

韓国釜山市東萊 (Dongrae) 温泉水のガンマ線測定
Gamma ray measurement for Dongrae hot spring water, Busan, South Korea

田中 剛^{1*} · Lee Seung-Gu² · Yoon Yoon Yeol³ · 柴田理尋⁴ · 近藤真理⁴ · 南 雅代⁵
Tsuyoshi Tanaka^{1*}, Seung-Gu Lee², Yoon Yeol Yoon³, Michihiro Shibata⁴, Mari Kondo⁴, Masayo Minami⁵

¹名古屋大学大学院環境学研究科 · ²韓国地質資源研究院地質研究部
³韓国地質資源研究院地球環境研究部 · ⁴名古屋大学アイソトープ総合センター
⁵名古屋大学宇宙地球環境研究所

¹ Graduate School of Environmental Studies, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8601, Japan

² Geology Division, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, Daejeon 34132, Republic of Korea

³ Geologic Environment Division, Korea Institute of Geoscience and Mineral Resources, Daejeon 34132, Republic of Korea

⁴ Radioisotope Research Center, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8602, Japan.

⁵ Institute for Space-Earth Environmental Research, Nagoya University, Chikusa, Nagoya 464-8601, Japan.

*Correspondence author. E-mail: tanakat@nagoya-u.jp

Abstract

Gamma rays from Dongrae hot spring water were measured using two low background Ge detectors. The hot spring water had been studied annually in its chemistry and isotopes by a KIGAM group. Its ¹⁴C content was about 70% of modern ¹⁴C that corresponds to 2900 BP. In 2017, a significantly high amount of ¹⁴C was detected in the Dongrae hot spring water. We wondered the reason of the high amount of ¹⁴C and examined gamma rays for the Dongrae hot spring water using two independent low background Ge detectors. No significant gamma rays other than originated ones from natural radioactive nuclides was detected.

Keywords: Dongrae hot spring Korea; ¹⁴C; gamma rays; Ge detector

キーワード：韓国東萊 (Dongrae) 温泉; 炭素14; γ 線スペクトル; ゲルマニウム半導体検出器

1. はじめに

韓国には15箇所ほどの非火山性温泉が知られている。その中で韓半島南西端にある東萊 (Dongrae) 温泉は、近くの海雲台 (Haeundae) 温泉と共に、白亜紀の花崗岩質岩中に発達した断層から産出し、古来より多くの人に親しまれてきた。火山のない韓半島にある温泉として、深度220 mの浅い井戸から湧き出す60°Cを超える泉温を生み出すその熱源もまた興味の対象であった。

金および中井 (1981) は、韓国の温泉水の水素、酸素および硫黄の同位体を測定した。東萊 (Dongrae) 温泉水の酸素および水素の同位体はその地域の天水線よりやや下方に位置し (軽い)、より高所あるいは北方に降った雨水の循環による事を示した。Lee et al. (2016) は、2004年から温泉水を継続的に採集・分析し、地下水の循環や熱源についての研究を進めてきた。Dongrae温泉の水質は、Piper図上でNa-Cl型に分類されるものの、そのマグネシウム含有量は、海水よりはるかに少なく、現世海水が循環加熱されたものではないと考えた。

2. 温泉周辺の地質

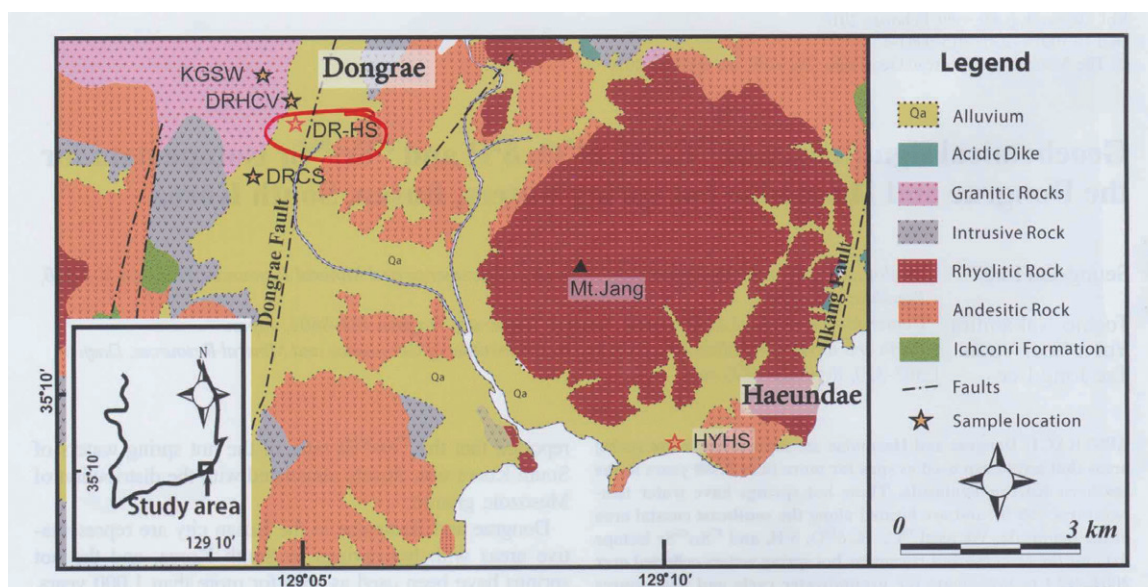
温泉周辺の地質図 (Lee et al., 2016) を第1図に示す。温泉は、白亜系花崗岩中に湧出する。花崗岩はカルクアルカリ岩系マグマから晶出したIタイプ花崗岩である。Yun et al. (2005) によれば、この花崗岩は大陸縁辺部に形成されたもので、 $69.6 \pm 1.9 (2\sigma)$ Maの放射年代値と $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 初生値 0.70503 ± 0.00015 を持つ。Dongrae 温泉は、Dongrae断層に沿った位置に湧出している。Geumjeong山 (第1図のKGSW地点の北に位置する) がこの地域の地下水の涵養源と考えられている。

3. 試料および分析法とこれまでの結果

温泉水試料は、2004年から2014年にかけて採集されてきた。加えて、2007年から2011年にかけては、周辺地域の温泉水も採集された。それぞれは、半径500 mの範囲内にある。温泉水は、 $0.45 \mu\text{m}$ のミリポアフィルターを通した後に2分割した。一つには酸を加え、Sr同位体および陽イオン分析に用い、他の酸を加えないものは、陰イオン、 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 、 $\delta^{13}\text{C}$ 及び ^{14}C 分析に用いた。 ^{14}C 分析の詳細はLee et al. (2016)に述べられているが、以下に要点を記す。

溶存無機炭素は、アンモニア水に溶かした SrCl_2 を加えることにより、 SrCO_3 として沈殿させた。沈殿した SrCO_3 は、名古屋大学の真空ライン中でリン酸と反応させ、 CO_2 とした。その CO_2 は、真空ライン中で金属鉄を触媒として水素を用いるWatanabe et al. (2013)の方法によりグラファイトに還元された。 ^{14}C 測定は名古屋大学宇宙地球環境研究所年代測定研究部門の加速器質量分析計 (AMS, Model-4130, High Voltage Engineering Europe) を用いて行われた。

2004年から2014年にかけての水質変化や同位体変化の詳細は、Lee et al. (2016)に述べられており、極めて一定であることが示されている。 ^{14}C 存在度も現在値 (1950年値)の ^{14}C 量の70~80%で、2000~3000年の年代に相当する値を示していた。これらのことからLee et al. (2016)は、温泉水は地表水とは隔離された環境にあり、化石海水を主体とする水が加熱されたものと考えた。



第1図：韓半島南部Dongrae 温泉およびその周辺の地質。図中赤丸で囲ったDR-HS地点が温泉水試料の採集地点。Lee et al. (2016) による。

4. 新たな疑問点とガンマ線測定

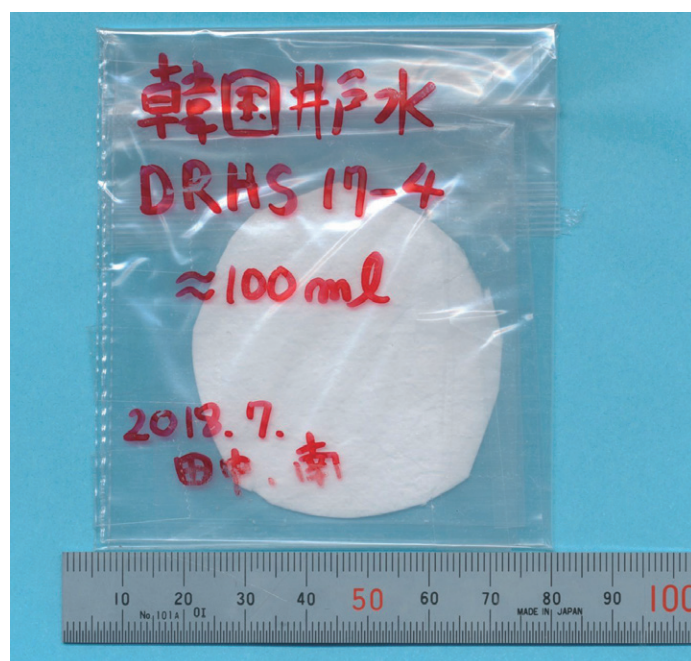
ところが、2017年に採集したDongrae 温泉水をこれまでと同様な分析手法で分析したところ、化学成分に大きな違いはなかったものの、 ^{14}C は現在(1950年)の値をはるかに超える ^{14}C 量が検出された。温泉水が多量の ^{14}C を含むに至った理由としていくつかの原因が考えられた。一つは試料を扱った実験室内における人為汚染である。しかし、これまでの試料も同じ実験室内で処理がなされており、2017年に採集した試料に限った汚染は考えにくい。2番目の可能性は、温泉井戸の近くにある原子力発電所施設からの漏洩 ^{14}C による汚染である。3番目の可能性は、かつての太平洋上における核実験時に放出された ^{14}C が当時の雨水とともにこの地域の地下に浸透し、50年後の今日に至って温泉水として再度地表に現れた、と考えるものである。2番目や3番目の可能性を検討する時に参考になるのが他の放射性核種の存在である。本報告では、比較的容易に測定が為し得るガンマ線測定を行った。

試料は取扱を容易にするため、高濃度の ^{14}C 量が検出されたDRHS17-4 温泉水試料 約100 mlを韓国地質資源研究院の実験室においてテフロンビーカーに分取し、約70°Cで濃縮、直径約5 cmの濾紙上に乾固させた。この濾紙をポリエチレン袋に封入し、測定試料とした。(第2図)

測定は、①韓国地質資源研究院分析センターに設置されている、相対効率100%のキャンベラ社製同軸型ゲルマニウム半導体検出器を6インチ厚の鉛遮蔽体内に格納した低バックグラウンド測定器。および、②名古屋大学アイソトープ総合センターに設置されている、相対効率40%のキャンベラ社製同軸型ゲルマニウム半導体検出器を10 cm厚の鉛遮蔽体内に格納した低バックグラウンド測定器、の2機種を用いて、それぞれ独立に測定を行った。

韓国地質資源研究院分析センターの測定器で2018年7月20日に100,000秒測定したスペクトルおよび同年4月29日に同じく100,000秒測定したバックグラウンドスペクトルを並べて第3図に示す。横軸は、3000 keVを8192チャンネルに分割表示したもので、縦軸は通常スケール表示である。第3図に温泉水のスペクトルとバックグラウンドスペクトルの二つを横軸を一致させて示したが、両スペクトルの間に明確な違いは見出されない。同定される顕著なピークに核種名を記した。

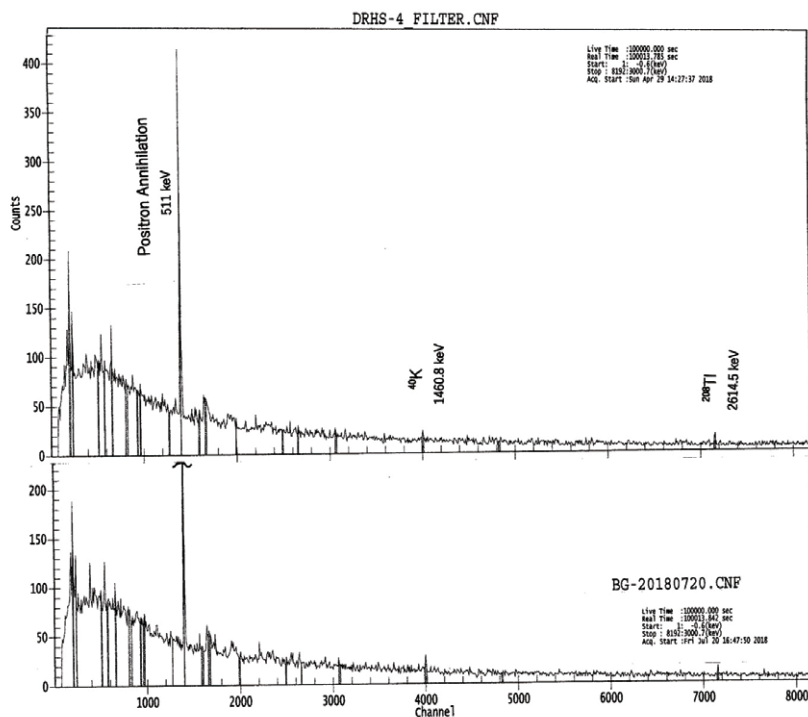
名古屋大学における測定では、さらに長時間の1,808,499秒(約21日間)の測定を行った。1,974,468秒間測定されたバックグラウンドスペクトルとともに第4図に示す。横軸は、1 keVあたり2チャンネルを割り当て、約2050 keVまでが4096チャンネルで示されている。韓国地質資源研究院分析セン



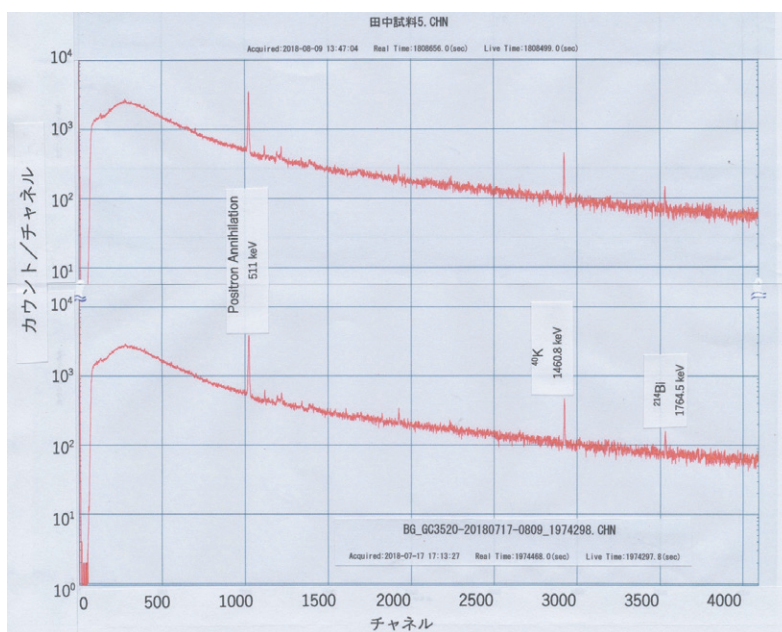
第2図：ガンマ線測定に供した試料DRHS17-4

ターの測定器でのスペクトルと横軸のエネルギー範囲が異なり、また縦軸は韓国地質資源研究院分析センターの測定器では通常スケールで表示されているのに対し、名古屋大学の装置では対数スケールで表示されているなどの違いはあるが、名古屋大学での測定でも試料のスペクトルとバックグラウンドのスペクトル間に顕著な差異は見出されない。同定される顕著なピークに核種名を記した。

名古屋大学アイソトープセンターでは、2008年に、やや小型の検出器ではあったが、さらに長時間（130日間）のバックグラウンド測定がなされ、トリウム、ウラン、アクチニウム各系列の核種、 ^{40}K の γ 線ピークに加えて、



第3図：韓国地質資源研究院分析センターの測定装置（詳細は本文中①）で測定されたガンマ線スペクトル。東萊 (Dongrae) 温泉水試料 (上方) およびバックグラウンド (下方)。



第4図：名古屋大学アイソトープ総合センターの測定装置（詳細は本文中②）で測定されたガンマ線スペクトル。東萊 (Dongrae) 温泉水試料 (上方) およびバックグラウンド (下方)。

宇宙線由来と思われる中性子による検出器自体および遮蔽構造材の非弾性散乱による多数の γ 線が同定されている(藤澤ほか, 2008)が, 本測定バックグラウンドは, それとも矛盾しない。

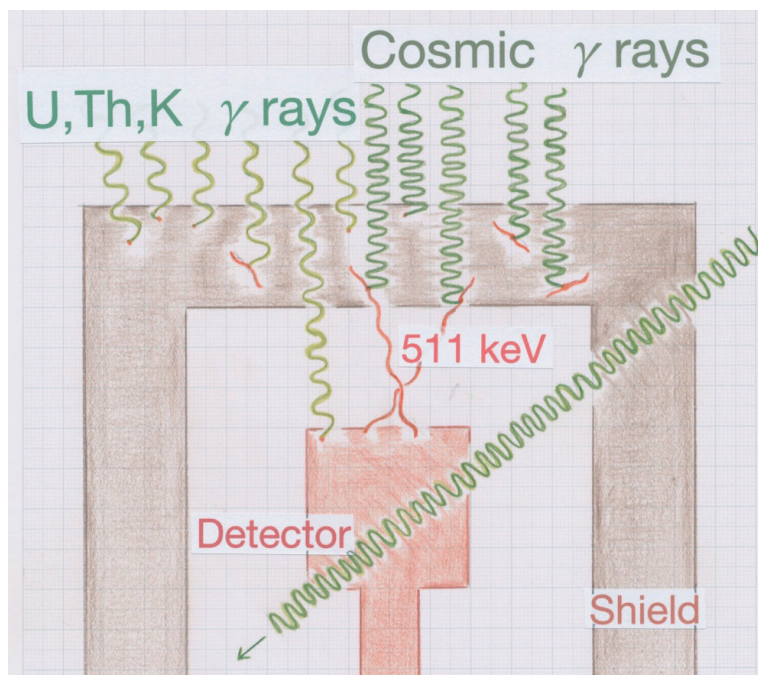
5. 考 察

韓半島南西端にある東萊(Dongrae)温泉の温泉水試料(DRHS17-4)に高濃度の ^{14}C が含まれていたことから, 他の放射性同位体の存否を調べるため, 韓国地質資源研究院および名古屋大学の低バックグラウンドガンマ線測定器を用いてガンマ線の測定を行った。いずれの測定においても, 試料スペクトルとバックグラウンドスペクトルとの間に有意の違いは見出せなかった。ただし, 測定に供した温泉水試料は, 70°C に加熱・乾燥した蒸発残渣が測定に用いられているので, 揮発性の放射性核種が存在していたとしても加熱時に揮散したことも考えられる。また, ガンマ線を放出しないアルファ・ベータ放射核種の存否は確認されていない。今後, ^{14}C を含む温泉水質の経時変化に注意するとともに, 温泉水を加熱乾固させずに, 水そのものを直接測定すること, ガンマ線放出核種以外の放射性核種を分析すること, 温泉水に加えて付近の地表水や井戸水, さらに草木類についても ^{14}C を含めた放射性核種の調査をすること, などが求められよう。

6. 511 keV 陽電子消滅ピークとそれを用いた宇宙線強度変化の日日測定

本研究における測定で得られた γ 線スペクトルは全て天然のバックグラウンドスペクトルであったが, 511 keVの陽電子消滅ピークは, ^{40}K からの1460.8 keV漏洩ピークの強度を遥かに凌ぐ巨大なものであった。この陽電子消滅ピークは, 鉛遮蔽体を通じた高エネルギーの宇宙線など, さらにバックグラウンドの γ 線が, 遮蔽体の内側で陽電子と陰電子の対生成を起こし, 生じた陽電子が消滅する時に生じた511 keV γ 線が測定されたものと考えられる。生成の様子をU, Th, の娘核種やKからの環境放射線と対比して模式的に示す(第5図)。

実験室に設置されている低バックグラウンド γ 線検出器で天体の消滅を示す高エネルギー宇宙線



第5図: 本研究に用いた低バックグラウンド γ 線検出装置内で生じた511 keV陽電子消滅 γ 線の生成メカニズム模式図。検出器に達するのは, 遮蔽体内側にまで達する宇宙線などの高エネルギー放射線により, 主として遮蔽体内側で生じた陽電子消滅 γ 線である。

(Longair, 2011) が 511 keV の陽電子消滅 γ 線として測定し得るならば、 ^{14}C の生成に参与している宇宙線(直接反応に預かるのは中性子であるが)の強度変化が日々の陽電子消滅ピークの大小として検出し得ることになる。物質に記録された ^{14}C 変化として平滑化された値で観測されてきた地球環境における宇宙線の時間変化がより高分解能で得られよう。

謝辞

名古屋大学宇宙地球環境研究所の北川浩之教授からは、以前名古屋大学で起こった実験室内における ^{14}C 汚染事故について、中村俊夫名誉教授からは、乗鞍における宇宙線観測についてそれぞれご助言をいただいた。

引用文献

- 金 奎漢・中井信之(1981) 韓国の温泉水の水素、酸素および硫黄同位体比. *地球化学*, **15**, 6-16.
- 藤澤未来子・小島 久・柴田理尋(2008) ゲルマニウム検出器で測定したガンマ線のバックグラウンドスペクトル. *Tracer*, **44**, 13-14.
- Lee, S-G, Nakamura, T., Yoon Y.-Y. and Lee, T.-J. (2016) Geochemical significance of ^{14}C , ^3H , $\delta^{18}\text{O}$, $\delta^2\text{H}$ and $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ isotope data for the Dongrae and Haeundae hot spring waters, Busan, South Korea. *Geosciences Jour.*, **20**, 89-99.
- Longair, M. S. (2011) *High Energy Astrophysics*. 3rd ed. Cambridge Univ. Press, New York. Pp.861.
- Watanabe, T., Nakamura, T., Matsunaka, T, Nara, F. W., Zhu, L., Wang, J., Kakegawa, T. and Nishimura, M. (2013) A chronology of the PY608E-PC sediment core (Lake Pumoiyum Co, southern Tibetan Plateau) based on radiocarbon dating of total organic carbon. *Nuclear Instru. and Methods in Physics Res.*, **B 294**, 520-523.
- Yun, S.-H., Koh, J.-S., Park, K.-S., Ahn, H.-C. and Kim, Y.-I. (2005) Rb-Sr whole rock isochron age and petrology of the Mt. Geumjeongsan Granite, Busan. *Jour. Petrol. Soc. Korea*, **14**, 61-72.

日本語要旨

韓半島南西端にある東萊(Dongrae)温泉は、近くの海雲台(Haeundae)温泉と共に、白亜紀の花崗岩質岩中から産し、古来より多くの人に親しまれてきた。火山のない韓半島にある温泉として、深度220 mの浅い井戸から湧き出す 60°C を超える泉温を生み出すその熱源もまた興味の対象であった。

2004年から2014年にかけての水質変化や同位体変化の詳細は、Lee et al. (2016)に述べられており、極めて一定であることが示されている。 ^{14}C 存在度も現在(1950年値)の ^{14}C 量の70~80%で、2000~3000年の年代に相当する値を示していた。これらのことからLee et al. (2016)は、温泉水は地表水とは隔離された環境にあり、化石海水を主体とする水が加熱されたものと考えていた。

ところが、2017年に採集したDongrae温泉水をこれまでと同様な分析手法で分析したところ、化学成分に大きな違いはなかったものの、 ^{14}C 量は現在(1950年)の値をはるかに超える ^{14}C が検出された。温泉水が多量の ^{14}C を含むに至った理由としていくつかの原因が考えられた。一つは試料を扱った実験室内における人為汚染である。しかし、これまでの試料も同じ実験室内で処理がなされており、2017年に採集した試料に限った汚染は考えにくい。2番目の可能性は、温泉のある地方にある原子力発電所からの ^{14}C による汚染である。3番目の可能性は、かつての太平洋上における核実験時に放出された ^{14}C が当時の雨水とともにこの地域の地下に浸透し、50年後の今日に至って温泉水として再度地表に現れた、と考えるものである。2番目や3番目の可能性を検討する時に参考になるのが他の放射性核種の存在である。本報告では、韓国地質資源研究院と名古屋大学アイソトープセンターに備えられている2台の独立した低バックグラウンド γ 線測定装置を用いて γ 線測定を行った。両装置において共に温泉水試料のスペクトルとバックグラウンドスペクトルの間に差は見出せなかった。