

地下水中のラドンの連続観測

温泉地学研究所ラドン観測班*

神奈川県温泉地学研究所**

Radon Monitoring in Groundwater

by

Group of Rn Monitor

Hot Springs Research Institute of Kanagawa Prefecture

Hakone, Kanagawa

(Abstract)

Monitoring of Radon concentration in groundwater has been made during the period from November 1981 to February 1982 in order to obtain data relating to earthquake activity. No significant variation in Radon concentration was observed during that period.

はじめに

地震の先行現象には地下水の水位異常変化，濁り，着色変化や動物の異常行動などが知られている。地下水中のラドン変化も地震と関係があるといわれている。ソ連のタシケント地震（1966年4月26日，M 5.5）の時は地震の5～6年前から徐々にラドンが増え，直前には平常値の約3倍に達し，地震後元に戻ったという（池田ら1977）。また中国の海城地震（1975年2月4日，M7.3）の時は地震前にラドンが20～40%増加したという（池田ら1977）。日本におけるラドン観測は地質調査所，東大などで行われており，伊豆大島近海地震（1978年1月14日，M7.0）の時は，地震の約3ヶ月前から徐々にラドンが減少して，5～7日前にはラドンの急激な変化があったという（脇田1980）。

神奈川県温泉地学研究所では以前から地下水や温泉の水位変化等と地震との関係を調査研究しており，地震の前兆と推定される水位の異常変化を数多くとらえる事に成功している。

* 栗屋 徹，平野富雄，大木靖衛，平賀士郎，荻野喜作，小鷹滋郎，長瀬和雄，杉山茂夫，小沢 清，大山正雄，横山尚秀，伊東 博

** 神奈川県箱根町湯本997 〒250-03

神奈川県温泉地学研究所報告，第13巻，第5号，99-108，1982

1981年9月に液体シンチレーションカウンターが購入されてラドンの連続観測も行えるようになり、より一層地震予知のための観測が強化されるようになった。

ここでは、現在までのラドン連続観測の結果について報告する。

謝 辞

液体シンチレーションカウンターの購入に関して環境部環境総務室，衛生部環境衛生課の関係者に御礼申し上げたい。地下水採水など現地調査に便をはかって頂いた，湯本福住旅館，菅本建設，曾我病院，杉田商工，山北町長，秦野弘法水の管理者及び中井町長に御礼申し上げる。

観測地点

図1は地下水中のラドンの連続観測地点である。地点の選定は，(1)自噴井であること，(2)活断層に沿っているかその付近であること，(3)採水しやすいこと，(4)自動車で半日以内に周回できること，(5)地震予知に役立ちそうであること，等を考えて7地点を決めた。表1は観測地点の井戸状況および水質である。

福住湧泉（HK1）は箱根新期外輪山の湯坂山に横穴を掘り，基盤岩類の上部須雲川安山岩類中の亀裂から湧出してくる温泉を集めている（平野ら1980）。1981年11月から1982年2月までの温度は，

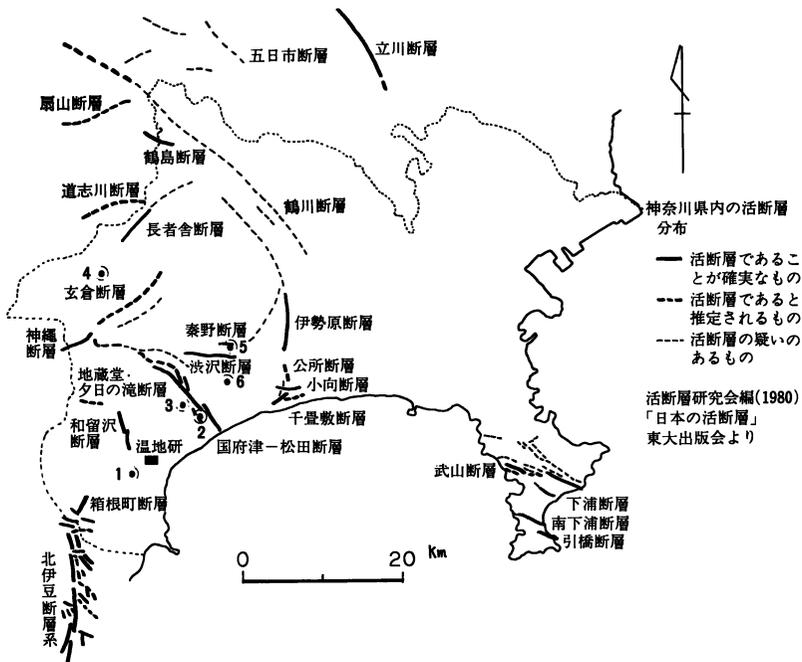


図1 観測地点の位置

1：湯本温泉（HK1），2：下曾我（SS1，SS2），3：大友（OD1），4：中川温泉（NA1），5：秦野（HD1），6：中井（NK1）

表 1 観測地点の井戸状況および水質

コード	地 区	名 前	温 度* (°C)	湧 出 量* (l/min)	井戸 内 径 (m)	深 さ (m)	採 水 日 (年月日)
HK1	湯 本 温 泉	福 住 湧 泉	44.2~45.3	114~125			1981. 10. 14
SS1	下 曾 我	菅 本 建 設	15.8~16.2		0.33	88	//
SS2	下 曾 我	曾 我 病 院	16.0~16.3	37~ 57	0.76	150	1982. 1. 6
OD1	大 友	杉 田 商 工	16.3~16.6	171~238	0.80	70	1981. 10. 14
NA1	中 川 温 泉	町 営 源 泉	32.4~33.4	13~ 22	0.73	116	//
HD1	秦 野	弘 法 清 水	15.9~16.3	87~100			//
NK1	中 井	町 役 場	16.1~16.9	9~ 13		25	//

コード	pH	温 度 (°C)	Resid (ppm)	K ⁻ (ppm)	Na ⁺ (ppm)	Ca ²⁺ (ppm)	Mg ²⁺ (ppm)	Cl ⁻ (ppm)	SO ₄ ²⁻ (ppm)	HCO ₃ ⁻ (ppm)	H ₂ SiO ₃ (ppm)
HK1	7.8	44.5	530	1.59	134	22.3	0.38	149	157	39.5	59.9
SS1	7.6	16.2	171	2.50	14.1	14.6	8.61	5.18	2.7	145	76.3
SS2	7.8	16.3	157	2.19	12.6	18.8	10.2	4.28	4.8	134	61.3
OD1	7.4	16.7	153	1.00	8.26	20.9	7.43	6.66	36.1	109	42.7
NA1	10.0	33.0	319	0.33	84.1	4.59	0.02	13.8	140	70.0	66.4
HD1	7.4	16.0	328	0.51	6,11	22.0	7.12	8.45	51.3	82.3	41.6
NK1	7.6	17.0	180	1.08	11.4	18.6	3.75	5.56	16.0	104	46.6

* 1981年11月~1982年2月の測定値

44.2~45.3°C, 湧出量は114~125 l/minであった。泉質は蒸発残留物530ppmの単純温泉である。

下曾我の菅本建設(SS1)の井戸は深さ88m, 更新世の礫層中の水であり, 国府津一松田断層に沿っている。この井戸は時々, 砂利等の洗浄用水としてポンプアップされている。温度は15.8~16.2°C, 水質は硫酸イオン(SO₄²⁻) 2.7 ppm, 重炭酸イオン(HCO₃⁻) 145 ppmである。

曾我病院(SS2)の井戸は, 前記SS1と約200mの近距離にあり, 1981年12月から観測を始めた。温度16.0~16.3°C, 湧出量37~57 l/minであった。水質はSO₄²⁻ 4.8 ppm, HCO₃⁻ 134 ppmでSS1とよく似ている。

大友(OD1)は井戸の深さ70mで, 2~3万年前の埋没段丘下の礫層中の水であり, 国道255号沿いに, 湧出量171~238 l/minと多量に自噴している。水質はSO₄²⁻が36.1 ppmとやや多い。

中川温泉(NA1)は深さ116m, 温度は32.4~33.4°C, 湧出量13~22 l/minで, pH10のアルカリ性単純温泉である。この付近には石英閃緑岩が広く分布しているが, ラドン濃度は7観測地点でもっとも低い値を示す。

秦野(HD1)の弘法清水は, 弘法大師と優しい娘の伝説で知られている。水温は15.9~16.3°C, 湧出量87~100 l/minであり, SO₄²⁻が51.3 ppmとやや多く, HCO₃⁻は82.3 ppmである。この付近には秦野断層, 渋沢断層が走っている。

中井（NK1）の採水位置は、町役場の正面の池である。池水は深さ25mの井戸から導いていて、20～30万年前の更新世中期の砂礫層中の水である。水温は16.1～16.9°C、湧出量9～13 l/minであり、 SO_4^{2-} 16.0ppm、 HCO_3^- 104ppmの水質である。

連続観測の手順

地下水中のラドンの測定方法は、鉱泉分析法指針（1978）、堀内（1978）、等を参考にした。しかし、毎週1回行う連続観測のためにだれでも測定操作が行えるようにとの配慮から、現地操作はなるべく短時間で行えるようにした。現地において有機溶剤を取扱うことは、環境汚染や悪臭、中毒などのおそれもあるので実験室のドラフト内で溶媒抽出を行い、測定後の廃液は回収し蒸留して再使用する事にした。溶媒抽出を採水後ただちに行う場合と、実験室に持帰り行う場合の比較などは次の項で述べる。

(1) 現地操作

試料水はサイホンや電動ポンプ等を利用して、気泡が入らないように注意して1 l ポリびんの口元いっぱいまで採水し密栓する。1地点につき2本採水し、後の測定結果において誤差の小さい方を採用した。

同時に、採水時刻を記入し、水温および湧出量の測定を行う。試料水は直射日光があたらないようにしてアイスノン等で冷却し実験室まで運ぶ。

(2) 実験室操作

試料水を1 lの標線までこぼして、手早く有機溶媒（PPO 4 g + POPOP 0.1 g + トルエン 1 l）30 ml をジベット分注器で加えて密栓する。このポリびんを振とう器で5分間かくはん後、倒立してしばらく静置する。

ドラフト内において、図2のように水タンクをセットして、ラドンを抽出した有機相を水で押し上げて25 ml ポリバイアルに移す。その時に水を混入させないように行う。

ポリバイアルの重さをはかり容量換算して溶媒回収率（A）を求める。溶媒は30 ml 加えて、抽出後の回収量は20～23 ml とバイアルいっぱいまで回収できた。溶媒の余分量はセパルターで水相と有機相を分離して廃液びんに保存する。

(3) 液シン室操作

低バックグラウンド型液体シンチレーションカウンター（LSC-LB1、アロカ製）は、1度に15個の測定ができるので、連続観測用として毎週1回、7地点14試料とバックグラウンド試料を採水当日にカウンターにかけ計数することにした。計数時間は10 min、2回を順次くり返して行い最大計数値を採用した。

(4) ラドン濃度の計算

前記の文献を参照して次のように簡略化した。

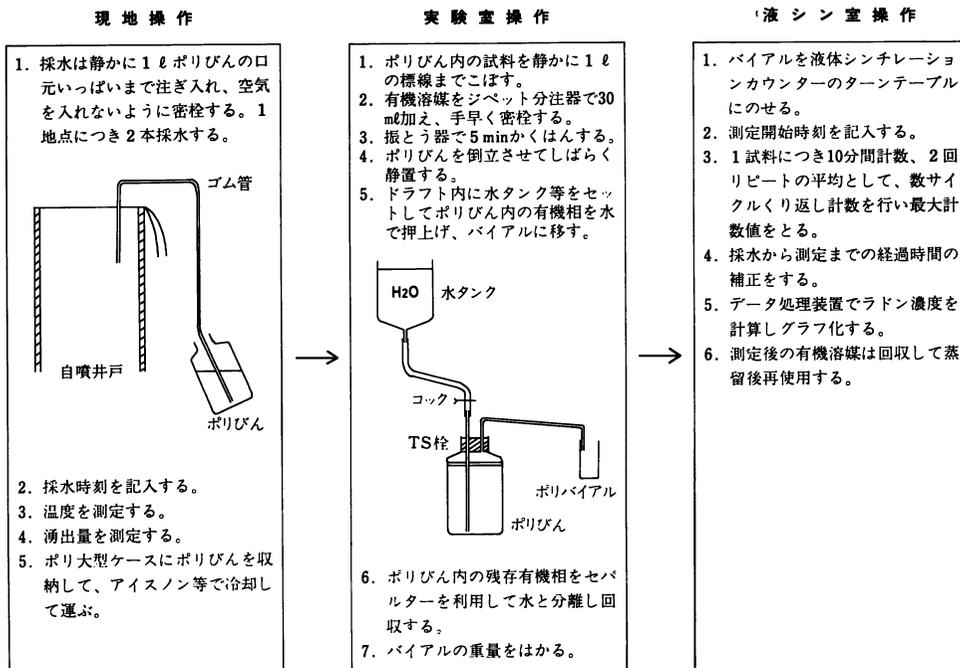


図2 ラドン連続観測の手順

ラドン計数率 (単位 cpm=counts per minute)

$$N = 2(S_H - B_H) - (S_C - B_C)$$

S_H , S_C : サンプルの H , C チャンネルの計数値 (cpm), B_H , B_C : バックグラウンドの H , C チャンネルの計数値

ラドン崩壊率 (壊変率) (単位 dpm=decay per minute)

$$N_0 = N \cdot \exp(\lambda t) \cdot B / (5 A)$$

λ : ラドンの崩壊定数 $1.258 \times 10^{-4} \text{min}^{-1}$, t : 採水から測定までの経過時間 (min), B : 溶解度の補正項 (≈ 2.16), A : 溶媒の回収率, $A = ((W - 6.9) / 0.86694) / 30$, W : バイアル+回収した有機相の重量

ラドン濃度 (単位 pCi/l=pico Curie per litre, $1 \text{pCi/l} = 10^{-12} \text{Ci/l} \approx 6.6 \times 10^{-15} \text{ppm} \approx 0.0027$ マッヘ)

$$Q = 0.4505 \cdot N_0$$

(5) 測定誤差について

上記の測定方法において理論的に考えられる測定誤差は次のようになる。

試料の量 ($1,000 \pm 20 \text{ml}$) 測定誤差 $\pm 2.0\%$, 溶媒添加量 ($30 \pm 0.3 \text{ml}$) 測定誤差 $\pm 1.0\%$, 溶媒回収量 (22 ± 0.19) 測定誤差 $\pm 0.7\%$, 経過時間 ($600 \pm 30 \text{min}$) 測定誤差 $\pm 0.4\%$, S_H, S_C (500

表 2 方法の比較 (I)

	Name	Date	LS2(ml)	Rn(cpm)	Rn(pCi/l)	Method
HK 1	Fukuzumi	1981. 10. 21 9:40	23.1	70.7	18.9	FFHS
		1981. 10. 21 9:40	20.0	70.0	22.0	FFH
		1981. 10. 21 9:40	23.1	41.6	13.0	LLHS
SS 1	Shimosoga	1981. 10. 21 10:40	23.1	137.7	36.6	FFHS
		1981. 10. 21 10:40	24.0	139.6	36.3	FFH
OD 1	Odomo	1981. 10. 21 11:30	23.1	249.7	66.2	FFHS
		1981. 10. 21 11:30	23.1	273.2	73.6	FFH
NA 1	Nakagawa	1981. 10. 21 13:20	23.1	33.9	8.9	FFHS
		1981. 10. 21 13:20	24.0	36.6	9.4	FFH
		1981. 10. 21 13:20	23.1	29.2	8.9	LLHS
HD 1	Hadano	1981. 10. 21 14:40	25.0	263.2	63.1	FFHS
		1981. 10. 21 14:40	24.0	244.5	62.2	FFH
		1981. 10. 21 14:40	23.1	172.5	52.2	LLHS
		1981. 10. 21 14:40	23.1	244.2	72.9	FLM
NK 1	Nakai	1981. 10. 21 15:20	23.1	432.6	112.3	FFHS
		1981. 10. 21 15:20	23.1	451.5	119.2	FFH
		1981. 10. 21 15:20	23.1	522.3	155.6	FLM

(LS2: バイアルに集めた溶媒量)

±10.0cpm) 測定誤差±2.1%, B_H, E_C (8 ± 2.0 cpm) 測定誤差±0.5%, 測定誤差の合計6.7%

測定方法の比較

前記の連続観測の手順を決めるまでに、色々な方法によるラドン濃度を比較したのでここに述べる。
 方法は大きく分けて、(1)現地で分液ロートに試料をとり溶媒を加え、手動かくはん後有機相をバイアル

表 3 方法の比較 (II)

	Name	Date	LS2(ml)	Rn(cpm)	Rn(pCi/l)	Method
SS 1	Shimosoga	1981. 11. 11 10:13	20.4	169.0	51.0	FLM
OD 1	Odomo	1981. 11. 11 10:43	21.1	288.6	84.1	FLM
		1981. 11. 11 10:43	20.4	205.7	62.1	FFH
HD 1	Hadano	1981. 11. 11 13:35	21.2	287.1	82.0	FLM
		1981. 11. 11 13:35	20.4	290.6	86.3	FFH
NK 1	Nakai	1981. 11. 11 14:00	20.3	536.2	160.4	FLM
HK 1	Fukuzumi	1981. 11. 4 9:30	21.0	55.6	16.4	FLMS
		1981. 11. 4 9:30	21.3	82.9	24.0	FLM
SS 1	Shimosoga	1981. 11. 4 10:10	21.1	136.8	39.9	FLMS
		1981. 11. 4 10:10	21.9	177.4	50.0	FLM
OD 1	Odomo	1981. 11. 4 10:25	20.5	209.4	62.9	FLMS
		1981. 11. 4 10:25	20.6	253.6	75.9	FLM
NA 1	Nakagawa	1981. 11. 4 11:15	20.9	27.5	8.1	FLMS
		1981. 11. 4 11:15	20.4	38.8	11.7	FLM
HD 1	Hadano	1981. 11. 4 13:14	21.8	249.8	69.6	FLMS
		1981. 11. 4 13:14	21.1	268.5	77.4	FLM
NK 1	Nakai	1981. 11. 4 13:40	21.6	514.0	144.7	FLMS
		1981. 11. 4 13:40	21.1	523.3	150.7	FLM

表4 方法の比較(III)

	Name	Date	LS2(ml)	Rn(cpm)	Rn(pCi/l)	Method
HK 1	Fukuzumi	1981. 12. 16 9:30	15.3	53.3	21.5	F L M
		1981. 12. 16 9:30	22.8	60.4	16.4	L L M
S S 1	Shimosoga	1981. 12. 16 10:00	23.3	181.1	48.1	F L M
		1981. 12. 16 10:00	22.4	179.0	49.6	L L M
S S 2	Soga H.	1981. 12. 16 10:30	22.3	173.9	48.3	F L M
		1981. 12. 16 10:30	23.3	167.6	44.6	L L M
O D 1	Odomo	1981. 12. 16 11:00	21.7	302.1	86.1	F L M
		1981. 12. 16 11:00	23.4	339.6	89.8	L L M
N A 1	Nakagawa	1981. 12. 16 11:50	20.9	38.9	11.5	F L M
		1981. 12. 16 11:50	22.3	38.1	10.6	L L M
H D 1	Hadano	1981. 12. 16 13:50	22.6	287.2	77.3	F L M
		1981. 12. 16 13:50	23.5	316.7	82.0	L L M
N K 1	Nakai	1981. 12. 16 14:10	22.4	582.4	158.4	F L M
		1981. 12. 16 14:10	23.2	594.4	156.3	L L M

に集める方法(F F H), (2)現地でポリびんに試料をとり溶媒を加え, 実験室で電動かくはん後有機相を集める方法(F L M), (3)現地でポリびんに試料をいっぱいみだし, 実験室で溶媒を加え, 電動かくはん後有機相を集める方法(L L M)の3種類である。

表2~4の方法の記号は, F(Field), L(Labo), H(Hand), S(Sepalter), M(Machine)の略である。

(1) 方法の比較 I

表2より, 現地で抽出を行った時, セパルター(水は通さず有機相のみ通過させる特殊フィルター)を利用した方法(F F H S)と利用しない方法(F F H)の比較はほとんど違いがないようである。ポリびん中の試料に溶媒を加え, 実験室で電動かくはん, 抽出を行う方法(F L M)が高い値を示す。

(2) 方法の比較 II

表3より, 分液ロートを手動かくはんする方法(F F H)と, ポリびんを電動かくはんする方法(F L M)の比較は大差ないが, 前者は操作の個人差による不均一がめだつ。

セパルターを利用する方法(F L M S)と利用しない方法(F L M)の比較は利用しない方が高い値を示す。

(3) 方法の比較 III

表4より, 現地で溶媒を加える方法(F L M)と, 実験室で溶媒を加える方法(L L M)の比較はほとんど同じで, その違いは測定誤差以内である。

以上の結果に加えて, 溶媒を加える時期は採水直後が最も良いが現地で有機溶媒を扱う事は環境汚染のおそれもあり, 匂いなどが自動車内にこもる等の問題もあり, だれでも操作できるようにとの観点から難があるので, ラドンの連続観測には現地でポリびんに試料水をいっぱいみだし, その日のうちに実験室で溶媒を加え電動かくはん後有機相を集める方法(L L M)を採用した。

表 5 経 過 時 間

Name		Sampl. Date (T1)				
NK1 Nakai		1982. 2. 10 14 : 0				
Extr. Date(T2)	Meas. Date(T3)	T3-T1 (min)	Rn(cpm)	Kt	Rn(pCi/l)	
2. 10 16 : 0	2. 10 21 : 21	309	594.3	1.040	154.1	
2. 12 8 : 50	2. 12 13 : 32	2,742	304.8	1.412	140.5	
2. 13 8 : 40	2. 13 10 : 58	4,094	231.6	1.674	103.8	
Name		Sampl. Date (T1)				
NK1 Nakai		1982. 2. 18 14 : 40				
Extr. Date (T2)	Meas. Date (T3)	T3-T1 (min)	Rn(cpm)	Kt	Rn(pCi/l)	
2. 18 17 : 0	2. 19 4 : 26	518	569.4	1.067	156.1	
2. 19 16 : 0	2. 19 21 : 12	1,832	456.4	1.259	150.7	
2. 20 11 : 0	2. 20 17 : 30	3,100	375.0	1.477	136.1	
2. 22 9 : 0	2. 22 11 : 35	5,575	240.2	2.016	119.6	
2. 23 10 : 30	2. 23 15 : 57	7,277	181.2	2.498	111.2	
2. 25 9 : 0	2. 25 18 : 5	10,285	117.4	3.647	113.4	
2. 27 9 : 0	2. 27 12 : 56	12,856	66.3	5.039	87.6	
2. 18 17 : 0	2. 19 9 : 29	1,129	538.7	1.153	148.9*	
2. 19 16 : 0	2. 19 21 : 56	1,876	401.8	1.266	129.4*	
2. 18 17 : 0	2. 19 10 : 35	1,195	541.4	1.162	159.2	
2. 18 17 : 0	2. 19 19 : 0	1,700	505.0	1.238	160.7	
2. 18 17 : 0	2. 20 14 : 40	2,880	434.5	1.437	156.1	

Sampl. Date : 採水時刻, Extr. Date : 抽出時刻, Meas. Date : 測定時刻, T3-T1 : 採水から測定までの経過時間, Kt : 経過時間の補正, $Kt = \exp(\lambda t)$. $t = T3 - T1$. Rn(cpm) : 計数率(時間補正なし), Rn(pCi/l) : ラドン濃度(時間補正あり), * ガラスバイアル使用

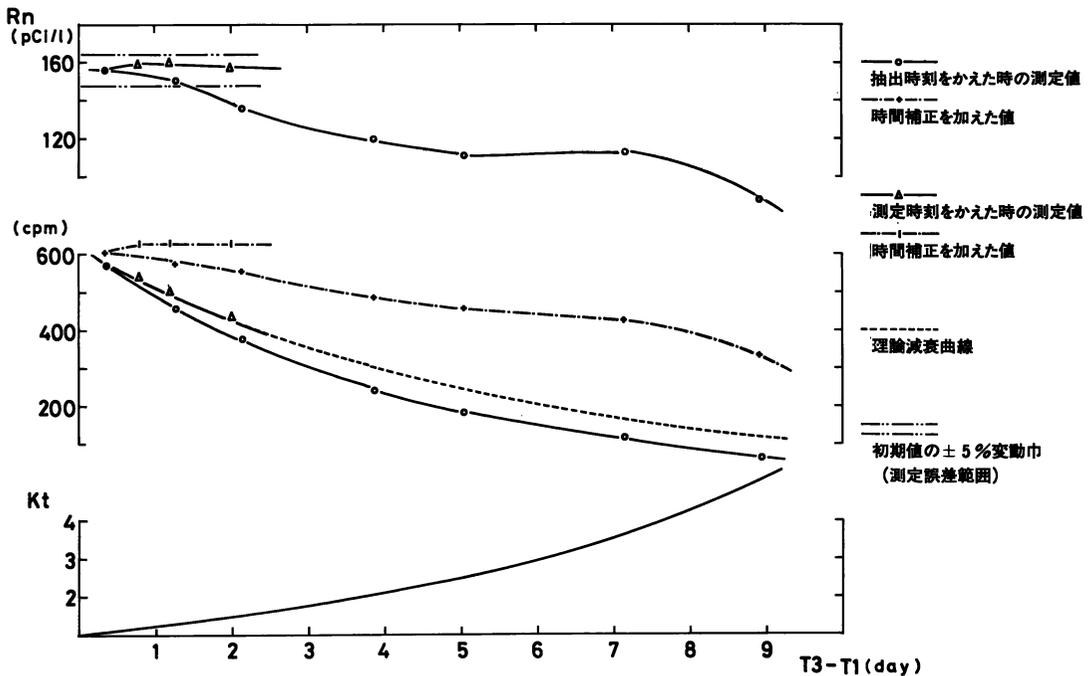


図 3 経 過 時 間

経過時間

ラドン濃度の計算式には採水から測定（液体シンチレーションカウンターで計数率を求めること）までの経過時間の補正項がある。

表5は同じ試料を何本かホリびんにつめて溶媒を加える日時をずらせて、経過時間の検討を行ったものである。図3は表5の2月18日採水のデータをプロットした。

採水当日に測定した試料を基準にして、測定日時をずらせた場合は計数率は当然、理論的な減衰曲線にのっており、試料をホリびんに保存して溶媒を加える時期をずらせた場合は減衰に加えて揮発逸散や吸着などにより計数率は減少する。経過時間の補正を加えても、溶媒を加える日時がおそくなると誤差が大きくなる。

測定誤差を5%と考えると、ラドン濃度 (pCi/l) は経過時間が1.5日以内ならば測定誤差範囲内で変化ないと見なせる。すなわち採水から測定まで1日半以内に行えばよいと考えられる。

なお、ガラスバイアルで測定した場合にはホリバイアルの場合よりかなり低い値であった。

結 果

1981年11月から1982年2月までの地下水中ラドン濃度の連続観測結果は、図4のとおりである。

湯本温泉 (HK1) のラドン濃度は16.1~25.5pCi/l (平均19.7pCi/l) であり、中川温泉 (NA1)

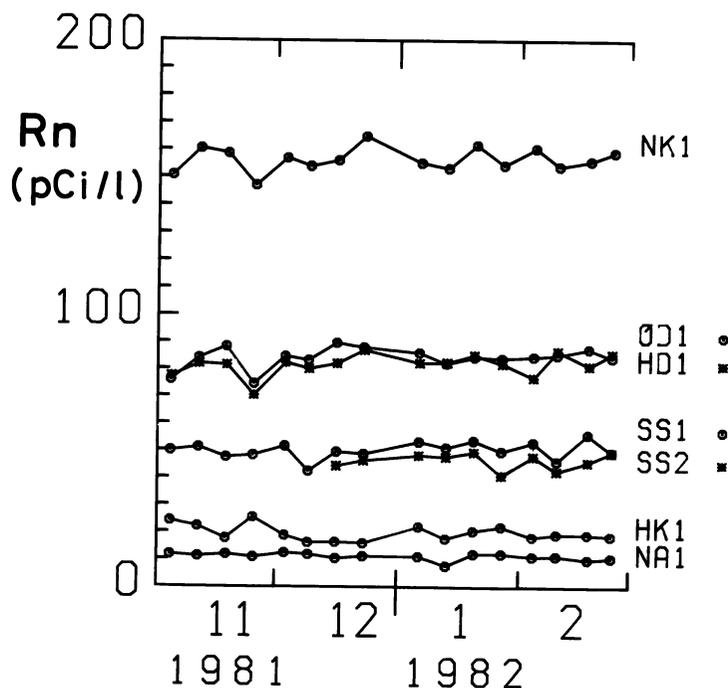


図4 結 果

のラドンは7.6~12.5 pCi/l (平均11.1 pCi/l) である。両地点のラドンはかなり低く、その変動幅は29~32%と大きい。この理由はよくわからないが、地層中にラジウムが少い事とか、流動しやすい水であるとか、温度が高くてラドンが空気中へ逃げやすい事が考えられる。

下曽我の2地点 (SS 1, SS 2) は距離が約200mと近く、水質も似ており、ラドン濃度も41.0~53.6 pCi/l (平均48.7 pCi/l) とよく似ている (変動幅12~15%)。両地点は同じ水系と考えられる。

大友 (OD 1) は埋没段丘下の礫層中の水であり、湧出量は約200 l/minと多く、秦野 (HD 1) は洪沢断層に沿っており、湧出量は約100 l/minである。両地点のラドン濃度は70.2~89.8 pCi/l (平均82.9 pCi/l) と比較的高い値を示す (変動幅12~14%)。

中井 (NK 1) は観測地点中、最もラドン濃度が高く、147~165 pCi/l (平均157 pCi/l) であり、その変動幅は最大6%と小さい。ラドン濃度が高い理由もよくわからないが、地質構造や地下水の流動機構を反映していると考えられる。これについては、次の機会に検討したい。

これまでの測定結果では、各地点のラドン濃度の変動幅は小さく、湯本温泉、中川温泉を除いて変動幅は6~16%の範囲内にある。将来、この変動幅が50%以上に変化するようになれば、地震前兆の検出に成功するのではないかと考えている。

あとがき

1981年11月から1982年2月までの、神奈川県西部の7地点の地下水中ラドン濃度の連続観測結果をまとめた。

湯本温泉 (HK 1) と中川温泉 (NA 1) のラドン濃度はそれぞれ16.1~25.5 pCi/l, 7.6~12.5 pCi/lと低い値を示す。下曽我の2地点 (SS 1, SS 2) のラドン濃度はよく似ており、41.0~53.6 pCi/lである。大友 (OD 1) と秦野 (HD 1) は距離が離れているが、ラドン濃度は似ており70.2~89.8 pCi/lを示す。中井 (NK 1) では147~165 pCi/lと観測地点中、最もラドン濃度が高い。

各地点のラドンの変動幅は、湯本温泉と中川温泉で29~32%とやや大きいですが、中井では6%、その他では11~16%の範囲内にある。

ラドンは地震あるいは地層の動き、地質構造や地下水流動機構などに関係があると考えられるので、ラドン濃度の変動幅が50%以上に変化すれば、地震予知に役立てられるであろう。

参考文献

- 脇田 宏 (1980), 1978年伊豆大島近海地震の地球化学的前兆現象, 地震予知研究シンポジウム, 71-76.
- 池田喜代治, 阿部喜久男 (1977), 地震予知に関連する地下水の化学的性質, 地質ニュース, 第273巻, 第5号, 20-29.
- 堀内公子 (1978), 鉱泉中ラドンの抽出—液体シンチレーションカウンターによる新定量法について—, 温泉工学会誌, 第13巻, 第2号, 17-25.
- 鉱泉分析法指針 (改訂) (1978), 温泉工学会誌, 第13巻, 第1号.