

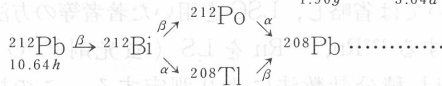
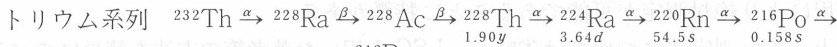
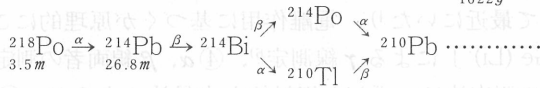
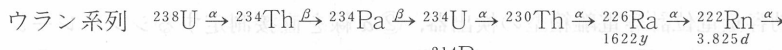
シンポジウム 「日本における放射能泉の現状」

日本の温泉の放射能

都立大学理学部 堀内 公子

§ 1. 緒 言

一口に温泉の放射能と云っても、温泉水中に存在するもの、沈殿物中、ガス中などいろいろあるが、そのうちの温泉水中に存在するもののみを対象とした。



ここに天然に存在する放射性元素のU及びThの崩壊系列を示した。ラドン(Rn, ^{222}Rn)は気体であるため分離しやすく、医学的関心のもとに古くから温泉水中の定量がおこなわれて来ており、定量例は最も多い。また体内に入りやすいため、ウラン鉱山、ラジウム製錬などと関連して保健物理的見地からも多くの研究がなされている。次いで天然に存在するラジウムの4個の同位体中で ^{222}Rn の親核種である一番寿命の長い ^{226}Ra (1622y)がラジウム放射能泉の意味で定量され、データも多く存在する。

これに対しトリウム系列の希ガスであるラドンの同位体トロン (Tn , ^{220}Rn)は、半減期が54.5秒と短かく定量が困難であり定量例は少ない。したがってトリウム系列のラジウム(^{224}Ra)定量の例も少ない。

ここではこれらウラン、トリウム系列の天然放射性元素の従来測定方法と、その定量結果をあげると共に、この数年来著者等がおこなって来た ^{222}Rn の液体シンチレーター(以下LS)による抽出、液体シンチレーションカウンター(以下LSC)-積分計数法による測定についても述べる。

§ 2. ^{222}Rn の定量法

まず定量法の基礎であるイオン対の生成について計算した。すなわち天然放射性核種のなかで研究例の多いウラン系列の ^{226}Ra 及びトリウム系列 ^{228}Ra 以下の崩壊生成核種の空气中に作るイオン対を表1に示した。 α 線放出核種と β 線放出核種の電離能をみると二桁以上の差があり、 α 線の電離をはかる際、 β 線の電離は問題にならないことがわかる。 ^{222}Rn , ^{220}Rn の測定は主として電離箱で α 線の電離をはかっており、また保健物理的見地からも α 線の測定が重視されて来た。

現在迄我国で用いられて来た ^{222}Rn 測定用の機器をみると α 線の電離にもとづく①IM泉効計¹⁾、

表1 α 線, β 線のエネルギーと生成イオン対数($W = 34\text{eV}$)

^{238}U -系列	^{226}Ra	^{222}Rn	^{218}Po	^{214}Po	^{214}Pb	^{214}Bi			
半減期	1622 _y	3.825 _d	3.05 _m	1.64×10^{-4} _s	26.8 _m	19.7 _m			
α 線 (MeV)	4.78	5.49	6.00	7.69	—	—			
β 線 (MeV)	—	—	—	—	0.67	3.26			
空気中イオン対	140,600	161,500	176,500	226,000	2,000	9,600			
^{232}Th -系列	^{228}Th	^{224}Ra	^{220}Rn	^{216}Po	^{212}Po	^{228}Ra	^{228}Ac	^{212}Pb	^{212}Bi
半減期	1.910 _y	3.64 _d	54.5 _s	0.158 _s	3.0×10^{-7} _s	6.7 _y	6.13h	10.64 _h	60.6 _m
α 線 (MeV)	5.43 (71%)	5.68	6.29	6.78	8.78	—	—	—	—
β 線 (MeV)	—	—	—	—	—	0.05	2.11	0.58	2.27
空気中イオン対	159,700	167,000	185,000	199,400	258,000	150	6,200	1,700	6,700

HS-1型泉効計²⁾, 振動容量電位計等電離箱型の検出器, ② α 線を直接測定するシンチレーションチャンバー (ZnS)³⁾⁴⁾⁵⁾, そして最近にいたり, 電離作用に基づくが原理的にことなる③固体電離型半導体検出器 [NaI (Tl), Ge (Li)] による γ 線測定⁶⁾, ④ α , β 線両者の測定が可能なLSCの4つがある。はじめの①~③の測定法はいずれも相対的な定量法であるが, ④LSCの場合は積分計数法⁷⁾の適用により絶対測定が可能であることに特徴がある。

まず時間の都合上, 古い測定法については省略し, LSCを用いた著者等の方法を簡単にのべる。LSCによる ^{222}Rn の測定は水中に溶存する ^{222}Rn , ^{220}Rn をLS (蛍光剤PPO 4g/lトルエン, POPOP 0.1g/lトルエン溶液)で抽出し積分計数法により測定する。この抽出率は一定であり⁸⁾⁹⁾¹⁰⁾, 採水から測定迄の再現性も変動係数5%以内の信頼度がある⁹⁾。抽出容器からのLS分離にはラドンを逃がさぬため考案した分取管を用いる¹¹⁾。

LS抽出した ^{222}Rn を連続測定し, プロットすると ^{222}Rn 及び ^{218}Po 以下の放射平衡にある娘核種の放射能の成長崩壊曲線の総和が得られる⁹⁾。これはBatemanの式¹²⁾を用いた計算値とよく一致した⁹⁾。したがってLSCによる測定は ^{222}Rn 及び ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi , ^{214}Po の4娘核種を同時に計測していることであり, 定量には ^{222}Rn とこれら娘核種が放射平衡に達する190分以上を経過した後の測定値を用いるとよい⁷⁾⁹⁾。

測定値から測定開始時の崩壊率 N (dpm/l)を求め, 抽出から測定迄の経過時間 t の補正等を加え次式より ^{222}Rn の抽出時における濃度を算出する。

$$^{222}\text{Rn} (\text{Ci}/\ell) = \text{Ne}^{\lambda t} \frac{\lambda d \cdot B}{5(1 - e^{-\lambda d}) \cdot A \cdot C \cdot 60 \times 3.7 \times 10^{10}} \quad 9) 11)$$

d : 測定時間, A : 用いた全LS量に対する回収率, B : 測定したバイアル中の ^{222}Rn 濃度から測定用試料中に含まれる ^{222}Rn 濃度を求める係数, C : 用いた試料を1 ℓ にするための補正項

この ^{222}Rn の定量法の測定下限を自然漏曳又はバックグランド計数率の1/10まで測定可能として, この方法の測定下限を, ラドン測定用に用いられている測定器 (IM泉効計¹³⁾, KY式ローリッツエン検電器¹⁴⁾, 精密ラドン計¹⁵⁾ etc)と比較すると, 定量下限は精密ラドン計の次となる。本法は多数の試料を一度に処理出来, 野外で抽出した試料をバックグランド計数率の一定した実験室内で計測出来る利点を持つが, この室内で測定するという利点は現場でデータが出せないという欠点につながる。これに対してこの高感度測定の容易さに着目して最近携帯用LSCの製作が試みられ現地測定がおこなわれはじめた¹⁶⁾。

§ 3. ^{226}Ra の定量法

^{226}Ra の定量法は原理的に次の3つになる。

- 1) ラジオメトリック法 (放射能そのものを測定する): ラジウム及び崩壊生成物の α 線, γ 線スペクトルの測定, 電離箱法。
- 2) 化学的な方法: 沈でん法, イオン交換法等を用いてラジウムを分離, キュリー一瓶等に密封し生成する ^{222}Rn の定量により放射平衡にある ^{226}Ra 量を求める。
- 3) 重量分析法: ラジウム化合物に対してのみ用いられる。

このうち天然に存在する ^{226}Ra の定量は前2者に限られ, 従来最もよく行われているのは, 放射平衡になった ^{222}Rn の定量による方法で, キュリー一瓶に封入し, 30日位成長させて放射平衡とし, これを電離箱 (精密ラドン計)^{15) 17)} などで測定する。

同じように ^{226}Ra は, キュリー一瓶内で平衡にせしめた ^{222}Rn を LS で捕集し, LSC で積分計数法により定量が可能になり, 統計誤差 5% 以下で ^{226}Ra の絶対測定ができる⁷⁾。

さらに検討した結果, キュリー一瓶のかわりに ^{222}Rn を逃がさないで成長させる方法としてテフロン栓付きガラス瓶を用いた密栓倒立放置法ができた¹⁸⁾。即ち ^{222}Rn を LS で抽出したあとの試料水に N_2 ガスを約30分間吹き込み, 残存する ^{222}Rn 及び LS を追い出す。その後新たに加えた一定量の LS をガラス瓶に入れ, テフロン栓で密栓し倒立放置する。この方法により変動係数 2.53% で ^{226}Ra の定量が可能である¹⁸⁾。

§ 4. ^{220}Rn の定量法

^{222}Rn の同位体で半減期の短い (54.5秒) トリウム系列の ^{220}Rn は, 1909年に米国 Yellow stone park テラス 2号泉で ^{222}Rn の15倍も存在することが発見されて以来¹⁹⁾, 我国でもいろいろな測定法が工夫されて来た。それらは大別すると3つにわけられる。

- 1) 直接法: 試料採取直後から測定し, ^{220}Rn , ^{216}Po の急激な減衰及び ^{222}Rn の減衰を追い, 減衰曲線の解析から求める^{20) 21) 22)}。

また早くから行われている測定法として恒気流法があり²³⁾, マリオット瓶装置により恒圧の空気を流し, 改造した泉効計により 10^{-11}Ci 程度の ^{220}Rn を測定されている²⁴⁾。

- 2) 間接法: ^{220}Rn を直接に測定するのではなく崩壊生成物 ^{212}Pb , ^{212}Bi 等の測定により ^{220}Rn を求める方法である。これは温泉ガスのトロンを検出に用いられた方法で^{25) 26)}, 湧出孔の直上に針金, 金属箔等をおき, これを大地より絶縁して負の電荷をかけて放置し, 針金上に沈積した ^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi および ^{216}Po , ^{212}Pb , ^{212}Bi の放射能を測定し崩壊曲線の解析により求める方法である。

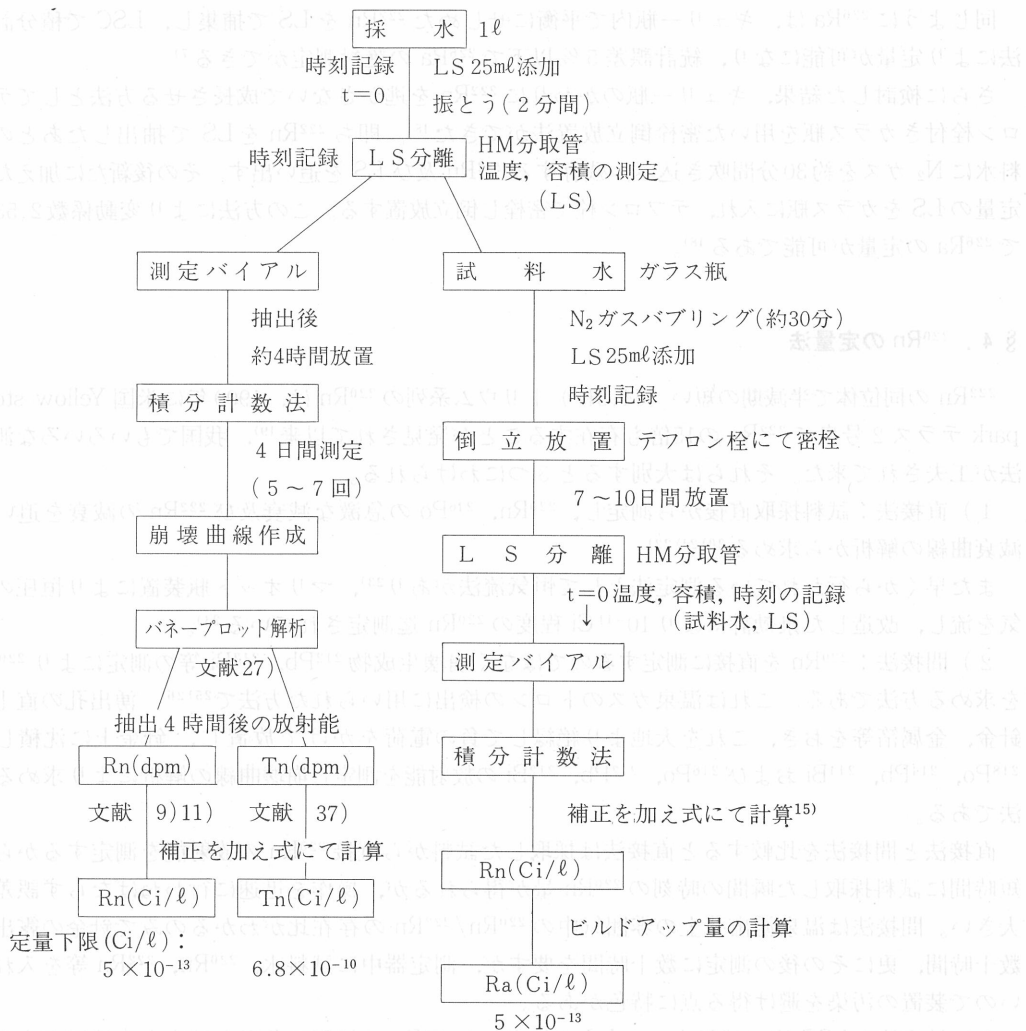
直接法と間接法を比較すると直接法は採取した試料から直接 ^{220}Rn の放射能を測定するから, 短時間に試料採取した瞬間の時刻の ^{220}Rn 量が得られるが, 操作を迅速に行わねばならず誤差も大きい。間接法は温泉湧出孔上の雰囲気中の $^{220}\text{Rn}/^{222}\text{Rn}$ の存在比がわかるのみで針金の露出に数十時間, 更にその後の測定に数十時間を要すが, 測定器中に試料水, ^{220}Rn , ^{222}Rn 等を入れないので装置の汚染を避け得る点に特色がある。

- 3) 抽出法: LSC 法で試料水から LS で抽出した ^{220}Rn の初期の急激な減衰を直接測定する方法と平衡になる崩壊生成核種を測定して ^{220}Rn を求める方法とがある。野外試料などを多数扱う場合には ^{222}Rn と共に抽出される ^{220}Rn の崩壊生成物 ^{212}Pb ($T_{1/2} = 10.64\text{hr}$) を ^{222}Rn と共に測定し, 崩壊曲線の解析により ^{220}Rn を求める後者がよく, この方法によれば ^{220}Rn が存在する場

合には現場で抽出し、抽出後80時間位の間に5点程度の測定点があればBunney Plot法²⁷⁾を用いて解析可能である。

従来²²⁰Rnは半減期が短いため、²²²Rnと同時に定量された例は少なく、その定量結果をみると²²⁰Rnの放射能は²²²Rnに比し、常に2～4桁多く存在することが示されている²¹⁾²⁸⁾。これは両者が同一重量、即ち同一原子数存在すると仮定しても半減期の差から²²⁰Rnの放射能が約6000倍になることから2～4桁の差が生ずるのも当然とうなずけよう。

著者の提案した試料水1ℓよりトルエン抽出—液体シンチレーションカウンターによる²²²Rn、²²⁰Rn、²²⁶Ra三核種同時定量法のスキームとそれぞれの定量下限を図1に示した。1ℓの試料でこれら三元素が同時に迅速に測定できるところに特色がある。



第1図 ラドン，トリウム，ラジウム同時定量法のスキーム²⁸⁾

§ 5. 温泉中の天然放射性核種の存在について

古来我国において ^{220}Rn , ^{222}Rn , ^{226}Ra 等天然放射性元素は定量されているが、どのような元素が、どの位の量存在するかをまとめた。種々の表示があるので次のような換算をおこない Ci/l に統一して検討した。

Rn マッヘ : 1 mache = 3.6×10^{-10} Ci/l

Tn マッヘ : 1 mache = 1.52×10^{-10} Ci/l

gTh 単位 : 1 gThu/l = 1.1×10^{-7} Ci/l

まず温泉中のウラン系列, トリウム系列の元素に関して増富 B 7 号泉で $^{238}\text{U} : 0.000014$, $^{226}\text{Ra} : 0.031$, $^{222}\text{Rn} : 1.50$, $^{232}\text{Th} : 0.003$, $^{224}\text{Ra} : 0.320$, $^{220}\text{Rn} : 10.9$, $^{212}\text{Pb} : 0.280$ (すべて $\times 10^{-9}$ Ci/l) の定量例がある²¹⁾。 ^{238}U の崩壊生成物に対応するトリウム系列崩壊生成物の比をとると次第に小さくなって行くことは、その間の核種の地球化学的、特に ^{234}Th , ^{230}Th , ^{228}Th の行動の差によると考えられる。

表 2 の同一源泉中に存在するトロン ^{220}Rn と親核種 ^{224}Ra の定量値の比はいずれも非平衡で、1 ~ 3 桁娘核種 ^{220}Rn の方が多く存在する。ウラン系列でもこれと同じ傾向がみられるということは ^{226}Ra , ^{224}Ra に由来しない ^{222}Rn , ^{220}Rn の供給源を別に考える必要性を示している。特に半減期の短い ^{220}Rn が親核種 ^{224}Ra の平衡量以上に存在する場合は ^{224}Ra とはなれてからの移動距離が短い、きわめて多量に存在するかのいずれかである。たとえば親核種とはなれた 1×10^{-5} Ci の ^{220}Rn が定量された放射能 10^{-9} Ci に減衰するには約 13 半減期 (約 12 分) 時間の経過、即ち、 ^{220}Rn の移動可能な時間がこの 12 分だということである。 1×10^{-5} Ci は自然放射能としては大きい、 ^{224}Ra としては 6.2×10^{-11} g で水中に安定に溶存しうる量であろう。この重量は ^{226}Ra の放射能に換算すると 6×10^{-11} Ci であり、次に述べるように水中濃度としては通常ありうる量である。

表 3 はわが国の主な放射能泉における同位体の定量結果²⁴⁾ を整理したものである。いずれも平均値で () 内には最大と最小値を示した。これらの放射能泉はほとんど 10^{-11} Ci オーダーである。全体にトリウム系列の ^{228}Ra , ^{224}Ra はウラン系列の ^{226}Ra より放射能 (キュリー単位) が高い傾向がみられる。そこで同一放射能のそれぞれの重量を算出してみると、 $^{226}\text{Ra} \ 10^{-12}$ Ci : 1.03×10^{-12} g, $^{228}\text{Ra} \ 10^{-12}$ Ci : 4.27×10^{-15} g, $^{224}\text{Ra} \ 10^{-12}$ Ci : 6.25×10^{-18} g である。したがって表の結果も重量で読みかえれば、 ^{228}Ra , ^{224}Ra はそれぞれ ^{226}Ra の重量より 1 ~ 2 桁、4 ~ 6 桁小さくなる。

アクチニウム系列のラジウムの同位体 ^{223}Ra は親核種 ^{235}U の存在比が小さいので、その量は少なく定量例はほとんどない。同様にその娘核種でラドンの同位体アクチノン (An, ^{219}Rn) は半

表 2 ^{220}Rn ^{224}Ra の定量 ($\times 10^{-9}$ Ci/l) と $^{220}\text{Rn}/^{224}\text{Ra}$ 比²¹⁾

泉名	^{220}Rn	^{224}Ra	$^{220}\text{Rn}/^{224}\text{Ra}$
増富 A 1	1.5	0.111	13.5
A 3	2.3	0.149	15.4
B 7	13.0	0.320	40.6
池田 No. 3	50.2	0.111	452
三朝 OTR	68.4	0.021	3250

表 3 鉱泉中のラジウム同位体の定量結果 ($\times 10^{-12}$ Ci/l)²⁶⁾

泉名	試料数	^{226}Ra	^{228}Ra	^{224}Ra
増富	34	(21 1 ~ 70)	(45 1 ~ 240)	(72 1 ~ 305)
池田	6	(24 4 ~ 36)	(53 2 ~ 55)	(65 2 ~ 113)
三朝	9	(13 1 ~ 15)	(21 1 ~ 55)	(27 1 ~ 95)
有馬	6	(93 2 ~ 120)	(319 5 ~ 610)	(278 67 ~ 560)
玉川	6	(20 15 ~ 23)	(108 76 ~ 140)	(131 100 ~ 154)
磯部	4	(4.6 0.3 ~ 11.0)	(8.1 1.6 ~ 13)	(8.2 100 ~ 154)

試料水は同一源泉で測定日時異なるものも含む。
() 最小と最高の値を示す。

減期も4秒と短く、親核種 ^{223}Ra と平衡量にあったとしてもきわめて少ない量である。したがって ^{219}Rn とその崩壊生成物の計数率に対する影響はほとんど無視してよく、LSCによる定量の際も無視して行った。

次に前章で示したLSC法による同一試料水中の ^{220}Rn 、 ^{222}Rn 、 ^{226}Ra の同時定量例を表4に示した。 ^{220}Rn は ^{222}Rn に比し2~4桁高く、泉温の低いものほど $^{220}\text{Rn}/^{222}\text{Rn}$ 比が小さい傾向があり、 ^{222}Rn の存在量の方が大きくなることが示されている。

表4 伊豆源泉の ^{222}Rn 、 ^{220}Rn 、 ^{226}Ra の定量結果²³⁾

試料名	泉温	pH	$^{220}\text{Rn}(\times 10^{-8}\text{Ci}/\ell)$	$^{222}\text{Rn}(\times 10^{-12}\text{Ci}/\ell)$	$^{226}\text{Ra}(\times 10^{-12}\text{Ci}/\ell)$	Tn/Rn	Rn/Ra
赤沢第一	42.0	8.2	0.19 ± 0.08	11.32 ± 0.11	1.30 ± 0.28	0.02	8.71
赤沢第一水道水	15.5	7.4	10.5 ± 2.50	205.0 ± 3.0	1.70 ± 0.46	0.05	120.6
赤沢第六	43.5	7.3	0.068以下	32.9 ± 0.7	2.14 ± 0.46	0.002	15.4
道灌の湯	42.0	6.9	8.62 ± 3.17	111.6 ± 6.7	1.82 ± 0.37	0.08	61.3
熱川館南横上	89.5	7.8	0.068以下	4.71 ± 0.06	1.40 ± 0.40	0.01	3.36
片瀬(森田)	102.0	8.5	0.32 ± 0.08	0.52 ± 0.14	3.19 ± 0.11	0.62	0.16
片瀬東豆館	85.5	8.2	0.068以下	3.10 ± 0.21	1.50 ± 0.40	0.02	2.07
大滝	40.0	7.7	"	8.44 ± 0.31	2.67 ± 0.38	0.01	3.16
峰(玉峰館)	100.0	8.6	"	0.50以下	2.00 ± 0.37	0.14	0.25
玉峰館一号	91.3	8.5	"	0.93 ± 0.19	1.30 ± 0.71	0.74	0.72
谷津(養魚場)	99.2	8.6	0.46 ± 0.05	2.46 ± 0.05	2.16 ± 0.75	0.19	1.14
加納共同湯	100.2	7.5	0.43 ± 0.20	1.35 ± 0.28	5.01 ± 0.41	0.32	0.27
一色	32.0	8.6	2.79 ± 0.55	167.0 ± 2.0	1.85 ± 0.45	0.02	90.3
掛橋	64.0	7.6	5.10 ± 1.55	230.9 ± 6.6	3.03 ± 0.38	0.02	76.2
相玉三号	83.7	7.9	1.44 ± 0.02	37.0 ± 0.6	1.63 ± 0.42	0.04	22.7
松崎四号泉	61.1	7.2	3.14 ± 0.48	90.2 ± 1.4	1.27 ± 0.41	0.03	71.0
松崎六号泉	62.4	8.2	0.27 ± 0.08	41.0 ± 0.4	4.49 ± 0.98	0.01	9.13
小土肥	46.0	7.2	0.068以下	4.23 ± 0.48	0.91 ± 0.56	0.02	4.65
土肥山の神	50.2	7.4	0.47 ± 0.10	2.44 ± 0.29	0.5以下	0.19	4.88
土肥三脈	48.2	7.3	0.61 ± 0.22	13.7 ± 0.6	1.68 ± 0.42	0.04	8.15
水口洞	62.4	8.4	0.17 ± 0.03	0.68 ± 0.12	1.58 ± 0.46	0.25	0.43
水口	59.8	7.6	0.068以下	2.85 ± 0.20	1.72 ± 0.45	0.02	1.66

採水：昭和54年1月28日~30日

C. Genser は、医療の面から放射能泉を①ラジウム及びそれと平衡量或は平衡量以下のラジウムエマナチオンを含むラジウム塩鉱泉(例 Heidelberg)、②ラジウム及びラジウムとの平衡量以上のラジウムエマナチオンを含むラジウム塩含有ラジウムエマナチオン鉱泉(例 Oberschlama, 増富, 有馬, 他²⁹⁾)、③ラジウムを全然含まずガス状のエマナチオンのみを含有するラジウムエマナチオン鉱泉(恵那ラジウム鉱泉, 他²⁹⁾)の三種に分類した³⁰⁾³¹⁾。

^{220}Rn が測定されるようになり、多量の ^{220}Rn が含まれる鉱泉はラドン泉に対しトロン泉³¹⁾またはトロンタイプと呼ぶことが提案された²¹⁾。

^{220}Rn 、 ^{222}Rn 、 ^{226}Ra の定量値を文献から集め、平衡量の考えに基づき、鉱泉を3つのタイプにわけた(表5)。①ラジウムタイプ： ^{226}Ra がありながらその娘核種 ^{222}Rn がほとんどみつかつ

表5 Ra, Rn, Tn 含有量による分類

泉名	Ra ×10 ⁻¹² Ci/l	Rn ×10 ⁻¹⁰ Ci/l	Tn ×10 ⁻⁸ Ci/l
ラジウムタイプ			
有馬 唐櫃かた越 ³³⁾	111.05	—	
玉造 松之湯 ³³⁾	97.14	—	
増富 中の湯 ³³⁾	31.61	—	
ラドンタイプ			
池田 8号泉 ³⁴⁾	58.0	7,963.6	
関金 湯泉楼 ³⁵⁾	1.57	53.79	
岐阜 湯之島1号 ³⁶⁾	—	1,442	
トロンタイプ			
三朝 大橋霊泉 ²⁰⁾		283.6	836.0
増富 岩風呂 ³⁷⁾		10.3	3.64
玉川 4号泉 ³⁸⁾		38.2	8,816

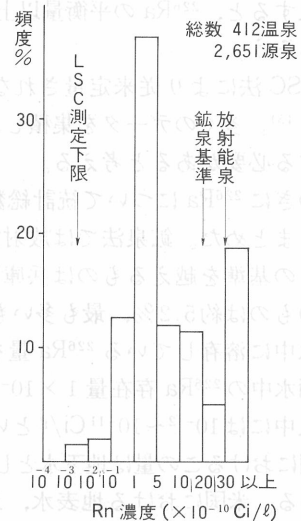


図2 ラドン濃度と頻度分布

ていないもの、②逆に親核種 ²²⁶Ra の平衡量をはるかに上廻る ²²²Rn が存在するラドンタイプ、このタイプが我国の温泉で最もよくみられる例である。③は前記のトロンタイプである。このタイプは現在まではあまり多くないが、LSCによる定量例が増せばもっと多くなると推定され、しかも今までの定量例からみてラドンがなくトロンのみという例は存在しそうにない。LSCにより ²²⁰Rn が定量された鉱泉には常に ²²²Rn が存在しているからである。したがってトロンがラドンよりはるかに多いタイプとしてトロン泉を考える方がよいであろう。²²⁰Rn が親核種の平衡量以上に存在するならば、²²⁶Ra の平衡量以上に存在する ²²²Rn³²⁾ の補給源と同様に ²²⁰Rn の補給源を考えねばならないことは、半減期の短さより先に考察した理由に基づいている。これは今後の検討により明らかになるであろう。

今まで報告された我国の ²²²Rn の定量結果のある 2651 源泉を対象に各温泉地あたりの ²²²Rn 含有量平均値を 412 温泉について算出した^{33)39) etc} (図 2)。鉱泉法⁴⁰⁾ で云う放射能泉は ²²²Rn 含有量 3×10^{-9} Ci/l であり、その意味で我国の約 19% 近くの温泉地が ²²²Rn 含有量のみで放射能泉と呼ばれ得るものである。この中で古くから放射能泉として有名な増富、三朝、池田等の他に新しく岐阜、京都附近の冷鉱泉に ²²²Rn が多く含有されているのが目立った⁴¹⁾。

常水と鉱泉を区別する鉱泉基準以上の ²²²Rn を含有するものは約 5% であった。従って鉱泉法による温泉としては全体の 24% が ²²²Rn の含有量のみでこの基準に達している。²²²Rn 含有量は $1 \sim 5 \times 10^{-10}$ Ci/l のものが多数あり、全体の約 37% にあたる。

東京都では上水道の水源として深さ約 100~500m の深井戸を用いている⁴²⁾ が、その ²²²Rn 濃度平均値に地域差はあまりなく、ほとんどが 10^{-10} Ci オーダーである。これは地下水中 ²²²Rn 平均存在量 $10^{-10} \sim 10^{-9}$ Ci/l⁴³⁾ にくらべ、やや低めで一致している。²²⁶Ra の飲料水基準は世界的に決まったものはなく、WHO (世界保健機構) では 10^{-11} Ci/l を用いて飲料水の基準⁴⁴⁾ としているため当然東京都上水道中の ²²⁶Ra 量もこれ以下の量とみなければならない。したがって ²²²Rn は平衡量より 1~2 桁以上高い傾向がみられる。

また大気中の ²²²Rn は地表より数百 m の高さ迄存在し、雨水はそれを溶かして来るため $10^{-8} \sim 10^{-9}$ Ci/l の高濃度に達する場合もある⁴³⁾。これら雨水中の ²²²Rn は別として、これらが土壤中を浸透して地下水になるにつれてラドンを溶かしこみ濃度が高くなる。温泉にこのような地下水が

混入すると、 ^{226}Ra の平衡量以上の ^{222}Rn を含む場合がきわめて多くなるといわれる理由となるのであろう。

LSC 法により従来定量されなかったような低濃度の鉱泉中ラドンのデータがさらに増えつつある⁴⁵⁾。多くのデータを集積し、保健物理的立場からも温泉の成因とあわせてラドンの起源を追求する必要があると考える。

つぎに ^{226}Ra について統計総数 887 源泉、198 温泉を対象として ^{226}Ra の存在量の頻度分布を図 3 にまとめた。鉱泉法では放射能泉としての ^{226}Ra 含有量は 10^{-10} Ci/l であり、 ^{226}Ra 含有量のみでこの基準を越えるものは兵庫県の唐櫃かた越鉱泉、有馬新温泉³³⁾ にすぎなかった。鉱泉基準以上のものは約 5.2%，最も多いものは $1\sim 5\times 10^{-12}\text{ Ci/l}$ を含むもので約 20% である。図の中に雨水、海水中に溶存している ^{226}Ra 量を参考値として示した。

雨水中の ^{226}Ra 存在量 $1\times 10^{-12}\text{ Ci/l}$ 以下、海水中 $1.2\times 10^{-13}\text{ Ci/l}$ ⁴⁶⁾ 以上の温泉が約 35% である。鉱泉中には $10^{-12}\sim 10^{-11}\text{ Ci/l}$ といわれるが⁴³⁾、これはむしろ高い方の部に属することがわかる。わが国におけるこの量は地下水として $10^{-13}\sim 10^{-12}\text{ Ci/l}$ 、地表水として $5\times 10^{-14}\sim 1.5\times 10^{-12}\text{ Ci/l}$ ⁴³⁾ である。米国における地表水、地下水年平均 ^{226}Ra 存在量⁴⁷⁾ と比べてみると $3\times 10^{-13}\sim 3\times 10^{-12}\text{ Ci/l}$ でわが国と同じような傾向にあり、わが国の鉱泉中 ^{226}Ra もこの濃度範囲のものが一番多い状態である。また世界第一の ^{226}Ra 含有泉は、米国の Baulden Colorad にある Curie Spring で $2.678\times 10^{-7}\text{ Ci/l}$ の ^{226}Ra の存在が認められている。

鉱泉中の ^{226}Ra の起源はあきらかに熱源に深い関係をもっており、熱水に由来するか母岩に由来するかのいろいろに論じられて来ている。熱水の温度、 ^{226}Ra を含有した母岩を通過して来る時間、熱水の液性等の要因により ^{226}Ra は沈殿、溶解を複雑にくり返しながらか ^{222}Rn と異なった動きをし、地表迄達したとみられる。これらのデータを見るとき地下水に由来するものか、または地下水でうすめられこのような濃度範囲になったものとみななければならないであろう。地熱開発がおこなわれるようになり今迄の鉱泉にない深所よりストレートにでてくる熱水のデータはこの点において興味がある。一例であるが、地熱発電所大岳 8、9、10 号井で求めたものは 10^{-12} Ci/l であった³⁵⁾ がさらに検討したい。

トロンについても同様にまとめ図 4 に示した。恒気流法による膨大なデータは $0.4\times 10^{-12}\text{ Ci/l}$ が

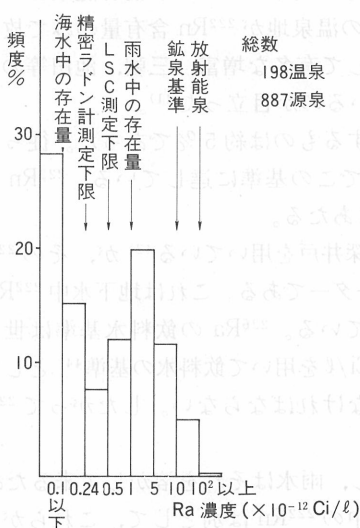


図 3 ラジウム濃度と頻度分布

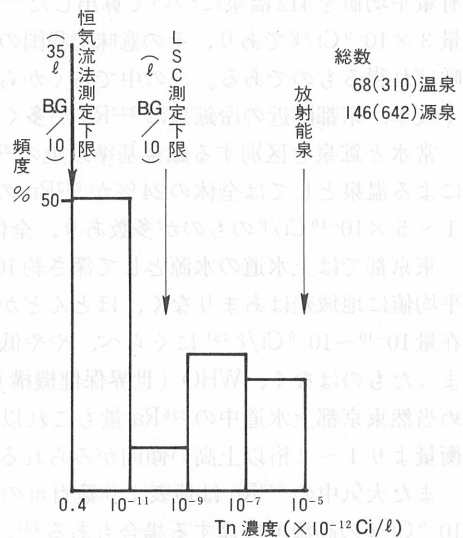


図 4 トロン濃度及び頻度分布

定量下限であり、下限以下のデータが非常に多かった²²⁾⁴⁶⁾。統計をとるさい定量下限以下のものを除外すると、定量総数642源泉、310温泉中の146源泉、68温泉が対象となった。LSC法による²²⁰Rnの定量下限は、²²⁰Rnの崩壊生成物²¹²Pbを測定して求めるため 6.8×10^{-10} Ci/ℓであり、これらの定量法にくらべると定量下限の点では劣っている。

²²⁰Rnについては放射能による鉱泉基準はない。²²⁰Rnと²²²Rnが仮りに同一原子数 10^5 個存在したとすると²²⁰Rnは 3.44×10^{-8} Ci、²²²Rnは 5.67×10^{-12} Ci、²²⁰Rn/²²²Rn = 6.07×10^3 となる。これに²²²Rnによる鉱泉の基準をあてはめてみると²²⁰Rnが 1.21×10^{-5} Ci/ℓ以上存在すればトロン量のみにて鉱泉、 1.82×10^{-5} Ci/ℓ以上であれば放射能泉と称される。一応これを目安にトロンの頻度分布を考えてみると²²⁰Rnについては 10^{-5} Ci/ℓ以上の報告例はない。したがって²²⁰Rn量が²²²Rn量に比し多量(Ci量による比)に存在することから分類されたトロン泉も²²⁰Rnのみからは放射能泉ではあり得ないことになる。

定量された²²⁰Rnの中で 10^{-7} Ci以上が約19%、 $10^{-9} \sim 10^{-7}$ Ciのものは全体の約24%、 $10^{-11} \sim 10^{-9}$ Ciのものは7%である。²²⁰Rnについては更にデータの集積を待つ必要がある。

以上我国における温泉水中の天然放射能²²⁶Ra、²²²Rn、²²⁰Rnを中心として測定法とその測定結果について述べ、これらについて統計的な立場から現状を紹介した。

環境放射能や保健物理的見地から大気中及び自然環境中の放射能測定は益々その必要性が要求されているが、まだ測定例は少ない現状である。さらにいろいろの手法を駆使してデータを蓄積することにより自然界における天然放射性核種の循環、温泉の湧出機構解明に寄与することが期待される。また最近地熱発電にともなう従来にない地下深所よりのこれらの元素の存在量は興味ある知見をもたらすとおもわれる。また地下還元にともないこれらの元素の存在量についてみられる変化も有用な情報を与えることであろう。

文 献

- 1) 飯盛里安, 理研彙報, **10**, 1105 (1931)
- 2) 初田甚一郎, 地学, No. 4, 26 (1951)
- 3) H. F. Lucas, Rev. Sci. Instr., **28**, 680 (1957)
- 4) K. Yamazaki, K. Furuyama, K. Sakamoto, M. Sakanoue, Radioisotopes, **29**, 236 (1980)
- 5) T. Hashimoto 他, J. Radioanal. Chem., **52**, 133 (1979); Radiochem. Radioanal. Lett. **41**, 323 (1979)
- 6) M. Yanokura, K. Horiuchi, H. Nakahara, Y. Murakami, Chem. Letters. 1131 (1978)
- 7) Y. Homma, Y. Murakami, J. Radioanal. Chem. **36**, 173 (1977)
- 8) 野口正安, Radioisotopes, **13**, 362 (1964)
- 9) 堀内公子, 村上悠紀雄, 温泉科学, **28**, 39 (1977)
- 10) 佐藤 純, 佐藤和郎, 温泉工学会誌, **14**, 1 (1979)
- 11) 堀内公子, 温泉工学会誌, **13**, 95 (1978)
- 12) G. Friedlander, J. W. Kennedy, J. M. Miller, Nuclear & Radiochemistry 2nd. ed. P76 (1964) John Wiley & Sons., N.Y.
- 13) 中井敏夫, 日化, **58**, 292 (1937)
- 14) 木村健二郎, 黒田和夫, 横山祐二, 日化, **69**, 33 (1948)
- 15) 岩崎岩次, 日化, **72**, 14 (1951)
- 16) 佐藤 純, 高橋春男, 佐藤和郎, 地震研究所彙報, **55**, 299 (1980)

- 17) J. E. Pearson, G.E. Jones, *Tellus*, **18**, 655 (1966)
- 18) K. Horiuchi, Y. Murakami, *Int. J. App. Rad. Isotopes*, in print (1981)
- 19) H. Schlundt, R.B. Moor, *Geol. Survey, Bull.*, 395 (1909)
- 20) 木村健二郎, 黒田和夫, 横山祐之, *日化*, **69**, 33 (1948); K. Kuroda, Y. Yokoyama, *Bull. Chem. Soc. Japan.*, **21**, 52 (1948); 黒田和夫, 横山祐之, *化学の研究*, **3**, 29 (1948)
- 21) K. Kuroda, Y. Yokoyama, *Anal. Chem.* **25**, 832 (1953)
- 22) 鎌田政明, *分析化学*, **5**, 638 (1956)
- 23) 飯盛里安“放射化学実験法”*実験化学構座 13B*, 共立社 (1933); “物理実験学”第10巻, P141, 河出書房 (1941)
- 24) 下方鉦蔵, *日化*, **63**, 1109 (1942) ~ **78**, 427 (1957), 他
- 25) R.E. Belin, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **16**, 181 (1959)
- 26) 横山祐之, *日化*, **76**, 558 (1955)
- 27) 堀内公子, 村上悠紀雄, *Radioisotopes*, **28**, 508 (1979)
- 28) 堀内公子, 石井 忠, 村上悠紀雄, *温泉科学*, **30**, 84 (1979)
- 29) 中井敏夫, *日化*, **59**, 1181 (1938)
- 30) C. Genser, *Zeit. Dent. Geol. Gesell.* 482 (1933)
- 31) 大島良雄, *信州医学雑誌*, **3**, 294 (1954)
- 32) 堀内公子, 村上悠紀雄, *地球化学*, **12**, 59 (1978)
- 33) 中井敏夫, *Bull. Chem. Soc. Japan*, **15**, 333 (1940)
- 34) 岩崎岩次, *温泉工学会誌*, **6**, 18 (1968)
- 35) 堀内公子, 村上悠紀雄, *温泉科学*, **29**, 68 (1978)
- 36) 三階衣子, 早川友邦, *温泉科学*, **21**, 104 (1970)
- 37) 堀内公子, 村上悠紀雄, *分析化学*, **28**, 661 (1979); *Chem. Lett.*, 449 (1979)
- 38) 岩崎岩次, *温泉化学*, **14**, 27 (1963)
- 39) 厚生省大臣官房国立公園部, *日本鉦泉誌*第III篇ラドン及びラジウム篇, P631~680 (1954) 青山書院
- 40) 環境庁自然保護局“鉦泉分析法指針”*温泉工学会誌*, **13**, 1 (1978)
- 41) 桂 京造, *温泉科学*, **21**, 121 (1970)
- 42) 東京都防災会議, ラドン濃度測定に関する調査研究(その1) (1978)
- 43) 岡部 茂, *Mem. Coll. Sci. Univ. Kyoto, ser. 1* **28**, 39 (1956)
- 44) WHO: *International Standards for Drinking-water*, P36 2nd ed (1963) WHO, Geneva.
- 45) 堀内公子, 村上悠紀雄, *温泉科学*, **27**, 23 (1976)
- 46) 東海大学出版会, *海洋科学基礎講座 10 “海水の化学”* P200 (1970)
- 47) S.K. Love, *Ind. Eng. Chem.*, **43**, 1541 (1951)

注) 頻度分布作成にあたり使用した文献は多数にわたるが, 使用データ数の多かった(33), 39) のみをあげ, あとは省略した。