

# 琉球大学学術リポジトリ

## 石灰岩地域における環境水中トリチウムおよびラドンの挙動に関する研究

メタデータ	言語: ja 出版者: 琉球大学 公開日: 2022-06-30 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: 仲宗根, 峻也 メールアドレス: 所属:
URL	<a href="http://hdl.handle.net/20.500.12000/0002019343">http://hdl.handle.net/20.500.12000/0002019343</a>

# 博士論文の要約

## 論文題目

石灰岩地域における環境水中トリチウムおよびラドンの挙動に関する研究

沖縄島を主フィールドとして、降雨および地下水中のトリチウム ( $^3\text{H}$ ) およびラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) の環境動態に関する研究を実施し、これに水素安定同位体比 ( $\delta\text{D}$ )、酸素安定同位体比 ( $\delta^{18}\text{O}$ )、イオン成分を組み合わせた従来にないマルチトレーサー手法を用いて、比較的空隙の多い離水サンゴ礁起源の石灰岩地域における地下水の浸透時間（涵養から湧出までの時間）を推定した。本研究のマルチトレーサー手法により、沖縄島におけるトリチウムおよびラドンの環境挙動の一端が明らかになった。特に、既存情報が極めて限られている亜熱帯島嶼地域におけるトリチウムの環境挙動について、従来にない知見が蓄積できた。以下に得られた知見の詳細を示す。

沖縄島における降水中トリチウム濃度の算術平均値 $\pm$ 標準偏差は  $0.14 \pm 0.06 \text{ Bq L}^{-1}$  であり、冬季から春季に高く、夏季から秋季に低いという若干の季節変動が認められた。また、沖縄島における降水中の  $\delta\text{D}$  および  $\delta^{18}\text{O}$  には、顕著な季節変動は認められないが、梅雨期（5月～6月）と台風襲来期（8月～9月）に低い値を示すことが確認された。さらに、沖縄島における降水中の d-excess 値は冬季（12月～2月）に高く、夏季（6月～8月）に低くなる傾向がみられた。これらの結果から、沖縄島における降雨は、冬季から春季にかけては大陸起源の乾燥した空気塊の影響を、夏季から秋季にかけては海洋起源の湿った空気塊の影響を受けていることが示唆された。特に冬季から春季の比較的高い濃度ピークについては、成層圏からの空気塊の流入に加え、大陸からの季節風にも由来する可能性が指摘された。加えて、冬季の沖縄島では大陸起源の乾燥した空気塊の到来に伴い、東シナ海上での海水の急激な蒸発が生じ、軽い同位体が選択的に空気塊へ供給されることで、海洋を起源とする低トリチウムの空気塊の影響を受けていることが示唆された。

沖縄島における降水中のイオン濃度は、台風や冬季の季節風に大きな影響を受けており、 $\text{Cl}^-$ 、 $\text{Na}^+$  および  $\text{Mg}^{2+}$  濃度は夏季から秋季に高くなり、海水中の  $\text{Na}^+/\text{Cl}^-$  比、 $\text{Mg}^{2+}/\text{Cl}^-$  比と同様であることから、これらイオン成分は海水起源であることが示唆された。また、 $_{\text{nss}}\text{SO}_4^{2-}$  は冬季に高くなる傾向がみられ、特に  $\text{NO}_3^-$  と  $\text{NH}_4^+$  は冬季から春季にのみ観測され、上記の季節以外ではほとんど検出されなかった。それらイオン成分は、硫酸カルシウム ( $\text{CaSO}_4$ ) や硫酸アンモニウム ( $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ ) として大陸から長距離輸送されていることが示唆された。イオン成分の分析結果は  $\delta\text{D}$  および  $\delta^{18}\text{O}$  による解釈と一致し、冬季から春季にかけては大陸起源の乾燥した空気塊の影響を、夏季から秋季にかけては海洋起源の湿った空気塊の影響を受けていることが示唆された。

沖縄島における陸水中トリチウム濃度の算術平均値 $\pm$ 標準偏差は、玉泉洞で  $0.14 \pm 0.03 \text{ Bq L}^{-1}$ 、森の川で  $0.13 \pm 0.03 \text{ Bq L}^{-1}$ 、垣花樋川で  $0.12 \pm 0.03 \text{ Bq L}^{-1}$ 、受水で  $0.14 \pm 0.03 \text{ Bq L}^{-1}$ 、米須で  $0.15 \pm 0.04 \text{ Bq L}^{-1}$  であり、概ね同程度の濃度レベルであった。また、2015年から2018年に実施した島内各地の陸水中トリチウム濃度の分布調査の結果と比較しても明瞭な濃度差がみられなかったことから、沖縄島における陸水中トリチウム濃度は概ね一様であることが明らかとなった。この要

因として、土壌や地層の透水過程に顕著な差異がみられないこと（地質環境の類似）や陸水へのトリチウムの供給量が同程度であることが推測された。

陸水と降水の  $\delta D$  と  $\delta^{18}O$  の年間平均値はほぼ一致し、陸水地点（玉泉洞、垣花樋川、受水、米須）の値が降水の天水線上にプロットされたことから、これらの陸水は降水を起源に持つことが示唆された。また、玉泉洞、垣花樋川、受水、米須におけるイオン成分をもとに、トリリニアダイアグラムによって陸水を化学組成で分類した結果、玉泉洞と米須の一部は中間型の水質に分類されたものの、それ以外の湧水は概ねアルカリ土類炭酸塩型に分類されたことから、地下水のタイプは浅層地下水であることが示唆された。

トリチウム濃度を用いた琉球石灰岩地域での地下水浸透時間に関する解析では、降雨以外にトリチウム供給がないと仮定した場合、玉泉洞では 1.0 年以下、森の川では 1.1 年以下、垣花樋川では 2.3 年以下、受水では 1.1 年以下、米須では 1.1 年以下と推定された。琉球石灰岩とこれを覆う土壌の透水係数・層厚に関する報告値を用いたモデル計算を行ったところ、平均的な浸透時間は約 29～348 日となり、トリチウムによる推定値と矛盾のない値となった。

ラドン濃度の算術平均値  $\pm$  標準偏差（濃度範囲）は、玉泉洞滴下水については  $10 \pm 1.3 \text{ Bq L}^{-1}$ （7.1～12.6  $\text{Bq L}^{-1}$ ）、受水では  $2.8 \pm 1.1 \text{ Bq L}^{-1}$ （1.1～6.1  $\text{Bq L}^{-1}$ ）、米須で  $2.8 \pm 1.1 \text{ Bq L}^{-1}$ （1.1～5.8  $\text{Bq L}^{-1}$ ）であった。ラドン濃度減衰開始位置を土壌層と下位の石灰岩体が接する境界として、ラドンの減衰式から降水の浸透時間を玉泉洞滴下水のデータを用いて算出した結果、玉泉洞を胚胎する石灰岩体については 7～10 日となり、トリチウムによる推定よりも短期間である可能性が示唆された。前述の報告値を用いて算出した土壌の浸透時間を考慮して、土壌層と琉球石灰岩体を合わせた浸透時間を算出すると、玉泉洞では約 10～184 日となった。また、玉泉洞内の採水地点直下で得られた滴下量と、玉泉洞近傍に所在する AMeDAS 系数（気象庁）における降水量の時間変動を比較したところ、降雨から約 2～3 ヶ月後に洞内滴下していると考えられ、ラドンを用いた推定値と矛盾のない値である。さらに上述のラドン濃度を用いた解析を受水と米須に適用した結果、受水と米須の石灰岩体中の浸透時間は、それぞれ 11～22 日、12～20 日であり、報告値を用いて算出したモデル計算の結果と比較して、概ね一致した。これらの結果から、放射性核種を用いた解析手法は、石灰岩体中の地下水浸透時間を推定する上で有用であると考えられる。以上のことから、本研究で開発した半減期や由来・環境動態が異なる放射性核種に安定同位体やイオン成分を加えたマルチトレーサー手法を石灰岩地域に適用することで、地下水の浸透時間を定量的に評価することが可能であると考えられる。

これらの他に、イオン交換樹脂を用いた環境水試料調整法の開発を試み、少量の水試料（100 mL）に対してであるが、不純物除去の有効性が示され、5 分間で効果的な不純物除去が可能であることを確認した。今後は、有機物含有量の多い水試料（河川水や海水など）を対象としたトリチウム分析の前処理に適用する予定である。

氏 名 仲宗根 峻也