

原 著

本邦温泉のトリウム含量

—放射化分析による定量—

*名古屋工業大学名誉教授, **名古屋工業大学化学教室

下方 鈇 蔵*, 神谷 宏**, 尾崎 敦子**

(平成3年1月9日受付, 平成3年2月2日受理)

Thorium Contents in Mineral Springs of Japan

—Neutron-activation Analysis of Thorium—

Kozo SHIMOKATA*, Hiroshi KAMIYA** and Atsuko OZAKI**

*Professor Emeritus of Nagoya Institute of Technology

**Chemistry Department, Nagoya Institute of Technology

Abstract

Thorium contents in mineral springs were determined by neutron-activation analysis which is much more suited to the determination of a trace amount of thorium than colorimetric or emanation methods. After addition of FeCl_3 thorium in water was coprecipitated with $\text{Fe}(\text{OH})_3$ by using NH_3aq and then dissolved with HCl . After removing a great portion of iron from the above HCl solutions with ether, thorium samples with 2~3mg of FeCl_3 were sealed in quartz tubes and irradiated in an atomic reactor, JRR-2 or JRR-3.

^{233}Pa (β -decay) produced from ^{232}Th by irradiation was dissolved with HCl (8M)- HF (0.1M). After addition of ^{231}Pa (α -decay) as a tracer in order to calculate the chemical yield of ^{233}Pa in the following procedures, both ^{233}Pa and ^{231}Pa were separated and purified by extraction with di-isobutyl ketone. Electrodeposition of ^{233}Pa and ^{231}Pa on a cathode of Au-plated Cu was carried out at a constant current of 0.5A for 4 hrs.

Thorium contents in the samples were determined by comparison of α - and β -activities on a plate with those of standards obtained by irradiation, separation and electrodeposition of a known amount of thorium.

It is illustrated that the highest frequency in the thorium contents is between 10^{-8} and 10^{-7} g/l on their distribution figure in mineral springs of Japan. The thorium contents are high in acid springs and relatively high in salt-rich springs.

1. まえがき

トリウムはアクチノイドの一つであり、これを主成分とする鉍物としてはthorianite (Th, U)O₂, thorite ThSiO₄が知られているが、極めて稀産である。天然におけるトリウムの濃縮形態である鉍物は稀産であるにもかかわらず、地殻にはかなり多量に存在し(火成岩1トン中に平均11.5gのトリウムが含まれる)、微量ではあるが広く分散する分散元素である。トリウムの原料となる鉍物としてはペグマタイト中に存在するmonaziteがもっとも重要であり、この鉍物は風化過程において、化学変化を受けることが少なく、堆積層中に濃縮されている場合が多い。したがってトリウムの原料としてはこの鉍物を含む酸性岩の風化堆積作用の結果生じた砂岩が主として用いられている。

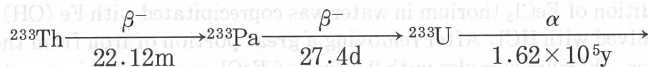
トリウムが多量に含まれる試料は別として、一般には試料中のトリウムは微量であり、その分析法としては従来比色法¹⁾あるいはその放射能を利用した方法²⁾が普通に用いられてきた。しかし比色法は妨害イオンが多く、分離操作が複雑であり、試料もかなり多量必要とする。またトリウムとトリウムエマネーションであるトロンとが放射平衡にあるものとして、ローリツェン検電器などによりトロンの放射能を測定してトリウム含量を決定する方法においても、上記の放射平衡は必ずしも成立していない³⁾から、正確な結果を期待することはできない。したがって従来岩石、工業原料あるいは天然水中のトリウムの定量値として発表されたものの中で信頼できる結果は少ないと思われる。例えば海水中のトリウム含量としては古くは10⁻⁶~10⁻⁷g/lといわれていたが、現在では10⁻⁹~10⁻¹¹g/lとされている。

近年核燃料などの必要性から中性子線を用いたトリウムの放射化分析が行われるようになり、それらにおいては、それぞれの試料に応じた工夫がなされている。これは放射化分析が他の方法よりもさらに微量を定量することが可能だからである。本報では温泉水中のトリウムの定量を放射化分析により行ったので、その方法と結果を報告する。

2. 実 験

2.1 トリウムの放射化分析の原理

トリウムは中性子照射によって²³²Th (n, γ) ²³³Thなる核反応を起こし、生じた核種²³³Thは次のように壊変する。



ここで生じた²³³Paは放射能測定に適当な半減期を持つ放射性核種であるから、これのみを分離するのである。実際にはトリウムを定量しようとする試料を、一定量のトリウムを含む標準試料と共に同時に原子炉内で中性子照射する。ここで生じた²³³Paのみをジソプチルケトンを用いる溶媒抽出法で分離し、放射能測定のために金張り銅板上に電着した。また照射試料から上記の²³³Paを分離、電着する操作におけるその収率を知るために、分離に先立ってα放射体の²³¹Paの一定量をトレーサーとして加えた。このようにして得られた²³³Paによるβ線強度を測定し、標準試料から生じた²³³Paのβ線強度との比較から未知試料中の元のトリウム含量を決定した。照射における中性子束*は原子炉によって異なり、また同一原子炉であっても時により、さらに照射孔の位置によっても異なるので、必ず標準試料を同時に照射する必要がある。

*日本原子力研究所のJRR-2, JRR-3における中性子束はそれぞれ約10¹³, 10¹²n/cm²・Secである。

2.2 照射試料の作製

天然水については特に含量の多いもののほかは通常30lを採取し、塩化鉄水溶液と塩化アンモニウムを加えてからアンモニア水により、 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ と共にトリウムを沈殿させる。沈殿を濾別または遠心分離した後塩酸に溶解し、100mlの溶液とする。強酸性の温泉水のように多量の Al^{3+} を含むときは、アルミニウムが水酸化物沈殿に入ってくるから、このときは沈殿を6M-NaOH溶液で処理して除く。

こうして得られた塩酸溶液中には多量の鉄が含まれるので、これを除く必要がある。このためこれらの溶液の1~2mlをとり、メチルオレンジを指示薬として炭酸ナトリウム溶液で滴定し、塩酸濃度を6モル/lにするに要する塩酸または水の量を求めた。以下はFig.1に示すように試料溶液の25~50mlをとり、塩酸濃度を6Mに調整してから、6M HClを飽和したエーテルによって大部分の鉄を抽出除去し、鉄の残量を約1mgとした。この溶液からエーテルを蒸発除去し、遠沈管に移してから水酸化物沈殿をつくり遠心分離した。これを塩酸に溶かして石英管に入れ、110℃で乾燥した。使用した石英管は内径4mm、外径5mm、長さ50mmのものと、内径6mm、外径7mm、長さ50mmのもの二種類である。

トリウムの標準溶液としては和光純薬試薬特級硝酸トリウム $\text{Th}(\text{NO}_3)_4 \cdot 4\text{H}_2\text{O}$ の1.774gを0.1M HNO_3 に溶かし、全容を250mlにしたものを用いた。この溶液は $2.99 \times 10^{-3} \text{g Th/ml}$ であり、照射するための標準試料としては、この溶液を希釈、トリウムが $10^{-8} \sim 10^{-6} \text{g}$ に相当するだけの溶液を石英管に入れ、110℃で乾燥した。

石英管に入れた試料と標準試料を十分乾燥した後、都市ガスの酸素焔で封じた。封入後の石英管の長さは20~40mmであった。これらの石英管は水に浸し、完全に封入されたことを確かめた後、20本程度をまとめアルミニウムはくに包み、照射用アルミニウムカプセルに入れた(Fig.2参照)。これを日本原子力研究所に送り、JRR-2またはJRR-3でサイクル照射を行った。

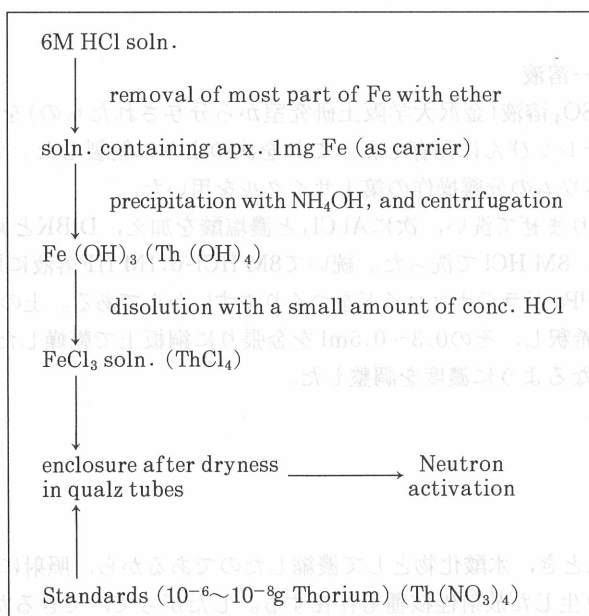


Fig. 1 Preparation of sample for irradiation

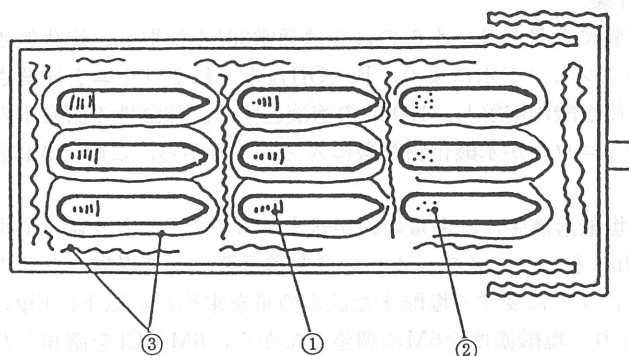


Fig.2 Sample and standard sources for irradiation in aluminum capsule.

size: L 28mm × 140mm

size: S 28mm × 70mm

1. Samples in quartz tube
2. Standards in quartz tube
3. Aluminum foil for buffer

2.3 プロトアクチニウムの分離

2.3.1 使用する試薬

- (1) di-isobutyl ketone (略DIBK)和光純薬または東京化成の試薬特級を使用し、これを8M HClで飽和した。
- (2) 8M HCl-0.1M HF, 8M HClにHF (46%以上) 1 mlを加えた。
- (3) 8M HCl
- (4) 2M AlCl₃
- (5) ²³¹Pa トレーサー溶液

²³¹Paの1.5M H₂SO₄溶液(金沢大学阪上研究室から分与されたもの)を8M HCl-0.1M HFで希釈し、ポリエチレンびんに保存した。これを次のように精製した。すなわちFig.3に示したプロトアクチニウムの分離操作の第1サイクルを用いた。

まずDIBKと振りまぜて洗い、次にAlCl₃と濃塩酸を加え、DIBKと共に振りまぜて²³¹PaをDIBK層に移し、8M HClで洗った。続いて8M HCl-0.1M HF溶液に戻し、最後にDIBKで洗った。これは²³¹Paがラジオコロイドをつくりやすいからである。上の精製溶液をさらに8M HCl-0.1M HFで希釈し、その0.3~0.5mlを金張りに銅板上で乾燥したとき、そのα放射線が100cpm程度になるように濃度を調整した。

- (6) conc HCl
- (7) キシレン

2.3.2 分離操作

照射試料を作製したとき、水酸化物として濃縮したのであるから、照射によって²³³Paのほか、希土類元素などにより生じた放射性核種も存在する。したがって、できるだけ²³³Paのみを分離することが望ましい。一般にこのような分離には溶媒抽出法が用いられ、抽出溶媒としてはケトンが多く利用されている。本報では阪上⁵⁾によって種々検討された方法によった。これはFig.3に示したようにDIBK溶媒と塩酸を用いるものである。なお、プロトアクチニウムの分離操作に

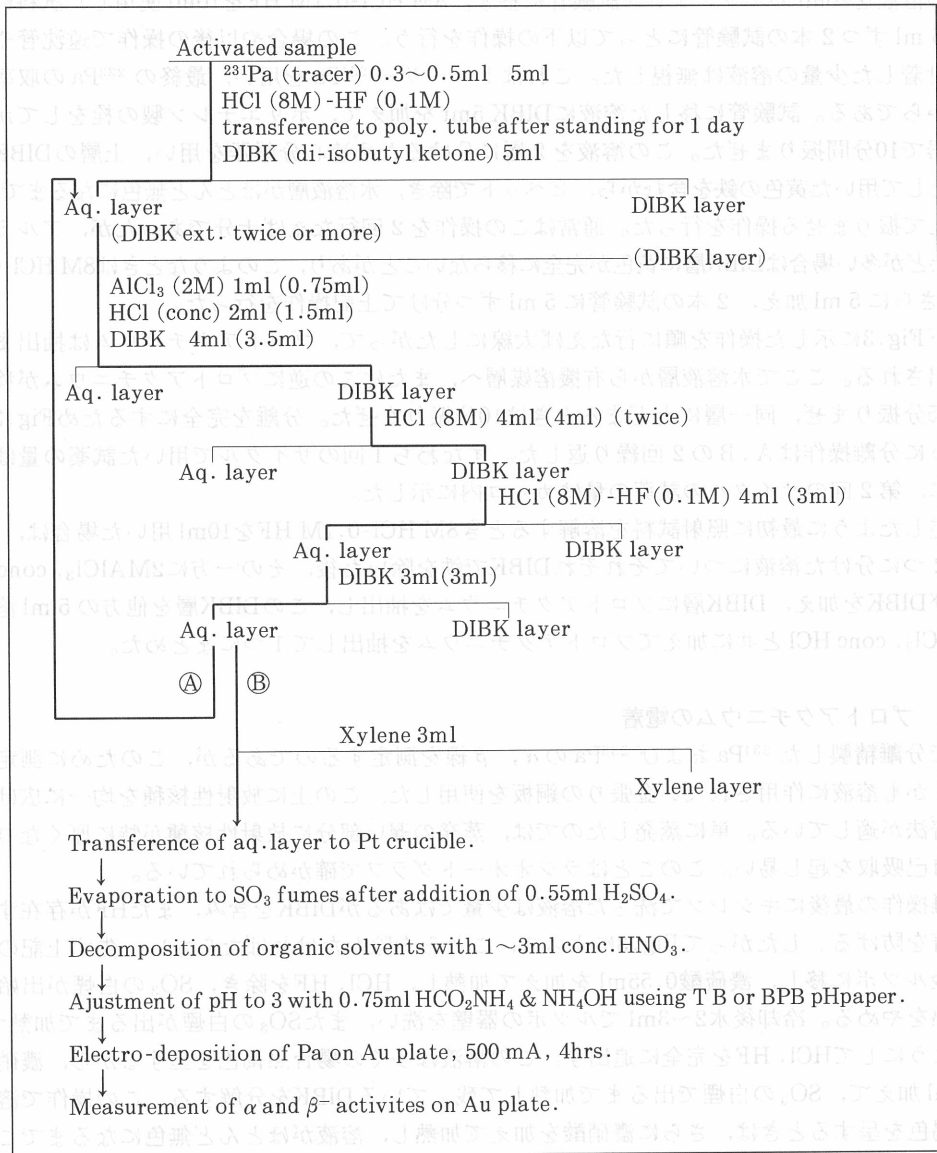


Fig. 3 Isolation of Pa

The figures in the brackets show the doses used in the second cycle separation.

使用する器具および容器は原則としてポリエチレン製のものとし、放射性核種の吸着による損失や汚染を防いだ。

先ず照射後の石英製試料容器を小さなポリエチレン製の袋に包んで割り、50mlの遠沈管に移す。袋に付着した試料は8M HCl-0.1M HFの少量で洗い出し、先の遠沈管に入れる。これに²³¹Paトレーサー溶液の一定量を加える。このとき使用する8M HCl-0.1M HFは洗液、トレーサー溶液を含めて合計5mlになるようにする。石英容器の塩が非常に多い場合は8M HCl-0.1M HFの5mlに完全に溶解しないから、さらにこの5mlを加える。これを室温で約1日放置して照射試料を完全に溶かす。

上の溶液を20mlのポリエチレン試験管に移す。8M HCl-0.1M HFを10ml使用した試料については5mlずつ2本の試験管にとって以下の操作を行う。この場合や以後の操作で遠沈管や試験管に付着した少量の溶液は無視した。これはトレーサー ^{231}Pa を用い、最終の ^{233}Pa の収率がわかるからである。試験管に移した溶液にDIBK 5mlを加えて、ポリエチレン製の栓をしてから振とう器で10分間振りまぜた。この溶液を2層に分けるため遠心分離器を用い、上層のDIBK層は担体として用いた黄色の鉄を含むから、ピペットで除き、水溶液層がほとんど無色になるまでDIBKを加えて振りまぜる操作を行った。通常はこの操作を2回行なえば十分であったが、アルミニウム塩などが多い場合はDIBK層に黄色が完全に移らないことがあり、このようなときは8M HCl-0.1M HFをさらに5ml加え、2本の試験管に5mlずつ分けて上記操作を行った。

以下Fig.3に示した操作を順に行なえば太線にしたがって、プロトアクチニウムは抽出または逆抽出される。ここで水溶液層から有機溶媒層へ、またはこの逆にプロトアクチニウムが移るときは15分振りまぜ、同一層にとどまるときは10分振りまぜた。分離を完全にするためFig.3にあるように分離操作はA, Bの2回繰り返した。すなわち1回のサイクルで用いた試薬の量はカッコ外に、第2回のサイクルの試薬の量はカッコ内に示した。

前述したように最初に照射試料を溶解するとき8M HCl-0.1M HFを10ml用いた場合は、5mlずつ2つに分けた溶液についてそれぞれDIBKで鉄を除いた後、その一方に 2MAICl_3 , conc HClおよびDIBKを加え、DIBK層にプロトアクチニウムを抽出し、このDIBK層を他方の5ml溶液に 2MAICl_3 , conc HClと共に加えてプロトアクチニウムを抽出して1つにまとめた。

2.4 プロトアクチニウムの電着

上で分離精製した ^{231}Pa および ^{233}Pa の α , β 線を測定するのであるが、このために測定に便利でしかも溶液に作用されない金張りの銅板を使用した。この上に放射性核種を均一に広げるには電着法が適している。単に蒸発したのでは、蒸発の遅い部分に放射性核種が特に厚くなり、 α 線の自己吸収を起し易い。このことはラジオオートグラフで確かめられている。

分離操作の最後にキシレンで洗った溶液は少量ではあるがDIBKを含み、またHFが存在するので電着を防げる。したがってFig.3によって、これらを除かなければならない。先ず上記の溶液を白金ルツボに移し、濃硫酸0.55mlを加えて加熱し、HCl, HFを除き、 SO_3 の白煙が出始めたら加熱をやめる。冷却後水2~3mlでルツボの器壁を洗い、また SO_3 の白煙が出るまで加熱する。このようにしてHCl, HFを完全に追出す。この溶液は多くの場合黒褐色を呈するから、濃硝酸を1~3ml加えて、 SO_3 の白煙で出るまで加熱して残っているDIBKを分解する。この操作で溶液がまだ褐色を呈するときは、さらに濃硝酸を加えて加熱し、溶液がほとんど無色になるまでこの操作を行なう。最後に水でルツボの器壁を洗ってから、 SO_3 の蒸気が出るまで加熱する。冷却後溶液に少量の水を加えてから電解槽に移し、さらにルツボを水で洗う。このとき使用する水は合計4.5mlになるようにする。直ちに電解を行なわないときは、この状態で保存する。

電解槽に移した溶液に 2MHCOONH_4 0.75mlを加え、さらに濃アンモニア水2~5mlを加えてpHを調節する。pHの調節にはpH試験紙のTBとBPBを用い、TBでは2.4(赤紫色→帯黄色)、BPBでは3.6(黄色→帯青色)になるまでアンモニア水を滴下する。

プロトアクチニウムの電着はFig.4に示した電解槽によって行なう。

電解槽の側壁をなす円筒部はポリエチレン製であり、上部のベークライト製絶縁部は電着の際、溶液の飛沫で汚染されないようにポリエチレンフィルムまたはパラフィンフィルムで覆って使用した。底部は陰極で中央の凹部に金張り銅板が入るようになっている。上部端のボルトにより、側壁と底部の金張り銅板を固定する。陽極は白金線を用い、電池と接続し、0.5アンペアの一定

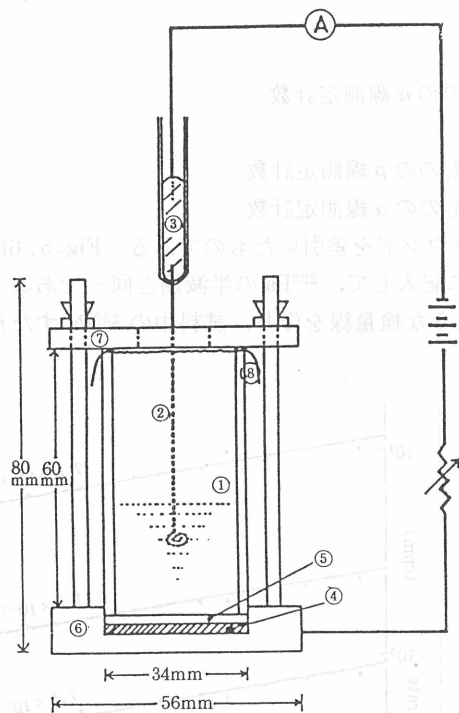


Fig. 4 Apparatus for Electro-deposition

- 1. electrolytic cell (polyethylene)
- 2. anode of Pt-wire
- 3. Hg
- 4. cathode of Au-plated Cu
- 5. packing
- 6. stand (brass)
- 7. lid (ebonite)
- 8. parafilm

電流で、4時間電着を行った。これによりプロトアクチニウムは底部陰極の銅板上に均一に電着される。電着終了後は電着板をよく水洗いし、赤外線ランプで乾燥した。金張り銅板に電着したプロトアクチニウムはとれることはないが、電着板がはじめに汚れていると均一に電着されないから、使用前に金の表面を洗剤で洗った。

3. 結果

3.1 放射能測定とトリウム算法

以上の操作によって試料中に含まれていたトリウムは ^{233}Pa として、トレーサーの ^{231}Pa と共に分離されて金張り銅板上に電着されているので、この β および α 線強度を測定して元のトリウム含量を知ることができる。まずその分離、電着操作における回収率を知るために、試料に使用したのと同量の ^{231}Pa トレーサー溶液を金張り銅板上に少量ずつなるべく薄層になるように広げて赤外線ランプで蒸発乾燥する。この α 線を測定して回収率100%とし、他の試料の α 線を測定すれば、回収率を求めることができる。

次に試料の β 線強度を測定し、一定量のトリウムから生じた ^{233}Pa を含む標準試料の β 線強度と比較することによって試料中のトリウムを求めるのであるが、次のように2つの補正をしなければならない。すなわち1つは試料の α 線強度を測定し、回収率100%の場合の β 線強度を求めるのである。他の1つは、一般に β 線検出器でも α 線によって計数するからであって、このため ^{231}Pa トレーサー溶液のみの分離電着を行ない、 α 線のみによる β 線検出器の計数を測定して、先に回収率100%のときの β 線強度を差引かなければならない。以上をまとめると次式のようになる。

$$\beta_{100} = \beta_{\text{sample}} \times \frac{\alpha_{\text{evap}}}{\alpha_{\text{sample}}} - \beta_{\text{electro}} \times \frac{\alpha_{\text{evap}}}{\alpha_{\text{electro}}}$$

- ただし β_{100} : 図にプロットする β 線強度
- β sample : 試料の β 線測定計数
- α evap : ^{231}Pa のみを蒸発乾涸したものの α 線測定計数
- α sample : 試料の α 線測定計数
- β electro : ^{231}Pa のみを分離電着したものの β 線測定計数
- α electro : ^{231}Pa のみを分離電着したものの α 線測定計数

以上の α および β 線強度はいずれもバックグラウンドを差引いたものである。Fig. 5, 6に示すように求められた β 線の補正值を片対数グラフに記入して, ^{233}Pa の半減期と同一であることを確かめるため, 隔日に測定を行ない, Fig. 7のような検量線を作り, 試料中の ^{233}Pa すなわち元のトリウム含量を求めることができる。

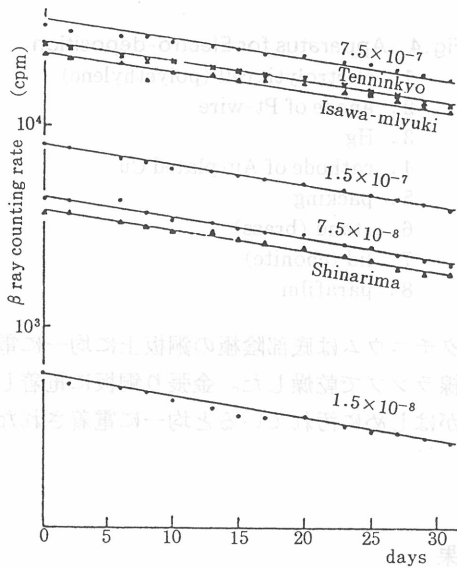


Fig. 5 Decay of β -counting rate (1)

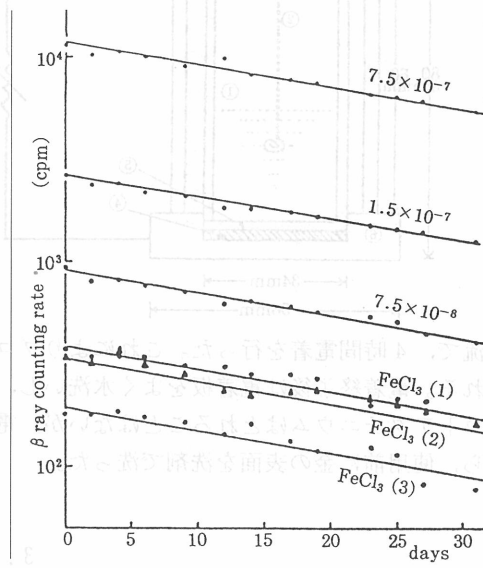


Fig. 6 Decay of β -counting rate (2)

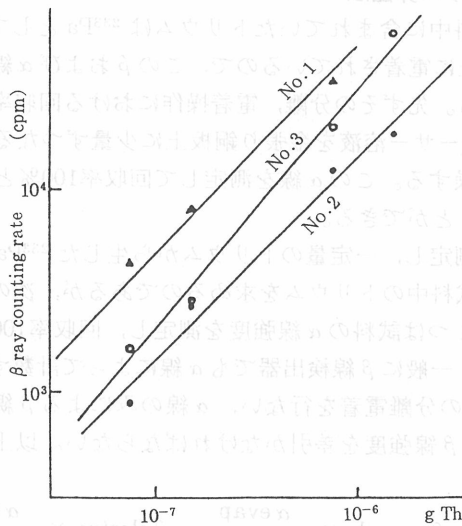


Fig. 7 Calibration for Th standards

3.2 温泉水中のトリウムの定量値

本邦温泉水について、上記の方法により得られたトリウム含量をTable 1に、含量の頻度分布図をFig.8に示す。また、試料に用いた温泉水の湧出地はFig.9に示してある。

この実験に用いた試料は、以上トロン法により温泉水中のトリウム系元素含量を測定するために採水した約七百の試料⁷⁾の一部である。

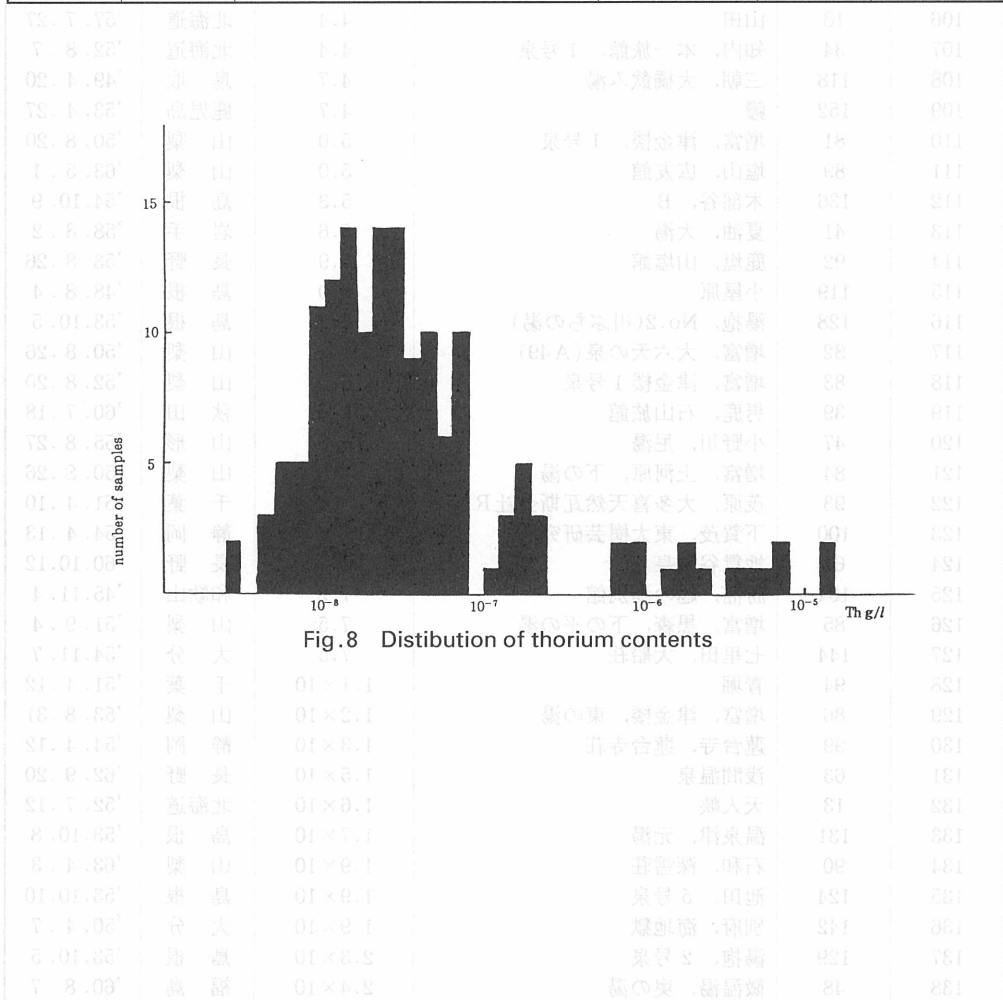
Table 1 本邦温泉水中のトリウム含量

番号 (含量順)	番号 (地図上)	泉名	トリウム含量 (10^{-8}g/l)	都・道・ 府・県名	採水 年月日
1	24	洞爺湖, 洞爺湖会館	0.3	北海道	'52.7.30
2	54	大塩	0.3	福島	'57.10.6
3	101	和倉, 元湯	0.4	石川	'52.10.4
4	25	壮瞥, 村営の湯	0.5	北海道	'57.8.3
5	109	三朝, 花屋の湯	0.5	鳥取	'48.3.24
6	14	糖平, 湯元館の湯	0.6	北海道	'57.8.11
7	23	カルルス, 飲湯	0.6	北海道	'52.7.29
8	49	日中	0.6	福島	'56.7.11
9	64	入山辺	0.6	長野	'62.9.19
10	151	阿久根, 住吉の湯	0.6	鹿児島	'59.3.31
11	102	芦原, ベに屋の湯	0.7	福井	'52.10.13
12	110	三朝, 翡翠, 浴槽の湯	0.7	鳥取	'54.10.5
13	132	潮原, No.1	0.7	広島	'56.9.30
14	139	俵山	0.7	山口	'54.10.13
15	4	仁伏	0.8	北海道	'52.7.16
16	19	昆布, 青山旅館の湯	0.8	北海道	'52.7.7
17	29	鉛川	0.8	北海道	'57.7.25
18	32	磯谷, No.1	0.8	北海道	'57.9.19
19	65	増富, 小西山の湯	0.8	山梨	'52.8.27
20	111	三朝, 三朝館月見の湯	0.8	鳥取	'54.10.5
21	133	湯来, 元湯	0.8	広島	'56.10.4
22	147	霧島, 硫黄谷, 高千穂館No.1	0.8	鹿児島	'53.4.19
23	150	入来, 副田, 柴垣湯	0.8	鹿児島	'59.4.3
24	11	温根湯	0.9	北海道	'52.7.14
25	12	層雲峡	0.9	北海道	'52.7.13
26	17	定山溪, 鹿の湯クラブの湯	0.9	北海道	'52.7.24
27	62	中房, 薬師の湯	0.9	長野	'63.10.11
28	52	麒麟山, 松仙閣の湯	1.0	新潟	'54.7.12
29	88	甲府, 塩部	1.0	山梨	'63.4.29
30	105	白浜, 第二走湯	1.0	和歌山	'56.4.3
31	137	柿の木, 3号泉	1.0	島根	'54.10.11
32	140	塩江, 元湯	1.0	香川	'55.4.17
33	26	二股, No.A	1.1	北海道	'52.8.2
34	40	金ヶ崎	1.1	秋田	'60.7.19
35	141	道後, 1号泉	1.1	愛媛	'55.4.20
36	1	羅臼, 村営の湯	1.2	北海道	'57.8.6
37	10	雄阿寒	1.2	北海道	'52.7.19
38	27	二股No.4	1.2	北海道	'52.7.31
39	66	増富, 津金楼1号泉	1.2	山梨	'50.8.20
40	9	阿寒湖畔, 1号泉	1.3	北海道	'52.7.20
41	55	橋立	1.3	福島	'57.10.7
42	67	増富, 栗平天然風呂	1.3	山梨	'50.8.19

番 号 (含量順)	番 号 (地図上)	泉 名	トリウム含量 (10^{-8}g/l)	都・道・ 府・県名	採 水 年 月 日
43	87	川浦	1.3	山 梨	'63.5.2
44	134	木部谷, A	1.3	島 根	'54.10.9
45	138	柿の木, 2号泉	1.3	島 根	'54.10.8
46	59	湯の花, 湯本	1.4	福 島	'57.10.4
47	108	岩井, 共同の湯	1.4	鳥 取	'54.10.2
48	112	三朝, 翡翠の湯, 湧出口	1.4	鳥 取	'54.10.5
49	135	田丸	1.4	島 根	'54.10.11
50	113	三朝, 株湯	1.5	鳥 取	'54.10.6
51	30	見市	1.6	北海道	'57.7.25
52	33	大舟, 下の湯	1.6	北海道	'57.8.20
53	50	大塩(北塩原)	1.6	福 島	'56.7.16
54	98	下田, 河内, 金谷旅館の湯	1.6	静 岡	'54.4.12
55	6	弟子屈, 1号泉	1.7	北海道	'52.7.18
56	3	養老牛	1.8	北海道	'57.8.8
57	51	熱塩	1.8	福 島	'56.7.10
58	68	塩の沢, 津金湯	1.8	山 梨	'50.8.23
59	114	三朝, 研究所の湯	1.8	鳥 取	'48.7.30
60	7	とう別, 官馬育成所の湯	1.9	北海道	'52.7.18
61	20	鯉川, 1号泉	1.9	北海道	'52.7.8
62	56	滝沢	1.9	福 島	'57.10.7
63	120	池田, 3号泉	1.9	島 根	'53.10.9
64	95	箱根, 芦の湯, 仙液の湯	2.0	神奈川	'55.4.10
65	121	池田, 2号泉	2.0	島 根	'53.10.10
66	69	増富, 巖頭噴泉	2.1	山 梨	'50.8.19
67	130	温泉津, 新湯	2.1	島 根	'53.10.8
68	115	三朝, 郡是の湯	2.2	鳥 取	'49.4.21
69	8	和琴, 共同の湯	2.3	北海道	'52.7.15
70	22	北湯沢, 横山旅館の湯	2.3	北海道	'57.8.2
71	31	濁川, 新栄館浴場の湯	2.3	北海道	'57.8.18
72	57	八町	2.3	福 島	'57.10.8
73	70	増富, 栗平1号泉	2.4	山 梨	'50.8.19
74	116	三朝, 岩崎の湯	2.4	鳥 取	'49.4.21
75	28	二股, No.5	2.5	北海道	'52.8.1
76	71	増富, 津金楼2号泉	2.5	山 梨	'50.8.20
77	125	湯抱, 新湯, 仲田屋の湯	2.5	島 根	'53.10.6
78	72	増富, 日受水	2.6	山 梨	'51.8.28
79	73	増富, 銀泉湯, 中の湯	2.6	山 梨	'50.8.21
80	73	増富, 銀泉湯, 上の湯	2.6	山 梨	'50.8.21
81	103	湯峯, 下の湯	2.6	和歌山	'46.1.19
82	75	増富, 津金楼1号泉	2.7	山 梨	'63.10.13
83	126	湯抱, 1号泉	2.7	島 根	'53.10.5
84	43	鬼首, 吹上温泉	3.0	宮 城	'54.8.8
85	76	増富, 銀泉湯, 下の湯	3.0	山 梨	'50.8.21
86	122	池田, 4号泉	3.0	島 根	'53.10.10
87	153	指宿, 湯の里	3.0	鹿児島	'53.4.24
88	44	鬼首, 宮沢, 高亀	3.1	宮 城	'54.8.8
89	58	湯ノ倉	3.1	福 島	'57.10.7
90	77	増富, 津金楼, 貸切の湯	3.1	山 梨	'50.8.20

番号 (含量順)	番号 (地図上)	泉名	トリウム含量 (10 ⁻⁸ g/l)	都・道・ 府・県名	採水 年月日
91	117	三朝, 三朝館の湯	3.2	鳥取	'54.10.5
92	21	昆布, 紅葉谷	3.3	北海道	'52.7.7
93	2	川北	3.4	北海道	'53.10.6
94	53	三川, 湯元館	3.4	新潟	'57.8.7
95	78	増富, 和田松場	3.4	山梨	'50.8.18
96	127	湯抱, No.3	3.5	島根	'56.7.12
97	91	西山, 御殿場	3.8	山梨	'61.8.31
98	146	吉田, 鹿の湯	3.8	宮崎	'59.10.31
99	16	豊富	3.9	北海道	'52.7.10
100	79	増富, 東小屋の泉	4.0	山梨	'50.8.22
101	60	松之山, 鷹の湯	4.1	新潟	'56.7.13
102	80	増富, 丹生沢	4.1	山梨	'50.8.23
103	123	池田, 4号泉	4.1	島根	'48.8.2
104	106	新有馬	4.3	兵庫	'49.4.26
105	107	有馬, 有明の湯	4.3	兵庫	'49.3.22
106	18	山田	4.4	北海道	'57.7.27
107	34	知内, 本一旅館, 1号泉	4.4	北海道	'52.8.7
108	118	三朝, 大橋飲み湯	4.7	鳥取	'49.4.20
109	152	鱒	4.7	鹿児島	'53.4.27
110	81	増富, 津金楼, 1号泉	5.0	山梨	'50.8.20
111	89	塩山, 広友館	5.0	山梨	'63.5.1
112	136	木部谷, B	5.3	島根	'54.10.9
113	41	夏油, 大湯	5.6	岩手	'58.8.2
114	92	鹿塩, 山塩館	5.9	長野	'53.8.26
115	119	小屋原	6.0	島根	'48.8.4
116	128	湯抱, No.2(川ぶちの湯)	6.2	島根	'53.10.5
117	82	増富, 大六天の泉(A49)	6.3	山梨	'50.8.26
118	83	増富, 津金楼1号泉	6.3	山梨	'52.8.20
119	39	男鹿, 石山旅館	6.5	秋田	'60.7.18
120	47	小野川, 尼湯	6.6	山形	'55.8.27
121	84	増富, 上河原, 下の湯	6.6	山梨	'50.8.26
122	93	茂原, 大多喜天然瓦斯会社R-2	6.6	千葉	'51.4.10
123	100	下賀茂, 東大樹芸研究所	6.6	静岡	'54.4.13
124	61	地獄谷噴泉	6.9	長野	'60.10.12
125	104	勝浦, 越の湯別館	7.2	和歌山	'45.11.4
126	85	増富, 黒森, 下の平の湯	7.5	山梨	'51.9.4
127	144	七里田, 大船荘	7.5	大分	'54.11.7
128	94	青堀	1.1×10	千葉	'51.4.12
129	86	増富, 津金楼, 東の湯	1.2×10	山梨	'53.8.31
130	99	蓮台寺, 蓮台寺荘	1.3×10	静岡	'54.4.12
131	63	浅間温泉	1.5×10	長野	'62.9.20
132	13	天人峡	1.6×10	北海道	'52.7.12
133	131	温泉津, 元湯	1.7×10	島根	'53.10.8
134	90	石和, 深雪荘	1.9×10	山梨	'63.4.3
135	124	池田, 5号泉	1.9×10	島根	'53.10.10
136	142	別府, 海地獄	1.9×10	大分	'50.4.7
137	129	湯抱, 2号泉	2.3×10	島根	'53.10.5
138	48	微温湯, 奥の湯	2.4×10	福島	'60.8.7

番号 (含量順)	番号 (地図上)	泉名	トリウム含量 ($10^{-6}g/l$)	都・道・ 府・県名	採水 年月日
139	96	箱根, 姥子, 秀明館	2.4×10^{-6}	神奈川	'55.4.10
140	143	別府, 血の池地獄	5.9×10^{-6}	大分	'50.4.12
141	148	霧島, 栄之尾, 村田旅館の湯	6.6×10^{-6}	鹿児島	'53.4.13
142	35	下風呂, 新湯	7.5×10^{-6}	青森	'53.8.3
143	36	川原毛	8.4×10^{-6}	秋田	'61.10.6
144	15	十勝川, 笹井旅館の湯	1.0×10^{-5}	北海道	'52.7.22
145	97	箱根, 湯の花沢, 与右衛門の湯	1.3×10^{-5}	神奈川	'55.4.9
146	42	須川, 1号泉	1.8×10^{-5}	岩手	'58.8.8
147	149	栗野岳	2.3×10^{-5}	鹿児島	'53.4.9
148	145	雲仙, 新湯, 旧八幡地獄	3.6×10^{-5}	長崎	'54.10.19
149	5	川湯, 御園ホテルの湯	5.0×10^{-5}	北海道	'52.7.16
150	37	玉川, 大噴(A)	6.3×10^{-5}	秋田	'53.7.29
151	38	玉川, キング(A ₃)	7.5×10^{-5}	秋田	'53.7.30
152	45	鳴子, 源蔵の湯	1.3×10^{-4}	宮城	'54.8.7
153	46	蔵王, 共同上の湯	1.4×10^{-4}	山形	'54.8.14



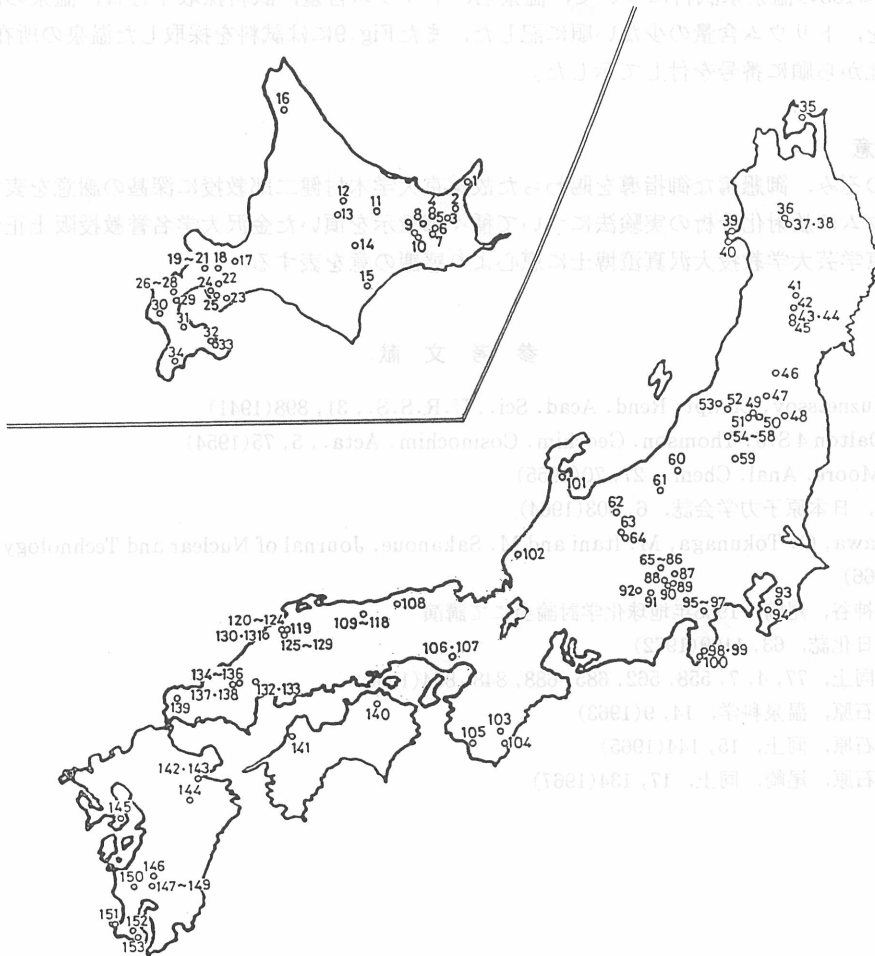


Fig.9 Localities of hot springs

3.3 考察

Fig.8に示した本邦温泉水153試料のトリウム含量の頻度分布から見られるように、トリウム含量は 10^{-8} g/l程度から最大 10^{-5} g/lまで分布し、トリウム含量が 10^{-8} ~ 10^{-7} g/lの温泉水が最も多い。これらのうちで、蔵王温泉のトリウム含量が最大で、 1.4×10^{-5} g/lであり、このほか、鳴子、玉川、川湯、川原毛、下風呂など酸性温泉のトリウム含量は一般に大きい。これらの温泉はいずれも酸性泉であるから、中性ないしアルカリ性泉と異り、トリウムが水酸化物として沈澱除去されることなく湧出してくるものと考えられる。また溶存成分の多い増富、茂原、下賀茂などの温泉は比較的トリウム含量が大きく、単純泉といわれる溶存成分の少ない温泉のトリウム含量は少ない傾向が認められる*。

溶存成分の極めて少ない温泉は、地下水が単に熱せられて沸出したものであるとすれば、通常の地下水のトリウム含量は 10^{-8} g/l程度ないしそれ以下であると考えてよいであろう。

*日本鉱泉誌(厚生省大臣官房国立公園部編, 昭和29年7月発行)の分析結果を参考に用いた。

Table 1に153の温泉水試料について、温泉名、トリウム含量、試料採取年月日、温泉の所在都道府県名を、トリウム含量の少ない順に記した、またFig.9には試料を採取した温泉の所在地を、地図上に北から順に番号を付して示した。

3.4 謝意

終りにのぞみ、御懇篤な御指導を賜った故東京大学木村健二郎教授に深甚の謝意を表する。またトリウムの放射化分析の実験法について種々御教示を頂いた金沢大学名誉教授阪上正信博士および東京学芸大学教授大沢真澄博士に恵心より感謝の意を表する。

参 考 文 献

- 1) V.I. Kuznetssov, Compt. Rend. Acad. Sci., U.R.S.S., 31, 898(1941)
- 2) J.C. Dalton & S.J. Thomson, Geochim. Cosmochim. Acta., 5, 75(1954)
- 3) F.L. Moore, Anal. Chem., 27, 70(1955)
- 4) 阪上他, 日本原子力学会誌, 6, 503(1964)
- 5) M. Osawa, O. Tokunaga, M. Itani and M. Sakanoue, Journal of Nuclear and Technology, 3 [8], 333(1966)
- 6) 下方, 神谷, 尾崎, 1968年地球化学討論会にて講演
- 7) 下方, 日化誌, 63, 1109(1972)
 - 下方, 同上, 77, 4, 7, 558, 562, 685, 688, 848, 854(1956)
 - 下方, 石原, 温泉科学, 14, 9(1963)
 - 下方, 石原, 同上, 15, 144(1965)
 - 下方, 石原, 尾崎, 同上, 17, 134(1967)

Fig. 9. Localities of hot springs

参 考 文 献

Fig. 8に示した日本温泉誌1981年刊のトリウム含量の少ない順に記した温泉名、トリウム含量、試料採取年月日、温泉の所在都道府県名を、トリウム含量の少ない順に記した、またFig.9には試料を採取した温泉の所在地を、地図上に北から順に番号を付して示した。

温泉名、トリウム含量、試料採取年月日、温泉の所在都道府県名を、トリウム含量の少ない順に記した、またFig.9には試料を採取した温泉の所在地を、地図上に北から順に番号を付して示した。