

能登半島地震後における地下水の放射性核種濃度

(ラドン連続測定班)

中西 孝¹, 横山明彦¹, 田崎和江¹, 小村和久², 山本政儀², 井上睦夫², 濱島靖典², 上杉正樹¹,
山田記大¹, 清水健彦³

1. 序論

地震と放射能(とくにラドン-222 (以下ラドンと略記, 半減期 3.8 日))の相関関係について1960年代から研究が行われており, 我が国では昭和53年(1978年)伊豆大島近海地震の前に地下水中のラドン濃度が上昇したことや, 平成7年(1995年)兵庫県南部地震の前に地下水および空気中のラドン濃度が上昇したことが報告されている。^{(1),(2),(3)} 兵庫県南部地震では, 六甲の地下水に溶存している陽イオン及び陰イオン濃度も変動したことが報告されている。⁽⁴⁾

平成19年(2007年)3月25日に起こった能登半島地震では, 小村らが地震発生の3週間前から輪島市西二又で大気浮遊塵の鉛-210(半減期22.3年, ラドンの子孫核種)濃度が上昇していたことを報告している。⁽⁵⁾ また, 能登半島地震後の放射能・放射線の測定においては, GMサーベイメータを用いて被災地の舗装道路の亀裂や陥没した部分, 大気のパータ放射能が測定され,⁽⁶⁾ 金沢大学周辺の大気は40~80cpmであるが, 輪島市の大気では100~200cpmと高めであったことや調査中に余震(4月4日08:18, 震源地能登地方, 震源の深さ約10km, M3.8)が起きたとき, 測定値が2300cpmに急上昇したことが報告されている。また, 同日14:12にも震源がごく浅いM3.3の地震が観測されたとき, 採水を行っていた古和秀水(こわしゅうど)近傍のコンクリートの亀裂で400cpm, 土壌の亀裂では1500cpmと高い値を示したことなども報告されている。

地震発生前後に, 空気中のラドン及びその子孫核種の濃度上昇が観測される理由は, ラドンは化学反応性に乏しい希ガス元素であり, 震源域の岩石に蓄積していたラドン(地質媒体中のウラン-238(半減期4.468×10⁹年)からラジウム-226(半減期1600年)を経て生成)が, 岩石の破壊によって岩石から解放され, 断層を通して平常時以上に大気に放出されることによるものと考えられている。ラドン放出が増加すると空間放射線量も増加する。しかし, 大気中へ平常時以上にラドンが逸出したとしても, すぐに拡散で薄められてしまい, ラドン異常が検出されるためには, 断層直上のかかなり恵まれた条件が必要である。

一方, 地下水については, 大気ほどラドン及びその子孫核種の拡散希釈がないため, 地震に伴うラドン濃度異常が検出され易いと考えられるが, 帯水層の規模によってはレスポンスに問題がある。

本研究では, 能登半島地震後であるが, 主に地下水のラドン子孫核種濃度から地下水へのラドン供給の経時変化を追跡し, 地震直後に測定された濃度値が異常であったか否かを探ることとした。併せて, ラドンの親核種であるラジウム-226, トリウム-230, ウラン-234, ウラン-238についても調査を行った。

2. 能登半島地震後の現地調査について

能登半島地震の本震の前後において輪島市で自然放射能及び自然放射線の変化が検出されたとの情報に基づき, 輪島市等で空間放射能・放射線の経時変動を調査した。これにより, 地震の前後で震源域地表大気のラドン濃度がどのように変化するかを明らかにし, 地震との関係を探ることとした。

1 金沢大学自然科学研究科(平成20年3月現在)

2 金沢大学環日本海域環境研究センター(平成20年3月現在)

3 金沢大学理学部(平成20年3月現在)

(1) 空間放射線量の測定

地震の予知は今日でも難しいが、過去に観測されたさまざまな事象を基に予知の可能性が追究されている。ラドンに関する事象もその一つであり、地震発生前後に、地下水や空気中のラドン及びその子孫核種の濃度上昇が観測された例がある。このようなラドン異常の観測事実を蓄積すれば、地震予知につながる情報としての可能性がますます高くなる。しかし、地表大気中のラドン濃度変化を地震と関連づけた研究が少なく、余震が続く能登半島地震の震源域で実測データを蓄積することは極めて重要である。

2007年3月25日に起こった能登半島地震では、小村らが地震発生の3週間前から輪島市西二又で大気浮遊塵の鉛-210(半減期 22.3年, ラドンの子孫核種)濃度が上昇していたことを地震後の分析で報告しているが(図1)⁶⁾、観測点の位置が良かったので検出されたと考えられる。

ラドンはラジウム-226の壊変によって生成する放射性核種であり、半減期3.8日で鉛-210に壊変する。この間、鉛-214やビスマス-214を経由するためβ線やγ線が放出される。このため、地表から大気中へラドンが異常放出されれば、空間β・γ線量の増加及び大気浮遊塵中の子孫核種の増加が観測される。

能登半島地震においては、本震の後もM5を越える余震が続いていたため、我々は、輪島市西二又町旧西二又小学校にある国設輪島酸性雨測定所跡において空間γ線計数率の連続測定を試みた。図2にγ線計数率の変化を示す。横軸の数字は、2007年4月の日を示し12時間毎に軸線が入れてある。4月21日から27日までの測定期間中に24万カウント/30分から37万カウント/30分まで1.5倍の変動が見られた。ラドン・カウンターではないので、直接ラドンを測定している訳ではなく、γ線を放出するラドンの子孫核種(鉛-214, ビスマス-214), トリウム系列核種, カリウム-40などのγ線を検出している。しかし、計数率の変動に最も寄与しているのは空気中及び地表に降下したラドンの子孫核種である。

通常のラドン濃度の変動は、晴れの天気が続く場合には大気の上下混合を反映しており、空気の

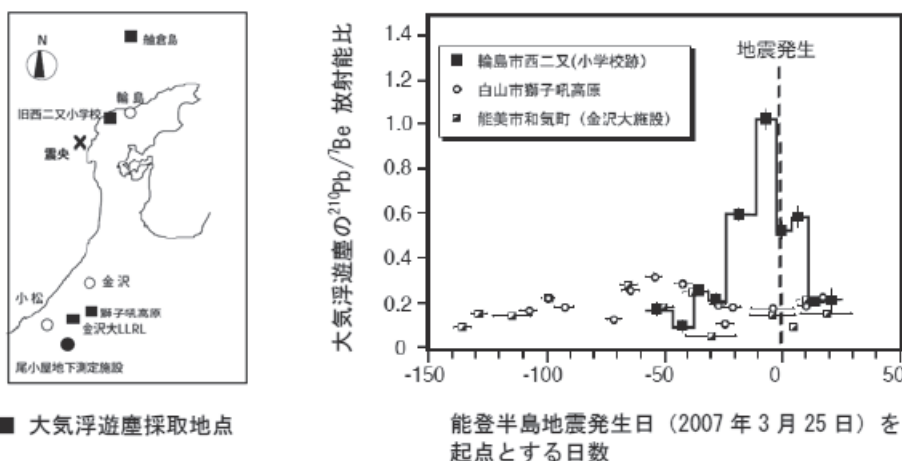


図1 輪島市西二又町旧西二又小学校観測点で採取された大気浮遊塵連続試料について、地震後の測定で検出された²¹⁰Pb(鉛-210)異常(小村ら, 地球科学, 61(5), 335-342(2007).)

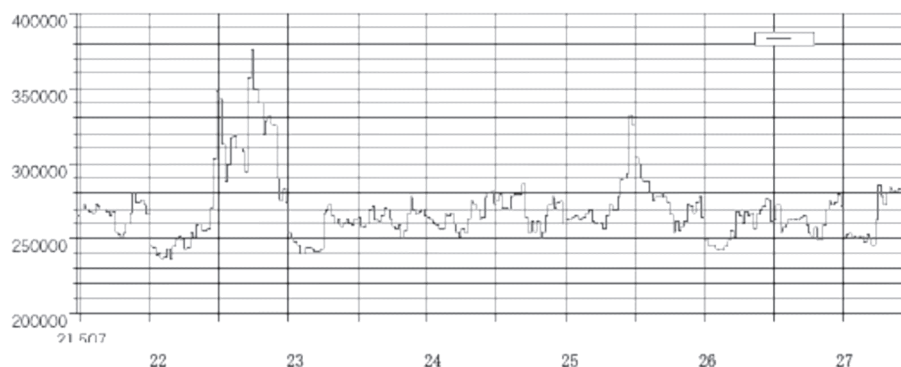


図2 輪島市西二又町旧西二又小学校観測点で観測されたγ線計数率の経時変動

上下混合が少ない「日の出」直前に極大値を示した後、減少し始め、午後2時頃の極小値を経て夕方から翌朝まで次第に増加するというのが典型的な日変動である。また、降雨があれば、ラドンの子孫核種が大気中から地表に降下するので、 γ 線計数率は一時的に急激に増加（場合によっては2倍程度まで増加）する。

図2の測定結果は、22日の昼前から急激に増加し4回のピークを経て23日夜半に最低値を示していた。25日の昼にもピークが見られた。これらの原因が何であるか興味あるところであるが、国設輪島酸性雨測定所跡については測定場所が海岸から2 kmほど入った谷筋に位置していることによる大気の水水平移動も変動に影響していると考えられ、ラドン放出に帰属できる変動を抽出するのは容易ではない。

(2) ラドンモニタ及びサーベイメータによる測定

(a) 実施状況

我々の現地第一次調査（2007年4月29日(日)）及び第二次調査（2007年5月23日(水)）において、ラドン濃度、空間 α 線計数率、空間 β 線計数率、空間 γ 線量率を測定し、ラドン及びその子孫核種の濃度変動の検出を試みた。

使用した機器は、ラドンモニタ、 α 線サーベイメータ、 β 線サーベイメータ、 γ 線サーベイメータである。ラドンモニタは名古屋大学から借用したAlphaGUARDである。サーベイメータは金沢大学アイソトープ理工系研究施設に常備してあるものを使用した。測定場所は、原子力発電所のモニタリングステーション（志賀町風無局）、輪島市門前町道下、輪島市鬼屋（古和秀水）、輪島市西二又町であり、全測定器並行測定（相互比較測定）を行うとともに、古和秀水と杉平町で地下水の採取も行った。金沢大学角間キャンパスの南アカンサス インターフェースを比較対象地点とした。

(b) 測定結果

① ラドン濃度の測定結果

空气中ラドン濃度を測定した結果、比較対象地点の金沢大学角間キャンパス内のラドン濃度と比較しても、異常に高いと思われる測定結果は得られなかった（表1、表2）。ただし、車で移動中に γ 線サーベイメータが短時間だけ高い線量率を示すことがあり、ラドン及びその子孫核種を含むと思われる高放射性の小気塊が風に乗って流れていると考えられた。ラドンは原子量が大きいので分子運動による拡散速度は遅いと考えられ、ラドン子孫核種は大気浮遊塵に吸着しているため、余り拡がらないで空气中を漂っているものと考えられる。

表1 第一次調査（2007年4月29日(日)）の結果

測定場所	ラドン濃度 (Bq/m ³)	気圧 (mbar)	気温 (°C)	湿度 (%Hr)
志賀町 風無局 10:30	17±7	1016	30	50
門前町 道下 宝泉寺 12:00	18±4	1016	18	43
門前町 古和秀水 13:00	18±6	993	19	48
金沢大学理学部南陸橋 15:00	17±3	1002	19	62

表2 第二次調査（2007年5月23日(水)）の結果

測定場所	ラドン濃度 (Bq/m ³)	気圧 (mbar)	気温 (°C)	湿度 (%Hr)
国設輪島酸性雨測定所 12:30	12±2	1008	29	43

国設輪島酸性雨測定所 16:00	14±3	1007	24	47
国設輪島酸性雨測定所 17:00	30±5	1007	20	64
門前町 道下 宝泉寺 10:00	17±3	1013	21	63
金沢大学 南陸橋 15:00	17±3	1002	19	62

② ラドンモニタ, 各種サーベイメータ表示値の相互比較

ラドン濃度, 空間 α 線計数率, 空間 β 線計数率, 空間 γ 線量率の比較測定を行った結果 (表3, 表4) から, α 線サーベイメータは計数誤差が大きいラドン濃度を略々反映していると考えられる。 β 線, γ 線は地表からの影響も含むので, ラドン濃度の変動を検出するのは困難である。

表3 第一次調査の結果

測定場所	ラドン濃度 (Bq/m ³)	α 線 (cpm)	β 線 (cpm)	γ 線 (μ Sv/h)
志賀町 風無局	17±7	1.8±0.3	62±4	0.066±0.002
門前町 道下 宝泉寺	18±4	1.5±0.2	72±1	0.082±0.002
門前町 古和秀水	18±6	2.2±0.1	82±3	0.074±0.002
金沢大学 南陸橋	17±3	1.8±0.2	60±1	0.053±0.002

表4 第二次調査の結果

測定場所	ラドン濃度 (Bq/m ³)	α 線 (cpm)	β 線 (cpm)	γ 線 (μ Sv/h)
国設輪島酸性雨測定所(12:30)	12±2	1.4±0.1	55±1	0.045±0.002
国設輪島酸性雨測定所(16:00)	14±3	—	—	0.066±0.002
国設輪島酸性雨測定所(17:00)	30±5	5.6±0.7	70±1	0.045±0.002
門前町 道下 宝泉寺	17±3	1.9±0.2	62±1	0.085±0.002
金沢大学 南陸橋	17±3	1.8±0.2	60±1	0.053±0.002

3. 地下水の放射性核種濃度の継続調査について

空間・大気の簡便な放射線測定でラドン及びその子孫核種の変動を明確に検出することは容易ではないので, 地下水の調査に研究の重点を移行した。能登半島地震後であるが, 地下水のラドン子孫核種濃度から地下水へのラドン供給の経時変化を探ることとし, 地下水中の主なウラン系列自然放射能を調査した。

地下水試料は, 第一次調査・第二次調査のときから採取して分析を開始したが, ラドン子孫核種の濃度に異常と経時変動を見てとれたので, 継続測定を実施することとした。

(1) 試料

今回の能登半島地震後において, 過去に報告された現象と同様に, 地表大気の放射能の変動を示唆するデータが得られたことから, 間欠的にラドンの放出があるものと考えられた。しかし, 希ガスであるラドンの元素としての性質により拡散・希釈が速く, 地表への放出を明確に捉えるには, 測点を厳選しない限り, かなり困難である。しかし, ラドンは放射性核種であるので, 地下水中に子孫核種を残している可能性があり, 地震後の地下水についてラドンが属するウラン系列核種 (図3) について継続調査を実施した。

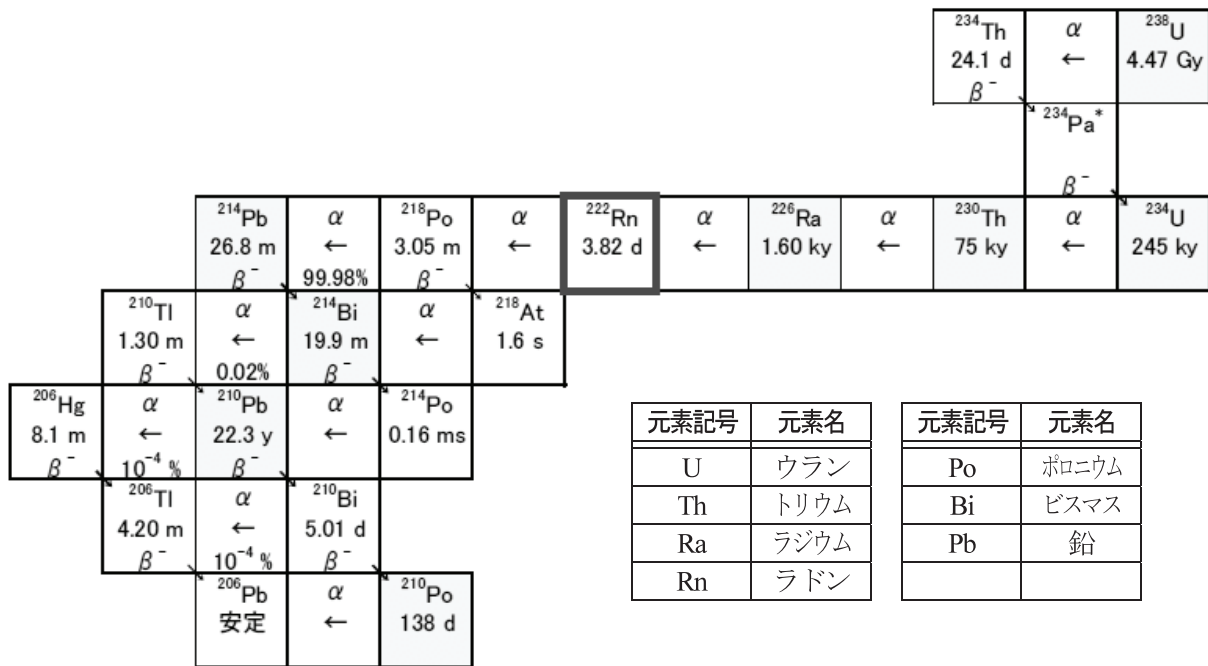


図3 ウラン系列

地下水試料採取地は、以前から水質測定が行われていた輪島市門前町（古和秀水 こわしゅうど：湧出水）と輪島市杉平町（井戸水）とした（図4）。2007年4月4日から約1ヵ月ごとに試料採取を行った。

1分析試料あたりの試料採取量は2007年4月～10月は20Lであったが、ラジウム-226 定量には不十分であることが分かったので、輪島市門前町の湧出水を2007年11月からはラジウム-226分析用に100Lを採取することとした。採水記録を表5に示す。採取地で塩酸酸性（pH：～2）にした地下水試料を研究室に持ち帰り、化学分離・線源調製を行った後、 α 線スペクトロメトリによりウラン-238、ウラン-234、トリウム-230、鉛-210及びポロニウム-210を定量し、 γ 線スペクトロメトリにより鉛-214を定量して間接的にラジウム-226を定量した。



図4 地下水試料採取地点

① 湧出水（門前町の古和秀水）、② 井戸水（杉平町の民家）

(2) 分析法

(a) ウラン、トリウム、ポロニウム分析法

試料水 18 L にウラン-232-トリウム-228 トレーサ、ポロニウム-209 トレーサ、鉄担体、バリウム担体をそれぞれ既知量ずつ添加後、鉄共沈（ウラン・トリウム・ポロニウム同位体を捕集）と硫酸バリウム共沈（ラジウム同位体を捕集）を逐次行った。水酸化鉄(III)を 2M HCl で溶解し、溶解しなかった硫酸バリウムをろ別した後、2M HCl 溶解部分についてケイ素と鉄の除去を行ってから、銀板法によりポロニウムを銀板に自然析出させ、次いで塩酸系陰イオン交換樹脂カラム法によるウランとトリウムの粗分離を行った。ウラン フラクシオンを溶媒抽出法で精製し、トリウム フラクシオンを硝酸系陰イオン交換樹脂カラム法で精製した後、それ

それをステンレス板に電着した。ポロニウム、ウラン、トリウムの電着試料について α 線スペクトロメトリを行った。

(b) ラジウム分析法

試料水中のラジウムを硫酸バリウムに共沈させ、これをろ過して乾燥し、測定試料とした。化学的回収率は硫酸バリウムの重量測定をすることで求めた。18L 試料, 100L 試料ともに、使用した硫酸バリウムは500 mg である。100 L の処理においては、硫酸バリウムを増やさず、ラジウムを捕集できる鉛担体を1.5 g 使用して化学収率を維持した。なお、鉛担体はEDTA を用いた精製により硫酸バリウム沈殿から分離除去した。ラジウムを共沈した硫酸バリウム沈殿については密封して2週間放置後、Ge 半導体検出器によりラジウム-226 の子孫核種鉛-214、ビスマス-214 の γ 線を測定した。測定時間は、1日から2日間程度とした。

表5 継続調査における採水記録

採水日	時刻	場所	採水量 (L)	水温 ($^{\circ}$ C)	pH	流量 (L/分)	備考
4月4日	14:00	古和秀水	20	—	—	—	
	—	杉平町	20	—	—	—	
4月29日	12:50	古和秀水	20	13	7	—	
	14:30	杉平町	20	15	7	—	
5月23日	11:00	古和秀水	20	13.0	6~7	—	13:16 余震
	14:40	杉平町	20	16.5	6~7	—	
6月12日	15:00	古和秀水	20	—	—	—	6月11日3:37 震度4の余震
	16:00	杉平町	20	—	—	—	
7月16日	13:50	古和秀水	20	—	6~7	—	上越・中越地震10:13後 3.5時間
	15:16	杉平町	20	—	6~7	—	同上5時間後
8月19日	14:30	古和秀水	20	12.0	—	—	
	15:32	杉平町	20	24.0	—	—	
9月17日	14:00	古和秀水	20	12.0	—	—	
	16:00	杉平町	20	20.5	—	—	
10月17日	14:00	古和秀水	20, 100	12.5	6.4	0.545	
	12:30	杉平町	20	19.0	6.6	—	
11月23日	12:30	古和秀水	20, 100	12.2	6.8	0.419	
	14:30	杉平町	20	15.0	6.7	—	
12月16日	12:00	古和秀水	20, 100	12.1	6.8	0.625	
	14:00	杉平町	20	13.4	6.7	—	
1月23日	11:45	古和秀水	20, 100	11.9	6.6	0.727	1月22日震度3の余震
	14:30	杉平町	20	11.1	6.3	—	
1月30日	12:15	古和秀水	20	11.9	6.6	0.712	1月26日震度5の余震
	14:00	杉平町	20	10.4	6.4	—	震度2の余震

(c) 鉛-210 及びポロニウム-210 の分析法

当初は、ラドンの子孫核種の代表として低濃度でも検出可能な α 放射性核種であるポロニウム-210 を定量することとして調査を開始した。しかし、時間経過の考慮をする際には、ポロニウム-210 の親核種 鉛-210 との関係が重要となることから、開発中であった鉛-210 の迅速分離法を適用して試料採取時の鉛-210 及びポロニウム-210 の濃度を求めることにした。

試料水（1～3L）にポロニウム-209 トレーサ、ビスマス担体、鉄担体を加えアンモニア水でアルカリ性とし、ポロニウム-210 を水酸化鉄(III)に共沈させた。沈殿を塩酸で溶解し、クエン酸アンモニウムと EDTA で鉄、ラジウム、鉛、ウラン、トリウムをマスク（pH：～9）し、DDTC を加えてトルエンにポロニウム、ビスマスを抽出した。トルエンを蒸発させ、残留物を 0.5 M の塩酸に溶かし、ポロニウムをステンレス板上に電着した。ポロニウム-210 は α 線スペクトロメトリにより定量した。鉛-210 は、ポロニウム-210 を抽出した残試料を3ヶ月以上放置しておき、生成したポロニウム-210 を再度分離定量することで求めた。

4. 結果

(a) ウラン、トリウムの濃度変化

輪島市門前町と杉平町で採取した地下水におけるウラン-238 濃度とウラン-234/ウラン-238 放射能比の経時変化を図5に示す。両採水点ともトリウム同位体は検出限界以下であった。

ウランが高濃度で ' $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比 > 1' であれば帯水層で岩石破壊が起こったことを反映するものと考えられるので、門前町（図5a）の帯水層で能登半島地震による岩石破壊が起こったと考えられる。杉平町（図5b）では、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比がほぼ1で一定のまま経時的にウラン濃度が上昇する傾向にあるので、地下水の地下滞留時間が長くなっている、すなわち地下水の流速が低下していると考えられる。

(b) ラジウム-226 の濃度変化

ラジウム濃度に顕著な変化は認められず、両地点とも 1 mBq/L 程度であることが分かった。試料水量を 18 L から 100 L に増やすことによって門前町で 0.6 ～ 1 mBq/L が確認できた。なお、この分析法では、トリウム系列のラジウム-228 も定量できるが、今回の試料では検出されなかった。 α 線測定でトリウムが検出されていないことと一致する。

(c) 鉛-210、ポロニウム-210 の濃度変化

ラドンの親核種であるラジウム-226 とラドン子孫核種である鉛-210、ポロニウム-210 について、通常は鉛-210 とポロニウム-210 の濃度がラジウム-226 濃度以上になることはないが、実測結果は鉛-210 濃度がラジウム-226 濃度以上であり、ラドンが地下水に過剰に供給されたことを示すと考えられる。すなわち、能登半島地震直後の地下水に平常時以上にラドンの供給があったと考えられる。

杉平町において、4月4日にポロニウム-210 濃度のみならず鉛-210 濃度も高かったのは、鉛とポロニウムの地下水-地質媒体間での吸着分配挙動の違いについて検討を要するが、地震の相当以前からラドンの供給が多かったことを反映している可能性がある。

5. 結語

地表大気中のラドン濃度変化を地震と関連づけた研究が少ないので、余震が続く能登半島地震の震源付近で実測データの取得を試みたが、適切な場所に適切な測定器を設置して連続測定を実施しなければならない。

しかし、断層からラドンが間欠的に噴出していると考えられる放射線量の間欠的上昇が観測された。

地下水中のラドン関連核種の濃度がどのように変動するかを実測した結果、ウランについては地震の影響

と考えられる変動が見られ、鉛-210 についてはラドン供給増加を反映すると考えられる明らかな濃度増加がみられた。なお、今回分析した諸核種の地震前のデータが無いので、今後も本研究を継続して地震前の濃度値を推定し地震後のデータと比較する必要がある。

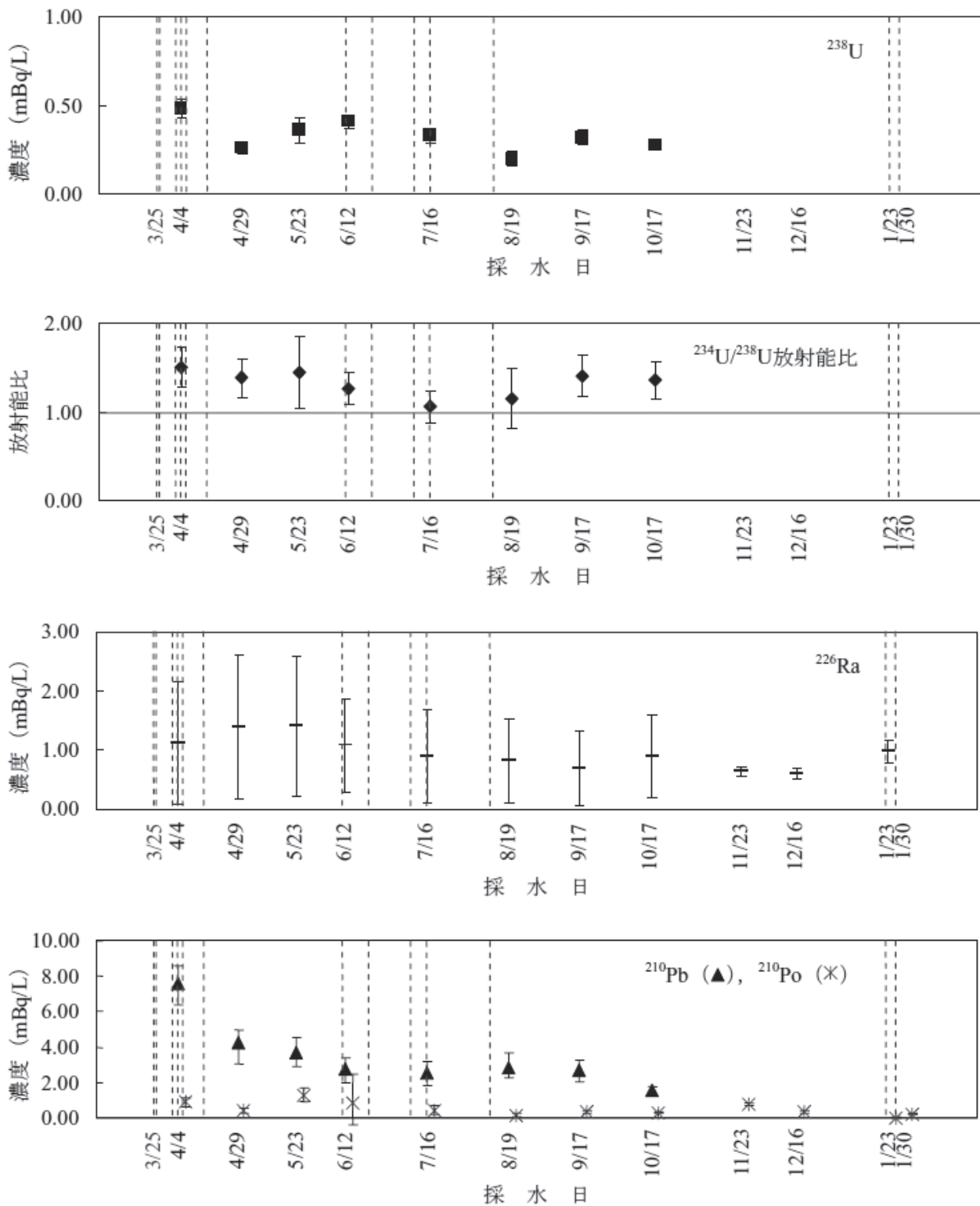


図 5a 地下水中のウラン-238 (^{238}U), ウラン-234 (^{234}U), ラジウム-226 (^{226}Ra), 鉛-210 (^{210}Pb), ポロニウム-210 (^{210}Po) 濃度 (輪島市門前町)。破線は震度 3 以上 (於 輪島市門前町走出観測所) の余震発生を示す。

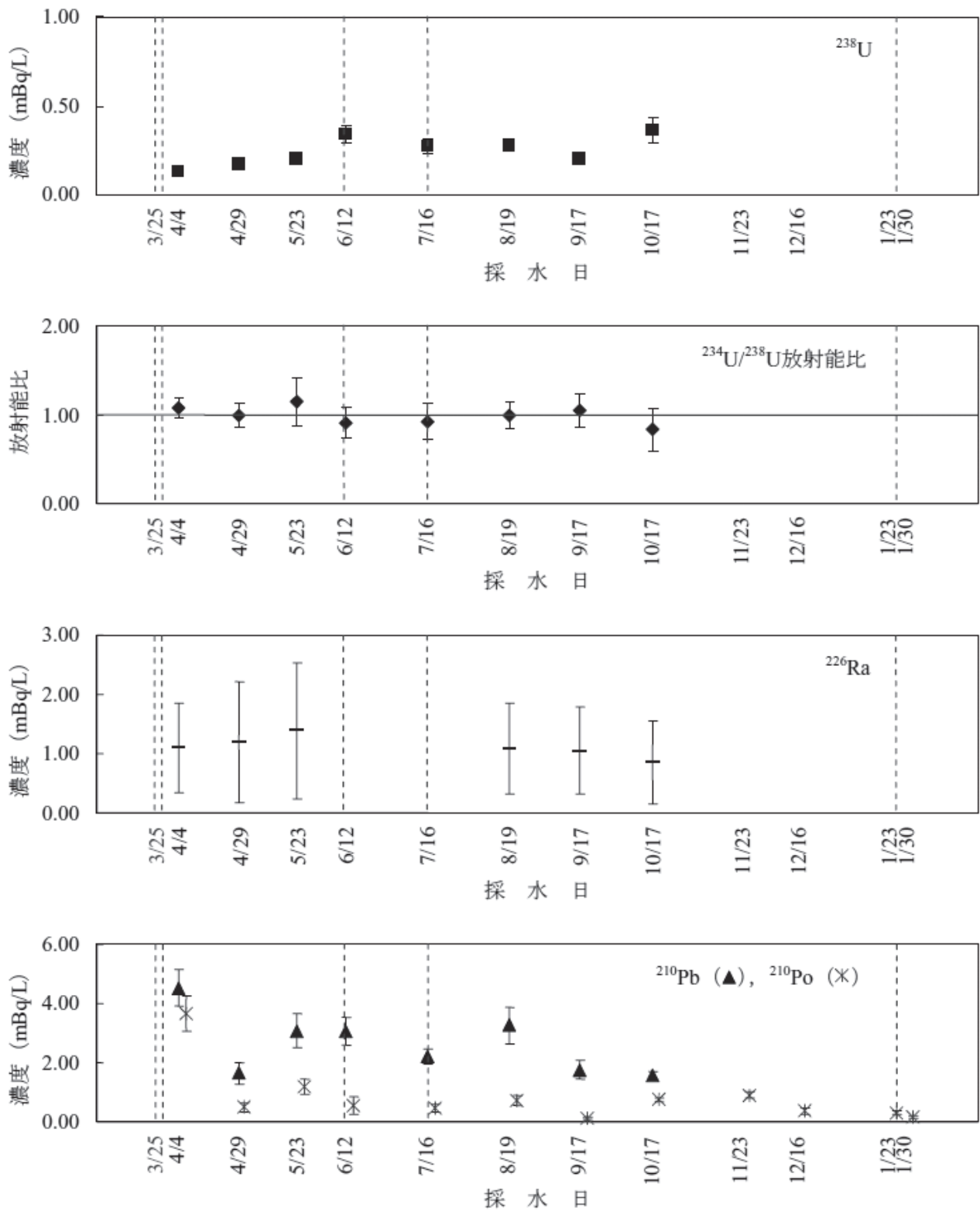


図5b 地下水中のウラン-238 (^{238}U), ウラン-234 (^{234}U), ラジウム-226 (^{226}Ra), 鉛-210 (^{210}Pb), ポロニウム-210 (^{210}Po)濃度 (輪島市杉平町)。破線は震度3以上 (於 輪島市河井町観測所) の余震発生を示す。

なお、本研究で行った分析法では迅速性に欠け、地下で岩石の破壊が始まっていることなどの地震の予兆を即時に知ることはできない。震源空白域におけるラドン連続測定システムの設置が望まれる。また、生活飲料水となっている地下水の放射性物質の濃度及びその変動についての研究データは少ないので、公衆衛生の観点からも継続的な調査が必要である。

本研究の成果は、以下の学会で発表済・発表予定である。

- ・第51回放射化学討論会（2007年9月24～27日，静岡市）
- ・第9回環境放射能研究会（2008年3月27～28日，つくば市）
- ・第45回アイソトープ・放射線研究発表会（2008年7月2～4日，東京）

6. 謝辞

本研究に際し、現地測定や試料採取に協力して下さった輪島市の皆さまに感謝いたします。また、ラドンモニタを借用させて下さった名古屋大学の飯田孝夫教授、サーベイメータの整備及び借用でお世話になった金沢大学アイソトープ理工系研究施設の長村雄一郎氏、環境ラドンの測定について助言をいただいた福井大学の西川嗣雄教授に感謝いたします。

7. 文献

- (1) H. Wakita, Y. Nakamura, K. Notsu, M. Noguchi, T. Asada: Radon anomaly: A possible precursor of the 1978 Izu-Oshima-Kinkai Earthquake, *Science*, Vol.207, No.4433, pp.882-883 (1980).
- (2) G. Igarashi, S. Saeki, N. Takahata, K. Sumikawa, S. Tasaka, Y. Sasaki, M. Takahashi, Y. Sano: Ground-water radon anomaly before the Kobe Earthquake in Japan, *Science*, Vol.269, No.5220, pp.60-61 (1995).
- (3) Y. Yasuoka, M. Shinogi: Anomaly in atmospheric radon concentration: A possible precursor of the 1995 Kobe, Japan, Earthquake, *Health Physics*, Vol.72, No.5, pp.759-761 (1997).
- (4) U. Tsunogai, H. Wakita: Precursory chemical changes in ground water: Kobe Earthquake, Japan, *Science*, Vol.269, No.5220, pp.61-63 (1995).
- (5) 小村和久, 稲垣美幸, 西川方敏, 中西 孝, 早川和一, 唐 寧, 楊 小陽, 飯田孝夫, 森泉 純: 能登半島地震前後の環境放射能の変動, *地球科学*, 61 巻, 5 号, 335-342 (2007).
- (6) 田崎和江, 中西 孝, 鈴木祐恵, 佐藤和也, 森井一誠, 鈴木健之: 空間放射線がとらえた能登半島地震: 被災地における空間ベータ線測定, *地球科学*, 61 巻, 5 号, 343-362 (2007).