

「*In-Situ* γ スペクトロメトリーによる 温泉水中の放射能の研究」*

金沢大学理学部

阪上 正信, 小村 和久

(昭和53年4月28日受理)

Studies on Radioactivity in Hot Spring Water by *In-Situ* γ Spectrometry

M. Sakanoue, K. Komura

Low Level Radioactivity Laboratory, Faculty of Science, Kanazawa University

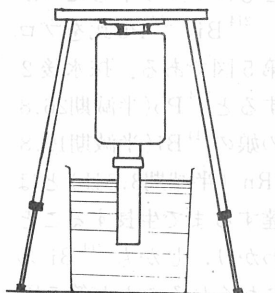
Abstract

A new method was developed to determine the radioactive nuclides in hot spring water. A high-resolution gamma-ray spectrometry can be made by dipping a Ge (Li) detector covered with a long neck probe into the water sample. From the height variations of some special peaks in γ spectra with time, informations as to radioactive disequilibrium in the sample could be obtained as shown in the experimental data for "Tatsunokuchi" hot spring water.

Even in the background γ radiation from surface soil and others, the content of radon in water sample could be estimated from the γ ray peaks of the daughter nuclides of radon in a radioactive equilibrium. This could be made either by plotting various data in a figure (two methods was proposed) or by the calculation based on the self-absorption and the geometrical counting efficiency of each γ ray. The application of this method was made for several hot springs and other natural water samples, and the results are reported in this paper.

1. ま え が き

高分解能の γ 線スペクトロメトリーのための検出器の最近の発展は著しいが、新発足した金沢大学低レベル放射能実験施設では、主要設備の1つとして*In-Situ* (現地)測定を目的とした可搬型Ge(Li)検出器システムを購入し、環境における放射性核種の分布と挙動の系統的な研究を開始した。検出器や測定システム全体については別に詳細に報告¹⁾した。温泉科学研究その他の観点からは、とくにこの検出器ではそのヘッド部分を30cmと長くし、この部分を水中に直接浸して γ 線スペクトル測定を行いうることが大きな特長である(第1図)。このような測定法を有効に活用して、温泉水等の試料水中の放射能について簡便適確に情報をうる新方法を開発したので、その適用例とともにここに報告する。

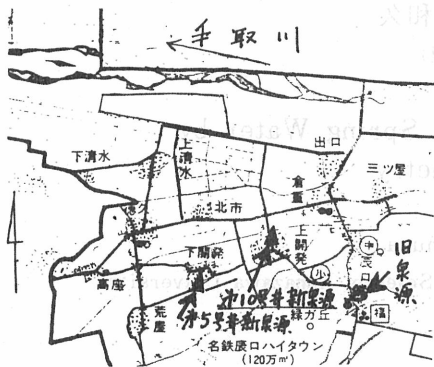


第1図 水試料 γ スペクトロメトリー

*本研究の前半は日本温泉科学会第30回大会にて、後半の一部は同学会第29回大会にて講演発表した。

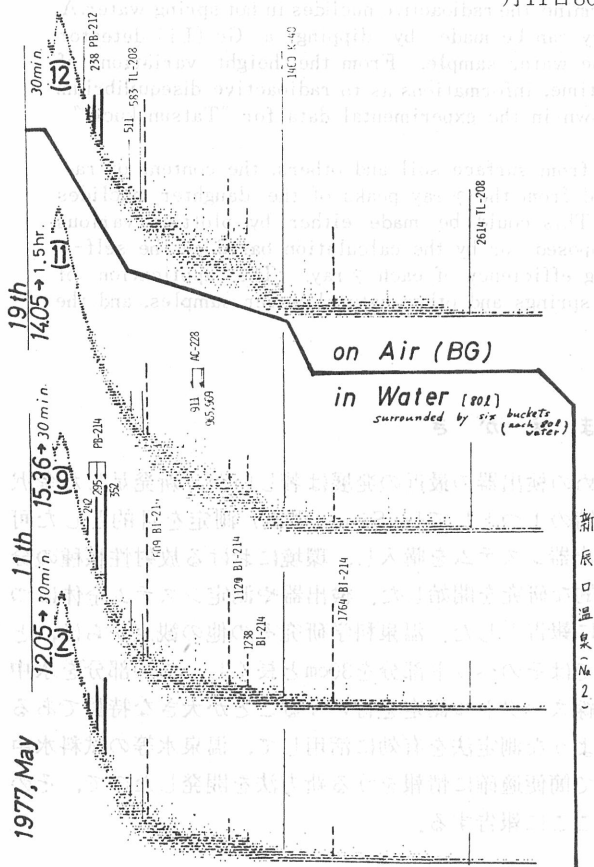
2. γ スペクトルの時間的变化 (石川県辰口新温泉水)

新しく採水した温泉水に、直接上記の検出器を浸した場合、 γ スペクトルが時間的にどのように変化し、それからどのような知見が得られたかの例を、まず金沢大実験施設の所在する辰口町に新しく掘さくされた新泉源の温泉水についての実験例で示そう。

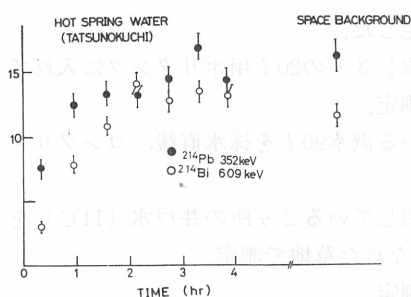


第2図 辰口温泉図

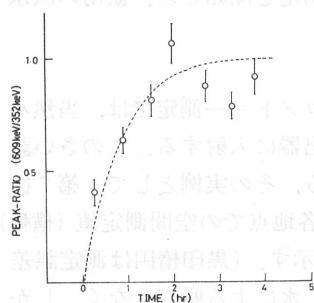
石川県加賀平野周辺には含食塩・石膏・芒硝泉が分布するが、²⁾能美郡辰口町にも古来より知られた温泉がある。最近その周辺地(第2図)にボーリングによる新泉源開発が深度600m以上掘さくして行われ、泉温40℃以上の含食塩・芒硝泉が得られた。すなわち昭和46年に下開発地内に湧出した第5号井は毎分約100lの揚湯量で活用されており、さらに昭和50年4月26日着工し翌年9月10日試錐を完了した上開発イ26番地の第10号井は自噴毎分約48l、揚湯により100l毎分の湯量が利用しう。後者について昭和52年5月11日80lバケツに採湯し、そのまわりを試料水を入れた80lバケツ6ヶで囲み、これについてIn-Situ γ スペクトロメトリーを経時的に行った。そのさいの γ スペクトルを測定時刻、時間とともに第3図に一括して示す。同図の最上部のスペクトルは測定を行った場所の空間 γ 線のスペクトルであるが、水試料測定の際の γ スペクトルではいずれの γ 線のピークについても水による吸収が見られる。しかし²¹⁴Pb(RaB)の352 keV、295 keVのピーク、²¹⁴Bi(RaC)の609 keVなどのピークについては測定時刻による変化が見られる。これを採湯後の時間経過とともにプロットしたのが第4図であり、²¹⁴Bi/²¹⁴Pb比をプロットしたのが第5図である。採水後2~3時間経過すると²¹⁴Pb(半減期26.8分)さらにその娘の²¹⁴Bi(半減期19.8分)が親の²²²Rn(半減期3.8日)とほぼ放射平衡に達するまで生長することが第4図からわかり、しかも²¹⁴Biの生長は²¹⁴Pbにおくれることが第5図より判明する。このことから本温泉水は、ラドンガス(²²²Rn)を地下で供給されてから時間的に若くその娘核種



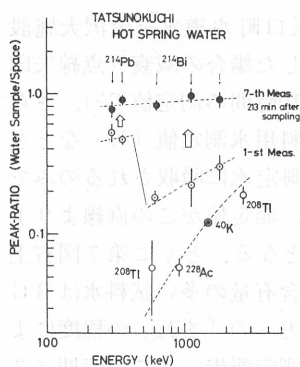
第3図 γ スペクトルの時間的变化 (辰口温泉水, 最上部空間BG)



第4図 ^{214}Pb と ^{214}Bi の γ 線ピークの時間的变化



第5図 $^{214}\text{Bi}/^{214}\text{Pb}$ 放射能比の時間的变化



第6図 各種エネルギーの γ 線の水測定と空間測定のピーク比

が親核種と放射非平衡の状態にあることがうかがわれる。なお平衡に達してからの ^{214}Pb 、 ^{214}Bi の γ 線ピーク面積は温泉水中に含有される ^{222}Rn 量を反映するが、この解析については、空間 γ 線からの寄与の除去を必要とする。空間 γ 線は水によって吸収をうけるが、それは低エネルギー γ 線ほど大きい(第6図に示す最も下の点線)。しかし水中に γ 線源があるとそれからの γ 線は低エネルギーでも検出器に近いためあまり吸収をうけず、第6図に示すように空間 γ 線からの寄与と弁別できる(次章参照)。なお採湯後一ヶ月以上たつと試料水中の親核種 ^{222}Rn が減衰し、その娘核種 ^{214}Pb 、

^{214}Bi の γ 線ピークは大きく減少する。この時点での γ 線スペクトルは水の吸収をうけた空間 γ 線のスペクトルに相当する。

このように直接温泉水の γ 線スペクトロメトリーを行うことにより、従来は面倒な放射化学分離³⁾を迅速に行うことを必要とした ^{214}Pb 、 ^{214}Bi の測定が簡便適確に可能となり、温泉水中の重要な放射能であるラドン供給のいわば年代測定が行われることになったことは、温泉科学の上で興味あることと思う。

3. 温泉水等に含まれるラドン量の評価

上述のように採水後しばらく放置された試料水についての γ スペクトロメトリーから、それに含まれるラドン量が求められる。このようなIn-Situ γ スペクトロメトリーによる研究は、辰口新泉源についての上記研究以前に、昭和51年3月、放射能泉で有名な三朝温泉にてまず行った。このさいは岡山大学温泉研究所浴槽水50 lをポリバケツに採取し、数時間冷却後、検出器を温泉水に浸して4.55時間測定した。このほか金沢大実験施設蛇口で採水された辰口町水道水および昭和51年6月18日から23日にわたっては多くの温泉鉱泉が湧出して地質地球化学的研究のなされている大糸沿線の各地⁵⁾において空間測定⁴⁾も含めIn-Situ γ スペクトロメトリーを行った。その測定状況等は別に示した。⁸⁾

- ・蒲原温泉——温泉水(約50℃、測定時41℃)および飲料水(沢水)を90 lポリバケツに採取し旅館の前庭にて測定した。夜間にバックグラウンドを測り、翌朝(10時間後)温泉水を再測定。
- ・島温泉——温泉水(40℃)および飲用の沢水を90 lポリバケツに採取し、採水直後、道路わきの草地にて測定。
- ・沖温泉——山岸氏所有地の緩やかな傾斜の桑畑内に湧出している炭酸を含む鉱泉(12℃)を50 l採取し、採水直後路上で測定。
- ・小谷熱湯温泉——旅館より数100 mの地点にある湯溜めより温泉水(52℃)90 lを採取し14時間

後、道端で測定した。飲用の沢水90 lも同様にして測定した。

- ・奉納鉱泉——長距離を送泉された入湯施設において採水し3ヶの20 l用ポリタンクに入れて密栓し、下里瀬に運び、50 lポリバケツに入れかえて測定。
- ・下里瀬——温泉水(31°C)および飲料水として使っている沢水90 lを採水直後、コンクリート上にて測定。
- ・白馬アルプスホテル周辺——職員寮横の湧水および飲用している2ヶ所の井戸水(11°C)を50ないし90 lポリバケツに入れ、ホテルより約100mはなれた草地で測定。
- ・城山鉱泉——50 lをポリ袋につめて葛温泉まで運んで測定。
- ・葛温泉——はげしい雨が降ったため、旅館の玄関の下駄置き場にて測定した。このためバックグランドには建物の影響も含まれている。源泉は80.6°Cで、旅館の取入れ口で60°Cあった。50 lを採水し飲用の沢水により20°C迄冷却し、採水後3時間で測定を開始した。飲用の沢水城山の鉱泉およびバックグランドも同一条件で測定した。

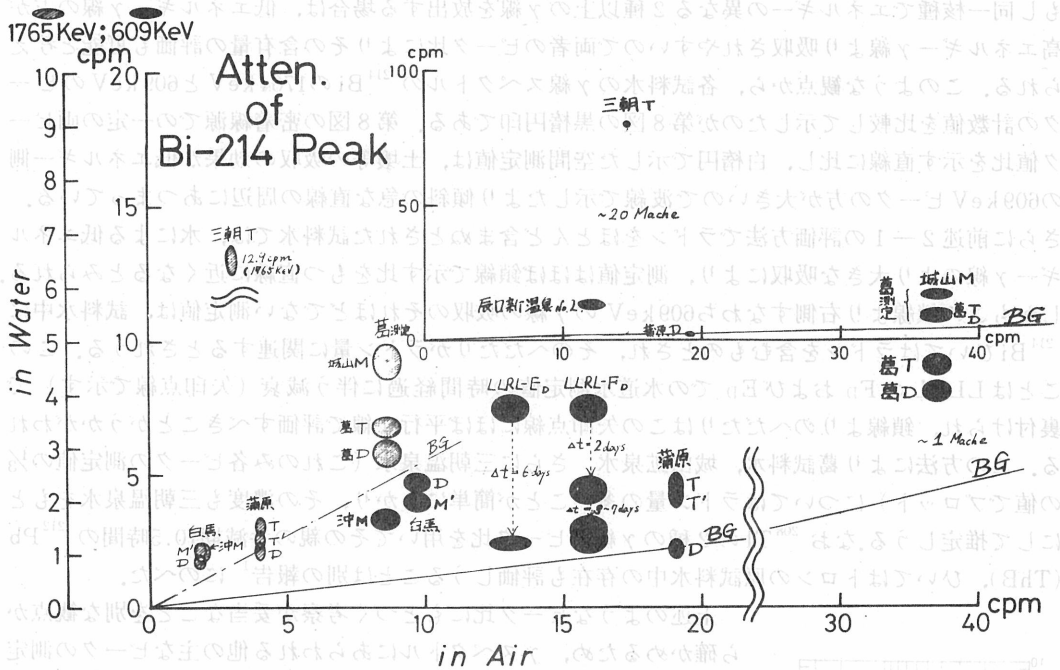
3-1 空間 γ 線スペクトルとの比較による方法

各地点の野外または室内での上記のような試料水の γ 線スペクトロメトリー測定では、当然バックグランドとして、測定地点の大地や家屋構造材からの γ 線も検出器に入射する。このさい試料水により吸収され、空間 γ 線測定の場合よりもその強度が減少する。その実例として、第7図に、 ^{214}Bi の609 keVおよび1765 keVの γ 線ピーク面積計数率値が、各地点での空間測定値(横軸)に比し、その場所での水試料測定値(縦軸)ではどの程度減ずるかを示す。(黒印楕円は測定誤差範囲も示した609 keVピーク値、白印楕円は1765 keVピーク値)もし水による吸収もなく、しかも水試料中に ^{214}Bi (つまり親の ^{222}Rn も)がなければ、各測定値は45°の直線上にのるべきであるが、各測定値と原点をむすぶ直線をひくとそれよりむしろゆるやかなのは、バックグランドの空間 γ 線の試料水による吸収のためである。

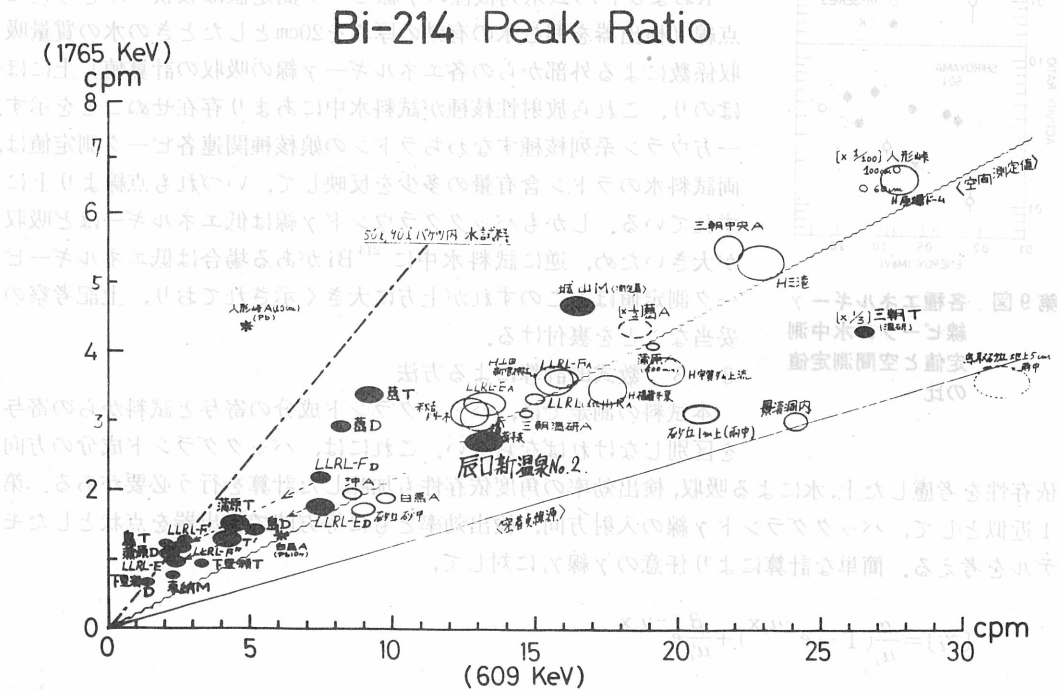
さて図上の ^{214}Bi の609 keVピーク値(黒色楕円)に注目しよう。辰口町水道水を金沢大施設内の異なる場所(LLRL-E_D, LLRL-F_D)で経過日数をかえて測定した場合の減衰(点線矢印で示す)や、蒲原温泉地における温泉水の2つの測定値(Tおよび約10時間の測定値T'),さらに流下する沢水を集めた(ラドン含有量ほとんどなしとみられる)飲料用水測定値(D)などを比較してみよう。もし測定試料中に ^{214}Bi を含まず、ただ空間 γ 線が測定水に吸収されるのみであれば、測定値はBGで示すバックグランド線上にのるはずであるが、測定値がこの直線より上にずれておれば試料水中に ^{214}Bi ひいてはラドンが含まれていることとなる。とくに第7図右上にスケールをかえて示した図上の三朝温泉水測定値のように、ラドン含有量の多い試料水はBG直線よりの「ずれ」も大きい。すなわちこのようなBG直線よりの上方への「ずれ」の程度により試料水中のラドン量が評価しうる。三朝温泉のラドン濃度が従来の測定報告⁶⁾のこの時期(3月末)の値20マッヘ(Mache)[$7.3 \times 10^{-9}\text{Ci/l}$]程度とすれば、この値をもとに、葛温泉水約1.5マッヘ、蒲原温泉水約0.8マッヘ、城山自噴泉は約3マッヘと評価される。しかし実際にわれわれの測定したさいの三朝温泉水のラドン含有量は後に〔3-3〕にのべる方法を用いて評価するとほぼ10マッヘとなった。そこでこれら各試料水のラドン含有量はこれらの値の約 $\frac{1}{2}$ となる。なおそれらは〔3-3〕で絶対評価された値(第2表参照)にほぼ等しく、このような図式的方法の妥当性が裏付けられる。一方、同様な方法をトロン²⁰⁸Tlの γ 線ピーク583 keVや2614 keVについて適用して検討したが、いずれの試料水についてもトロンの半減期が54.5秒と短いこともあり、その含有量の多いものはなかった。

3-2 ^{214}Bi の2種のピーク比を用いる方法

前述の場合は、いづれも空間での測定値を参照して試料水中の含有量とその量を判定したが、

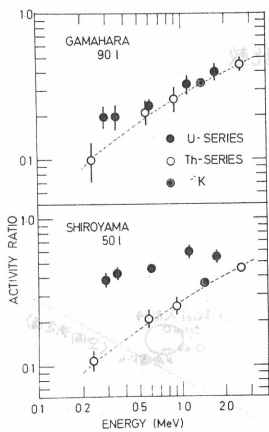


第7図 ^{214}Bi の2種の γ 線ピークの水中測定値と空間測定値の比較



第8図 ^{214}Bi の2種の γ 線のピーク計数率比

もし同一核種でエネルギーの異なる2種以上の γ 線を放出する場合は、低エネルギー γ 線の方が高エネルギー γ 線より吸収されやすいので両者のピーク比によりその含有量の評価も可能と考えられる。このような観点から、各試料水の γ 線スペクトルの ^{214}Bi の1764 keVと609 keVのピークの計数値を比較して示したのが第8図の黒楕円印である。第8図の密着線源での一定の両ピーク値比を示す直線に比し、白楕円で示した空間測定値は、土壌等の吸収の効果が低エネルギー側の609 keVピークの方が大きいので波線で示したより傾斜の急な直線の周辺にあつまっている。さらに前述2-1の評価方法でラドンをほとんど含まぬとされた試料水では、水による低エネルギー γ 線のより大きな吸収により、測定値はほぼ鎖線で示す比をもつ直線に近くなるとみられる。しかもこの鎖線より右側すなわち609 keVの γ 線の吸収のそれほどでない測定値は、試料水中に ^{214}Bi ひいてはラドンを含むものとされ、そのへだたりがラドン量に関連するとされる。このことはLLRLの F_D および E_D での水道水測定値の時間経過に伴う減衰(矢印点線で示す)で裏付けられ、鎖線よりのへだたりはこの矢印点線にほぼ平行な線で評価すべきことがうかがわれる。この方法により葛試料水、城山鉱泉水、さらに三朝温泉水(これのみ各ピークの測定値の $1/2$ の値でプロット)についてはラドン量の多いことが簡単にわかり、その濃度も三朝温泉水をもとにして推定しうる。なお ^{208}Tl の2種の γ 線のピーク比を用いてその親の半減期10.5時間の ^{212}Pb (ThB)、ひいてはトロン(ThA)の原試料水中の存在も評価しうることは別の報告¹⁾にのべた。



第9図 各種エネルギー γ 線ピークの水測定値と空間測定値の比

上述のようなピーク比にもとづく考察が妥当なことを別な観点から確かめるため、 γ スペクトルにあらわれる他の主なピークの測定値も含めて、それらのエネルギーを横軸に、縦軸に空間測定とのピーク値比をとって総括的に示したのが第9図である。実例としてあげたのは前述の城山鉱泉水と蒲原温泉水の場合であるが、いずれも ^{40}K およびトリウム系列核種の γ 線ピーク測定値は吸収のみを考えた点線(検出器を囲む水の有効の厚みを20cmとしたときの水の質量吸収係数による外部からの各エネルギー γ 線の吸収の計算値)上にほぼのり、これら放射性核種が試料水中にあまり存在せぬことを示す。一方ウラン系列核種すなわちラドンの娘核種関連各ピーク測定値は、両試料水のラドン含有量の多少を反映して、いずれも点線より上にずれている。しかもバックグラウンド γ 線は低エネルギーほど吸収が大きいので、逆に試料水中に ^{214}Bi がある場合は低エネルギーピーク測定値ほどこのずれが上方に大きく示されており、上記考察の妥当なことを裏付ける。

3-3 数式的計算による方法

本試料の測定では、バックグラウンド成分の寄与と試料からの寄与を区別しなければならない。これには、バックグラウンド成分の方向依存性を考慮した上、水による吸収、検出効率の角度依存性も加味した計算を行う必要がある。第1近似として、バックグラウンド γ 線の入射方向、検出効率ともに等方的で検出器を点状としたモデルを考える。簡単な計算により任意の γ 線 γ_i に対して、

$$[\gamma_i] = \frac{\alpha}{\mu_i} (1 - e^{-\mu_i x}) + \frac{\beta}{\mu_i} e^{-\mu_i x}$$

が成立することが導かれる¹⁾。ここで $[\gamma_i]$ はエネルギー γ_i のガンマ線の計数率、右辺の第1項および第2項は試料およびバックグラウンド(主として土壌)の寄与で、 α と β は試料および土壌中

の放射性核種濃度にかかわる吸収を受ける前の γ 線束, μ および μ' は水および土壌の質量吸収係数, x は検出器を囲む水層の有効厚みである. 上式のうち未知数は α および β で, 少なくとも1組の γ 線対を使えば原理的に解くことができる. ウラン系列の核種では半減期の短い ^{214}Pb と ^{214}Bi が親核種である ^{222}Rn と放射平衡にあると仮定すれば, 295, 352 keV(以上 ^{214}Pb), 609, 1120, 1764 keV(以上 ^{214}Bi) など比較的分岐比の大きいピークを使って α, β を求めることができる. 同様に Th 系列では ^{228}Ac や ^{208}Tl からの γ 線の対が利用できる. ^{220}Rn は半減期が1分不足しなく ^{208}Tl のピークからは水中の ^{220}Rn 濃度よりもむしろ半減期の長い ^{212}Pb (10.6時間) の濃度が得られることになる. また数日たった試料では $^{228}\text{Ac}, ^{208}\text{Tl}$ のピークはそれぞれ $^{228}\text{Ra}, ^{224}\text{Ra}$ 濃度を与えることになる.

U 系列に対し609 keV γ 線を基準にし, Th 系列に対し583 keV γ 線を基準として, 最小二乗法を適用して計算により求めた α および β の相対的な値を第1表に示す.

第1表 水中ラドンの測定結果

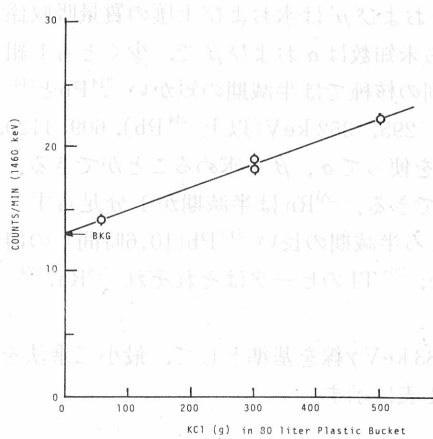
(α, β については本文参照)

Sample	609 keV		583 keV		
	α	β	α	β	
(Gamahara) H.W	0.20	0.34	-0.03	0.59	
	D.W	0.14	0.58	-0.10	0.91
(Shima) H.W	0.10	0.75	0.01	0.95	
	D.W	0.40	0.50	0.01	0.79
(Kudarise) H.S	0.00	0.92	-0.03	0.52	
	D.W	-0.03	0.95	-0.02	0.58
(Bunoh) M.W	0.02	0.70	-0.01	0.56	
(Hakuba) S.W	0.27	0.61	-0.02	0.38	
	D.W	0.33	0.83	0.15	0.22
	D.W	0.26	0.77	-0.14	0.95
(Shiroyama) M.W	0.68	3.46	0.09	1.37	
(Kuzu) H.W	0.14	2.54	0.09	1.27	
	D.W	0.00	2.51	0.02	1.48
(Misasa) H.W	8.9	1.40	—	—	

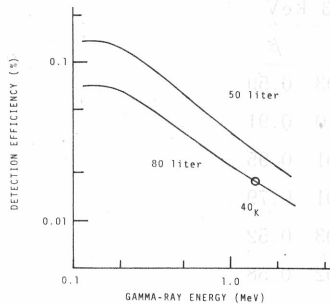
H.W : Hotspring water, D.W : Drinking water

M.W : Mineral water, S.W : Spring water

これらの方法に対し, バケツに入れた水試料に対する絶対検出効率をあらかじめ求めておき, 試料中の放射性核種の濃度を計算する方法は, 最も有効と考えられる. 50 l あるいは80 l の水試料では, 検出器のエンドキャップに載せた小試料に比べ検出効率は桁違いに低くなる. さらに検出器および試料を遮蔽することは事実上不可能なため, 標準水試料線源を用いるとしてもかなり高濃度のものが必要となる. 1つの試みとして80 l の水に KCl を溶かし, K の1460 keV γ 線のピーク計数率の変化の様子を調べた結果を第10図に示した. 図からわかるように500 g の KCl を溶かして得られる計数率の増加は9 cpmで, これは検出効率として0.017%に相当する. 他のエネルギーに対する検出効率は, 例えば0.01~0.1 μCi 程度の ^{226}Ra や ^{152}Eu を用いれば求められると予



第10図 KCl添加による1460keVガンマ線の計数率の増加



第11図 モンテカルロ法により計算した検出効率、⁴⁰Kは実験値

想されるが、この方法は検出器を汚染させる恐れがあるため試みていない。

これとは独立に、モンテカルロ法により任意のエネルギーに対する検出効率を求める方法⁷⁾も試み、一応の成果が得られたので簡単に記す。方法の概略はバケツ状の容器に入れた試料のどこからγ線が放出されるかを先ず決め、次に検出器に入射する角度を選ぶ。これを用いて立体角を計算し、自己吸収および検出効率の角度依存性に対する補正を行って1過程を完了するものである。この過程を数1000回くり返せば、統計誤差数%以内で任意のエネルギーに対する計数効率が計算できる。筆者らの開発したプログラムは、マリネリ型、バケツ状、円柱状の容器に対する計算が可能である。80 lおよび50 lバケツ

に水試料を入れ、検出器を底から35cmないし25cmの高さに置いた時の検出効率の一例を第11図に示す。図から明らかなように1460 keVのγ線については実験値との一致は非常によい。他のエネルギーに対する効率は実験データがないため比較はできないが、±20%程度の精度では一致するものと思われる。

実際の適用にあたっては、水試料を入れた時と入れない時の⁴⁰Kのピーク面積の比を使って外部からの²¹⁴Pb、²¹⁴Biの寄与を差し引く必要がある。得られた正味の計数率とモンテカルロ法で求めた計数効率および各γ線の分岐比から²¹⁴Pb、²¹⁴Biの濃度が計算できる。

この方法で求めた²²²Rn濃度を第2表に示す。この値は第1表に示したαを約400倍した値にほぼ等しい。なお各温泉地湧出地の地質状況、および本研究と同時に行われたトルエン抽出液体シンチレーション法による測定値との比較検討については別の報告⁸⁾を参照されたい。

第2表 水試料中のラドン濃度

Sample		²²² Rn content(pCi/l)
(Gamahara)	H.W	49 ± 20
	D.W	64 ± 15
(Hakuba)	S.W	100 ± 15
	D.W	130 ± 20
(Shiroyama)	M.W	370 ± 30
(Kuzu)	H.W	170 ± 50
	D.W	<100
(Misasa)	H.W	3400 ± 300
(Tatsunokuchi)	H.W	560 ± 50

4. おわりに

高分解能のGe(Li)検出器を用いて²²²Rn濃度を直接測定することが十分可能なことが示された。測定は²¹⁴Pb、²¹⁴Biと²²²Rnの放射平衡を考慮して採水後2~3時間後に開始するのが最もよく、精度を上げるには少くとも1時間以上かけることが必要である。感度は測定地点の土壤中のUの濃度によって大きく左右されるが条件のよいところで約50pCi/l程度と思われる。これは液体シンチレーションカ

ウンタを用いる方法に比べては感度は劣るが、現場での適確な迅速定量が可能な点で優れた方法といえよう。

大糸線沿線の温泉群の測定にさいしては、都立大学村上悠紀雄教授、信州大学飯島南海夫教授に、多大な援助と便宜をはかっていただき、これにより本研究を実施することができた。さらに測定にあたっては、当施設に加藤岩夫技官、大学院生古山和徳・柳瀬信之両君ならびに卒研生諸君の多大な協力があつた。これらの方々に深く謝意を表したい。

参 考 文 献

- 1) 阪上正信・小村和久, 京都大学原子炉実験所報告 KURRI-TR-156 (1977)
- 2) 板倉 淳, 温泉工学会誌, 1, 28 (1963)
- 3) S. Umemoto, Bull. Chem. Soc. Japan, 26, 160 (1953); *ibid.*, 30, 421 (1957)
- 4) 阪上正信, 小村和久, 京都大学原子炉実験所報告 KURRI-TR-155 (1977)
- 5) 阿部修治, 酒井 均, 飯島南海夫, 日本温泉科学会第29回大会講演要旨集, P.7(1976)
- 6) 梅本春次, 杉原 健, 日本化学雑誌, 80, 246 (1959)
- 7) L. Wielpolski, Nucl. Instrum. Method, 143, 577 (1976)
- 8) 村上悠紀雄, 飯島南海夫, 温泉科学投稿中

大糸線沿線の温泉群の放射能測定

この論文を著すに際しては、大糸線沿線の温泉群の放射能測定に際しては、都立大学村上悠紀雄教授、信州大学飯島南海夫教授に多大な援助と便宜をはかっていただき、これにより本研究を実施することができた。さらに測定にあたっては、当施設に加藤岩夫技官、大学院生古山和徳・柳瀬信之両君ならびに卒研生諸君の多大な協力があつた。これらの方々に深く謝意を表したい。

大糸線沿線の温泉群の放射能測定

大糸線沿線の温泉群の放射能測定に際しては、都立大学村上悠紀雄教授、信州大学飯島南海夫教授に多大な援助と便宜をはかっていただき、これにより本研究を実施することができた。さらに測定にあたっては、当施設に加藤岩夫技官、大学院生古山和徳・柳瀬信之両君ならびに卒研生諸君の多大な協力があつた。これらの方々に深く謝意を表したい。