

大深度掘削井から得られた Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体—石川県沿岸地域—

富田純平¹, 佐竹 洋², 佐々木圭一³, 坂口 綾⁴, 井上睦夫¹, 浜島靖典¹, 山本政儀¹

¹〒923-1224 石川県能美市 金沢大学環日本海域環境研究センター, LLRL; ²〒930-8555 富山県富山市 富山大学理学部; ³〒920-1392 石川県金沢市 金沢学院大学美術文化学部 ⁴〒734-8553 広島県広島市 広島大学原爆放射線医科学研究所

J. Tomita¹, H. Satake², K. Sasaki³, A. Sakaguchi⁴, M. Inoue¹, Y. Hamajima¹, M. Yamamoto¹: Radium Isotope in Na-Cl Type Saline Waters from Deep Wells around Coastal Area in Ishikawa Prefecture, Japan

【はじめに】

温鉱泉水中の放射性核種, 特に Ra および Rn 同位体の研究は盛んに行われてきた. その結果, 現在までにいくつかの ²²⁶Ra を高濃度に含む温鉱泉水が見出されている. 例えば, 花崗岩地帯から湧出する有馬温泉 (²²⁶Ra : ~6.2 Bq/kg; 横山, 1955) および増富温泉 (²²⁶Ra : ~1.4 Bq/L; Kanai, 1988), ウラン鉱床付近から湧出する三朝温泉 (²²⁶Ra : ~0.55 Bq/L; 横山, 1955) などが代表的な温鉱泉である. 近年, 掘削技術の進歩により平野部や沿岸地域の大深度掘削井から海水や化石海水を起源とする高塩濃度の Na-Cl 型温鉱泉が多数得られるようになった (宮崎ら, 2007). 世界の油田・ガス田池帯など海水よりも高塩濃度の塩水中に 100 Bq/kg を超える ²²⁶Ra が見出されていること (Sturchio et al., 2001), また一部の地域では ²²⁶Ra 濃度が塩濃度と良い相関を示すことから, わが国においても平野部や沿岸地域の大深度掘削井から得られる高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉中に ²²⁶Ra を高濃度に含む温鉱泉が存在することは十分予想できる. そこで, 我々は高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉が得易い沿岸地域での Ra 同位体の地球化学的調査・研究を開始した. 本年度は, 石川県沿岸地域の大深度掘削井から採取した Na-Cl 型温鉱泉の Ra 同位体について報告するとともに, Na-Cl 型温鉱泉水中の U 濃度, 水素・酸素同位体比および主要化学成分の結果も踏まえ, Ra 同位体の水相への供給メカニズムについて議論する.

【試料採取および実験方法】

試料採取地点および表層地質を図 1 に示す. Na-Cl 型温鉱泉水の試料採取は石川県沿岸地域から計 23 地点において行った. 大部分の温鉱泉水は 1000 m 級の大深度掘削井から得られたものである. また, 5 地点において河川水の採取も行った. 温鉱泉水中の Ra および U 同位体は, それぞれ BaSO₄ および Fe(OH)₃ 共沈法により回収し, それぞれ γ 線および α 線スペクトロメトリーにより定量した. 水素同位体比 (δD) および酸素同位体比 ($\delta^{18}O$) は安定同位体比用質量分析計, 主要化学成分はイオンクロマトグラフにより測定した. Alkalinity 測定は 0.1 M HCl 滴定法で行った.

【結果と考察】

$\delta D - \delta^{18}O$, $\delta D - Cl$, $\delta^{18}O - Cl$ の関係から, Na-Cl 型温鉱泉水は海水と地域の天水の混合物であることが示された. また, 一部の温鉱泉では SO₄/Cl 比が海水と比べ著しく減少しており, これら温鉱泉水は化石

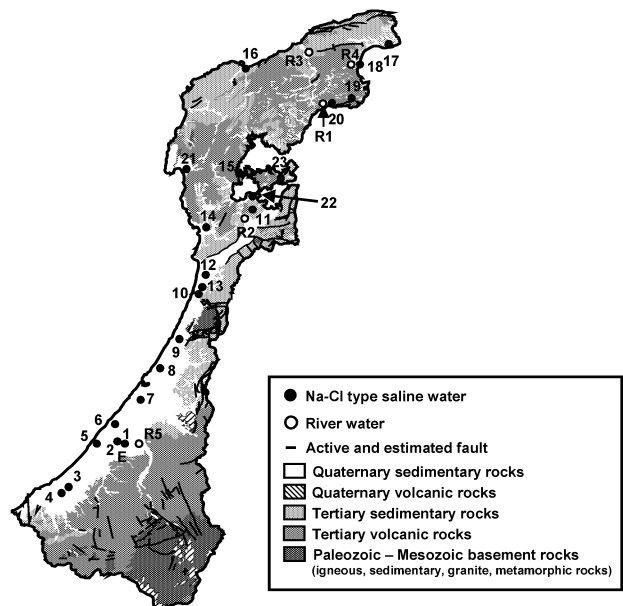


図1 試料採取地点と表層地質

海水起源であると考えられる。図2に ^{226}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の測定結果を示す。Na-Cl型温鉱泉水中の ^{226}Ra 濃度は、1.78~2143 mBq/kgと幅広い値であり、我々が当初予測したように ^{226}Ra を高濃度(温泉法の基準である 1×10^{-8} mg/kg, 放射能強度で ^{226}Ra が370 mBq/kg以上)に含む温鉱泉水が存在した。 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は0.83~4.9であり、日本の

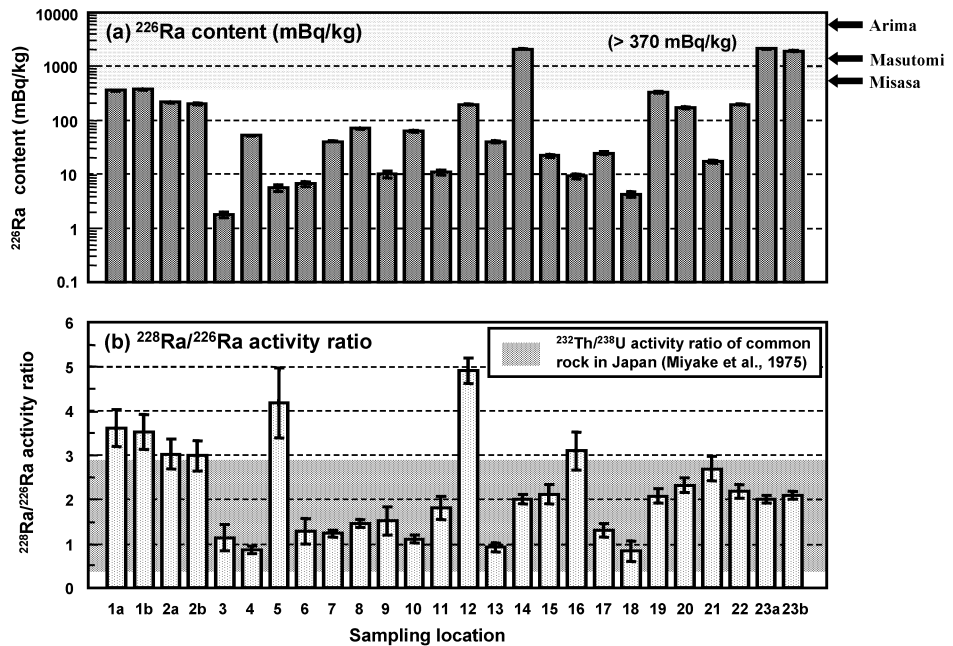


図2 Na-Cl型温鉱泉水中の ^{226}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比

代表的な岩石の $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比(花崗岩: 0.4~2.9, 玄武岩: 0.8~2.2, Miyake et al., 1975)と同程度からやや高い値であった。また, ^{226}Ra 濃度は塩濃度が高くなると高くなる傾向が見出された(図3)。これはRa濃度が塩濃度依存性の吸着/脱離反応により支配されていることを示す。温鉱泉水中の ^{238}U 濃度は、検出限界以下~2.04 mBq/kgと非常に低濃度であった。これは、温鉱泉水が還元環境に胚胎していることが示唆される。以上の測定結果から,Ra同位体は、岩石(鉱物)表層(岩石-水境界)に存在するTh同位体の α 壊変に伴う α 反跳により水相へ供給され,Ra濃度は塩濃度依存性の吸着/脱離反応により支配されていること明らかとなった。また、温鉱泉水中のRa同位体が高濃度となるには、塩濃度のみならず,Ra同位体の親核種であるTh同位体が粘土のような粒径の小さい鉱物に存在するか、岩石(鉱物)表層に濃集している、またはその両方である必要性が示唆された。

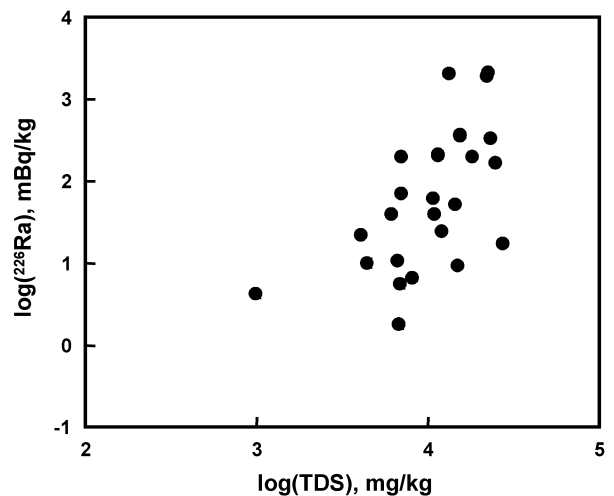


図3 ^{226}Ra -TDSの関係

【参考文献】

- Kanai, Y. (1988): *Geochem. J.*, 22, 285-292.
 粕野義夫 (1993): 新版・石川県地質図. 石川県.
 Miyake, Y., Sugimura, Y., Hirao, Y. (1975): *Proc. 2nd. Inter. Symp. Natural Radiat. Environ.*, 535-558.
 宮崎哲郎, 柴田智郎, 秋田藤夫, 高橋徹哉, 青柳直樹, 中山憲司, 内野栄治, 橋爪 清, 甘露寺泰雄 (2007): *温泉科学*, 57, 99-114.
 Ohwada, M., Satake, H., Nagao, K., Kazahaya, K. (2007): *J. Volc. Geotherm. Res.*, 168, 55-67.
 Sturchio, N.C., Banner, J.L., Binz, C.M., Heraty, L.B., Musgrove, M. (2001): *Appl. Geochem.*, 16, 109-122.
 横山祐之 (1955): *日化誌*, 76, 558-562.