する。これに $\delta^{18}\text{O}$ 値の情報も加えて地層と関連させ、接触す

る地下水年代を推定する手法が採られているが¹⁰⁾、その地球での循環過程はまだ解明されていない。 ${}^{15}\text{N}$ は空気中窒素の固定、土壤肥料、土壤有機物、酸性雨などから NO_3^- として地下水へ供給される。バクテリアによる脱窒機構も作用するが、供給源ごとに固有のもしくは限定された範囲の $\delta^{15}\text{N}$, $\delta^{18}\text{O}$ 値が溶存する NO_3^- に反映されることから、地下水がどの機構の影響を受けているかが推定されている。また近年、地下水の有機塩素化合物による汚染¹¹⁾については、天然の放射性核種である ${}^{222}\text{Rn}$ が水よりそれらに多く分配されることから、汚染修復状況の目安にする利用法も提案されている¹²⁾。

以上、人工および自然の溶存物質を水文トレーサとする例について概説したが、来世紀はより広域空間、超長時間スケールについて研究課題の山積することが予想されるため、さらなる環境科学研究の重要性が痛感されるところである。

文 献

- 1) たとえば, Flury, F. and Flühler, H.: *Soil Sci. Soc. Am. J.*, **59**, 22-27 (1995)
- 2) たとえば, Käss, S. W.: "Tracing Technique in Geohydrology", Balkema (1998)
- 3) Rank, D.: IAEA TECDOC 601, 157-163, IAEA, Vienna (1991)
- 4) Drost, W., Rauert, W. et al.: *GSF-Ber.*, **R290**, 238-254, Nueherberg (1982)
- 5) Herrmann, A. and Stichler, W.: *Catena*, **7**, 251-263 (1980)
- 6) Levi, B. G.: *Physics Today*, **45**, (3), 17-21 (1992)
- 7) Bard, E., Arnold, M. et al.: *Nucl. Instrum. Meth. Phys. Res.*, **B29**, 297-301 (1987)
- 8) Loosli, H. H., Leemann, B. E. et al.: *Geochim. Cosmochim. Acta*, **58**, 8-22 (1989)
- 9) Forster, M., Ramm, K. et al.: In *Isotope Techniques in Water Resources Development 1991*, pp. 203-214, IAEA, Vienna (1992)
- 10) Krouse, H. R. and Grinenko, V. A.: "Stable isotope: Natural and Anthropogenic Sulphur in the Environment", 440 pp. (1991)
- 11) Fetter, C. W.: "Contaminant Hydrogeology", Prentice Hall (1999)
- 12) Nelson, N. T. and Brusseau, M. L.: *Environ. Sci. Technol.*, **30**, 2859-2863 (1996)

“RADIOISOTOPES” 誌 投 稿 規 定

1996年4月1日改定

- (1) アイソトープ（安定同位体を含む）および放射線の基礎、利用、防護などに関連する学術論文の投稿を受けつける。
- (2) 投稿原稿は未発表のもので、著者のうち少なくとも1名が会員であるものに限る。同一の内容が他誌にすでに掲載された論文または投稿中の論文は受理しない。また、本誌に投稿中の論文または掲載された論文と同一内容のものを他誌に投稿する場合は、編集委員会の承認を必要とする。
- (3) 本誌に掲載された論文の著作権は、(社)日本アイソトープ協会に帰属する。
- (4) 投稿原稿は、正1部のほか副1部とし、所定の投稿申込書を添える。また、掲載した投稿原稿（図表を含む）は、原則として返却しない。
- (5) 投稿の種類は、原著、ノート、技術報告、速報および資料とし、それぞれつぎの基準に適合するものとする。
 原 著：独創性のある結論の明確な論文。
 ノート：独創的ではあるが断片的な研究で、研究方法、操作、技術、装置の改良、新しい試みあるいは応用などに関し、簡単に表現したもの。
 技術報告：既製の装置・製品・試薬などの新しい使用経験・評価など実用価値のある内容を簡潔にまとめたもの。
 速 報：内容が独創的で重要な発見または結論を含み、他に優先して掲載する価値があると編集委員会で認めたもの。この詳細は後日原著として投稿することができる。
 資 料：研究・技術に関する参考資料および解説・調査報告など。
- (6) 投稿は邦文または英文とし、別記の「執筆上の注

- 意」に基づいて執筆する。投稿原稿は、原則としてワードプロセッサにより作成し、A4用紙に印字する。また、投稿原稿の文書ファイルを保存したフロッピーディスクを添付する。
- (7) 原稿の長さは下表のとおりとし（いずれも図表を含む）、原著、ノートおよび技術報告には同表に示す要旨を付する。
 - (8) 原稿は協会到着の日をもって受理日とする。
 - (9) 原稿の採否、印刷の形式は編集委員会で決定する。
 - (10) 編集の都合により、原文の論旨を変えない範囲で修正、削除を行うことがある。
 - (11) 規定に反した原稿または編集委員会で必要と認めた場合は、意見を付して投稿者に返却し、書きかえを求めることがある。
 書きかえ原稿の提出が1箇月を超えた場合、または内容の書きかえの程度によっては、書きかえ原稿の協会到着の日をもって受理日とすることがある。
 - (12) 著者の希望により、カラー印刷することができる。ただし、経費のうち一定額を著者が負担する。
 - (13) 著者校正は初校のみとする。校正刷は受取り後2日以内に校正のうえ、原稿とともに速達便で返送する。
 - (14) 別刷は、30部まで無料とし、30部を超える場合は、その超過部数の実費を著者が負担する。（別記、別刷価格表参照。）
 - (15) 原稿、校正刷の送付先は、〒113-8941 東京都文京区本駒込二丁目28番45号 (社)日本アイソトープ協会RADIOISOTOPES 編集委員会とし、封筒の表に「RI 原稿」と朱書して、必ず簡易書留または配達記録郵便とする。

原 稿 の 長 さ と 要 旨

論文の種類	刷 上 り の ペ ー ジ 数	原 稿 の 長 さ			Isotope News 用 邦文要旨
		本 文（図表を含む）	英 文 要 旨	邦 文 要 旨	
原 著	12ページ以内 (邦文要旨および英文要旨を付して)	邦 文：22枚以内	邦文原著：200～400語	左欄の英文要旨の邦文を付する	200字以内
		英 文：6,600語以内	英文原著：150語程度		
ノ ー ト	6ページ以内 (英文要旨を付して)	邦 文：10枚以内	200語以内	同 上	200字以内
		英 文：3,000語以内			
技 術 報 告	6ページ以内 (英文要旨を付して)	邦 文：10枚以内	150語以内	同 上	200字以内
		英 文：3,000語以内			
速 報	4ページ以内	邦 文：7枚以内			
		英 文：2,100語以内			
資 料	14ページ以内	邦 文：27枚以内			
		英 文：8,100語以内			

注 1) 図表の大きさ、所要スペースについては、別記「執筆上の注意」②項参照。

2) 原稿1枚は21字×40行(840字)とする。刷上りが1ページは原稿2枚分に相当する。