

アイソトープを用いた不均一性の調査法

小 前 隆 美*

Analysis of Heterogeneous Structure of Soils by Using Isotopes

Takami KOMAE

National Research Institute of Agricultural Engineering
Ministry of Agriculture, Forestry & Fisheries

1. はじめに

不均一性の評価は、計測の目的、計測対象のスケール、そして計測法のもつ分解能によって規定される。土の不均一性を知ることは力学的にも重要であろうが、ここでは透水媒体としての不均一性に着目したい。なお、筆者が専らとする試験研究の対象が広域の地下水であるため、ここでは「土壌」の範囲を超えて「地層」の不均一性となる部分を含むことをこたわっておきたい。

ラジオ・アイソトープ（以下 RI）には2つの使用方法がある。その1つは放射線源としての使用である。放射線と土との相互作用を利用して土の密度や含水量を計測する。それは透過又は散乱した範囲を平均化した情報であり、不均一性を求めるには狭い範囲を正確に計測することが重要となる。他の1つはトレーサとしての使用である。トレーサの存在位置や量の計測にその放射能が利用される。土中を透過したトレーサを指標にした解析では、投入点以下の透水構造の不均一性を一括して評価することになる。その過程を詳細に解析するためには、透過中のトレーサの位置と量を外部の検出器で高い空間的分解能で計測する技術が必要となる。土に対する RI の位置から、前者を外的診断法、後者を内的診断法と呼ぶことができる。ここでは、両者の現状と展望を概観してみた。

2. 土の外적診断法

(1) 土の主要元素と放射線の相互作用

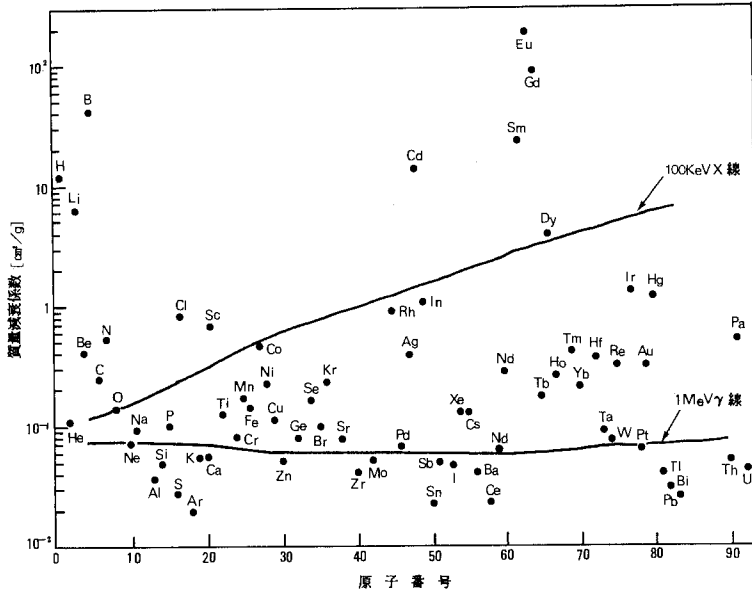
RI による外적診断法では、目的に最適な線質とエネルギーをもつ放射線の選択が重要となる。診断法の原理

は厚さ計に代表される。放射線が試料を透過するとき、放射線は試料を構成する原子との相互作用で散乱し、吸収される。その確率は核子の分布と相関をもち、元素ごとに質量吸収係数 (cm^2/g) として与えられる。エックス線、ガンマ線と中性子の質量吸収（減衰）係数を図-1¹⁾に示す。質量吸収係数は、同一組成の物質については構成元素のそれを合成して得られる。ここで、不均一な試料を想定すると、入射放射線強度を I_0 、透過後放射線強度を I 、試料の密度を ρ 、試料厚を X 、質量吸収係数を μ として、サフィックス i で試料を構成する要素（例えば土粒子と水とガス）を表すと、それらの関係は図-2中に示す式で与えられる。エックス線やガンマ線に対する質量吸収係数は原子番号との間に直線近似の相関関係がある。土の主要元素に対するガンマ線の質量吸収係数を図-2²⁾に示す。図-2から明らかなように、約 0.2 から 3 MeV までのエネルギーのガンマ線に対しては、土の主要元素ごとの質量吸収係数が極めて近似するため、どのような組成の土でも近似した質量吸収係数となり、土の密度計としての汎用性が保障される。

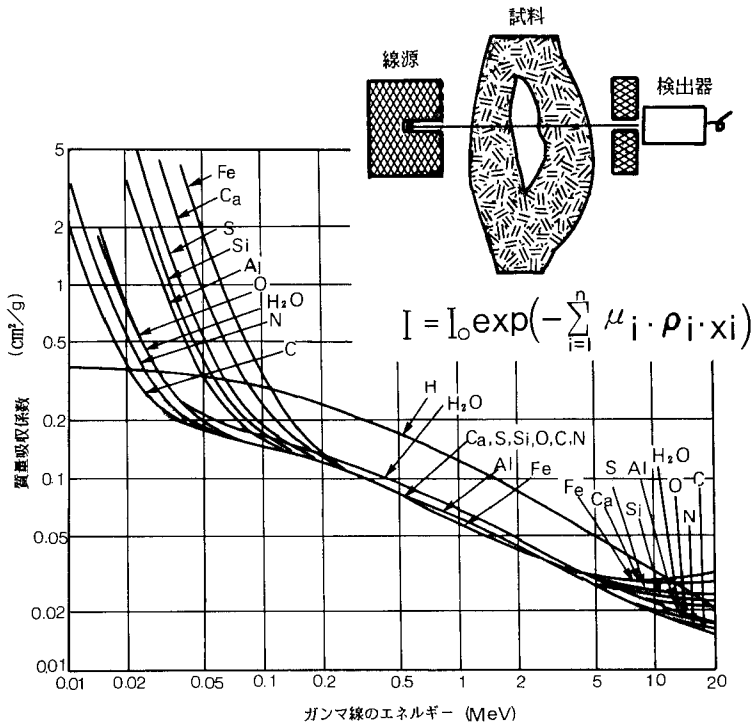
一方、中性子と物質との相互作用は中性子のもつ運動エネルギーによって差があり、中性子はエネルギーによって分類される。身近に線源として得られるものは 1 から 10 MeV のエネルギーをもち、高速（速）中性子とよぶ。その速度は光の約 1/10 であり、原子核に衝突すると捕獲（吸収）や散乱の反応が起こる。捕獲反応は後述の放射化作用である。散乱を繰り返すことで中性子は物質の温度で規定される熱エネルギーまで減速する。これを熱中性子とよぶ。散乱によるエネルギー変化は標的核の質量が中性子に近い程大きい、原子番号との間に明

*農業土木試験場

アイソトープを用いた不均一性の調査法



図一 熱中性子 (0.25 eV) および X 線 (100 keV), γ 線 (1 MeV) に対する各元素の質量減衰係数¹⁾



図二 γ 線のエネルギーと土の主要元素の質量吸収係数との関係²⁾

確な相関関係は認められない。

不均一性の評価には、計測の対象を一次線と散乱線のいずれにするかが重要な選択である。細く絞りこまれたビームが十分に小さな穴をもつコリメータを通過して検出器に入射する場合、それは散乱しなかった一次線のみが検出されることになり、高い空間的分解能を持った情報が得られる。

(2) エックス (X) 線透視

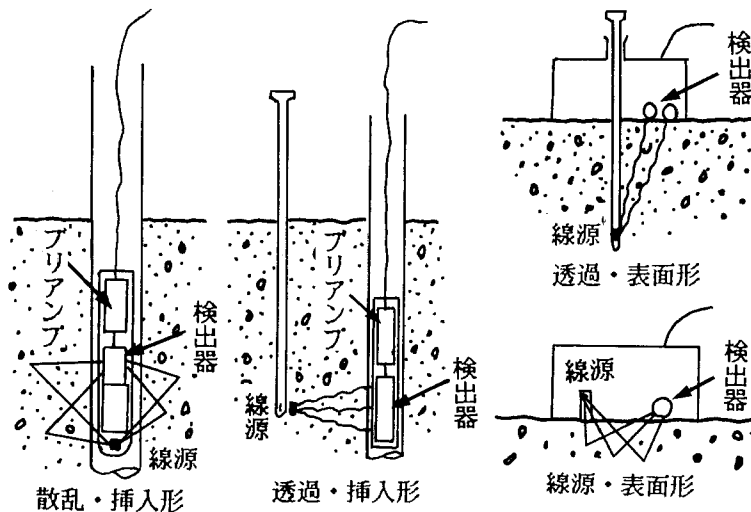
レントゲンが最初のX線写真を撮ったのは、約90年前のことである。X線は検体の密度や厚さにあわせて、そのエネルギーを選択できる長所をもち、そのために、非破壊検査手法の中では最も多用されている。近年において土の診断に用いられた例としては、次の二つが上げられる。一つは徳永ら³⁾による重液浸入法である。2 cm 厚のロームを供試体とし、その中に残存する根成孔隙を影像化したもので、適切な造影剤が選定できたことと、 0.3×0.3 mm という小さな光源が準備出来たことが明瞭な撮影を可能にしている。その分解能は $25 \mu\text{m}$ と報告されている。他の一つは中島ら⁴⁾による、動的な不均一性診断である。16 cm 厚のガラスビーズ層中に発生するクイックサンド現象を時系列的にとらえている。造影剤は使用せず、媒体のわずかな密度変化の影像化に成功している。さらに厚い試料にはガンマ線透視法が用いられる。

(3) ガンマ線密度計

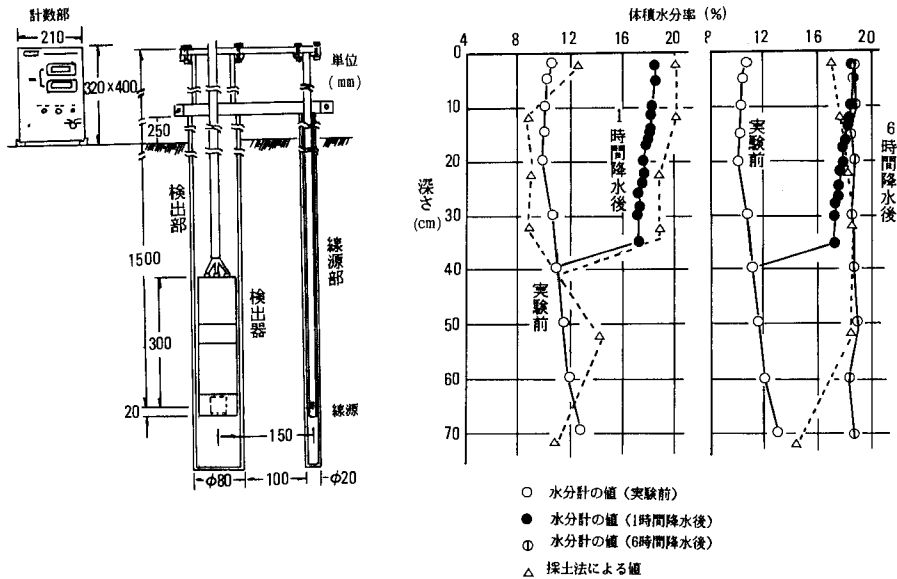
ガンマ線密度計は、1950年に Belcher によって原理が初めて発表され、その後1960年ごろにはわが国でも実用化研究が進んだ。原理によって透過型と散乱型に、使用

法によって表面型と挿入型に区分される。盛土工の管理等、深さ 10 cm までの土の密度の計測には、表面型透過密度計が用いられる。地質・地下水調査等更に深部までの地層の密度分布の計測には、挿入型散乱密度計が用いられる。線源には土の組成の影響が小さなエネルギー範囲にあって感度が比較的高い 662 keV のガンマ線を唯一放出し、半減期が約30年で長寿命な、 ^{137}Cs が選定され、数10 mCi のものが多用されている。高い透過能力が要求される場合には 1.17 と 1.33 MeV の高エネルギーガンマ線を放出する ^{60}Co が使用される。また小質量の供試体を高精度で測定する場合には、60 keV の低エネルギーガンマ線を放出する、 ^{241}Am が用いられることもある。検出器には一般に比較的安全で安定性のよい GM 管が採用されるがエネルギー弁別で一次ガンマ線のみを計測する場合には NaI (Tl) シンチレーション検出器を用いる。ガンマ線密度計の各形式を 図—3⁵⁾ に示す。

室内実験では、土の構造変化や含水量変化を透過型密度計で、検出系を供試体に沿って移動させながら非破壊で連続的に計測することができる。このため、空間的な不均一性のみならず、経時変化についても測定することができる。野外で使用する密度計は、 $0.8 \sim 2.5 \text{ g/cm}^3$ の範囲が測定でき、測定精度は約0.5%まで得られる。不均一性の空間的分解能は、測定容積 (有感容積) によって決定される。散乱線を計測する散乱型は大きな測定容積をもち、一次線を計測する透過型の測定容積は小さい。特に、線束が絞られた室内実験系では極めて小さく、分解能は mm オーダと高い。



図—3 γ 線密度計の諸形式⁵⁾

図—4 透過型速中性子水分計⁶⁾

今後は、野外での使用を簡便化するために、法*で取り扱いが規制されない100 μ Ci未滿の線源で地層の不均一性が評価できる精度を持った装置の開発が重要となる。農業土試験場ではすでに、試作装置で実用性の検討を開始した。また、室内実験系では、測定精度の向上と共に、計測と情報処理の自動化が指向されるものと思われる。

(4) 中性子水分計

中性子水分計の原理は図—1に示すように水素が土の主要元素に比べて100倍以上も高い中性子減速能を持つことを利用している。その原理は1941年にPontecorboによって初めて提案された。水分計には密度計と同様に4つの形式があるが、主に表面型透過水分計と挿入型散乱水分計が用いられる。線源には、これまで α -n反応を利用した $^{241}\text{Am}-\text{Be}$ 等が多用されたが、近年においては自発核分裂に伴って中性子を放出する ^{252}Cf が利用されるようになってきた。検出器には、BF3計数管、He計数管、シンチレーション検出器等が用いられる。よく整備された水分計では、0.01 g/cm³の水分量を数分間で $\pm 1\%$ の精度まで計測できるといわれている。しかしそれらは、何れも有感容積が大きいため、高い分解能で含水量の不均一性を評価することは困難である。これを克服するために、坂西⁶⁾によって熱中性子透過型水分計が開発されている。それは土中に10 cm間隔

で平行する2本の孔を設け、一方に線源を他方に検出器を挿入して表層から2 cm単位で水分量を計測することができる。装置の概要と適用例を図—4に示す。測定結果は、破壊した試料から求められた含水量に対し2%以下の誤差で一致し、十分実用的な性能が立証されている。今後は、ガンマ線密度計同様に法の適用を受けない装置の開発が進むほか、一定深度における連続測定や表層から下層までの繰り返し測定で含水量の経時変化や水分移動現象を把握する方法の自動化も可能となろう。

(5) X線CT (Computed Tomography)

近年、コンピューターの発達で情報の収集、演算、表示が高速で行えるようになり、これまで放射線の透過・散乱過程のトータルの密度や水分情報としてしか表現出来なかった非破壊検査法は、複数の情報の合成で密度や水分量の2次元分布を求めることが出来る段階へと飛躍的に進展した。この手法をコンピューテッド・トモグラフィ (CT) という。

実用的段階に達しているものにX線CTがある。それは1973年にHousefieldによって発明され、医学分野を中心に研究が進められ、今日では日本で約3500台が稼働している。土のX線CTを初めて公表したのはPetrovic⁷⁾である。出力電圧が300~400 kVのX線で分解能は1 mm余であった。今日では国産の機械も市販されており、医学・工業分野での応用が進んでいる。テストファントムでの撮影例を写真—1, 2, 3に示す。写真—1はボイドの分解能であり、最小径0.3 mm

*放射線障害防止法：RIの利用条件を規定している。

まで解像できる。写真—2はスリットの分解能である。間隙が長く連続するスリットでは、20 μm 幅まで解像できる。写真—3は外径10 cmの、クラックをもつセラミックスである。断面線にそった密度分布が解析表示される。多重スライスした情報から断面変換することも可能である。

現在のX線CTの一般的な性能は、土の透過能力が約15 cm、撮影領域が15~30 cm、不均一性分解能は識別密度差1%以上、スケール0.1 mm、スライス厚約0.6 mm位と思われる。また、より高い透過力を必要とする材料の非破壊検査用に近年分解能が1 mm以下の γ 線CTも開発され、工業利用がはかられている⁸⁾。

3. 土の内的診断法

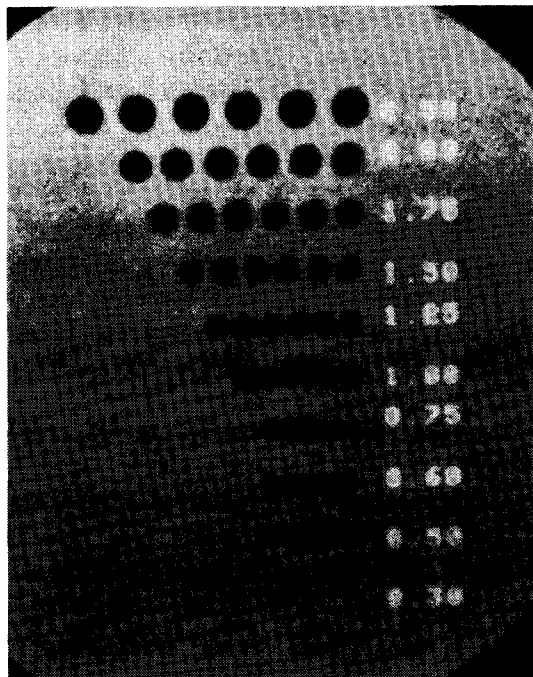
RIをトレーサとして用いる内的診断法は、土中を透過したトレーサの時間・流出濃度曲線で透過過程の透水構造を一括して解析する方法が一般的であるが、近年では、放射線計測と情報処理の技術が向上し、透過中のトレーサの位置と量を外部から非破壊で求める方法等も開発されている。また、野外では、人工のRIをトレーサとする実験が実施できないため、環境に存在する自然のRIを指標としてその分布と経時変化から流れ状態を解析する方法や、安定核種を投入して、回収後に原子炉で

RI化する放射化追跡子法の実用化が検討されている。

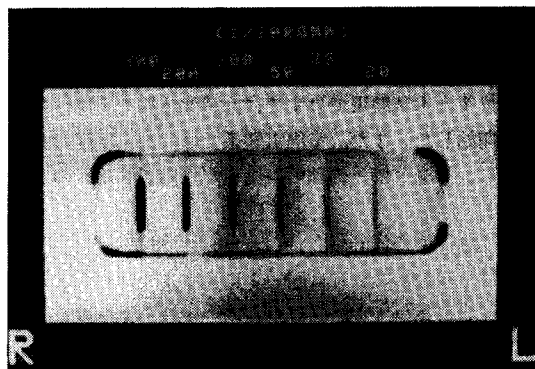
(1) RIトレーサ法

人工のRIをトレーサとする方法は、 10^{-5} ~ 10^{-1} ppmの極低濃度でも検出できる利点があり、これまでに ^{131}I 、 ^{32}P 、 ^{82}Br 、 ^{60}Co や ^3H (トリチウム)などが実用された。

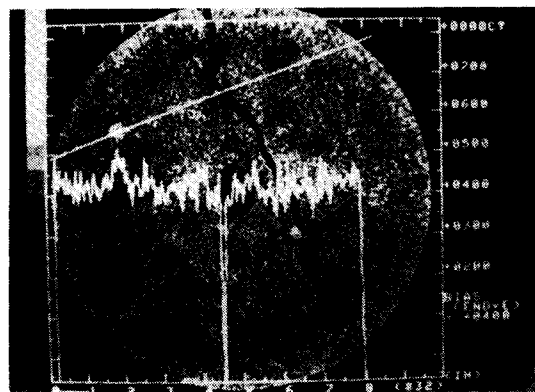
野外利用では、1950年代と60年代に、ダム漏水等の流水経路の検証から扇状地の地下水等の複雑な流れの解析まで、約30例が報告されている。以後は環境汚染等の理由で使用されていない。ダム漏水に利用された例⁹⁾を図—5に示す。追跡子は約1.6 $\mu\text{Ci/ml}$ の ^{131}I を100 ppmのNaIと500 ppmの Na_2SO_3 の担体とともに注水井から40 l投入し、注水井の下流11 mにNo. 3~5, 60 mにNo. 6~8, 99 mにNo. 9~13の観測井を設置して採水・測定している。この実験では左図のように種々の水みちを透過した追跡子パルスが複雑に重合した形で観測され、それは右図のように分離して解析されている。シルト質砂層の中の不均一な透水構造を野外において立証した貴重な実験である。その他、扇状地の地下水の解析で



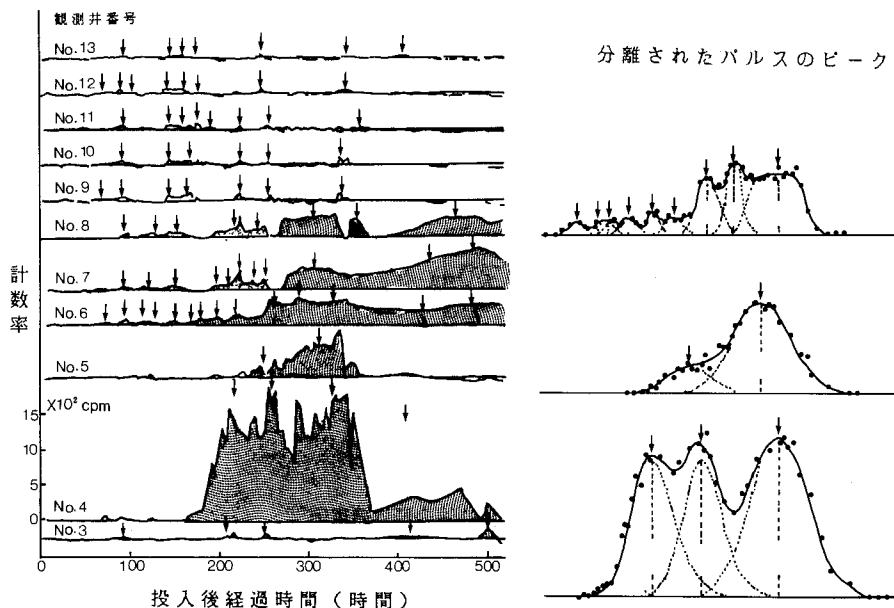
写真—1 X線CTの分解能1 (提供：東芝CAT部)



写真—2 X線CTの分解能1 (提供：東芝CAT部)



写真—3 X線CTの分解能1 (提供：東芝CAT部)

図-5 RIトレーサ法の野外適用例⁹⁾

は、揚水試験法で求めた平均流速の数十倍の速さをもつ不均一な地下水流の存在を立証している。多くの実験例では担体の選定等が不満足なために土への吸着損失が著しく、高い追跡能が得られていない。水の構成原子となって高い追跡能を持つトリチウムは、半減期が約12年もあって長期環境を汚染し、また後述する環境のトリチウムを指標とする方法を妨害する等の理由で、野外利用が避けられた歴史がある。

一方、室内実験では、トリチウムが水の追跡子として利用される。トリチウムは、法の適用を受けない濃度のものをさらに 10^{-2} 倍に希釈しても、1 mlの試水があれば、液体シンチレーションカウンタで10分測定して±1%の精度で濃度が求められるという簡便さをもつ。土の不均一性は、土中を透過したトレーサの時間・流出濃度曲線に機構的分散の効果として現れ、移流拡散方程式で解析できる。また、分岐した顕著な水みちが有る場合には、複数のピークとして現れ、それぞれのピークについて解析される。この場合、実験装置の構造が大きく影響するので、トレーサの投入機構と溢流水の回収法について、従来の水量を計測する透水試験装置とは異なる構造が必要となる。

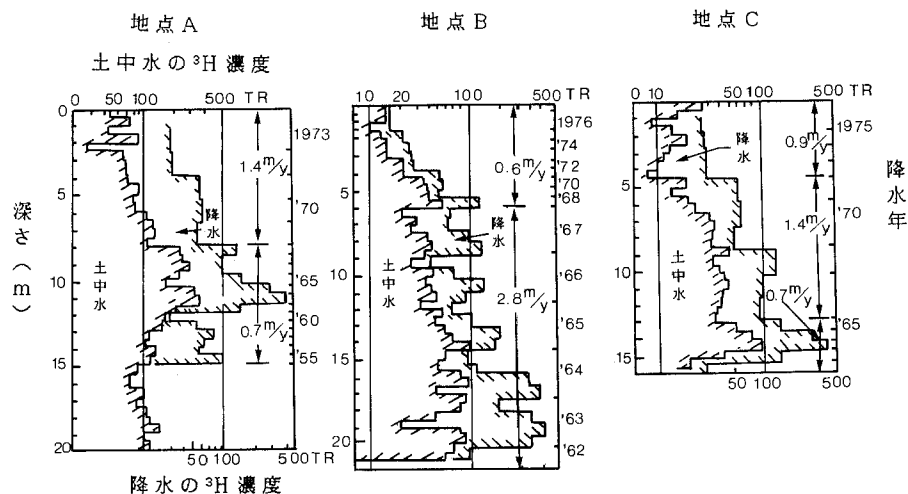
(2) 環境 RI 法

自然の水に含まれた放射性同位体を指標とする方法で、一地点からの流れの解析には使用できないが、野外での水循環の解析には極めて有効である。指標物質とし

ては ^{14}C 、 ^3H 、 ^{222}Rn 、 ^{238}U ・ ^{234}U 比等が研究されているが、土の不均一性の評価にはトリチウムと ^{222}Rn が有効である。

トリチウムは降水に起源があり、地下水の挙動は降水中のトリチウム濃度を基準に解析する。地下水のトリチウム濃度の測定は1952年のKaufmanらに始まり、地下水問題への利用研究は1957年のBegemannらに始まるとされている。1960年代の後半に入ると降水中の濃度の経時変化データが蓄積され、TeodorsonやDavis、木村、その他多くの研究者達によって水循環の解析に広く利用され始めた。図-6は木村¹⁰⁾によってローム台地での降水の垂直浸透を解析した例である。厚さ20 mの不飽和ローム層で深さ50 cmごとに土中水のトリチウム濃度を求め、不飽和層での遅い流れ成分の速度を解析している。降水のトリチウム濃度変化を比較的よく保存していることから、ローム層の透水構造の均一性が示されている。不均一性はこのプロファイルの乱れで認めることができる。

^{222}Rn は、地層中の ^{226}Ra に起源があり、地下水の挙動は地下水中の濃度分布と濃度の経時変化で解析する。地層が同一で ^{226}Ra 含有濃度が均一と仮定できれば、地下水中の ^{222}Rn 濃度は流れに関与する空隙表面積に比例し、流速に逆比例する。また、地層が異なる場合には濃度が異なるので地層の区分も可能である。また、半減期が約3.8日と短いために、過去2~3週間程度の流れ環

図-6 環境 RI 法の野外適用例¹⁰⁾

境のみを反映し、観測点の直上流の透水構造のみが解析の対象となることも大きな特徴である。 ^{222}Rn 濃度の測定には一般に 500 ml の試水を必要とするため、室内での利用は大規模な実験に限られよう。

(3) 放射化追跡子法

人工の RI トレーサ法に代わるもので、一地点からの流れを直接追跡する方法である。放射能をもたない少量の追跡子を投入し、回収後に原子炉で放射化して分析する。このような原子炉による放射化分析は、1951年に Leddicotte と Reynolds によって初めて行われた。わが国で盛んに研究されたのは原子炉 JRR-1 の利用が始まった 1958 年以降である。利用は、生体中の微量元素や地球化学的試料中の微量元素の非破壊定量分析が主であり、地下水の追跡子としての応用研究は少ない。指標物質の選定にあたって検討すべき項目は、およそ次のとおりである。まず、長距離を透過できる条件として、分子構造が最小空隙よりも小さいこと、幅広い pH 領域で化学的に安定であること、土粒子への吸着損失が十分小さいことがあげられる。次に、高い分析精度が得られる条件として、環境での存在濃度が投入濃度に対して十分小さいこと、試料調整の過程で系外からの混入の危険が無いこと、放射化感度が高いこと、放射化された核種から検出・定量が容易な放射線が放出されることなどがあげられる。さらに、実用には、化学的毒性がないこと、低コストであることが重要となる。

これまで、Rb や Zn を貯水池の漏水調査に利用した例¹¹⁾、Dy や In のキレート化合物を深層地下水の流動調査に利用した例¹²⁾、Br をかんがい水の地下浸透に利用した例¹³⁾ などが報告されている。環境での存在量が

少なく、水中で化学的に安定で放射化の感度が高いものを選べば 10^{-5} ppm 程度まで検出できるので、追跡子の選定については研究段階にあるが、今後の開発利用研究が期待されている方法である。

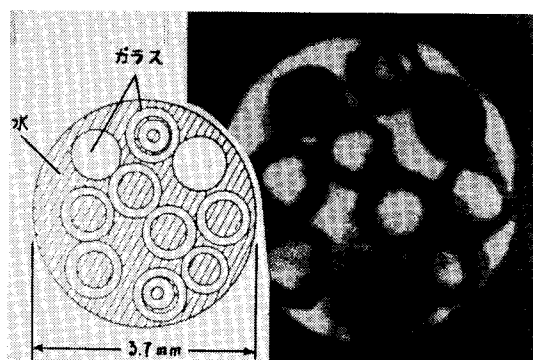
(4) ECT (Emission CT)

供試体中に浸入させた RI からの放射線を外部で検出し、存在位置や量を求める方法には、試料に密着させたフィルムを直接感光させるラジオグラフィーや、隔壁型のコリメータで視野を分割したシンチカメラで二次元分布をもとめるシンチグラフィーがある。また近年では、前述の CT 法を適用する ECT 手法が開発され、特に医療分野では約 400 台が実用されている。しかしラジオグラフィでは散乱線に影響され、シンチグラフィでは隔壁幅に規定されて空間的分解能が低い。また、医療に用いられている ECT の分解能は約 2 cm である。土壌物理研究に利用された例は少なく、 ^{18}F の土壌中の動態追跡にシンチカメラを用いた結田の研究¹⁴⁾ が貴重である。トレーサの動的な追跡ができる方法として、三次元解像が可能な技術の開発がいそがれている。

(5) NMRCT

RI 利用ではないが、原子核スピンのもつ磁気共鳴現象 (NMR) を利用した CT 法がある。これはスピンの 0 以外の原子の存在状態を知ることができ、特に水素は他の原子に比べて 10^4 倍も応答する。NMR は 1946 年に Block と Purcell によって発見され、1970 年代に映像法としての研究が行われた結果、近年において医療分野で実用化された。分解能は、磁場の均一度と与えられる磁場勾配の大きさに支配される。勾配を大きくすると、現象の分解能はあがるが信号の減衰時定数が短くなり、信

号の検出が困難になる。空間的な分解能は画素数に規定され、現在では、対象範囲の約1/500程度である。医療用NMRCTを人頭に用いた場合、観測時間は10分、分解能は約2mmである。さらに微視化を目的として、NMR顕微鏡が開発されている。その観測時間は約3分で分解能は数 μm 、スライス厚は4mmである。水中に立てたガラス管の撮影例を写真一4に示す。NMRCTは、横緩和時間の計測で動く水と動かない水の区分が原理的に可能であり、中性子水分計等ではとらえられないマイクロな水流動の可視化が期待される。



写真一4 NMR顕微鏡の分解能 (提供：電総研・亀井裕孟氏)

4. おわりに

土壌の物理性の計測という範囲を意識して、RIの利用法を概観した。それぞれの方法が持つ空間的分解能で不均一性の評価の可能性を検討すると、室内実験系ではマクロなイメージを得ることができる段階に至っている。一方、野外調査で把握することが必要となる不均一性を考えれば、室内実験系と比較して対象となるスケールが大きく、要求される技術も異なる。室内実験系で不均一と評価される範囲が、野外では平均化した物理性で置き換えられることも多い。そういう意味で、地層構造の不均一性は比較的高精度で評価できる段階にあるといえる。しかし、水の動きを考えるとさらに詳細な不均一

性の評価が要求されている問題もある。まず、実証的に現象が把握できる優れた追跡子の開発が急がれる。

本稿は、大きな表題に対応するため、おおくの方々から情報提供を受けて構成した。ご協力頂いた方々に感謝いたします。

引用文献

- 1) 野尻利明：改訂3版アイソトープ便覧，pp. 600 丸善 (1984)
- 2) 土質工学会：土工管理とラジオアイソトープ，pp. 30 土質工学会 (1974)
- 3) 徳永光一・成岡市・深谷高俊：農土論集，114，pp. 61~68 (1984)
- 4) 中島秀雄・松原幹夫・飯島豊：第20回土質工学会研究発表会講要，pp. 1479~1482 (1985)
- 5) 大塚巖：改訂3版アイソトープ便覧，pp. 603 丸善 (1984)
- 6) 坂西研二：農土論集，111，pp. 105~111 (1984)
- 7) A. M. Petrovic et al. : Soil Science Society of America J., Vol.46 No.3, pp. 445~450 (1982)
- 8) T. Kanamori et al. : Nuclear Engineering and Design, 94, pp. 421~426 (1986)
- 9) 木村重彦：農土論集，32，pp. 20~27 (1970)
- 10) 木村重彦：農土試報，25，pp. 1~91 (1986)
- 11) 初川雄一ほか：第19回理工学における同位元素研究発表会講要，pp. 37 (1983)
- 12) 田部井健ほか：第20回理工学における同位元素研究発表会講要，pp. 99 (1984)
- 13) 結田康一：「国土資源」資料 No.20, pp. 8~9 農業環境技術研究所 (1987)
- 14) 結田康一：昭和57年度アイソトープ利用研究成績年報，pp. 31~1~3 農林水産技術会議事務局 (1983)

Summary

The recent trend in the use of isotope techniques is outlined.

Along with the progress of X-ray radiography, it has become possible to visualize the distribution of pores formed by plant roots in soil 2 cm in thickness, and observe the quick sand phenomenon in a glass bead bed 16 cm in thickness.

γ -ray density gauges and neutron moisture gauges for field use do not afford a high resolution power but give a high level of accuracy. To improve the resolution power, the transmitting type neutron moisture gauge was

developed.

After the development of computed tomography, it became possible to determine the two dimensional distribution of soil density in detail. The maximum size of the soil block required was found to be 15 cm in thickness and 30 cm in width and height. The resolution power is about 0.1 mm in scale and more than 1% in density.

Radioisotope tracers are used only for limited indoor experiments, in Japan. The characteristics of pores in soil have been analyzed by the break through curve of tracer. Today, scintigraphy is beginning to be applied to monitor the tracer movement in soil from the outside of the tested sample.

Based on the analysis of the heterogeneous structure of soil layers in the field, methods for groundwater flow analysis by using the natural radioisotopes existing in the environment as tracers have been developed. The study of activable tracer methods is making progress to analyse the water movement from point to point in the field.

In the near future, NMRCT will be applied to soil physical experiments to visualize the soil water motion.