

No 534

水理・水文学の分野における
トリチウムの利用

昭和41年6月

建設省土木研究所

1. ま え が き

最近の工業の目ざましい発展にともない、工業用水の需要は急激に増大し、水資源の利用開発が大きな課題として世界の工業国において取り上げられている。日本はその地理的な条件のため雨量が多く、しばしば洪水に見舞われ、その都度甚大な被害を受けているため、河川の取り扱いとは主として洪水予防に重点が置かれていたが、現在ではいかに効率よく河川水を利用するかと云う点に焦点が向けられつつある。また一方、工業地帯は大都市の近傍に位置することが多く、こゝで工業用水として汲み上げる地下水の量は年々増加の一途をたどっているため、一部では地下水供給の均衡が失われ、地盤沈下等の問題を惹き起している。この地下水の長期にわたる利用を考える上には、現場における地下水の詳細な調査が是非必要であり、その調査の結果から長期の地下水利用計画を立てねばならない。

また地下水が原因で起る自然災害が日本では多い。地すべりはその一例であるが、その防止対策として現在では主として地下水排除工法がとられている。この工法を採用するに当つても、地すべり現場の地下水に関する充分な予備調査が必要であることは云うまでもない。

以上述べたように水資源の利用開発、地すべり、地盤沈下の対策を考えるに当つて問題となつている水の運動機構を調査することは不可欠の事項である。河川水の場合では、それが地表を流下しているため、流下速度、流量の測定法にまだ多くの問題点が残されてはいるが、概略的な調査は可能である。しかし地下水の場合では、それが地下部を流動しているため、深井戸等の資料からその一部の状態を除かれに置かず、全貌をとらえることは到底不可能に近い。地下水の調査法として現在までに開発された方法としては地質学的方法の他に、地下水位に注目する水理学的方法および地球物理的な方法がある。しかしいづれも地下水の状態を間接的にとらえているに過ぎない。この他にトレーサーを使用する方法が以前から考え

られており、色素、化学薬品等が地下水系中に投入され、その行方を追うことによつて地下水の運動機構を調査する試みがしばしばなされていた。トレーサーを使用すれば地下水の運動を直接的にとらえ得るという利点があるが、長距離の地下水追跡に耐え得るトレーサーが無かつたため、ごく限られた狭い地域での調査以外では使用されていなかった。これは主としてトレーサーである色素、化学薬品等が表面活性な粘土と接触して吸着されることに原因がある。しかし河川水の場合の流下速度の調査では、このトレーサーの吸着損失はほとんど起らないので、色素、化学薬品等は現在でも有効なトレーサーとして一部の河川で用いられ、成果を挙げている。地下水の追跡調査に適当なトレーサーとしては、色素、化学薬品の中では無いのであるが、戦後新しく登場したラジオアイソトープは、その特殊な性質のため、地下水のトレーサーとして明るい見通しを与えるものである。世界各国で過去数十年間地下水のトレーサーとして用いられて来たラジオアイソトープには、ヨード131を始め、磷32、コバルト60、ルビヂウム86、ナトリウム24等多数の種類およびこれらの錯塩化合物があるが、化学薬品、色素等に比べて格段と優れたトレーサーとしての性質を備えているにもかかわらず、多少の欠点は免れ得ない。この欠点として主なものは次の通りである。

- 1) アイソトープの種類によつては放射線障害防止上危険なものもある。
- 2) 陽イオンの形で存在するアイソトープでは粘土による吸着損失が大きい場合もある。
- 3) 調査現場の条件に合わせてアイソトープの種類、所要量、化学的形態、半減期、等を決めるのが普通であるが、価格上の制約が希望と合致しない場合が多い。
- 4) 放射能検出器が比較的が高価である。

しかしアイソトープのうちで水素の同位元素である質量数3のトリウム

は通常の地下水用トレーサーが有しているような欠点がほとんど無い。第1の長所としては、トリチウムは水の形で使用できるから、化学的には調査対象である水と全く同一の挙動をする。第2にその放射する β 線のエネルギーが極めて小さいので、放射線障害の危険度は全アイソトープのうち最低である。第3に極めて安価に入手し得る。第4にこのトリチウムは雨水中にも宇宙線の作用で生成されて存在しており、これが地中に浸透停滞しているとトリチウム固有の半減期12.6年で放射能が減衰して行く。したがって当初のトリチウム濃度が判明しておれば地中の停滞年数が放射能計測結果から推定できる。すなわち地下水の年令決定が出来るという利点がある。

以上のようないくつかの長所にかかわらず、トリチウムが地下水調査のトレーサーとして普及しなかつた理由としては、そのエネルギーが極めて小さいので、測定法の非常な難点があつたことが挙げられる。しかし測定法に関しては世界各国が種々の方法が考案され現在解決されつつある。またこの他にトリチウム使用の場合は他の高いエネルギーを持つアイソトープのように現場で直接放射能検出器を地下水通路中に入れて放射能を検出することができず、必ずサンプリングの必要がある。また粘土粒子の表面に吸着されている水など交換が起ることも考えられる。これらの問題に関してはまだ十分に検討されていない。

建設省土木研究所においては、河川水および地下水の調査にトリチウムは極めて有効なトレーサーになり得ることに注目し、トリチウムの現場適用の問題を解決し、この普及を計らんがために、昭和38年度より水理・水文調査へのトリチウムの利用法について研究を開始した。当初の目標はまづその測定法を確立することであつたが、一応その目標は達成されたと考えられるので、ここではその成果について述べ、あわせて今後の調査の適用範囲について触れる予定である。

2. トリチウム計測法

2-1 序 論

水素の放射性同位元素であるトリチウムは近年トレーサーとして広く利用されているが、1950年頃までは主に重水が用いられていたことはその測定が非常に困難であつたためである。即ちトリチウムは β 線を放出し、最大エネルギー18 Kev- できわめて低く、 β 線の測定に一般的に用いられている薄窓G-M計数管などでは β 線が検出部分の中に到達することが非常にまれであり、又試料による自己吸収などにより十分な精度を得ることは望まれない。従つて試料を検出器の内部へ送り込む必要がある。これらを満足させる測定法として最近広く用いられているものにガスカウンティングによる方法及び液体シンチレーションカウンターによる方法がある。ガスカウンティング法は試料をガス化し、クエンチングガスとともにガスサンプル計数管に封入し比例領域又はG-M領域で動作せしめ計測するものであるが、ガス化する煩雑な手数と時間を必要とし、又非常に低レベルの試料を測定するには電解濃縮をおこなうため一定量の試料が必要であることなどの欠点があるが、計数効率ほぼ100%に近いものでこれら欠点をおぎなつてあまりあると考えられる。

液体シンチレーションカウンターはある有機液体が放射線により蛍光を発することを利用したものである。液体シンチレーターは一般に溶媒、第1溶質及び第2溶質から成り、試料を液体シンチレーターに溶解すると第1溶質により蛍光を発する、この発光スペクトルの波長を第2溶質で可視部の長波長測定に移し、光電子増倍管を用い計測する。

光電子増倍管を使用するため、これより生じる熱雑音、試料を添加した際のクエンチング及び液体シンチレーターに対する試料の溶解性などの種々の問題があるが、試料の溶解性、クエンチングについては、シンチレーター-溶媒を測定試料により適当に選択すること及び標準試料を用いることに

よりクエンチングなどによる計数効率の変化を較正することによりある程度解決される。

又検出部の冷却更に2個の光電子増倍管と同時計数回路を併用することによつて、バックグラウンド計数を減少させることが可能であるため弱放射能も30%後の効率で測定し得ると云われている。

当所においてはトリチウムを測定するために気体用低バックグラウンド測定装置 Aloka LBC-R 1868 形を使用している。ガスサンプル計数管は銅製で1ℓであり、外部削減回路を備え、遮蔽用外周GM管と共に同時逆同時回路などから構成されている。

試料のガス化には30~60 mesh の亜鉛を用い、発生した水素ガス748 mmHg をクエンチングガスであるプロパン12 mmHg と共にガスサンプル計数管に封入計測する。本測定器のプラトー特性は勾配約1%/100Vであり、プラトーは250V以上にわたつて得られた。

又、今後液体シンチレーションカウンターを使用する測定の対称となる主な試料は雨水、河川水、地下水などの水であり、液体シンチレーターに溶解する試料水も一種の不純物でクエンチングの原因となり計数効率を劣化させるものである。従つて水—トリチウムを測定するためのシンチレーターの選択、溶解性及び計数効率について考察を試みた。

2-2 低バックグラウンドガスカウンター

装置概要：当所で用いられているトリチウム測定装置は気体用低バックグラウンド放射能測定装置 Aloka LBC-R 1868 形であり、同時逆同時計数装置と鉄遮蔽装置に収められた検出部より成り立ち、同時逆同時計数装置は2系統の信号を同時に測定可能なように2系統のトランジスタ式計数器、低レベル放射線の測定に必要な増巾回路、波形整形回路、同時計数回路、逆同時計数回路、低圧電源を備えた同時逆同時直線増巾器及び外部削減回路駆動用電源を備えた2系統安定高圧電源から構成されている。検出部は図—2—2—1に示してあるように、鉄の厚み約20cm、重量に

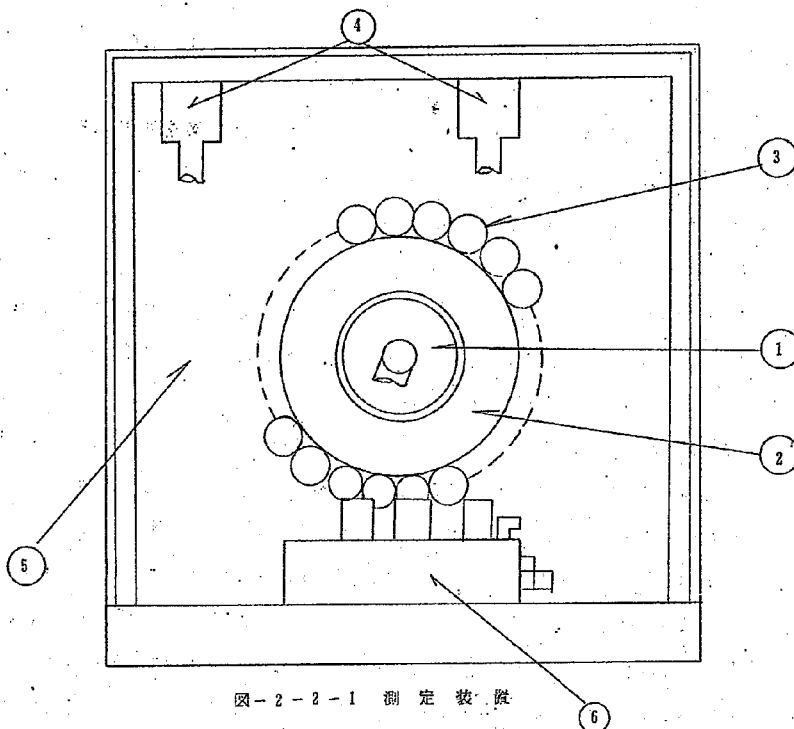
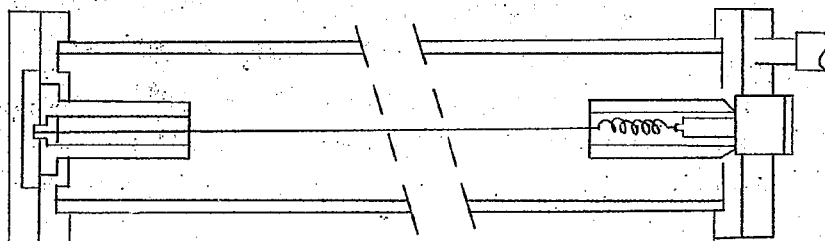


図-2-2-1 測定装置

図-2-2-2 ガスサンプル計数管



して約3トンの重遮蔽を施した鉄遮蔽装置に収められたガスサンプル計数管は6回蒸留を繰り返した純粋な水銀厚み約2.5 cm、重量にして約200 gをステンレス製の水銀槽に充填したもので被覆し、その周囲に25本の遮蔽用外周GM計数管を備えたものである。

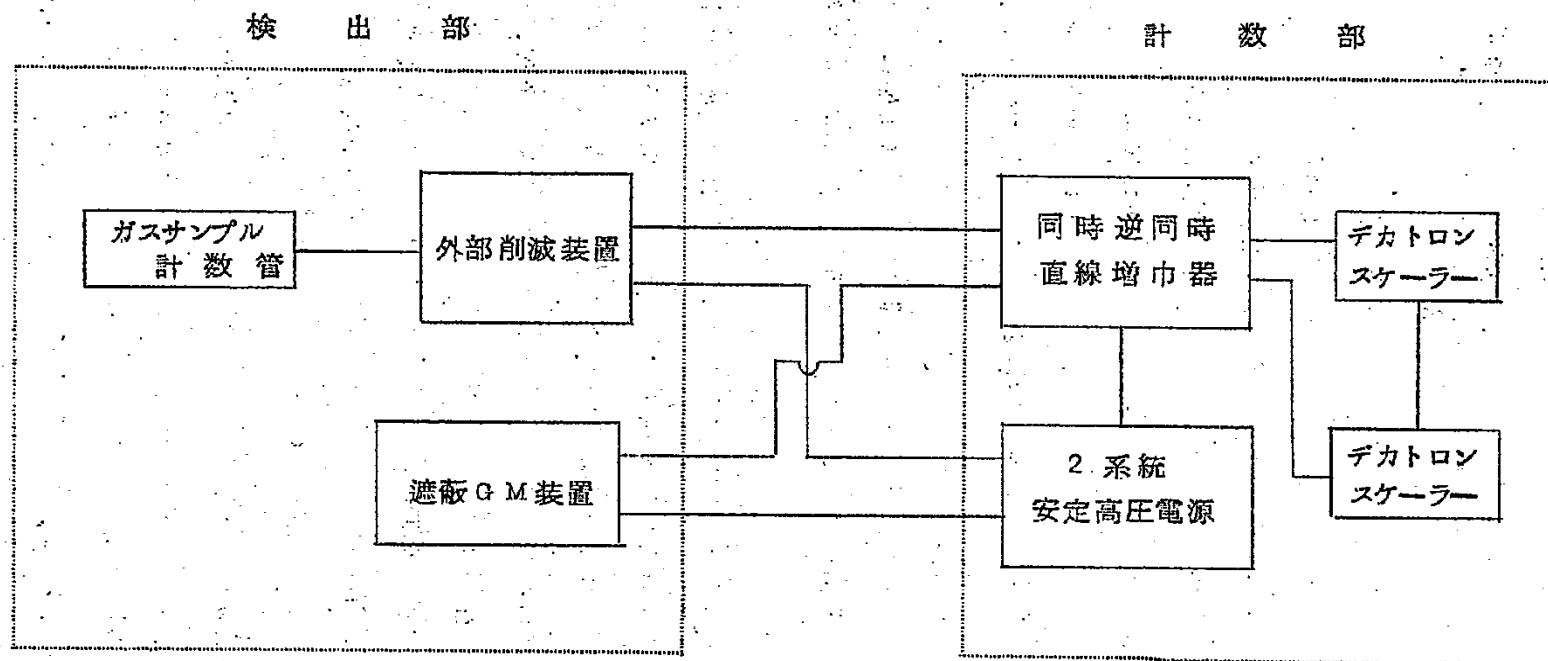
気体用ガスサンプル計数管図-2-2-2は固有バックグラウンドが極めて低い銅製で、内径5.0 mm、外径5.8 mmで、陽極0.05 mmタングステン線を用いてあり容積は1 lである。ガスサンプル計数管はガイガー領域で動作するもので、後続放電を起さぬように外部削減回路が接続しており、少量(12 mm Hg)のクエンチングガスとともに水素ガスを加え1気圧として用いると、2,800 V附近から250 Vにわたってプラトー特性が得られた。

使用したマルチバイブレーター型外部削減回路は陽極に0.5 V以上の電圧脈動が生じると動作し、250 V、2.5 msの削減パルスが発生するものである。

なお、本装置は外部削減回路を取りはづし、入力と出力が比例する前装置増巾器を接続すると比例領域で使用可能なものである。

トリチウムを測定する場合の本装置の動作はガスサンプル計数管から発生したパルスはマルチバイブレーター型外部削減回路を、遮蔽用外周GM計数管から発生したパルスは増巾回路を通り各々のパルスは2系統の波高送別器及び波形整形回路などを通り、ガスサンプル計数管のパルスのみは更に微分遅延回路を通し負のパルスとし、遮蔽用外周GM計数管によつて発生した正のパルスとともにゲート回路に入る。

ゲート回路が逆同時回路の場合は遮蔽用外周GM計数管のパルス及びバックグラウンドによつて遮蔽用外周GM計数管とガスサンプル計数管に同時にパルスが発生したときは動作せず、測定試料の放射線及びガスサンプル計数管の材質に含まれている放射線によりガスサンプル計数管に発生したパルスのときのみが計数される。

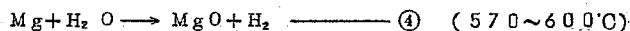
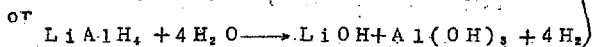
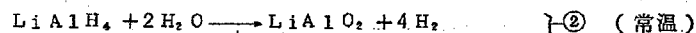
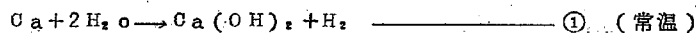


☒ - 2 - 2 - 3

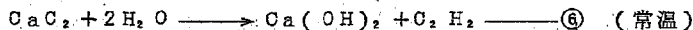
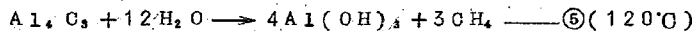
又ゲート回路が同時回路の場合はガスサンプル計数管と遮蔽用外周GM計数管に同時にパルスが発生したときのみ動作する。

なお本測定装置の動作系統の略図を図-2-2-3に示す。

試料水のガス化及びガス充填真空装置：ガスサンプル計数管でトリチウムを測定するには試料をガス化する必要があり、種々の方法が実際に試みられているが、単に水素ガスとする場合の反応は



などであり、ヌメタン、アセチレンなどの有機ガスとする場合には



などの反応が用いられているが、実際にガス化する上で注意をはらわなければならないことは、ガス化及びガス充填装置とその操作手順の煩雑をさけることであり、試料水のガス化時間、反応及び反応温の調節をして同位体効果、同位体交換反応などについてである。即ちこれらのことが測定値に誤差を与える原因となることが十分考えられるからである。

上記の反応が常温でおこなわれるものは反応を調節するには容易である明らかであり、①②⑥の反応では金属の水酸化物を生成するので同位体交換反応などが起り試料水中のトリチウムを100%測定することは困難であろうことは確かである。

当所におけるガス化は30~60 meshの亜鉛粒を用いている。還元管即ち円塔形の硬質ガラス管に亜鉛粒を封入し、電気炉を用いて加熱し温度が390°Cに達すると徐々に水蒸気を送りガス化せしめる。

この反応は発熱反応であり、比較的高温において反応をおこなうため温度の調節には十分注意をはらう必要がある。又試料 1.2 g を還元するためには約 60 分を要した。

当所においては、過去に試料水のガス化が不完全で、水素ガスを一時吸着せしめる活性炭（液体窒素を用いて冷却）の表面に未還元の水蒸気が白く氷結したり、還元塔の極局部的な溶解などの現象が現われた。

その結果明らかになったことは電気炉の温度分布が不均一であり、亜鉛粒の表面が油などにより汚染していたことである。従つて電気炉の改造をおこない反応温度は電気炉の max のところでおさえ、亜鉛粒は 50% 酢酸及びエタノールなどを用いて表面処理をおこなつたところ活性炭表面における氷結は見られなかった。

当所において用いられているガス充填装置を図-2-2-4 に示す。試料水(A) 1.2 g をドライアイス-エタノールを用いて冷却、ガス充填装置の真空度を 10^{-3} mmHg 以上に保ち、還元管(B)の温度が 390°C に達すると試料(A)を徐々に加熱し水蒸気を還元管(B)に送る。発生した水素ガスは液体窒素で冷却した活性炭(C)で吸着せしめ、ガス化が完全に終了後プロパン貯蔵管(D)より 12 mmHg をガスサンプル計数管に封入、そして活性炭の冷却を中止し水素ガスを 747 mmHg を同様に封入し 1 気圧とする。

ガスサンプル計数管の特性：ガスサンプル計数管は上述のようにマルバ イブレーター型外部削波回路を接続し、試料水を還元した水素ガス及びクエンチングガスを封入し GM 領域で動作させるものである。

クエンチングガスとしてはプロパン、エタノール、エチレンなどの有機の多原子気体及びこれらにヘリウム、アルゴンなどの少量の不活性気体を添加したものが用いられているが、当所ではクエンチングガスとして最も入手が容易であり安価なプロパンを用いている。

プラトー特性は図-2-2-5 に示すように少量のプロパンを加えると

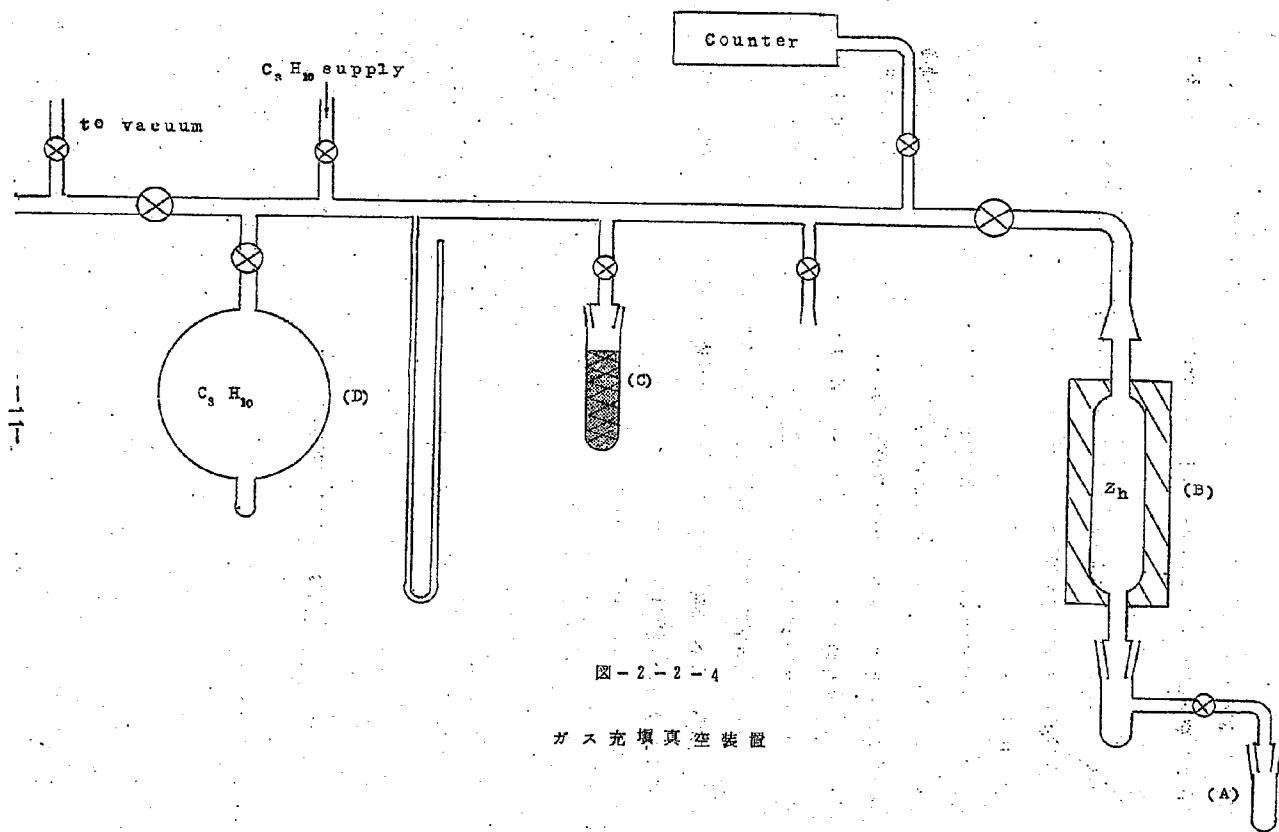


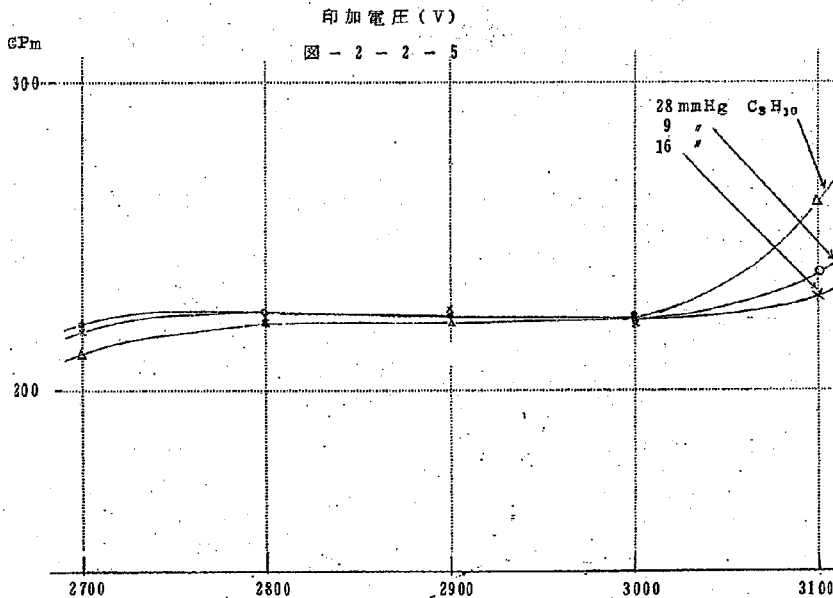
図-2-2-4

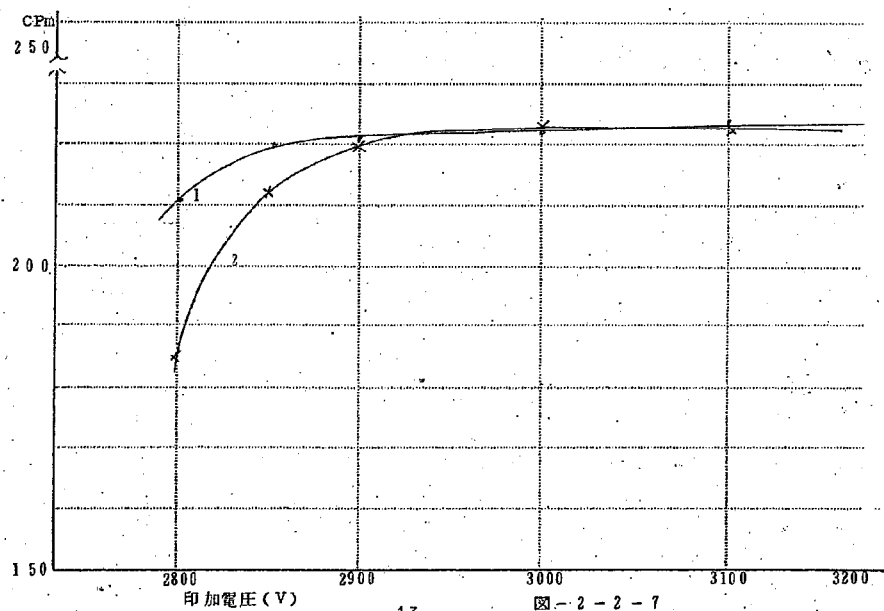
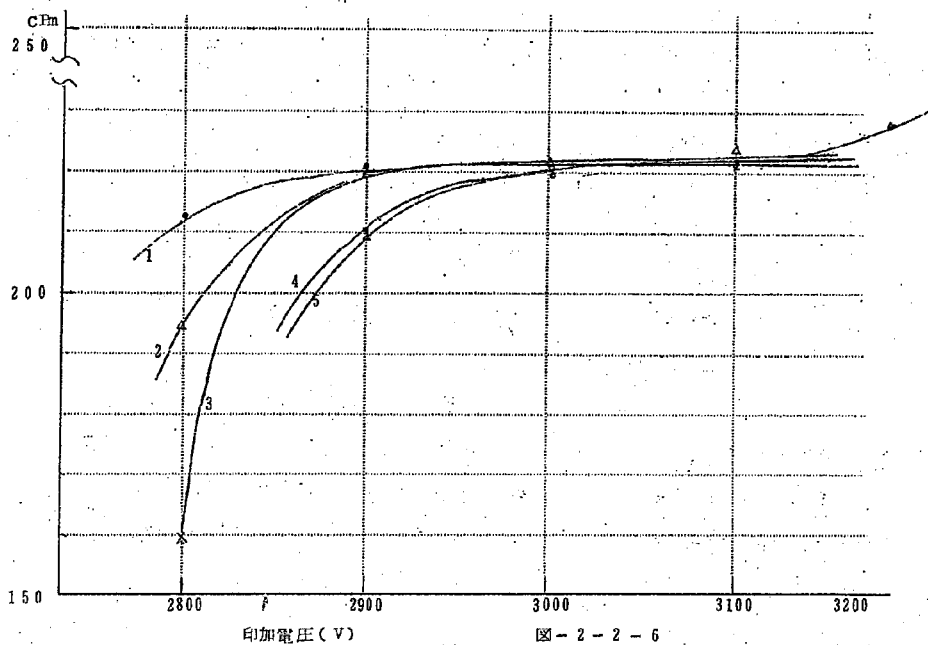
ガス充填真空装置

勾配 1% / 100 V 以下のプラトーが 250 V 以上にわたって得られ、図示する範囲の水素とプロパンの混合割合ではプラトー特性に変化を見ることができなかった。

プロパン分圧は効率の面からも少ない方が望ましいが、水素のみではプラトーが得られなかつたので安全性を見込んで 12 mmHg をクエンチャーとして用いている。

試料により長時間にわたる測定も考えられる。そこで 6.5 °C において水素 748 mmHg、プロパン 12 mmHg を封入し、20 時間にわたる連続動作を試みたところ、プラトー開始電圧が時間とともに高電圧の方へ移動しプラトー巾も短くなつたが、プラトー開始電圧の 100 V 上で測定をおこなう限りガスサンプル計数管の計数値は再現性の良いものであつた。図-2-2-6 に連続動作の場合のプラトーの移動を示す。又図-2-2-7 はガス封入後 24 時間放置しプラトーを求めたものであるが、連続動作の場合と同様開始電圧の移動が見られた。





同一の試料を用い封入圧を変化せしめるとガスサンプル計数管の計数率は図-2-2-8に示すような直線関係を与え、この際のパラターはガスサンプル計数管のガス封入圧が低圧になるに従いその開始電圧も低下し、ガス封入圧が50 mmHg 低くなると開始電圧は約100 V低下する傾向を示した。

図-2-2-9はスタンダードトリチウム水を希釈した4サンプルと希釈に使用した蒸留水を測定したもので、トリチウム濃度と計数率が直線関係にあることを示している。

ガスサンプル計数管のメモリーを調べるために、計数率158 cpm の水素ガスを24時間封入後約1.5時間にわたり排気をおこない、計数管のモニターとして使用している蒸留水計数率 8.8 ± 0.38 cpmを封入測定したところ計数率9.3 cpmとなりわずかばかりのメモリーが見られたが、約

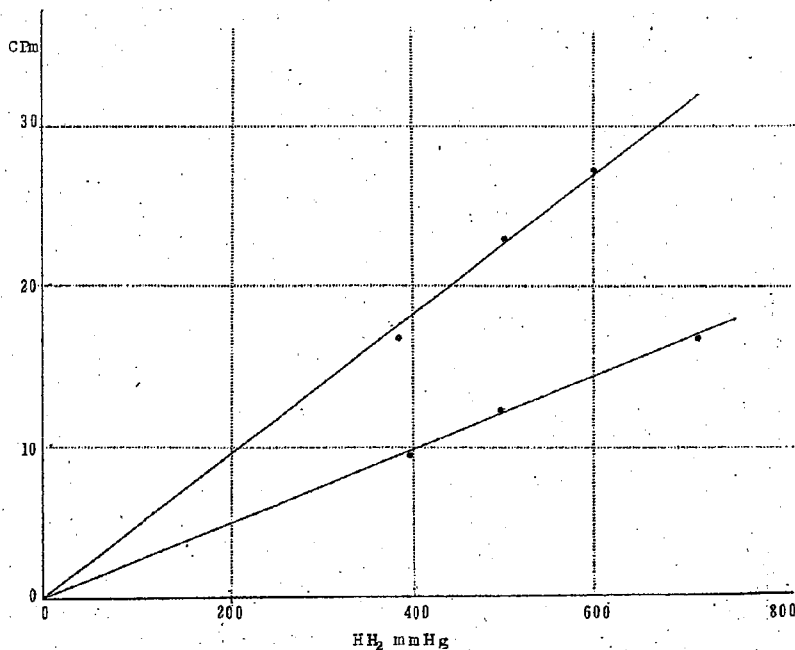


図-2-2-8

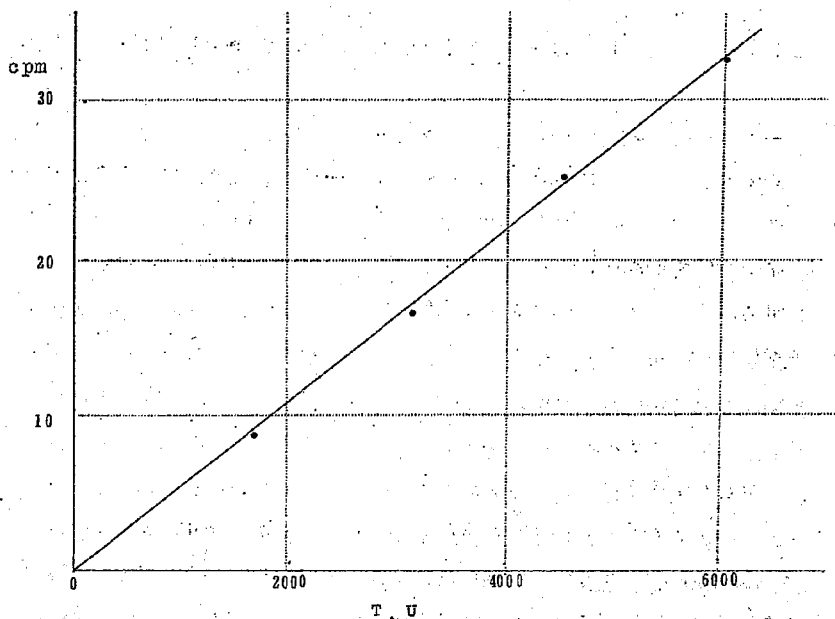


図-2-2-9

1時間の排気をおこない再び蒸留水を用い測定した結果、計数率8.9cpmを得た。但し計数率は0℃、で1気圧封入したときの値である。

又図-2-2-9に示したcpm-T·U線を得るために使用した試料では、排気時間は約1.5時間おこなったがメモリーは見られなかった。

上述のガスサンプル計数管を使用して測定したバックグラウンドは7.5cpmで、測定には1936年に製造された $\text{TeSO}_4 \cdot 7\text{H}_2\text{O}$ の結晶水を回収した水を用いた。なお、スタンダードトリチウム水を測定したところ標準状態で1cpm 183.0T·Uに相当し、ガスサンプル計数管の容積1ℓに対する計数効率率は1.08.8% となる。なお、バックグラウンドの計数率の $\pm 3\sigma$ 以上の計数率を与える試料についてはトリチウム濃度の判別が可能であると考えられる。

従つて、1日に1サンプル測定するとすると、計測には16時間かけるこ

とができるから、本測定器の1.6時間における測定限界は100 T.U.となる。

2-3. 液体シンチレーションカウンター

液体シンチレーションカウンターの性能は一般に試料の計数率を S 、バックグラウンドの計数率を B とすると S^2/B で表わされる。低レベルの放射能を測定する場合バックグラウンドの計数率が測定精度を左右することは明らかで、バックグラウンドは液体シンチレーションカウンターで光電子増倍管を使用することに主に起因する。即ち液体シンチレーターの発光効率はNaI(Tl)よりはるかに悪く、仮りにNaI(Tl)の1/10程度とすると、平均エネルギー約6 Kevのトリチウムでは1崩壊あたり光電面よりとびだす電子数は1~2個程度だと云われているが、これに対して光電面より発する熱雑音は比較的大きなものである。しかし光電面からの熱雑音は検出器の冷却及び同時計数回路を用いることによりいちじるしく減少させることが可能であり、わが国で市販されている測定器においても同時時間50 n. Sec.程度の微少時間とし同時計数の偶発性をとり除き光電子増倍管からの熱雑音及び回路雑音を消去している。

従つて液体シンチレーションカウンターで精度良く測定するには計数率を上げる必要が生じるが、試料を液体シンチレーターに添加すると蛍光のクエンチングが起り計数効率の低下をまねき試料も一種の不純物と見なされる。市販の液体シンチレーションカウンターを使用する上で問題となるのはこのクエンチングであり計数効率低下の主な原因となる。

クエンチングをその種類によつて大別すると、第1は物質の化学性に依存するもので、一般に極性の大きい物質ほどクエンチングが大きいと云われている。例えばアルコール、アルデヒド、水など。第2は着色試料を用いる場合で当然光の吸収などの現象が起り計数効率が劣化することは明らかである。

これらのこと考慮して測定の対称となる試料により適当な液体シンチレー

ターを選択する必要がある、又試料の溶解性も問題となる。即ち液体シンチレーターに溶解した場合不均一なものでは β 線の自己吸収、光の散乱吸収及びジオメトリーの変化などの起るおそれがある。

液体シンチレーターは一般に溶媒、第1溶質及び第2溶質から成るものであるが、その発光効率は溶質の濃度とともに増大するが、濃度は溶解度及び溶質自身による光の吸収などによりおのずから制限されるもので、その大部分は溶媒が占め、第1溶質は数 g/l 程度、第2溶質は第1溶質の $1/10$ 以下で用いられている。

当所において今後、液体シンチレーターを用いて測定する対称となる試料は主に雨水、河川水、地下水などの水トリチウムであるが、水は液体シンチレーターに対して溶解性が小さなものである。又試料の計数値は試料の添加量と計数効率の積で表わされるから計数効率を劣化させない範囲においてある程度の試料の添加量が必要となるが、溶媒に対する試料の溶解度によりおのずから制限される。水トリチウム試料の溶媒として用いられるトルエン-エタノールについては、その組成限界を図-2-3-1に示すように、3成分の量の間には限度がありこれを起えると H_2O が遊離してくる。¹⁾従つて液体シンチレーター溶媒の選択はきわめて重要な問題である。そこで水トリチウムの測定に現在用いられて方法の数例について検討を試みた。

P-dioxane をシンチレーター溶媒として用いる場合、容量で20%の水トリチウムを溶解したものの計数効率は6%程度であると云われている。P-dioxane に対する水の溶解度は比較的大きい利点があるが、P-dioxane の凝固点は $+12^{\circ}C$ であるため冷却して測定できないためバックグラウンドが多くなる欠点がある。

²⁾放医研岩倉氏等は P-dioxane の凍結防止のために約20%のトルエンを加えたところ計数効率は3.3%と低率なものであつたが、更に図-2-

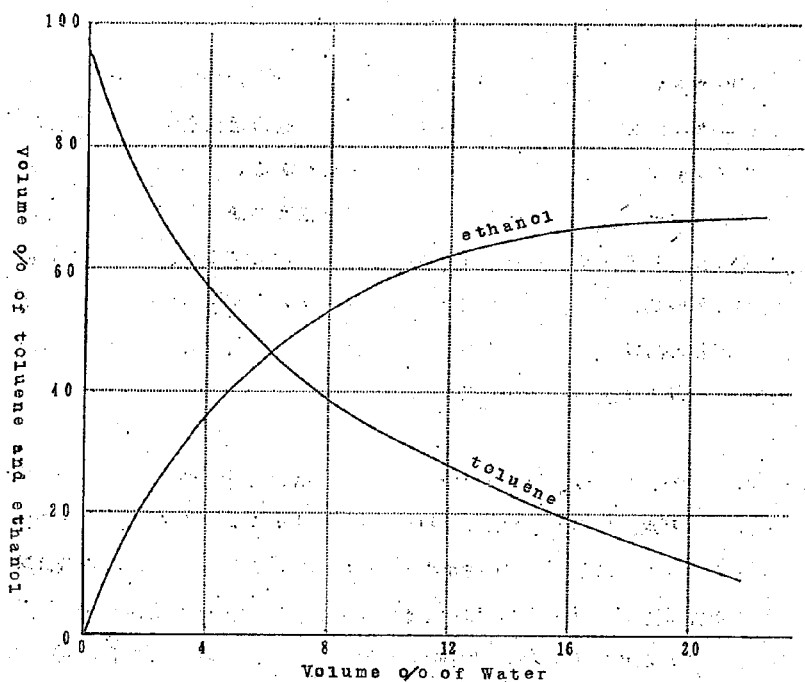
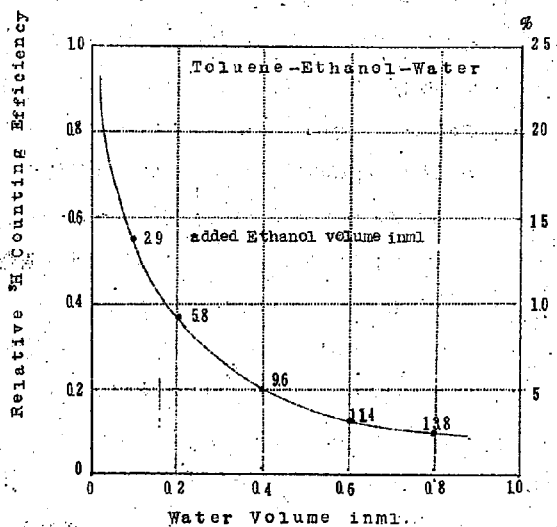
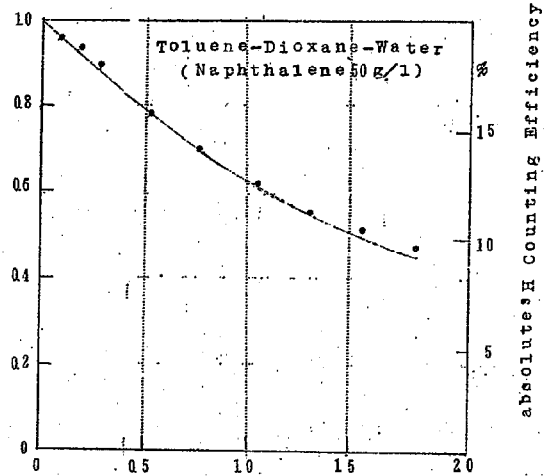


図-2-3-1 トルエン-エタノール-水系の組成限界

3-2に示すようにナフタリン50g/lを加えナフタリン-ジオキサン系にすることにより計数効率を上昇せしめることに成功している。

又トルエン-エタノール系では上述したように水量は水のつから制限され、水量を増すためにはエタノールを増す必要が生じるが、この両者のクエンチングのために計数効率は低下する。トルエン-エタノール-水系についても岩倉代等によりその効率は図-2-3-3の如く与えられている。この系のエタノールは図に示した量より減量が可能であるが温度の低下により成分の均衡がくづれるおそれがあるので、エタノールは若干過剰に加えたほうが望ましいとしている。

今後、実際に当所で液体シンチレーションカウンタを使用していく上において、低バックグラウンドガスカウンタと併用するものであり、その測定限界を知るために絶対測定が必要となる。従つて測定対称となる雨



☒ - 2 - 3 - 3

水、河川水、地下水などの前処理、水トリチウム測定 of 液体シンチレーターの選択及び計数効率の校正などについて実験検討していく予定である。

文献

- 1) 四手井綱玄、東村武信、Radioisotopes Vol 10 No.1 P.1
April 1961
- 2) 樫田義彦、山崎幹夫、岩倉哲男、Radioisotopes Vol.10.No.1
P.27 April 1961

3. 電解濃縮による低濃度トリチウムの測定

トリチウムの測定には、液体シンチレーションカウンターによる方法と低バックグラウンドカウンターによる2種類の方法がある。低濃度トリチウムの測定には低バックグラウンドカウンターがより適しており、その測定限界は2、で述べた通り100 T.U.である。

土木分野における陸水の種々調査に人工トリチウムを利用するとき、通常は液体シンチレーションカウンターで十分分析であるが、時にはトレーサーは非常な希釈を受け試水中のトリチウム濃度は僅少となり、100 T.U.以下になることもしばしばあると予想される。また、人工トリチウムもトレーサーとして用いるとき、その半減期が長いため、ときには調査箇所を汚染し、再度のトレーサー調査が不能になることもある。したがって、人工トリチウムをトレーサーとして用いるときには、特に厳密な事前調査をおこない検討する必要がある。章4・1で述べる通り、天然トリチウム（ここでは人工的にトレーサーとして投入するトリチウムに対し、自然水中に存在するトリチウムと云う意味で、核実験に伴って多量に生成したトリチウムも含む）を測定することが、事前調査として極めて有効で、トレーサー調査には欠かすことができない。すなわち、天然トリチウムを測定することにより試水のバックグラウンドを知るとともに、地下水調査の場

合には地下水の古さによる分類およびその起源の推定が可能で、人口トリチウムによるトレーサー調査の計画立案さらにその結果の解析に貴重な資料を提供する。したがって、100T.U. 以下のトリチウムを測定することは土木分野における陸水調査に不可欠で、そのためには何らかの方法で、試水中のトリチウムを濃縮しなければならない。

トリチウム ^3H (T) の濃縮は ^1H 、 ^2H との質量差にもとづく同位体効果を利用しなければならない。水素の同位体効果は反応前後における水素原子の化学結合に大きな差異を生じないとき、例えば、液体～蒸気平衡においては極めて小さい。これに対して化学的に強く結合されていた水素原子が反応の結果弱い化学結合の状態に変化するとき、例えば、水蒸気～水素ガス、水～水素ガスにおいては、その同位体効果はより大きくなる。したがって、トリチウムの濃縮を目的とするときには、当然後者の反応を利用するのが有利であり、また操作の容易さから電気分解(水～水素ガス)が最も適していることが分る。

電気分解によりトリチウム濃度を100T.U. 以上に濃縮した上で、低バックグラウンドカウンターで計測し、その計測値と電気分解によるトリチウムの濃縮度とから試水中にあらかじめあつたトリチウム量を算出することができる。このとき、電気分解による濃縮法如何によつて、当然大きな誤差を生ずる。電解濃縮による低濃度トリチウムの測定法につき以下のとおり検討した。

3.1 電解濃縮の原理

水は電気分解されることにより、陽極に酸素ガス、陰極に水素ガスを発生する。水中に水素原子として、 ^1H 、 ^2H および ^3H が共存しているとき、 ^1H 、 ^2H 、 ^3H の電解される相対的な割合は同位体効果により、その存在量の割合とはならず、次式(3.1.)にしたがう。

$$\frac{dp}{p} = \alpha \frac{dd}{d} = p \frac{dt}{t} \quad (1)$$

ここで、 p : 水中の ^1H のモル数

d : " ^2H "

t : " ^3H "

α : ^2H の ^1H に対する分離係数

β : ^3H " "

実際には、 $\beta > \alpha > 1$ となり、電解される割合は質量の小さいものほど大きくなり、電解残留液中の ^3H は電解されるにしたがつて相対的に大きくなり濃縮される。(1)式を積分すると、(2)、(3)式が得られる。

$$\ln \left(\frac{P}{P_0} \right) = \alpha \ln \left(\frac{d}{d_0} \right) = \beta \ln \left(\frac{t}{t_0} \right) \quad (3.2)$$

$$\frac{p}{p_0} = \left(\frac{d}{d_0} \right)^\alpha = \left(\frac{t}{t_0} \right)^\beta \quad (3.3)$$

すなわち、 ^1H 、 ^2H 、 ^3H の電解前のモル数 p_0 、 d_0 、 t_0 と、電解後のモル数 p 、 d 、 t との間には(3)式が成立する。トリチウムの濃縮においては一般に、 $p \gg d \gg t$ であり、 $^1\text{H}_2\text{O}$ と $^2\text{H}_2\text{O}$ のモル容積はほとんど等しいと考えられるから、電解前の水の容積 V_0 、電解後の水の容積 V とすると、次式(4)が成り立つ。

$$\frac{V}{V_0} = \frac{p}{p_0} = \left(\frac{d}{d_0} \right)^\alpha = \left(\frac{t}{t_0} \right)^\beta \quad (3.4)$$

したがって

$$\frac{\tau}{\tau_0} = \frac{V_0}{V} \left(\frac{d}{d_0} \right)^{\alpha/\beta} = \frac{V_0}{V} \left(\frac{N}{N_0} \frac{V}{V_0} \right)^{\alpha/\beta} \quad (3.5)$$

ここで、 τ_0 : 電解前の ^3H の濃度

τ : 電解後の ^3H の濃度

N_0 : 電解前の ^2H の濃度

N : 電解後の ^2H の濃度

すなわち、試水を電解し、その容積が V_0 から V になったとき、トリチウムは(3.5)式で表わされるだけ濃縮される。

2. 3. 2 電解装置および電解条件

水の電解装置そのものは極めて簡単なものであるが、(3.5)式を成立させるための条件を満足させなければならないことは云うまでもなく、当然そのための注意が必要となる。分離係数 α および β は実験条件によつて定まる定数だが、次の種々要因の影響を受ける。

- (i) 電極物質の種類
- (ii) 電極の表面状態
- (iii) 電流密度
- (iv) 電解質およびその濃度など

電解濃縮の効率を高めるためには、分離係数 α および β ができるだけ大きな値となる実験条件を選べばよい。実際には、電解の開始から終了まで実験条件(α および β)を一定に保つことは不可能で、電解がすすむにつれて多少変化することは避けられない。しかし、同じ電解装置をくり返し用いたとき、できるだけ同じ電解条件を再現できることが必要である。

当所においては、これらの点を考慮して電解を3段階、1,000 ml $\rightarrow$ 100 ml, 100 ml $\rightarrow$ 10 ml, 10 ml $\rightarrow$ 2 ml に分けておこなうとし、そのために3種類の電解槽とを用いることにした。図-3.1にその概略を示す。第1段階においてはステンレス電解槽を用い、電解槽自体を電極(陽極)とした。陰極は同じくステンレスの円筒状のもので、円筒内部は絶縁体を埋め込み、電解の最終において陰極と陽極とのスキ間に水が残るようにした。したがつて、電解の終了まで陰極の有効面積は一定となつている。第2段階電解槽はガラス製でステンレスの二重環式の電極を用いた。二重環の中心部は同じく絶縁体を埋め込み、電解の最終において二重環状の電極間に水が残り、電極の有効面積を一定に保つようにした。第3段階はガラス製の下部のくびれた電解槽と扁平な棒状電極を用いた。

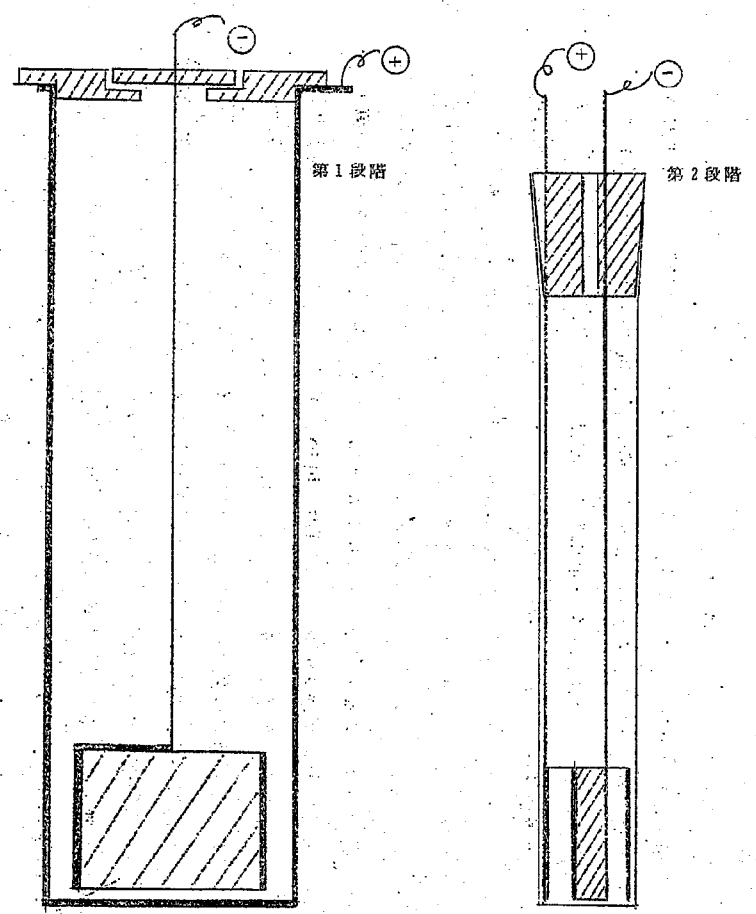
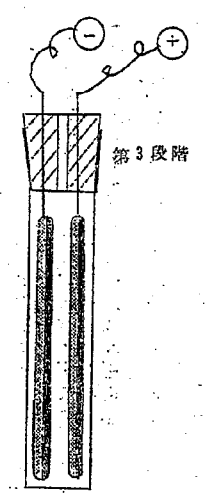


圖-3-1 電解裝置

縮尺 1/2



電解質としては Na_2O を用い、各段階の電解開始時に 1.5 % の濃度とした。各段階の電解終了時に残留液は開始時の約 $1/10$ あるいは $1/5$ の容積になり電解質の濃度は約 15 % となる。したがって、電解を次の段階に移すとき、前の段階の電解残留液をそのまま用いることはできない。そこで、電解残留液は炭酸ガスで中和し、真空蒸留し、改めて Na_2O 1.5 % を加え次の段階の電解をおこなうようにした。電解を完全に終了しトリチウムの計測に供するときにも、もちろん炭酸ガスにより中和し真空蒸留をおこなった。

電流は第 1 段階約 10 A、第 2 段階約 5 A、第 3 段階約 0.8 A とした。電解中、濃縮トリチウムが水蒸気として 散するのを最少限にするため、電解はフリーザー中でおこない、電解温度を約 5°C に保つようにした。この条件下での水蒸気として 散するトリチウムに基く誤差は実質的に無視することができる。¹⁾

なお、上述の段階的電解法のほかに連続的電解法もある。Ostlund¹⁾ は試水 250 ml のうち、50 ml を電解槽上部にとりつけたロートから電解槽に入れ、そのうち 25 ml が電解されたところで、ロートから 25 ml を補給し全量を再び 50 ml とし電解をつづけた。電極物質、電流密度、電解温度など電解条件が同じでも、このような連続的方法と段階的方法とでは最終密積までの平均分離係数 α 、 β は異なる。段階的方法は平均 α 、 β は大きく濃縮の効率は大きくなるが、一方、連続的方法では中和、真空蒸留などの手間がはぶける利点がある。

3.3 濃縮度の測定法

電気分解によりトリチウムは(3-5)式で示されるように濃縮され、元来濃度が低すぎて測定できなかつたトリチウム量も測定できるようになる。濃縮後のトリチウム量から濃縮前のトリチウム量を算出するためには電気分解によるトリチウムの濃縮の割合を測定しなければならない。測定方法として二通りの方法が考えられるが、現在検討中であるのでその概略を報告し、

いずれの方法が有利が結論は次の機会に発表する予定である。

3.3.1 重水の濃度変化による濃縮度の測定法

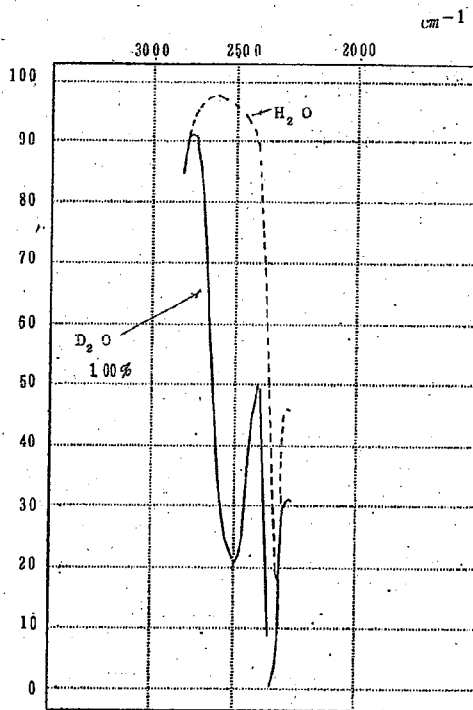
電解前後の電解液の容積 (V_0 , V)、重水濃度 (N_0 , N) および分離係数 (α , β) が分かれば、(5)式によりトリチウムの濃縮度 (τ/τ_0) が求められる。電解液の容積、重水濃度および分離係数の測定誤差はトリチウム量の誤差として影響してくる。 V_0 , V の測定は極めて容易であるが、電解液を電解槽など容器に移し変えるときに壁面に付着したりする損失および計量のときの誤差が問題となる。これは電解液の容量が少くなるにしたがつて相対的に大きくなり、壁面への付着損失をできるだけ小さくするよう十分注意しなければならない。

分離係数 α および β は電解条件によつて鋭敏に影響される。したがつて、事前に特定の電解槽について α および β を求めておいたとしても、試料を電解したとき、その α および β をそのまま用いることには大いに問題がある。同じ電解条件を厳密に再現させることは困難で、一般的に云つて、事前に求めた α , β をそのまま用いることはできない。ところで、幸いなことに電解条件が多少変化しても、 α と β との間には一定の関係が成り立つことが知られている。S. Kaufman と W. E. Libby²⁾ は実験的に $\beta/\alpha = 2.1 \pm 0.1$ なることを示した。のちに、H. G. Ostlund と E. Werner¹⁾ はさらに詳しく α に β との関係を検討し、 β/α はなお α の函数であることを示し、実験的に $\log \beta / \log \alpha = 1.337 \pm 0.007$ なることを示した。また、J. Biegeleisen³⁾ は $\log \beta / \log \alpha = 1.40 \pm 0.01$ なることを理論的に導き、Ostlund の実験結果を理論的に裏付けた。ところで、(3.4)式から明らかとなおり、電解前後の重水濃度と容積とから α は直接測定することができるので、 α と β の関係からそのときの β も分り、(3.5)式からその濃縮度が求まる。したがつて、トリチウムの濃縮度の測定は、結局電解前後の電解液の容積と重水濃度を測定することにより、問題は重水濃度の測定につきる。重水濃度の測定法は種々あるが、電解毎に測定し

なければならぬだけに、できるだけ簡便で、くり返しの測定での安定体、再現性の良いことが望まれる。そこで、重水濃度の測定法として、赤外線吸収法について実験検討した。

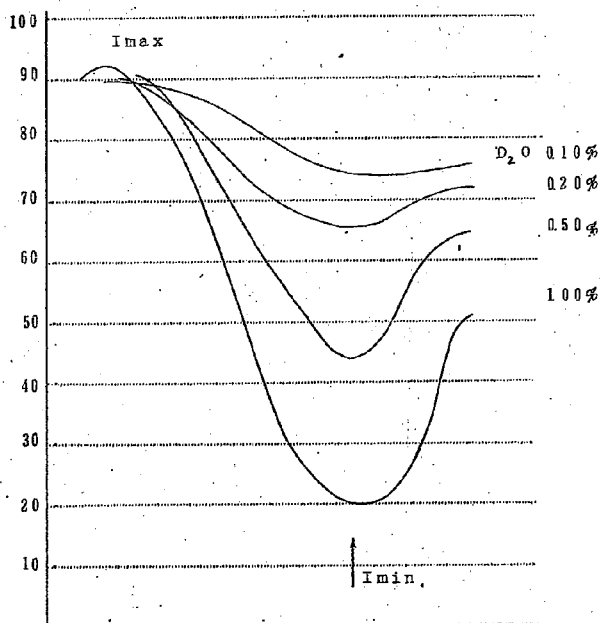
水 (H_2O) の赤外領域 $1,000 \sim 4,000 \text{ cm}^{-1}$ における吸収帯は $3,230 \text{ cm}^{-1}$, $3,430 \text{ cm}^{-1}$, $3,580 \text{ cm}^{-1}$, $1,615 \text{ cm}^{-1}$ にある。これに対し重水 $^2\text{H}(\text{D})$ を含んだ水 (D はすべて HDO として存在する) は $2,620 \text{ cm}^{-1}$, $3,400 \text{ cm}^{-1}$, $1,480 \text{ cm}^{-1}$ に吸収帯を有し、低濃度重水溶液の定量には $2,620 \text{ cm}^{-1}$ が有効と考えられる。Shimadzu IR-27A 赤外線分光光度計を用い、double beam 法を用いた。Cell は KRS 窓の厚み 0.1 mm を用い、標準体には蒸留水を用いた。吸収曲線の 1 例を図-3・2に示す。ここで、明らかなと

図-3-2 赤外吸収曲線



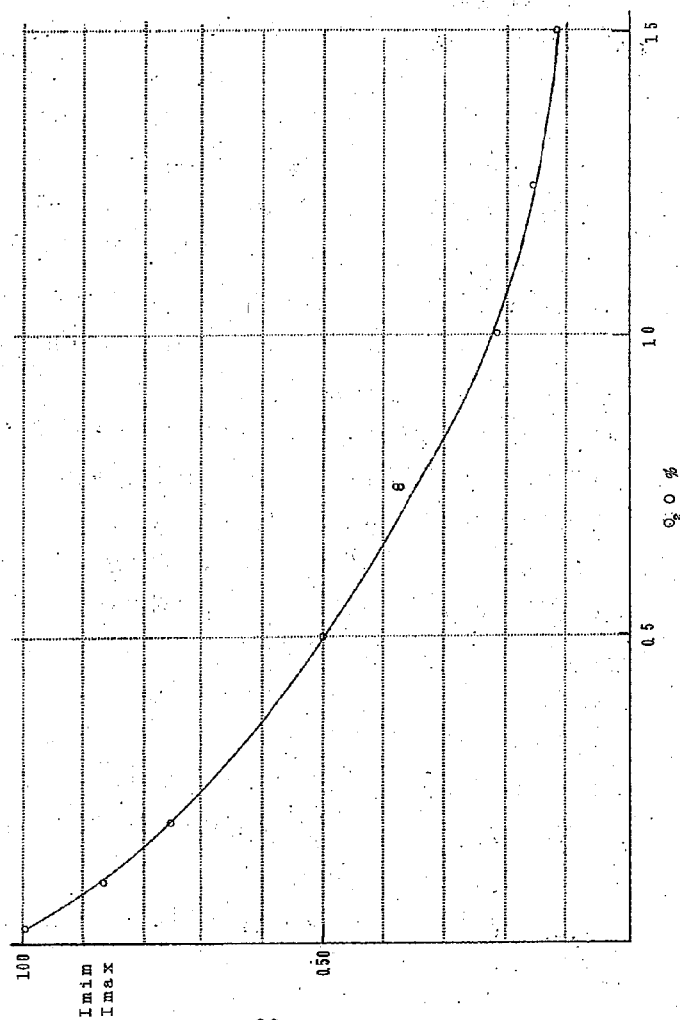
おり $2,620\text{ cm}^{-1}$ (グラフ目盛 $\pm 2,500\text{ cm}^{-1}$) が重水の検出に極めて有効であることが分る。図-3・3に重水濃度を変化させたときの吸収曲線の変化の状況を示した。重水濃度の変化に対し吸収曲線の変化も大きい。この吸収曲線の $2,700\text{ cm}^{-1}$ 附近のピークの頂点の読みを I_{max} 、 $2,500\text{ cm}^{-1}$ の谷の最低点の読みを I_{min} とし、 $I_{\text{min}}/I_{\text{max}} \sim$ 重水濃度との関係を求めると図-3・4のとおりとなり、濃度 $0 \sim 1\%$ の重水の定量ができることが分る。測定誤差は通常ペンの走りと読みとり誤差に基き、 $\pm 0.01\text{ D}_2\text{O}$ の精度が期待できる。なお、測定器の特性が変化したときのことを考え、故意に特性を変化させて測定してみた。

図-3-3 重水濃度～赤外吸収曲線



この場合でも精度は $\pm 0.04 D \pm 0\%$ ほどで、これは濃縮度にして約 $\pm 0.02\%$ に相当する。なお、赤外吸収法で必要とす試料の容量は、セルの洗浄に必要な量を含め、約 0.5 ml ほどで、比較的多量の試料が必要なのが欠点である。

図-3-4 $I_{\min}/I_{\max}$ ~ 重水濃度



重水濃度の測定法として、このほか落滴法、変温浮秤法、質量分析などの方法がある。試料の必要の少い、操作が簡便なものとして、落滴法が考えられるが、再現性などに関し若干問題もあり、現在検討中である。

3.3.2 標準電解液による濃縮度の測定法

数個の電解槽を直列にむすび、同一容積の水を入れ、一せいに電気分解する。電解槽をとる電流はすべて同じになるから、同じ時間に同じ量の電解がおこなわれ、電解終了時の残留電解液の容積もすべて同じになる。同一の電解槽を用いてくり返し電解をおこなったとき、同じ外部条件（電流密度、電解温度など）を再現することは困難である。しかし、同じ材質の同一形式の電解槽数個を、同じ冷却槽中で直列に結んで電流を通じたときには、すべての電解槽に同じ外的条件が与えられるので、各電解とも同じ分離係数による同じ程度の濃縮がおこなわれると考えられる。もちろん、同じセットでくり返し電解したときには前とは異つた分離係数になるであろうが、やはりすべての電解槽について分離係数が一定になるであろう。したがつて、いま電解槽の一つにトリチウム濃度既知の水を標準電解液として入れ、一せいに電解したとき、標準電解液の濃縮の割合から他の電解槽すべてのトリチウムの濃縮度を測定できる。

もちろん、このとき電解槽の電解条件、電解槽の材質、形態が同じで、しかも電極の表面状態が安定しているなど厳密に検討する必要がある。この方法での濃縮度の誤差は全く電解槽間の差にもとづくものであるから、たえず各電解槽間の相異をチェックする必要がある。また、新たに本方法を用いるときにはくり返しランニングテストをおこない、電解槽間のバラツキを十分明らかにしておかなければならない。しかし、本方法では重水濃度、電解液の容積を測定する必要がなく、分離係数を求めておく必要もなく、これらの測定誤差が入らない利点がある。

A. E. Bainbridge⁴⁾ は6ヶの電解槽を用い本方法を検討し、測定誤差は4%を越えないと云う結果を得ている。

3.4 電解濃縮法によりトリチウム濃度測定の限界

電解条件によつて分離係数 α および β は変化するが、当所の電解槽および電解条件では $\beta=1.0\sim 1.4$ の範囲にある。いま、最も効率の悪い条件でその濃縮度も考え、 $\beta=1.0$ とする。

(3.4)式より

$$\frac{V}{V_0} = \left(\frac{t}{t_0} \right)^{10}$$

$$\frac{V}{V_0} = \left(\frac{V \cdot \tau}{V_0 \cdot \tau_0} \right)^{10}$$

$$\frac{\tau}{\tau_0} = \left(\frac{V}{V_0} \right)^{1/10} \cdot \left(\frac{V_0}{V} \right) = \left(\frac{V_0}{V} \right)^{0.9}$$

したがつて、100 ml (V_0) を 2 ml (V) に電解したとき、

$$\frac{\tau}{\tau_0} = (0.5)^{0.9} = 3.4$$

1,000 ml (V_0) を 2 ml (V) に電解したとき、

$$\frac{\tau}{\tau_0} = (500)^{0.9} = 270$$

となる。ところで、当所の低バックグランドカウンターのトリチウム濃度の測定限界は100 T.U.であるから、電解濃縮をおこなつたときは、その1/270 まで測定できる。すなわち、当所の電解装置で電解濃縮することにより、すなくとも0.4 T.U.の濃度までトリチウム量を測定することができる。

4. 応用利用の見通し

水のトレーサーとして、色素、無機薬品および放射性同位元素が一般に利用されている。色素、無機薬品、トリチウム以外の放射性同位元素は水とは異つた物質であり、物理的、化学的性質が水のそれとは当然異なる。トリチウム ^3H (T) は水素の同位体であり、トリチウムで標識した水 HTO は H_2O と化学的にも物理的にも同じ挙動をし、水のトレーサーとしてまさに理想的なものである。

トリチウムは β 放射体であるが、その β 線のエネルギーは極めて低く、その計測が困難であるがため、従来その応用利用は阻害されていた。近年、トリチウムの計測技術はその利用法とあわせ各方面から検討されている。当所においても、土木分野の陸水のトレーサーとしてのトリチウムの分析法につき検討を加え、上述のとおり計測技術上の問題点はほとんど解決の見通しを得た。

土木分野の陸水調査にトリチウムをトレーサーとして利用する場合 2通りの方法がある。

- (1) 天然に存在するトリチウムを利用する方法
- (2) 人工トリチウムを利用する方法

陸水には一般に宇宙線および核実験によつて生成したトリチウムが存在する。もし、この水が外界と断ざれると、そのトリチウム量はトリチウムの崩壊に伴い減少していく。例えば地下水は地表水に比べトリチウム量が少く、トリチウム量から地下水の古さを知ることが可能である。すなわち、天然トリチウム量からその水の前歴の推定が可能で、これは陸水調査として極めて有益なものであろう。人工トリチウムを利用すると、その調査結果はより直接的な知見を与え、その利用価値の高いのは言うまでもない。

トリチウムを利用した陸水調査では、その調査法如何によつて得られる

結果の意義は大きく影響され、その調査法如何が非常に重要な問題となる。しかし、新しい調査法であるだけに、また、調査対象によつてその方法は変るだけに、調査法としてどうあるべきかは今後究明すべき問題として残されている。当面は極めて慎重に、各対象につき種々調査を試みなければならぬ。そこで、トリチウムを利用した土木分野の陸水調査では、一体どのような点が問題となり、またどのような利用方法でどのようなことを知り得るか、その見通しを代表的数例につき検討してみた。

4・1 天然トリチウムの応用利用

4・1・1 天然に存在するトリチウム量

天然トリチウムの生成の原因は大きく分けて、2通りに区分される。その1つは宇宙線と空気中の窒素および酸素との核反応で、核反応として $^{14}\text{N}(\text{n}, \text{t})$, $^{14}\text{N}(\text{p}, \text{t})$, $^{14}\text{N}(\text{u}, \text{t})$, $^{14}\text{N}(\text{r}, \text{t})$, $^{16}\text{O}(\text{p}, \text{t})$ などが考えられる。その生成率は高度および精度によつて変るが、時期的にはほとんど一定と考えられている。その値については、多くの研究者によつて報告されており、その最低および最大をとると、 $0.1 \sim 2 \text{ } ^3\text{H atoms} / \text{cm}^2 / \text{sec}$ となる。トリチウム生成の他の1つの原因は核実験で、特に1954年春以降、一連の核実験で多量のトリチウムが生成した。生成の原因がいずれであろうと、こうして大気中に生成したトリチウムはやがて酸化され、雨水として地上に供給される。雨水の1部はそのまま地表流として川に流れ、海に運ばれる。他の1部は地下水となり、地球上広く分配される。

自然界の水中のトリチウム量の実測は1951年以降本格的に開始された。したがつて、実測値はすべて、宇宙線によつて生成したトリチウムのほか、核実験によつて生成したトリチウムを含んでいるはずである。しかし、Kaufman and Libby²⁾, Von Buttler and Libby⁵⁾およびBrown and Grummitt⁶⁾の測定結果から、1954年初めまでの雨水にはまだ実質的に核実験のトリチウムの影響はないと考えられる。1952年

12月～1953年7月のレカゴの雨水中の平均トリチウム濃度は7.5 T.U.で、1953年後半～1954年はじめのオツタワの雨水中のトリチウム濃度は26.6 T.U.で、これらは先づ宇宙線によって生成したトリチウムと考えるとさしつかえない。しかし、1954年春以降、雨水、河川水とも次第にトリチウム濃度が増大し、特に1954年の春の雨は極めて高いトリチウム濃度を示した。Brown⁷⁾ はオツタワ谷における雨水および川のトリチウム濃度を測定し、1959年以降のトリチウム濃度の増加の様子を詳しく報告している。近年、トリチウム濃度は極めて高くなり、低バックグランドカウンターで測定するかぎり、電解濃縮が必ずしも必要ない程になっている。我が国における自然界に存在するトリチウムの計測例は少く、わずかながら浜田⁸⁾らの1961年以降の測定があり、最近になって久保⁹⁾ら、浜田らなどの報告が数例あるだけである。浜田らによる高知および東京の雨水中のトリチウム量は1961年は37～161 T.U.であったのが、1962年になると増加し、1964年には東京の雨水では最も少いときでも450 T.U.を示している。これは明らかに核実験によるトリチウムの影響を受けている。

4. 1. 2 雨水の流出機構調査(水文学的調査)への利用

河川の上流域に降った雨は、一部は再蒸発し空気中に逸散し、一部は直接地表流として河川に流入し、また、他の一部は一度地中に滲透し地下に貯留されたりあるいは再び地表に湧出し河川に流入するであろう。雨水中のトリチウム量は現在核実験の影響を受け季節的に変化する。一般に春にピークを与える。したがって、河川水中のトリチウム量がピークを与えるような変化をすれば、それより雨水の流出時間を推定することができよう。また、例え明確なピークを与えるものでもなくとも、雨水中のトリチウム量の変化と河川水中のトリチウム量の変化から、流出時間、河川上流域における貯留池水量など水文学的特性を推定することができると考えられ、洪水予報上の諸問題、利水上の諸問題およびそれに伴う河道の設計など土

木工学上貴重な資料を提供するものと期待される。

例えば、Brown¹⁾は雨水流出のモデルを仮定し、Ottawa Valley における雨水および河川水中のトリチウム量の変化を測定し、雨水の平均流出時間、貯留地下水量などを求め、Ottawa Valley の水文学的特性を明らかにしている。Rutherford¹¹⁾はカナダ中部平原における雨水、河川水中のトリチウム量を測定し、雨水の流出時間、地下貯留水量など同じく水文学的特性を測定し、将来の農工業にどのくらいの水利用が期待できるか研究をおこなっている。また、F. Begemann and Libby¹²⁾はトリチウムを測定することにより、より広域にわたる水文学的推定—北米大陸における水の循環—に関する報告をおこなっている。

これら水文学的研究は種々おこなわれているが、これら研究と比較して、我が国の土木工学上問題となり、究明が必要な点は、より狭い範囲における、それも特に降雨後の雨水の挙動に関するものであろう。すなわち、諸地域の特性を十分考慮したより狭い細かな水の流出機構の調査が必要とされる。調査の方法自体不明な点が多いが、天然トリチウムの利用により、土木工学上の種々知見が得られるものと期待される。

4・1・3 伏流水調査への利用

我が国では洪水対策、電力あるいは灌がいのため各地でダムが建設され、現在多大の成果をおさめている。洪水期でも河川のはんらん、堤防の決壊などの危険は少くなり、河川の流量は常に一定の低水流量に管理されるようになってきた。ところで、このように低水流量のもとでは伏流水の占める役割の影響が相対的に大きくなり、より高度の水利用と云う観点から、土木工学上の検討にせまられてきている。

このような伏流水調査は極めて困難な調査で、各方面の種々調査を総合してこれに当らなければならないであろう。この調査の一部として天然トリチウムを利用することは極めて有効と考えられる。河川流域における地下水の分布と、各地下水のトリチウム濃度とから、その分布状態を知り、

さらに河川水中のトリチウム量との相関性を検討することにより貴重な資料が得られるものと期待される。また、後述の人工トリチウムを利用し、天然トリチウム、人工トリチウムの両調査結果を総合解析すればより有効な結果が得られるであろう。

4・1・4 地すべり地下水調査への利用

一般的に云つて、陸水は雨水に比べそのトリチウム濃度が低く、特に地下水は低くなる。これは地上に降つた雨水が一たび地中に滲透すると、そのトリチウム濃度は半減期を12年とし減少する一方となるためで、地中に滲透してからの経過時間の長いものほどトリチウム濃度は低い。したがつて、逆にトリチウム濃度から、その地下水の古さを測定することができる。現在、雨水中のトリチウム濃度は核実験のトリチウムの生成により季節的に変化し、決つて一定していないので、地下水の古さを正確に測定することは困難になつたが、それでもなおおよその推定は十分可能である。

地すべり地の地下水中のトリチウム量を測定し、その古さによる分類、その分布状態、水質との関連性を調べることにより、地すべり調査に貴重な資料が得られるであろう。例えば、地下水が比較的新らしい雨水であるのか、あるいは被圧地下水などがかなり古い地下水脈からのものであるか区別ができるであろうし、さらに地すべり地各地点の地下水の相互の関連性を広く推定することも可能で、地すべり対策工事に資すると極めて大に期待される。

参考文献

- 1) G.G.Ostlund and E.Werner, The electrolytic enrichment of tritium and deuterium for natural tritium measurement
Tritium in the Physical and Biological Science, Vol.1
P.132, I.A.E.A. (1962)
- 2) S.Kaufman and W.F. Lilby, The Natural Distribution

- of Tritium, Phys. Rev., 93, 1337 (1954)
- 3) J. Biegeleisen, Correlation of Tritium and Deuterium Isotope Effects, Tritium in the Physical and Biological Science Vol.1, p.161, I.A.E.A. (1962)
 - 4) A.E. Bainbridge, The Determination of Natural Tritium.
 - 5) H.Von Buttlar and W.F.Libby, Natural Distribution of Cosmic-Ray Produced Tritium. 11, J.of Inorganic and Nuclear Chem. Vol 1, No.1, 1955, p.55~81
 - 6) R.M.Brown and W.E.Grumbitt, The Determination of Tritium in Natural Waters, Can. J. Chem. 34, 220-226 (1956)
 - 7) R.M.Brown, Hydrology of Tritium in the Ottawa Valley, Geochimica et Cosmochimica Acta, vol..21, 199~216 (1966)
 - 8) 高橋 旦、大野 茂、浜田達二 「低レベルトリチウムの測定」 第5回日本アソトープ会議報文集 A12-3 (1965)
 - 9) 久保 忠嘉、横田穰一、梅田久美子、「近年の高度10~30 Km 附近における ^{14}C 及び ^3H の濃度変化(V)」 第3回理工学における同位元来研究発表会要旨集 (1966)
 - 10) 浜田達二、高橋 旦、西田雅美 「天然トリチウム測定法の改良と水理学への2, 3の応用」 第7回アイソトープ会議論文抄録集」 A/M-6 p.45 (1966)
 - 11) A.A.Rutherford, "The Tritium Content of Saskatchewan Waters" private information
 - 12) F.Begemann and W.F. Libby, Continental Water balance, ground Water inventory and stoage times, surface

Ocean mixing rates and world-wide water circulation pattern from cosmic ray and bomb tritium, *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1957, vol.12, pp 277

4.2 人工トリチウムの利用

宇宙線の作用で水圏に存在するトリチウムは、前節で述べたように水の年代決定を通してその水の歴史を知り、その水の性格についてかなりの程度に推論が下せる。しかし運動時間が極く短い場合であれば、その水の年代決定は測定誤差の中に含まれてしまうので不可能となる。この場合には人工的にトリチウムの或る量を地下水系に投入し、調査地域内での運動を追跡する方法が採用される。地下水のトレーサーとしてトリチウムを使用することは、他のラジオアイソトープの場合のように粘土による吸着損失、水中溶存物質との化学反応による沈澱等の影響が無いので有望である。しかし前にも述べたように粘土の吸着水と交換が起ることは十分に考えられるので現場調査に当つては、この点に留意して模型実験を実施し、結果の解釈について検討を加えておく必要がある。他のトレーサー、たとえばヨード131、トリチウム24等のアイソトープ、フルオレスセイン等の色素、クローム酸、食塩等をトリチウムトレーサーと比較した結果については、各国で多くの報告がなされているが、いづれもトリチウムが最も優れたトレーサーであるという結論を出している。したがって今後はトリチウムによる地下水の調査が盛んに実施されて行くものと考えられる。ギリシヤで数十Kmの距離を追跡したと云う報告もあり、現在まで不可能と考えられていた長距離の追跡もトリチウムの使用によつて初めて可能となる例も将来多く見られるであろう。

また河川の流速および流量測定にもトリチウム利用の可能性は大きい。その原理は通常の化学薬品トレーサーの場合と同様であるが、水中に懸濁している粘土粒子との反応が無いので、濁流に対しても適用できる利点がある。またトリチウムはその最大許容水中濃度が $0.03 \mu\text{C}/\text{c.c.}$ でかなり

高いので、使用上の制約もかなりゆるい。これは地下水調査の場合についても云えることで、通常のラジオアイソトープ使用に当つての煩雑な使用上の制約からかなり解放されることになる。したがつてトリチウムは放射線障害防止上問題が最も少ないアイソトープだと云う点から見ても、今後最も普及するトレーサーであると考えられる。

その他土木工事を実施する上に当つての基礎の地下水の問題、土中水分の移動の調査はトリチウムをトレーサーとして使用することにより可能である。この場合同じくラジオアイソトープを装備した水分計、密度計を併用すれば時間的な推移を良くとらえることができる。

以上トリチウムの今後の利用の見通しについて述べて来たが、トリチウムトレーサーの現場適用については、まだ解決されねばならない問題が多く残されており、現在世界各国で問題点が究明されつつある。建設省土木研究所ではこれらトリチウムの現場適用に当つての問題点を解決しつつ、その現場普及を計り、地下水、河川水その他、水を対象とした調査法の発展に資したいと考えている。