

高々温泉 (>60°C) 中のラドン, トロン, ラジウムの存在について

石井 忠*, 堀内公子**, 村上悠紀雄***

*山梨医科大学, **東京都立大学理学部化学教室, ***北里大学衛生学部

(昭和59年11月30日受理)

Study on Radon and Radium Content in Hot Spa of higher than 60°C Degrees

Tadashi ISHII*, Kimiko HORIUCHI** and Yukio MURAKAMI***

* Radioisotope Laboratory, Yamanashi Medical College

** Department of Chemistry, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University

*** School of Hygenic Science, Kitasato University

Abstract

Radon and Radium content in thermal water of higher than 60 degree C were simultaneously determined by extracting radon into LS toluene solution and counting activity by applying the integral counting method with a LS counter. The activity ratios of radon to radium were found ranging from 0.06 to 0.83 with an average value of 0.23 except only one sample.

Radon and Radium were also determined for thermal water and accompanying gas at two thermal areas. The latter was divided into uncondensable part and condensed part by cooling. Remarkably large amount of radon and radium were found in them. The activity ratios were also calculated, which were larger than unity.

From these results it may be said that even thermal water contains definitely larger amount of radon compared with that in radioactive equilibrium, if inclusive of accompanying gas. The authors conclude from this activity ratio of larger than one that even thermal water of higher than 60 degree C is formed by mixing of "Rn ground water" in a certain ratio with original thermal water.

Thoron contents were also obtained by analysis of radon decay curve.

1 はじめに

温泉法では25°Cを境にしてそれ以下は冷鉱泉, 以上は温泉と定義しており, 後者はさらに25°C以上34°C未満を低温泉, 34°C以上42°C未満は温泉, 42°C以上は高温泉と呼んでいる。わが国では40°C~60°Cのものが一番多く¹⁾, 平均は52°Cと巷間よくいわれている。

最近の地熱開発に先立ち地質調査所は全国地質調査(昭和48~50年)により, 熱水2325源泉の化学組成をしらべた²⁾。この中で60°C以上の源泉は867(37.2%)あることを知った。本論文では60°C以上の源泉をかりに「高々温泉」とよぶことにした。なぜ60°Cを区切りにしたかは別の論文でのべる³⁾。

また文部省特定研究の地熱流体の化学成分に関する研究班(班長鹿児島大学教授鎌田政明)に

参加し、 ^{226}Ra (以下ラジウム)、 ^{222}Rn (以下ラドン) などの放射性成分の解明を分担した⁴⁾。その目的は環境への影響評価であるが本論文ではふれない。

従来温泉中のラドン、ラジウムはIM 泉効計や電離箱、ローリツェン検電器、精密ラドン計など異なる測定器を用い、異なる人が異なる日時に採取した試料で定量が行われていた。そして両者間の放射平衡成立の有無が論ぜられ、多くの場合ラドンはラジウムとの平衡量を大きく上廻っており、その原因について考察されてきた^{5,6,7)}。

これに対し著者等の提案したラドン抽出—液体シンチレーションカウンター (以下LSC) による積分計数法を用いると、同一試料で一人の実験者が一つの測定器でラドン、ラジウムの定量ができ⁸⁾⁹⁾、しかもトリウム系列の ^{220}Rn (以下トロン) の定量も、崩壊曲線の解析により可能である¹⁰⁾。

この方法を高々温泉に適用しラドン、ラジウムの定量をおこない、その放射能比を求めたところ平均してその値は0.23にすぎなかった。放射平衡であれば比は1、ラドンが平衡量を上廻って存在するならば1より大きくなるはずである。温泉ではラドンが上廻る場合が多く、これに対し“Rn 地下水”を考えてその成因を考察した¹¹⁾。高々温泉に対してもやはりこの考え方で説明できることがわかったので報告する。

2 高々温泉水中のラドン、ラジウムの定量とその結果

2-1 試料採取とラドンの定量

可能な限り源泉の組成を示していると思われる試料を、防熱用手袋をして、泡立てることのないよう静かに1 l ポリエチレン瓶に採取し、水温をはかり密封し、しばらく冷却するのを待つ*。液体シンチレータトルエン溶液 (PPO 4g, POPOPO 1g/l トルエン、以下LS) 25ml を加え、時刻を記録する^{8b)}。密栓して倒立して3分間烈しく振とうさせ、ラドンをトルエンに溶解抽出させたまま実験室に送る。

二相分離後分取管を用い、トルエン層を測定バイアルに静かにうつす。分離時刻、温度を記録し、メスシリンダで試料水の量を測定する。

2-2 ラジウムの測定

トルエン層を分取後、試料水に窒素ガスをトルエン臭がなくなるまでバブリングする。ついでLS 25ml を加えテフロン栓をして時刻を記録する。倒立して放置しラジウムよりラドンの生長をまつ (密栓倒立法)¹²⁾。5日で平衡量の59.6%、10日で83.7%、15日で93.4%のラドンが生長する (経過時間d)。d時間後ラドンをトルエン層に抽出分離する。分離時刻、温度、液量、水量を記録する。

2-3 液体シンチレーションカウンターによる測定

2-1、2-2 でえた測定バイアルはLSCの試料棚に適当な時間放置した後、積分計数法により測定するとラドンの絶対測定が可能である¹³⁾。測定後LSの回収量を求めておく、また回収量の少ない時は適当量のLSを追加し、同容量のLS (21ml以上) で測定するようにする。

* トルエンの沸点は110.6℃だが少し冷却してから加える方がよい。温度低下と共にラドンの溶解度は増加するので逸散のおそれは少ない。冷却により減圧し周囲の大気を吸入するおそれがあるが、そのためのラドンの増加は無視できよう。

水温, 経過時間 (採取より LS 添加, 分離までの時間, 測定までの時間), 測定時間, LS の回収率, 試料水量など必要な補正を加えラドン量を求める⁹⁾.

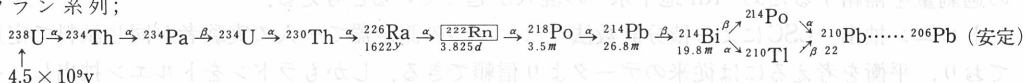
また d 時間放置し生じた (Rn) 量が測定できれば, 放射平衡にあるラジウム量 (Ra) は $(Rn) = (Ra) [1 - e^{-\lambda d}]$ により求める^{8C)}.

2-4 高々温泉中に溶存しているラドン, ラジウムの量

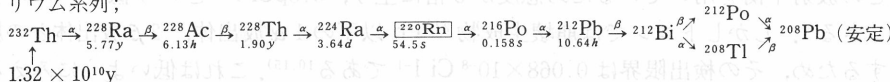
2-1 の方法で採料採取時に溶存しているラドン放射能 (Rn) と, 2-2 の方法より溶存しているラジウム放射能 (Ra) がえられる. またラドン測定の際崩壊曲線をつくり, 解析するとトロンの放射能がえられる¹⁴⁾.

ラドン (3.825日) トロン (54.5秒) のような短命な核種が温泉中に常時存在するためには, 長命な親核種との間に放射平衡が成立してはならない. 成立していれば, 両者の原子数 (または放射能) の間には一定の関係が成立する. 本論文では ²³⁸U とラジウム (²²⁶Ra), ラジウムとラドン (²²²Rn), ラドンとその崩壊生成物 (3 個の α 放出体と 2 個の β 放出体), トロンと ²²⁴Ra 又は ²²⁸Th (1.90y) [おそらく ²²⁸Ra (5.77y)] との間の放射平衡を用いている. それらの考察のため関連深い二系列を示す.

ウラン系列;



トリウム系列;



高々温泉21例につき試料採取時のラドン量 (Rn), と溶解している ²²⁶Ra 量 (Ra) を求めてその比を出すと0.06~0.83, 平均0.23となった. 一例だけが6.42であった (第一表).

第1表 高々温泉におけるラドン, ラジウムの含量

源	泉	温度	²²² Rn × pCi l ⁻¹	²²⁶ Ra × pCi l ⁻¹	(Rn)/(Ra)
鳴子	町役場共同温泉	81°C	<0.5	37.4 ± 0.4	0.13
	弁天閣源泉	84	11.62 ± 18.0	1.81 ± 0.04	6.42
台温泉	滝の湯	71	2.10 ± 1.75	12.3 ± 0.8	0.17
	菊昭旅館	93	<0.5 ± 0.03	3.69 ± 0.05	0.14
繋	共同源泉	64	<0.5	4.73 ± 0.05	0.11
滝の上	管林署源泉	90.0	<0.5	6.57 ± 0.06	0.08
	鳥越山荘新源泉	97.5	<0.5	5.94 ± 0.06	0.08
A地熱発電所	No. 8 生産井	92.4	<0.5	2.17 ± 0.23	0.23
	No. 7 生産井	96.2	<0.5	0.60 ± 0.13	0.83
	No. 10 生産井	96.8	<0.5	2.13 ± 0.23	0.23
	No. 9 生産井	97.0	<0.5	1.40 ± 0.23	0.36
B地熱発電所	No. 4 生産井	97.8	<0.5	1.56 ± 0.23	0.32
	No. 4 号井	95.5	<0.5	1.59 ± 0.23	0.31
C地熱発電所	生産井 C	>95	0.8 ± 0.4	2.43 ± 0.05	0.32
	生産井 A	>95	2.6 ± 0.8	3.52 ± 0.05	0.74
	D E 混谷管	>95	1.6 ± 0.8	25.0 ± 0.1	0.06
大湧谷	黒玉子小屋	71.5	<0.5	5.00 ± 0.50	0.10
宮の下	二の平の湯(奈良屋)	72.5	<0.5	5.57 ± 0.49	0.09
	底倉の湯(奈良屋)	85.5	<0.5	3.79 ± 0.43	0.13
大平台	第一源泉	84.0	<0.5	1.94 ± 0.34	0.26
小湧谷	今井源泉	82.5	<0.5	4.81 ± 0.49	0.10

* 10⁻¹² Ci ≡ pCi 単位で示し相互の比較しやすいようにした. したがって常水との区分の20 × 10⁻¹⁰ Ci は2000pCi の如く示すことにした.

また地熱発電所2ヶ所で気液分離したさいの熱水とガスについて、ラドン、ラジウムを定量した。なおガスは凝縮性(熱水)と非凝縮性ガスとにわけて、それぞれを定量した結果を第三表に示した。地上にでた高々温泉水の系全体としてのラドン、ラジウム量がわかる。

すでに報告した高々温泉(4例)の採取時に溶存しているラドン、トロン、また溶存している親核種から成長してきたラドン、トロンの量を求め第四表に示した¹⁵⁾。

3 結果に対する考察

えられた結果の解釈は、つぎの三つの前提にたつてすすめる。

まず温泉ではラドンがラジウムとの平衡量を上廻って存在している場合が多い^{5,6,7,9)}。これに対し“Rn 地下水”の生成と混入を考えた¹¹⁾。三朝、増富などの放射能泉のみならず、ラドン、ラジウムが定量されていないような低レベルの温泉までを含め、 δRn 値と温度を考慮して、“Rn 地下水”の混入を考えると都合よく説明できる。

もし両者の間に放射平衡が成立するならば (Rn)/(Ra) 比は1となり、大きければ溶存するラドンは溶存しているラジウムとの平衡量を上廻って存在していることを示し、温泉形成過程でその過剰量を補給するため“Rn 地下水”の混入が起っていると考える。

トルエン抽出-LSCによる積分計数法では、一つの測定器で一人の実験者が同じ試料で定量しており、平衡を考えるには従来のデータより信頼できる。しかもラドンをトルエン抽出し、その崩壊生成物との放射平衡を用いているため感度が5倍に上り、 $0.5pCi\ l^{-1}$ という低レベルのラドンまで定量できる⁹⁾。しかしトロンでは崩壊生成物^{212Pb}以下の $1\ \alpha$ 放出体、 $2\ \beta$ 放出体との放射平衡を利用するため、その検出限界は $0.068 \times 10^{-8}\ Ci\ l^{-1}$ である^{10,15)}。これは低いようにみえるがラドンと同じ検出限界である。トロンは半減期54.5秒なのですぐ消失し、220分たち放射平衡になる^{212Pb}以下を測定してトロンを算出しているからである。

いまラドンとトロンが同量原子数で 10^5 個あるとき、放射能は半減期のためラドンでは $5.67 \times 10^{-12}\ Ci$ 、トロンでは $3.44 \times 10^{-8}\ Ci$ になるのであるから、トロンの検出限界が低いわけではない。ちなみにラドンの $0.5pCi$ は半減期の3.825日で計算すると、 0.88×10^4 原子、 $3.25 \times 10^{-18}\ g$ にあたる。

まず本方法で得られた値の妥当性を確かめるために、種々の試料におけるラドン、ラジウムの分布をながめてみる。

温泉中のラジウム、ラドンは、形成、湧出の過程において壁岩などから他成分と共に溶出してきたと考えられる。火成岩中の^{226Ra}は^{238U}との平衡量を少し上廻って存在している¹⁷⁾。両者の化学行動の差異が岩漿分化のさいにあらわれるためといわれる。すなわち^{226Ra}は酸性岩(花崗岩)で1.27、中性岩で0.51、塩基性岩で0.38 $pCi\ g^{-1}$ 、堆積岩では石灰岩0.42、砂岩0.71、粘板岩1.08 $pCi\ g^{-1}$ 、土壌では1~2 $pCi\ g^{-1}$ である。

また水中のラジウムは地下水、地表水では、わが国では $0.1 \sim 1\ pCi\ l^{-1}$ 、 $0.05 \sim 1.5pCi\ l^{-1}$ ⁷⁾、米国では $0.3 \sim 3pCi\ l^{-1}$ である¹⁸⁾。

またわが国のラドンの定量された412温泉2651源泉についての統計¹⁹⁾によると、ラドンが鉱泉基準の $2000pCi\ l^{-1}$ 以上の源泉は24%、放射能泉の基準 $3000pCi\ l^{-1}$ 以上の源泉は約19%あり、 $100 \sim 500pCi\ l^{-1}$ の源泉は最も多く37%ある。

ラジウムでは198温泉887源泉で定量されているが、 $10pCi\ l^{-1}$ の鉱泉基準以上の源泉は約5.27%で、 $1 \sim 5pCi\ l^{-1}$ の源泉が最も多く約20%あり、 $100pCi\ l^{-1}$ 以上の源泉は2つにすぎない¹⁹⁾。

トロンは310温泉642源泉で定量されたが、定量限界以上の68源泉146源泉についての統計によると、 $10^{-7}\ Ci$ 以上の源泉が約19%、 $10^{-9} \sim 10^{-7}\ Ci$ の源泉が24%、 $10^{-11} \sim 10^{-9}\ Ci$ の源泉は7%とい

った状況である¹⁹⁾。これらの値と比較してみると、えられた値は妥当と考えられるので議論を進めていく。著者等はすでに伊豆地方の22源泉(15.5°C~102°C)についてラドン, トロンの同時定量の結果を報告し²⁰⁾, その結語に「50°C以上の高温のものでは (Tn)/(Rn) 比が0.2以上のものが7例(ほぼ半数)にみられる点が注目される」とのべた。これを高々温泉と「Rn 地下水」の混入という今回の考え方になつて整理してみると、つぎの三群にわけられる。(Tn), (Rn) は試料採取時に溶存していたトロン, ラドンの放射能を示す。(Ra)は溶存している²²⁶Raの放射能である(第二表)。(Rn)/(Ra)が1より大きければ、平衡量を上廻るラドン分は「Rn 地下水」の混入により起つたためと考える。

第2表 ラドン, トロン, ラジウム量による高々温泉の分類* (伊豆半島)

分 類	温 度	平均値	(Rn)/(Ra)比(範囲)	(Tn)/(Rn)比(範囲)	平均値	
高々温泉	I群 5例	>60°C	91.4°C	1 < 0.16~0.72	0.14~0.74	0.41
	II群 7例	>60°C	77.9°C	> 1 1.14~76.2	0.01~0.19	0.04
温泉	III群 10例	<60°C	41.9°C	> 1 1.66~120.6	0.002~0.19	0.045

* アンダラインの条件はかわらないが、例数がふえると数値は少しかわるかもしれない。

I群は沸とう状況を時に示す高々温泉で、(Rn)/(Ra)比が1より小さく、ラドンの量はラジウムとの平衡量より少ないが、(Tn)/(Rn)比は他の二群にくらべて大きい。ラドン量が少ないためである。

II群はやはり高々温泉だが、温度はI群より下がり、(Rn)/(Ra)が1より大きくラドンは平衡量より多い。したがって(Tn)/(Rn)比が前者より小さくなっている。すなわち「Rn 地下水」の混入が起っている。III群はさらに「Rn 地下水」が多く混入するため温度が下がり、(Rn)/(Ra)比が1より相当に大きく、(Tn)/(Rn)比はII群と同じ位に低くなっている。

さて第一表の結果から出した(Rn)/(Ra)比は一例を除き0.06~0.83, 平均0.23である。まさにI群の条件にぴたりあっている。この一例は比が1より大きい点で他と異なり、(Rn)/(Ra)比をみるとII群になる。

以前にラジウムとラドンを同時定量した結果(119源泉16.0°C~97.8°C)を報告したが⁸⁰⁾, この中に高々温泉が30あり、(Rn)/(Ra)比が1より小さい例は17, 大きな例は13ある。これらはそれぞれI群とII群の条件にあい一つもはずれていないものはない。

したがってI群の条件は高々温泉のもつ性格と考えたいところであるが、第三表の結果をみると問題がある。I群に入る地熱発電所2ヶ所において、気液分離したのちの気相を、凝縮ガスと非凝縮ガスとにわけ、熱水と共にそれぞれのラジウムとラドンを定量した結果である。ラドンの化学性からみて非凝縮ガス部に入るからそのラドン値は大きい。しかもラジウムの平衡量とくらべて1~2桁も大きい点が注目される。

ラジウムが凝縮水中にあり、しかも熱水中よりも1~2桁も高いことは予想外であった。沸騰のさいミストとして気相に入ったためと考えられるが、それ以外に高温高压のため混入の原因があるのかもしれない。たとえばウラン鉱床の坑内水中のラジウムは60m深で13,500pCi l⁻¹だが、500m深では163,800pCi l⁻¹と増えている¹⁸⁾。また地下深所で水が臨界状態(374°C, 217.6気圧)であれば、NaClなどの溶解度がずっと大きくなるといわれる²¹⁾。これらの地熱井の坑底温度(200°C前後)と加圧下の条件では、溶存するラジウム, ラドンの量はぐっと大きくなっているた

第3表 地熱発電用蒸気(非凝縮ガスと凝縮水)中のラドン・ラジウムの存在量

地熱発電所	熱水 $^{226}\text{Ra} \times \text{pCi l}^{-1}$	非凝縮ガス		凝縮水(凝縮ガス)		備考
		$^{222}\text{Rn} \times \text{pCi l}^{-1}$		$^{226}\text{Ra} \times \text{pCi l}^{-1}$		
A 混合蒸気 (No.8, 9, 10井)	3.04(No.8) 2.71(No.9) 2.22(No.10)	4256		286.2		気温27.7℃, 気圧685mmHg 蒸気温度125℃ 凝縮水温度25℃
非凝縮ガス:凝縮水	1		: 1.06(27~28℃)		4.73	
B 混合蒸気 (No.4, 6, 7井)	3.03	373		21.4		気温21.8℃, 気圧671.7mmHg 蒸気温度150℃ 凝縮水温度25.2℃
非凝縮ガス:凝縮水	1		: 1.3(27~28℃)		2.51	

めかもしれない。その機構についてはさらにくわしくしらべる必要がある。

さて非凝縮ガスと凝縮水の割合を考慮しても、ラドンは温泉ガス中にラジウムとの平衡量より1~2桁以上も多く存在している。したがって第一表の対応するラドン定量値はそのごく一部をはかったにすぎないことがわかった。すなわちこれら高々温泉は $(\text{Rn})/(\text{Ra})$ 比 <1 でI群の条件にあうが、系全体を考えるとラドンは平衡量より多く比は1より大きくなる。ラドンの大部分は湧出のさい沸騰し逸散し、みかけ上この比は1より小さくなったにすぎないことになる。

わが国の地熱調査報告²⁾の高々温泉867中でラドンの定量されている310源泉の平均は663pCi l⁻¹である。記載のないのは定量しなかったのか定量しても鉱泉の基準(2000pCi l⁻¹)以下であったのか不明である。またラジウムの定量値も記載がなく、考察の手がかりがない。しかし平衡量のラジウムがあったとすると663pCi l⁻¹でなくてはならない。ラジウムの鉱泉の限界値10pCi以上のものは5.2%にすぎない¹⁹⁾現情にあわない高濃度である。米国の温泉の平均でもラジウムは24pCi l⁻¹、ラドンはこれとの平衡量を大きく上廻る1,170pCi l⁻¹である²²⁾。これらの点からみて高々温泉でもラドンが平衡量を上廻って存在していると考えてよいようである。

この考え方の支持としたいのは、本邦各地の温泉ガス、火山ガス、噴気ガス中のラドンを定量した結果²³⁾である。90℃以上の温泉ガスは48あり、平均値は17,570pCi l⁻¹である。ラジウムのデータはないが、ラジウムと平衡にあったとすると、17,570pCi l⁻¹のラジウムを含む熱水が存在してはならない。放射能泉である三朝温泉でもラジウムは1.14~2.90pCi l⁻¹にすぎず、このような高濃度のラジウムを含む温泉がこのように多数存在することは考え難いことであり¹⁹⁾、ラドンが平衡量を上廻って存在していると考えざるをえない。なお火山ガス(55試料)に139、噴気ガス(49試料)に831pCi l⁻¹のラドンがあり、やはりラジウムとの平衡量を上廻るラドンを伴っている熱水(又はガス)が地表近くにきていることを示している。

同じようにニュージーランドの地熱帯で、地熱井の近くの5つの熱湯池(>89℃)の温泉ガス中のラドンは、平均38,600(6,000~95,000)pCi l⁻¹である²⁴⁾。ラジウムのデータはないが、上記と同じ理由で平衡量を上廻るラドンを伴う湧出を示唆している。

以上のべてきたことで通常の温泉だけでなく^{5,6,7,16)}、高々温泉のI群型でも系全体としてみると、ラドンがラジウムとの平衡量を上廻って存在していると結論できる。泉質形成、湧出の過程でラジウムを溶出するので平衡量のラドンは存在しうが、これを上廻るラドンを補給する機構がなくてはならない。もしこの過程で“Rn地下水”の混入があると¹¹⁾、平衡量を上廻るラドンを含むことが可能となる。

たとえば95℃の熱水(ある量のラジウムを含む)に、これとの平衡量の100倍のラドンを含む“Rn地下水”(20℃とする)が混入して80℃の高々温泉になったとする。12.5%の混入が起り、

ラドンが平衡量を約12.5%上廻る高々温泉となる。上記でのべたⅡ群に入る13例中の4例は三朝地区にある源泉で、温度が比較的高くしかも浅い源泉である。これらは放射性沈積物層を通り抜けるさい、ラドンを含む地下水が入りラドンが平衡量を上廻り、しかも低温の源泉ほどラドン量が多いことが説明されている^{6,7)}。今回報告した高々温泉でも、以前に報告したⅠ, Ⅱ群に入る高々温泉30例でも、形成湧出過程で“Rn地下水”の混入により過剰量のラドンを含有することになる結果を示しており、三朝でも必ずしも放射性沈積物の層を考えなくてもその混入でよい¹¹⁾。

この考え方を地熱研究で最近明確になってきた地熱貯留層の存在と結びつけると一般的につきぎようになる。マグマ溜りからの高熱をもった熱水またはガスにより、地下水が深所で高温に熱せられ(簡略にしているが)、岩石(数%の空隙あり)や割れ目、断層破碎帯などに溜り、上部は不透水性の岩石など(帽岩)でおおわれていると地熱貯溜層となる^{4,25)}。ここからの裂かまたは断層にそって一部が上昇し、これに地下水が混入して地上に出現したものが温泉である²⁶⁾。この上昇途中で“Rn地下水”の混入があると、平衡量を上廻るラドンを含む高々温泉ができると考える。同一地区の源泉ではδRn値を考えると定量的に考察することができる^{11,27)}。

つきにラドン, トロンを定量した4例の高々温泉のデータ¹⁵⁾をみると、(Rn)/(Ra)比を考慮すると、No.1, 3, 4はⅡ群に入り、採取時に溶存していたラドンの方が多く、“Rn地下水”の混入を示し、ラドンが多いため(Tn)/(Rn)比が小さくなっている。これに対しNo.2はⅠ群であり、沸騰泉のためラドン, トロンも少ない。しかもこの例だけが採取時に溶存していたラドンよりも、溶存している²²⁶Raから生れるラドンの方が多く、採取時にラドンの逸散が起ったことを示している。

第4表 温泉中のラドンとトロン (10⁻¹² Ci ≡ pCi)

番号	源泉名	源泉温度	採取時に溶存していたラドン		採取後親核種から生長したラドン	
			²²⁰ Rn 10 ⁻⁸ Ci l ⁻¹	²²² Rn 10 ⁻¹² Ci l ⁻¹	²²⁰ Rn 10 ⁻⁸ Ci l ⁻¹	²²² Rn 10 ⁻¹² Ci l ⁻¹
1	片瀬 東豆館	85.5℃	0.068以下	3.10±0.21	—	1.70±0.46
2	峰 玉峰館No.1	91.3	0.068以下	0.93±0.19	—	1.30±0.71
3	谷津 掛 橋	64.0	5.10±1.55	230.9 ±6.6	0.51±0.16	3.03±0.38
4	松崎 6号泉	62.4	0.27±0.08	41.0 ±0.4	0.147以下	4.49±0.98
5	赤沢 第一	42.0	0.19±0.08	11.32±3.0	1.50±0.25	1.70±0.46
6	熱川 道灌の湯	42.0	8.62±3.17	111.6 ±6.7	0.86±0.32	1.82±0.39
7	土肥 土肥三脈	48.2	0.61±0.22	13.7 ±0.6	0.147以下	1.68±0.42
8	水 口	59.8	0.068以下	2.85±0.20	0.147以下	1.72±0.45

この例でも温泉ガスを含めて系全体を考えるとやはりラドンは平衡量を上廻っているわけで、ラドン, トロンの研究のためには温泉ガスを含めて考えることが大切であり、環境への影響評価にはかかせないことがわかった。

参考のためにあげた60℃以下の4例はいずれもⅡ群に入るが、温度が低いので“Rn地下水”の混入はⅡ群のNo.1, 3, 4などより多いと考えられる。採取時に存在していたトロンは、溶存している²²⁴Ra(又は²²⁸Ra)より生長してくるトロンより低い。すなわちこの温泉が本来もっているトロンより多いトロンの混入を示している。しかしNo.5とNo.8はラドンはいずれも採取時に溶存していた方が本来含むラドンより多く、トロンは逆に本来のものの方が大きい点で異なっている。この事は採取時と溶存していたラドンの場合にくらべると、トロンの量は少なくでている

ことがわかる。No.5 で考えるとラドンは $11.32/1.72 = 6.6$ 倍採取時にあるのだから、トロンはやはり $0.19 \times 6.6 = 1.25$ 存在が採取時に期待できる。トロンはトルエン抽出後なるべく早く測定を開始し、初期の減衰をつかまねばならない¹⁰⁾。抽出後80時間以内に少なくとも5回の測定が必要であるが、この点とラドンの少量のための不正確さなどが重なったのかもしれない。この点もまた、もう一つ小さく出る原因には、短半減期のため、噴出までの時間経過、試料採取中の時間経過などの間における減衰が大きいためのかもしれない。ラドンは50分で0.36%、100分で0.63%、150分で約1%の減衰が起るだけだが、トロンでは9分で約0.1%にまで減衰してしまう。すなわちトロンは減少するがラドンはその時間中の減衰は無視できる範囲があることになる。すなわちトロン、ラジウムの同時定量により時間に関する情報がえられる可能性を示している。

ま と め

トルエン抽出—液体シンチレーションカウンター積分計数法を高々温泉に適用して、ラドン、トロン、ラジウムの定量を試みた。(Rn)/(Ra)比、(Tn)/Rn比により三つのタイプになることがわかった。沸とう泉、地熱井などでは、ラドンの量が小さく出ることがあるが、ガスも含めて考えると、やはりラドンは溶存しているラジウムとの平衡量を上廻っていることがわかった。しらべた高々温泉でもやはりすべてラドンが平衡量を上廻っており、したがってこの成因については「Rn地下水」の混入が必要である。

トロンをラドンと共に定量すると、混入や湧出などの時間経過を推定するのに有効であろう。ラドン、トロンの地球化学的な行動をするには温泉ガスも同時にしらべることが必要である。

本研究に必要な経費の一部は文部省特定研究課題R51—58030065をあてた。ここに感謝の意を表します。

番号	著者	題名	年次
1	岩崎岩次	温泉化学, 21, 49(1970)	1970
2	比留川貴, 安藤直行, 角清愛	日本の主要地熱地域の熱水の化学組成, 地質調査所報告No.257, 1977	1977
3	村上悠紀雄他	温泉科学(投稿中)	
4	鎌田政明, 小次竹二郎, 村上悠紀雄, 吉田稔編	地熱流体の化学, 東京大学出版会(印刷中)	
5	中井敏夫	日化誌 58, 638(1938)	1938
6	K. Kikkawa	地球物理 9, 117(1954)	1954
7	S. Okabe	Mem. Coll. Sci, Univ. Kyoto Ser. 1, 28, 39(1956)	1956
8	堀内公子, 村上悠紀雄	温泉科学 27, 33(1976), 28, 39(1956), 29, 68(1978)	1976, 1956, 1978
9	堀内公子	温泉工学誌, 13, No. 2, 17(1978)	1978
10	堀内公子, 村上悠紀雄	分析化学 28, 661(1979)	1979
11	堀内公子, 村上悠紀雄	地球化学, 12, 59(1978)	1978
12	Horiuchi K, Murakami Y.	Int. J. Appl. Rad. Isotopes 32, 291(1981)	1981
13	Homma Y, Murakami Y.	J. Radioanal. Chem., 36, 173(1977)	1977
14	堀内公子, 村上悠紀雄	Radioisotopes, 28, 508(1979)	1979
15	堀内公子, 村上悠紀雄	Chem. Lett., 449(1979), J. Radioanal. Chem., 52, 508(1979)	1979
16	Harber H.	Radionuklide in Wasser, S107, Karl Thiernig, München, 1969	1969

