

第30卷(1979)

温泉学

第2号

昭和54年9月

原 著

奥飛驒温泉郷でのラドン測定と 保健物理学的考察

富山医科薬科大学医学部放射線医学教室

柿下正雄, 羽田陸朗, 横井清美, 本田 昂

金沢大学医療技術短期大学部

天野良平, 真田 茂

(昭和54年1月9日受理)

Measurements of Radiation Dose due to Radon and its daughters in Oku-Hida Hot Spring Area and its Health Physical Consideration.

Masao Kakishita, Mutsuo Hada,
Takashi Honda and Kiyomi Yokoi

Department of Radiology, Toyama Medical and Pharmaceutical University

Ryohei Amano and Shigeru Sanada

School of Paramedicine, Kanazawa University

Abstract

The radon-222 concentrations in hot spring waters and in bath rooms were determined by the use of a liquidscintillation counter. The content of radon-222 in Shinhodaka hot spring water was higher than those of other three hot springs, Hirayu, Gamada and Hitoegane hot spring. The radon-222 concentration of air in a bath room was found to be 53pCi per liter. Since radon-222 decay products are deposited on the pulmonary airway surfaces by inhalation, radiation dose to respiratory epithelium is an impotent problem. In this report, the annual dose due to radon-222 and its daughters was estimated by the method of Haque.

1. はじめに

温泉水中の放射性核種に関する知見は地球化学的に注目されているところであるが、今回、我々は保健物理学の立場から、特に呼吸による²²²Rnの体内摂取に起因する放射線被曝線量を求め

ることを試みた。

測定地としては、第31回日本温泉科学会大会開催地でもあり、 ^{222}Rn 濃度が高いと思われる奥飛騨温泉郷を選び、その源泉水及び浴槽水中の ^{222}Rn 濃度と浴室内空気中の ^{222}Rn 濃度の測定を行った。この測定において温泉水中の ^{222}Rn 濃度については、堀内¹⁾²⁾³⁾らの方法、空気中濃度については高島⁴⁾らの方法を用いた。いずれの方法もRnがトルエンに対してよく溶解する性質を利用し、液体シンチレーションカウンター(LSC)による積分計数法で定量した。これらは測定試料も小さく、現地で作成することもでき、数ヶ所の地点での測定も可能であるため、温泉地域の ^{222}Rn 測定には非常に便利な方法である。

この測定結果に基づき、人体呼吸器官系の年間被曝線量をHaque⁵⁾ら及びDesrosiers⁶⁾の方法により算出した。

2. 温泉地の概況

岐阜県古城郡上宝村にある温泉地は奥飛騨温泉郷と呼ばれ、神通川の上流に位置する。飛騨山脈の檜ヶ岳、穂高岳より発する蒲田川と、乗鞍岳より発する平湯川の流域に、焼岳を取り囲むように点在するその温泉は、標高約700~1,000mの地点にある山岳温泉である。

今回、調査を行った温泉は、平湯温泉(A)、一重ヶ根温泉(B)、蒲田温泉(C)、新穂高温泉(D)、の4地点である。これら温泉の泉源の状態は、平湯温泉では自噴井であり、新穂高温泉では井戸からポンプにより汲み上げている。一重ヶ根温泉、蒲田温泉は約100°Cの蒸気を水に通し温泉水を得ている。これらの温泉水の化学成分分析表を参考までに表1に示した。平湯温泉は含食塩一土類硫化水素泉、一重ヶ根温泉は含重曹食塩一硫黄泉、蒲田温泉は含食塩一重曹泉、新穂高温泉は単純硫化水素泉であった。

3. 実験方法の概要

a) 試料採取

温泉水の採取は主に堀内、村上¹⁾²⁾の方法に従って行った。まず、スキープ型分液ロート(テフロンコック付の1ℓ用)に温泉水を1.1ℓ採り、温泉水の温度が40°C以下になるまで放置した後、トルエン30mlを加え5分間よく振盪し、トルエン相にRnを抽出する。この時をRnを分離した時刻とする。その後、空気、水、トルエンの3相がよく相分離するまで静置し、温泉水の温度を測る。分液ロート中のトルエン相を20ml分取し、一定量のDPOとPOPOPの入ったLSバイアルにとり、これを測定試料とした。

温泉浴室内の空気はシンチレーター溶媒のトルエンに直接Rnを捕集するようにして行った。図2に示すように ^3H モニターを空気取込口に接続し、10分間吸引を続け、400ℓの空気をバルブさせ測定試料とした。

b) 測定

測定に使用したLSCはAloka製LSC-671型である。クエンチングのない ^{14}C の標準溶液試料で測定した時、ウインド幅の下限を100にして得られる計数効率率が92%になるようなゲインに3チャンネル(H, C, P)を設定した。試料の測定は、上と同一ゲインで行い、測定時間100分、Hチャンネルのウインド幅は100~∞、Cチャンネル200~∞、Pチャンネル300~∞として測定した。BKGも同様に測定し、各チャンネルでの計数率を求め、グラフ法により ^{222}Rn 、 ^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 及

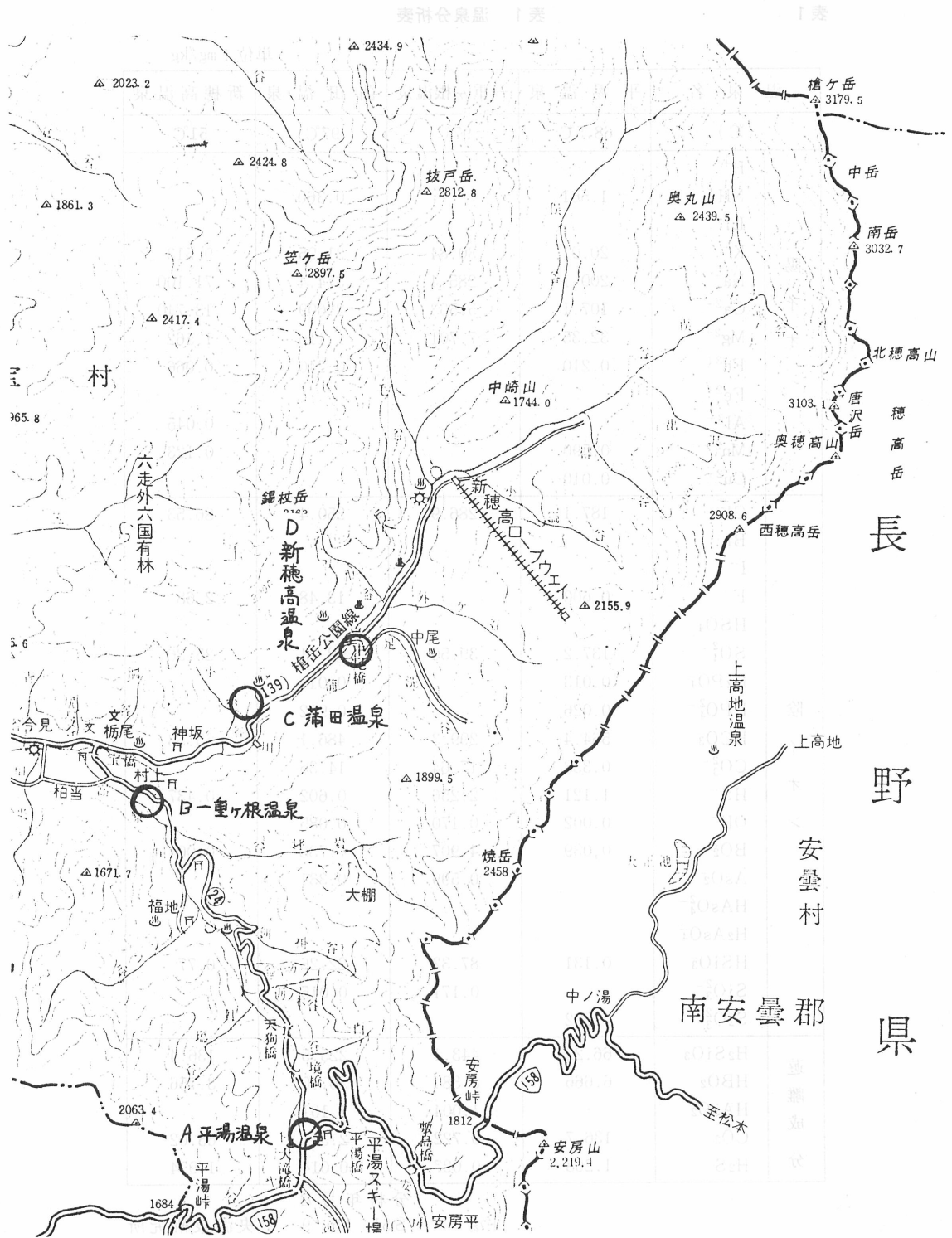


図1 奥飛騨温泉郷図

表 1

表 1 温泉分析表

単位: mg/kg

温泉名		平湯温泉	一重ヶ根温泉	蒲田温泉	新穂高温泉
(°C)		68.5°C	97°C	97°C	51°C
陽イオン	H ⁺				
	NH ₄ ⁺	1.561		0.360	
	Li ⁺				
	K ⁺	20.01	30.84	31.95	9.513
	Na ⁺	200.1	285.4	374.4	71.100
	Ca ²⁺	107.1	5.553	2.609	13.740
	Mg ²⁺	32.35	7.701	1.116	1.562
	Fe ³⁺	0.210		0.240	0.066
	Fe ²⁺				
	Al ³⁺				0.045
	Mn ²⁺	0.590			0.123
Cu ²⁺	0.010				
陰イオン	Cl ⁻	187.1	286.9	250.4	86.53
	Br ⁻				
	I ⁻				
	F ⁻	0.600		13.48	2.68
	HSO ₄ ⁻				
	SO ₄ ²⁻	137.2	39.56	52.01	25.26
	H ₂ PO ₄ ⁻	0.013		0.010	
	HPO ₄ ²⁻	0.026		0.912	
	HCO ₃ ⁻	564.4	299.3	486.1	65.53
	CO ₃ ²⁻	0.333	17.64	14.36	
	HS ⁻	1.121	2.256	0.602	0.437
	OH ⁻	0.002	0.170	0.085	
	BO ₂ ⁻	0.039	4.907	7.738	0.004
	AsO ₂ ⁻		0.599	0.331	
	HAsO ₄ ²⁻				
	H ₂ AsO ₄ ⁻				
HSiO ₃ ⁻	0.131	87.32	22.26	0.77	
SiO ₃ ²⁻		0.171	0.015		
S ₂ O ₃ ²⁻	0.292				
遊離成分	H ₂ SiO ₃	66.22	443.1	225.5	136.4
	HBO ₂	6.666	8.384	26.40	3.756
	HAsO ₂		1.004	1.101	
	CO ₂	136.7	0.722	2.341	63.02
	H ₂ S	1.268	0.027	0.014	1.974

分析年月日

平湯 S51. 11. 9 中央温泉研究所

一重ヶ根 S48. 10. 5 中央温泉研究所

蒲田 S41. 7. 28 岐阜県衛生研究所

新穂高 S45. 1. 14 岐阜県衛生研究所

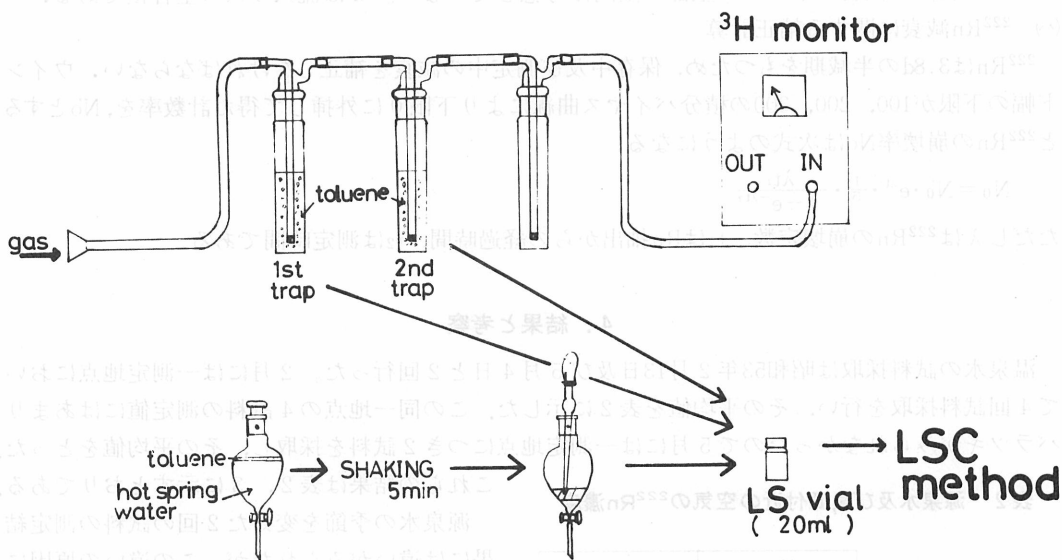


図2 測定試料採集方法

び²¹⁴Poの3α+2βの絶対崩壊率を求めた. また²²²Rnの減衰の確認のため3日後と5日後にも測定を行った.

c) 計算

温泉水中及び浴室内空气中の²²²Rn濃度の算出は次により行った⁴⁾⁷⁾.

(i) 温泉水中の²²²Rn濃度の計算

$$C_0 = \left(\frac{1}{D_T} \cdot \frac{V_{air}}{V_w} + \frac{V_T}{V_w} + \frac{D_w}{D_T} \right) \cdot C_T$$

ただしC₀及びC_Tは、それぞれ温泉水中及びトルエン中での平衡状態における²²²Rn濃度、V_w、V_{air}及びV_Tは、それぞれ分液ロート中の温泉水、空気及びトルエンの体積である。さらにD_w、D_Tは、それぞれ水中、トルエン中へのRnの分配係数であり温度が5℃から40℃の範囲において次の式で近似することができる。

$$D_T = 18.2 e^{\times p} \left(\frac{T}{46.5} \right)$$

$$D_w = \frac{9.12}{17.0 + T}$$

ただしTは温度(℃)である。

(ii) 浴室内空气中の²²²Rn濃度の計算

$$C_{T,1} = D_T \cdot C_0 \left\{ 1 - \left(\frac{D_T \cdot V_T}{D_T \cdot V_T + 1} \right)^n \right\}$$

$$C_{T,2} = D_T \cdot C_0 \left\{ 1 - \left(\frac{D_T \cdot V_T}{D_T \cdot V_T + 1} \right)^n \left(\frac{D_T \cdot V_T + 1 + n}{D_T \cdot V_T + 1} \right) \right\}$$

ただしC₀は浴室内空气中の²²²Rn濃度であり、C_{T,1}、C_{T,2}はそれぞれ第1トラップ、第2トラップ

の ^{222}Rn 濃度である。 D_T は分配係数、 V_T はトルエンの体積で1段目、2段目とも同体積とする。尚、1段目、2段目のトラップ上部の空間は考慮していない。 n は流入ガスの全容積である。

(イ) ^{222}Rn 減衰に関する補正計算

^{222}Rn は3.8dの半減期をもつため、保存中及び測定中の減衰を補正しなければならない。ウインド幅の下限が100, 200, 300の積分バイヤス曲線により下限0に外挿して得た計数率を、 N_0 とすると ^{222}Rn の崩壊率 N_0 は次式のようになる。

$$N_0 = N'_0 \cdot e^{\lambda t_1} \cdot \frac{1}{5} \cdot \frac{\lambda t_2}{1 - e^{-\lambda t_2}}$$

ただし λ は ^{222}Rn の崩壊定数、 t_1 はRn抽出からの経過時間、 t_2 は測定時間である。

4. 結果と考察

温泉水の試料採取は昭和53年2月13日及び5月4日と2回行った。2月には一測定地点において4回試料採取を行い、その平均値を表2に示した。この同一地点の4試料の測定値にはあまりバラツキがみられなかったので5月には一測定地点につき2試料を採取し、その平均値をとった。

表2 源泉水及び泉源付近の空気の ^{222}Rn 濃度

		2月13日	5月4日
		$\times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$	$\times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$
源泉水	新穂高温泉	2.05 \pm 0.02	4.92 \pm 0.03
	蒲田温泉	0.011 \pm 0.002	0.03 \pm 0.006
	平湯温泉	0.089 \pm 0.010	0.20 \pm 0.009
	一重ヶ根温泉	0.037 \pm 0.005	0.06 \pm 0.007
		$\times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$	$\times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$
泉源付近の空気	新穂高温泉		ND
	蒲田温泉		6.41 \pm 0.18
	平湯温泉		ND
	一重ヶ根温泉		4.05 \pm 0.14

ND：検出できず（検出限界を3 σ とした）

表3 浴槽内温泉水及び

浴室内空気の ^{222}Rn の濃度

	浴槽水	浴室の空気
	$\times 10^{-7} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$	$\times 10^{-8} \mu\text{Ci}/\text{cm}^3$
笠山荘(新穂高)	1.34 \pm 0.018	0.53 \pm 0.10
今田館(蒲田)	0.04 \pm 0.005	ND
水石(平湯)	0.16 \pm 0.008	ND
飛越山荘(一重ヶ根)	0.03 \pm 0.005	ND

ND：検出できず（検出限界を3 σ とした）

測定年月日 1978年5月4日

係があると思われる。これは温泉蒸気をバブルさせることによりRnが散逸しているとみられるからである。これらの源泉水を引湯している温泉旅館の浴槽内温泉水と浴室内空気中の ^{222}Rn 濃度ではよく相応した値が得られた。浴室内はあまり空気の入りがなく、浴槽内温泉水と平衡に近い

これらの結果は表2, 3に示すとおりである。源泉水の季節を変えた2回の試料の測定結果には違いがみられたが、この違いの原因には、試料採取の統一の困難な事や温泉水中の ^{222}Rn 濃度が変化したことなどが考えられる。温泉水中の不安定成分であるRnの場合、わずかの採取状況の変化でも大きく結果に影響する可能性がある。また5月における試料の測定値がすべて2月の2倍になっていることより奥飛騨一帯の地下水の ^{222}Rn 濃度の変化も考えられる。

一方、同一採取日における4温泉源での ^{222}Rn 濃度は、新穂高、平湯、一重ヶ根、蒲田温泉の順に高い値を示した。自噴もしくはポンプによる汲み上げを行っている新穂高、平湯温泉の ^{222}Rn 濃度と、蒸気をバブルさせている一重ヶ根、蒲田温泉の ^{222}Rn 濃度を泉源の状態を無視して比較することはできないが、新穂高温泉と平湯温泉の場合は、成因の違い、または希釈等が考えられる。これら地下水中の ^{222}Rn 濃度の長期間にわたる測定は、温泉の成因、地殻変動等を知る上で大変重要であると考えられる。

泉源付近の空気中の ^{222}Rn 濃度は、源泉水中の ^{222}Rn 濃度よりもむしろ泉源の状態に深い関

状態にあるためと考えられる。

論文等

この結果により²²²Rnによる吸吸器官系被曝線量の試算を試みた。ここで浴室内空気中に²²²Rnを検出した新穂高温泉笠山荘浴室内で毎日30分間呼吸するものと仮定した。また笠山荘浴室内空気中²²²Rn濃度は一年を通じて変わらないものとした。計算はDesrosiers⁶⁾の式により行った。すなわち気管支上皮内30 μ mの単位²²²Rn濃度当たりの年吸収線量は

$$\frac{0.79\text{rad/yr}}{0.375\text{pCi/l}} \times \frac{1}{2} (\text{補正}) \times \frac{3}{4} (\text{鼻呼吸}) = 0.8 \frac{\text{rad/yr}}{\text{pCi/l}}$$

で与えられる。なお大気中の²²²Rn濃度は $10^{-1} \sim 10^{-3}$ pCi/lといわれているがここでは 10^{-1} pCi/lと仮定した。一方、Haqueらの式によりICRP-2 (MPC)_aの値から気管支に与える年間吸収線量を求めることも試みた。ここでHaqueらの式は

$$D = \frac{C \cdot t \cdot R}{168(\text{MPC})_a}$$

D(mrem)：器官に吸収された線量(気管支)

C(μ Ci/cm³)：空気中の²²²Rn含有量

(MPC)_a(μ Ci/cm³)：最大許容濃度

(²²²Rn： 10^{-8} μ Ci/cm³, ICRP-2)

t(hr)：1週間での吸入時間

R(rem/yr)：器管の年間最大許容線量

(気管支：15rem/yr)

である。これらの式による計算結果は表4に示すとおりである。

笠山荘浴室内で毎日30分呼吸することで気管支の年間被曝線量が倍加したがこれは年間最大許容線量よりはるかに小さい値である。ここで浴室内ばかりでなく温泉地帯の一般居住区域での²²²Rn濃度を測定して、この地に住む人の気管支の年間被曝線量の算出を試みることは興味深いことである。

また表4では計算を行なわ

かったが高い²²²Rn濃度を示した蒲田温泉、一重ヶ根温泉の泉源付近に毎日30分も居たとすれば、気管支の被曝線量は普通の場合の10倍以上となる。加えて天然に存在するRnは²²²Rnばかりでなく物理的半減期は短いが²²⁰Rn、²¹⁹Rnもあり、また他核種による被曝も考えられ気管支の被曝線量はもう少し大きい値であろうと考えられる。

しかし、以上に用いた計算方法がはたして蒸気の多い浴室内においても適用できるか、また鼻呼吸だけでなく口呼吸も行った場合どうなるかなどという問題は今後に残される。しかし温泉水や空気中の²²²Rn濃度をより継続的に広範囲に測定することは地球化学的にも保健物理学的にもたいへん重要であると思われる。

本研究を行うに際し、種々御指導を賜りました第31回温泉科学会会長、富山医科薬科大学平松博学長に、衷心より感謝を申し上げます。

表4 ²²²Rnによる呼吸器官系の年間被曝線量

	²²² Rn濃度 ($\times 10^{-8}$ μ Ci/cm ³)	A. E. Desrosiersの 式により算出した気 管支上皮より30 μ の 吸収線量(mred/yr)	MPC 気管支全体の線量当量 (mrem/yr)
通常の大気中	0.01	80	150
笠山荘の浴室 内空気中	0.53	166	313

(但し、笠山荘浴室内で毎日30分呼吸し、その他の時間は通常の大気中で呼吸するものと仮定して被曝線量を計算した。)

参考文献

- 1) 堀内公子, 村上悠紀雄: 温泉化学 27, 23 (1976)
- 2) 堀内公子, 村上悠紀雄: 温泉化学 28, 39 (1977)
- 3) 堀内公子, 村上悠紀雄: 温泉化学 29, 68 (1978)
- 4) 高島良正, 百島則幸, 有定裕雄: 第21回放射化学討論会 2 B-13 (1977)
- 5) A. K. M. M. Haque and A. J. L. Collinson: Health Physics 13, 431 (1967)
- 6) A. E. Desrosiers: Health Physics 34, 397 (1978)
- 7) 野口正安: Radioisotopes 24, 745 (1975)

表4 ^{222}Rn による呼吸器吸呼の年間対照量

MPC 吸呼量の全支管が (mm ³ /mm)	A. E. Desrosiersの 式により算出した 吸呼量(mrad/yr) 支管上より30%の 大気	^{222}Rn 濃度 (mCi/l _{air}) $\times 10^3$	
150	80	10.0	通常の 大気中
313	166	52.0	温泉 の室内 大気中

(注) 温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度は、温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度を、温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度として計算した。

温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度は、温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度を、温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度として計算した。温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度は、温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度を、温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度として計算した。

温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度は、温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度を、温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度として計算した。温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度は、温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度を、温泉の室内大気中の ^{222}Rn 濃度として計算した。