

公益信託 エスプレック地球環境研究・技術基金  
平成 27 年度 助成金研究報告書「概要書」

2016 年 10 月 29 日

東京大学大学院総合文化研究科  
広域科学専攻 相関基礎科学系  
角野 浩史

[研究目的と概要]

水資源として重要な地下水の流動系を明らかにする上で、その滞留時間（涵養年代）は重要な情報となる。地下水の年代は短寿命の放射性核種を用いて求められているが、なかでも  $^3\text{H}$ - $^3\text{He}$  法は、半減期 12.3 年のトリチウム ( $^3\text{H}$ ) が  $\beta$  崩壊して生じるヘリウム 3 ( $^3\text{He}$ ) の量から、年代と初期トリチウム濃度を同時に求められることから、他の手法より信頼性の高い年代と、水そのものの起源に関する情報を与える。2011 年 3 月の東北日本大地震に引き続き起きた東京電力福島第一原子力発電所の事故により環境中に放出された放射性物質のうち、セシウムやヨウ素については土壌等の分析に基づく詳細な分布が明らかにされているが、汚染された水そのものを構成する  $^3\text{H}$  については、挙動が他の放射性物質とは全く異なるため、その放出状況はほとんど分かっていない。そこで本研究では、福島第一原発の事故により地下水の放射能汚染が懸念されている福島県内の地下水の流動系に関する知見を得ることを目指して、水試料からのヘリウム抽出システムの改良と、国際原子力機関 (IAEA) により提供された  $^3\text{H}$  標準試料の分析を通して、希ガス質量分析を用いた  $^3\text{H}$ - $^3\text{He}$  年代測定法の手法を開発することを目的とした。

$^3\text{H}$ - $^3\text{He}$  年代測定法では、まず両端をクランプで封じた銅管に試料を採取し、試料にもともと溶存していたヘリウムとネオンの同位体分析から、 $^3\text{He}$  濃度と U,Th- $^4\text{He}$  年代を得る。次いでこの際に脱ガスした試料を再び銅管に封じ、数ヶ月後に再測定することでこの間に  $^3\text{H}$  から生成・蓄積した  $^3\text{He}$  を定量し、試料の初期  $^3\text{H}$  濃度と  $^3\text{H}$ - $^3\text{He}$  年代を得る (図 1)。

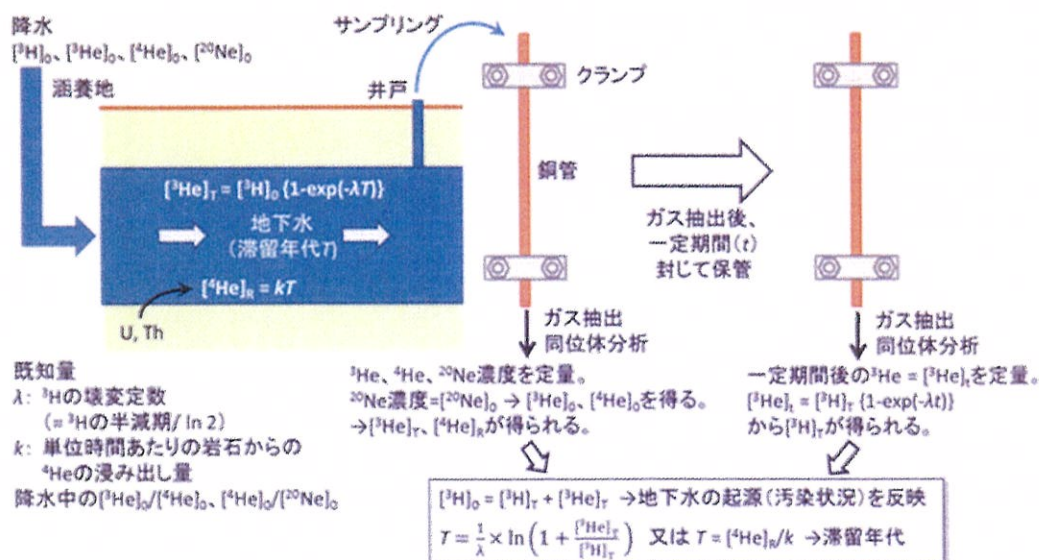


図 1.  $^3\text{H}$ - $^3\text{He}$  年代並びに U,Th- $^4\text{He}$  年代測定法の概略

本手法の利点は、地下水の滞留年代が得られるだけでなく、初期<sup>3</sup>Hの濃度を定めることで、その<sup>3</sup>Hの起源が福島第一原発由来か知ることにもできる点である。浅層地下水には、事故後2年が経過してその影響が現れ始めていると考えられることから、初期<sup>3</sup>H濃度の異常に高い地下水が発見される可能性も想定される。本研究により、地下水毎に滞留年代を求め、今後十年、百年の水資源利用の安全に関わる重要な基礎データが得られるようにすることを目標とする。

[実施内容]

まず水試料から溶存ヘリウムとネオンを抽出するための、全金属製テプラーポンプの改造を行った。この装置は水銀柱の液面の上げ下げを利用し、試料容器が接続されガス抽出が行われる容積（約1L）に拡散した試料ガスを、ヘリウム・ネオン精製の真空ラインに接続された容積（約6cc）に濃縮することができる。このため試料容器の形状やサイズに依存せずに、全てのヘリウム・ネオンを定量的に抽出して分析に供することができる

(Padron *et al.*, *Geology* 2013)。しかしこれまで、水銀柱の上下動の制御を手動で行い、また集めたガスが再び試料容器側に戻ることを防ぐための逆止弁として用いている水銀溜めが機能しない場合があったため、本装置を正しく操作し定量的なガス抽出・濃縮を行うには、ユーザー側に熟練を要するという問題があった。そこでこの水銀柱の高さをプログラマブルロジックコントローラ（PLC）を用いて制御し、あらかじめ設定した回数だけ水銀柱を上下させる間に、同じく PLC で制御した電磁バルブに逆止弁の機能を持たせることで、自動で試料ガスの抽出・濃縮を行え、一定の抽出率（99%以上）が得られるようにした。

次にIAEAより提供を受けたトリチウム標準水（トリチウム濃度0~8TU、TUは<sup>3</sup>Hと水素（<sup>1</sup>H）の同位体比の単位である tritium unit を意味し、 ${}^3\text{H}/{}^1\text{H} = 1 \times 10^{-18}$ である）について、改造したテプラーポンプを用いて一度溶存ヘリウム・ネオンを脱ガスさせ、クランプで両端を閉じた銅管中に20~60日程度密封保管した後、再びテプラーポンプを用いてこの間にトリチウムから生成・蓄積した<sup>3</sup>Heを含むガス成分を抽出した。抽出したガスを加熱したチタンやジルコニウムなどのゲッター材

と反応させて活性ガス（水蒸気など）を除去し、さらに液体窒素温度の活性炭トラップを用いてヘリウム・ネオン以外の希ガス成分を分離した後、15Kまで冷却可能なコールドトラップによりヘリウムとネオンを分離し、それぞれダブルコレクター単収束磁場型希ガス質量分析計を用いて<sup>3</sup>Heと<sup>4</sup>He、<sup>20</sup>Neを定量した。ここで<sup>4</sup>Heと<sup>20</sup>Neは、最初に脱ガスしきれなかったり、保管中に外部から侵入した可能性のある大気起源<sup>3</sup>Heの量を評価するための指標となる。結果として、<sup>3</sup>H-<sup>3</sup>He法により得られた標準試料の<sup>3</sup>H濃度はIAEAによる推奨値とよい一致を示し、本手法の正確性が確認できた（図2）。

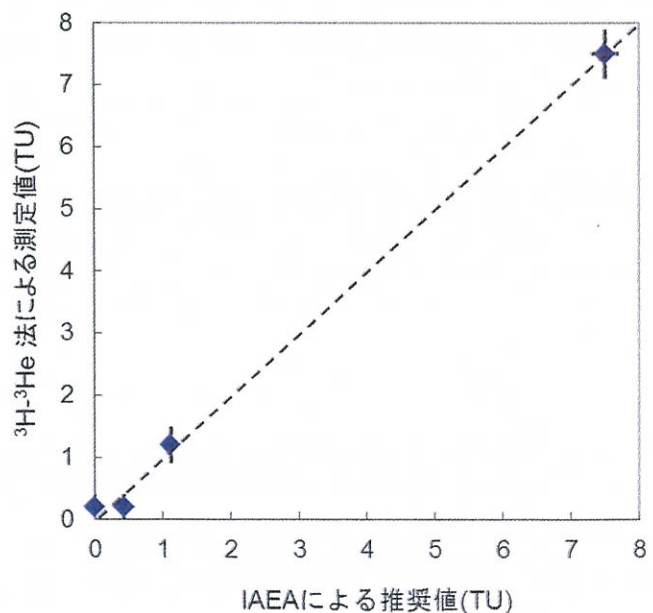


図2. <sup>3</sup>H標準水の分析結果

次に福島県内の各所（図3）で採取した湧水や井戸水を分析した。初期溶存 $^3\text{He}$ はほぼ全てが大気起源で、わずか（5%以下）に地殻岩石起源の $^4\text{He}$ の寄与が見られたことから、滞留年代は比較的長く、また初期 $^3\text{H}$ 濃度も低いことが示唆される。このような試料の現在の $^3\text{H}$ 濃度はきわめて低いと予想され、それを定量するには、初期溶存 $^3\text{He}$ を脱ガスした後に $^3\text{H}$ から $^3\text{He}$ を生成・蓄積させる期間として、十分に長い時間（数ヶ月以上）を取る必要がある。このため現在は、脱ガス済みの湧水・井戸水試料を密閉保存し、 $^3\text{He}$ の蓄積を待っている段階である。結論を得るにはこの $^3\text{H}$ 分析の結果を待たなくてはならないが、少なくともこれらの湧水や井戸水に、福島第一原発事故に由来する異常に高濃度の $^3\text{H}$ が含まれている可能性は非常に低いと考えられる。



図3. 湧水・井戸水採取地点

[研究成果公表]

桜庭真依子・角野浩史・松崎浩之「福島原発周辺地域における地下水流動系の解明」

2016年度火山性流体討論会（横浜）平成28年10月7日、ポスター発表