

筋文を尋

火山噴出物ならびに温鉱泉中の ^{210}Pb と ^{210}Po (その2)—温鉱泉中の ^{210}Pb と ^{210}Po 含量の測定—

・第2回 温泉本部会議発表文集(1994年)、温泉科学研究会編、1994年3月、(1994) 温泉科学研究会編

(1994) 温泉科学研究会編、金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設*1、金沢大学名誉教授*2、第2回 温泉本部会議

山本政儀*1, 渡口輝*1, 指物和彦*1,
小村和久*1, 上野馨*1, 阪上正信*2

(平成6年3月5日受付, 平成6年4月9日受理)

 ^{210}Pb and ^{210}Po in Volcanic Products and Mineral Springs (2)—Measurement of ^{210}Pb and ^{210}Po Contents in Mineral Springs—

Masayoshi YAMAMOTO*1, Akira TOGUCHI*1, Kazuhiko SASHIMONO*1,
Kazuhisa KOMURA*1, Kaoru UENO*1, and Masanobu SAKANOU*2

*1 Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University,

*2 Emeritus Professor of Kanazawa University

Abstract

Polonium-210 and ^{210}Pb contents in mineral springs were investigated with emphasis on the measurement of these radionuclides by alpha-ray spectrometry. Polonium-210 and ^{210}Pb in water were coprecipitated with $\text{Fe}(\text{OH})_3$. Polonium-209 and stable Pb were added as yield tracers. The ^{210}Po was plated onto a silver disk and determined by alpha-ray spectrometry using Si (Au) surface barrier detector. The ^{210}Pb was determined from the ingrowth amount of its daughter, ^{210}Po . By using this method, ^{210}Po and ^{210}Pb contents in some mineral springs have been determined along with ^{238}U , ^{226}Ra and ^{222}Rn contents.

Preliminary results showed that ^{210}Po (0.2-95mBq/l) and ^{210}Pb (0.0-560mBq/l) contents were grossly deficient relative to their parent, ^{222}Rn (0.4-5000Bq/l). The measured $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ activity ratios were mostly less than 1.0, providing further insight into the mechanisms of supply and removal of these nuclides.

はじめに

諸温鉱泉中の主成分はもとより、微量成分さらに放射性核種についてもラドン(^{222}Rn)^{1, 2)}、ラジウム(^{226}Ra)^{3, 4)}、トリウム(^{232}Th)⁵⁾などのウランおよびトリウム系列核種の研究は数多くみられるが、ウラン系列の末端に位置する半減期のかなり長い鉛-210(^{210}Pb : β^- 壊変、半減期22.3y)とポロニウム-210(^{210}Po : α 壊変、半減期138.38d)の含有量の定量は、国内はもとより国外にもきわめて少ない^{6, 7, 8)}。過去の測定値については、的確な放射化学的分離法、すなわち、

放射線測定に至るまでの化学収率の厳密な補正などの点で問題がみられる。

これまで化学収率補正用のトレーサーとして天然に存在しない ^{209}Po (α 壊変, 半減期102y)を試料に一定量添加した分析法と高分解能のSi(Au)表面障壁型半導体検出器による α 線スペクトロメトリーを併用した正確な ^{210}Po 測定法を適用して, 火山地帯のエアゾル⁹⁾やタバコ葉中¹⁰⁾の ^{210}Po の研究を進めてきた。本報では, 温鉱泉中の ^{210}Po と ^{210}Pb 含量の測定をこの方法を用いて行なったので, その分析・測定法を中心に測定結果を同時に測定したUとRa同位体および ^{222}Rn の結果と共に報告する。

実験方法

温鉱泉中の ^{210}Po と ^{210}Pb 含量を測定することが主目的であるが, 同時にできるだけ多くの放射性核種についての情報も得るためにウラン(^{238}U , ^{234}U), ラジウム(^{226}Ra , ^{228}Ra)およびラドン(^{222}Rn)も併せて測定した。

1. 分析・測定法

1.1 ^{210}Po , ^{210}Pb およびU同位体の逐次分離・測定

可能な限り湧出孔に近い位置で, 10~20l(大部分20l)を採取し, conc. HCl 200mlを添加した。実験室に持ち帰った後, ^{210}Po , ^{210}Pb およびU同位体の逐次分離を実施した(図1)。分析には, 通常20lを用い, 共沈剤として Fe^{3+} 300~400mg, 収率補正用のトレーサーとして安定Pb 50mg(^{210}Pb を含んでいないPbより調製), ^{209}Po 0.03~0.05Bq(ラドン濃度が高い場合には0.1~0.3Bq)および ^{232}U 0.02~0.05Bqをそれぞれ添加し, 約2時間加温(60~80°C)・攪拌後, 一晩放置した。その後アンモニア水を加え, pH 8~9にした溶液から Fe(OH)_3 , Pb(OH)_2 と共にU, 209 , ^{210}Po , ^{210}Pb を沈殿させた。沈殿が沈降するまで放置した後, 上澄み液を捨て, 遠心分離した後, 8M HNO₃で沈殿を溶解した。こうして得たHNO₃溶液中には, Siが含まれている場合が多く, 特にU分析の際に化学収率の低下をまねく。このため, まず最初にHNO₃溶液を200~300mlのテフロンビーカに移し, HFを数十ml加えて蒸発乾固させ大部分のSiを除去した。その後, 少量のHNO₃を加えて2回蒸発乾固を繰り返し, 最後にHClを加えて再度蒸発乾固を行ない, 残渣を0.5M HCl約100

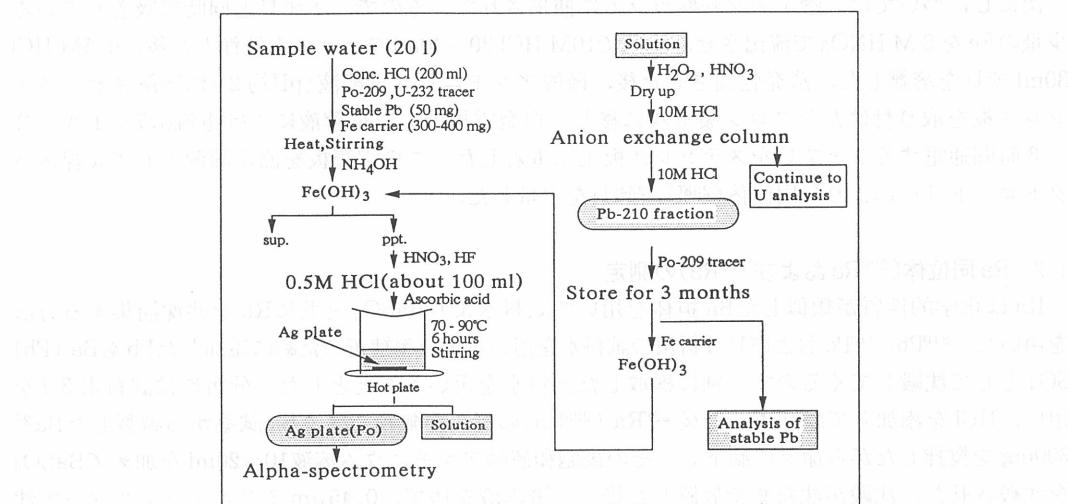


図1 温鉱泉水中のポロニウム-210, 鉛-210およびウランの逐次分析操作手順

mlに加温溶解した。200mlのガラスビーカーに移した後、多量の Fe^{3+} をマスクするためアスコルビン酸を数十mg加え、ホットプレート上で70~90°Cに加温しながら約6時間かけて溶液中に入れたAg板(一边が2cm程度の正方形のAg板で、裏面に耐熱テープをはりつけたもの)にPoを自己析出させた。乾燥後、これをPoの測定線源として α 線スペクトロメトリーにより ^{210}Po を定量した。そのスペクトル例を図2に示す。 β 線放射体で ^{210}Po の先行核の ^{210}Pb は、 β 線の最大エネルギーが17keVと低く、その測定はかなり困難なので、 ^{210}Pb から成長する ^{210}Po を測定して ^{210}Pb を評価することとした。先のPoを析出させた後の0.5M HCl溶液に少量の HNO_3 , H_2O_2 を入れ、アスコルビン酸を分解させながら蒸発乾固させた後、8M HCl約50mlに溶解し、まず多量の Fe^{3+} をイソプロピルエーテルで抽出・除去した。8M HCl溶液を加熱して、残っている少量のイソプロピルエーテルを飛散させ放冷後、陰イオン交換樹脂カラム(Dowex 1×8, 100~200mesh Cl型、カラム：直径1cm、長さ10cm)に流し、8M HCl 50mlで洗浄した。このカラム条件のもとではPoとUは強く樹脂に吸着し、一方Pbは吸着せずに流出する。そこで、この流出液と洗浄液を合わせて ^{210}Pb 用の分析試料とし、それに ^{209}Po トレーサーの一定量(0.02~0.04Bq)を添加して数カ月(通常3ヶ月)ポリ瓶にて保存しながら ^{210}Pb から ^{210}Po を成長させた。Pb収率補正のために一定容量(5~10ml)を分取した後、残りの溶液に Fe^{3+} を20~30mg入れ、水酸化ナトリウムとアンモニア水でpH 8~9にした溶液から Fe(OH)_3 と共にPoを共沈させた。その後は上記したPoと同様な方法でAg板上にPoを析出させ、 α 線スペクトロメトリーで ^{210}Pb から成長した ^{210}Po を定量した。収率補正用に分取した溶液は1~2 ppmのPb溶液になるように希釈した後、原子吸光度法により定量し、添加量との比較から収率を求めた。

次にUについては、陰イオン交換カラムに捕集されているので、まずUと同時に吸着している少量のFeを8M HNO_3 で流出させ、次いで10M HCl 30~40mlでカラムを洗浄した後、0.5M HCl 80mlでUを溶離した。蒸発乾固させた後、硫酸アンモニウム電解液(pH約2)に溶解させ、ステンレス板を取り付けたテフロン製セルに移し、白金電極の先を電解液につけ電流0.7~1Aで2~3時間通電することでUをステンレス板上に電着した。この電着板を測定線源として α 線スペクトロメトリーによりU同位体(^{238}U , ^{234}U)を定量した。

1.2 Ra同位体(^{226}Ra および ^{228}Ra)の測定

Raは化学的性質が類似したBa担体を用いて試料水より BaSO_4 と共にRaを共沈捕集する方法を用いた。 ^{210}Pb , ^{210}Po およびU分析用の試料水を用いると収率補正のために添加したPbもBa(Pb) SO_4 として沈殿してくるので、別に採取した試料水を用いることとした。分析には試料水5lを用い、HClを添加して酸性にした後 ^{226}Ra (^{228}Ra)の混入が無視できるBa試薬から調製した Ba^{2+} 300mgを搅拌しながら徐々に滴下し、その後飽和硫酸アンモニウム溶液10~20mlを加えて BaSO_4 を沈殿させた。沈殿が沈むまで放置した後、上澄み液を捨て、0.45μmミリポアフィルターで沈殿をろ別した。水で沈殿を洗浄し、110°Cで乾燥し BaSO_4 の重量(化学収率の補正)を測定した後ポリエチレン袋に入れ約1ヶ月放置した。定量は、Raと放射平衡に達していると考えられる娘

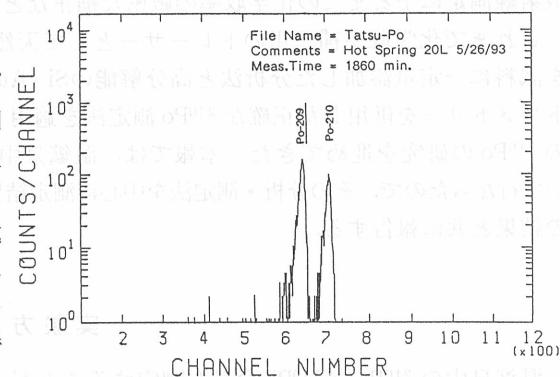


図2 温鉱温泉のPo-210測定の α 線スペクトル例

核種, ^{226}Ra の場合には ^{214}Pb , ^{228}Ra の場合には ^{228}Ac の γ 線をGe(Li)半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメトリーによった。

1.3 ^{222}Rn の測定

多くの場合、現地にて試料水40mlを採取し、直ちにあらかじめ60mlのシンチレータ(Instagel)を入れたテフロン製バイアルに封入し、実験室を持ち帰った。当実験施設近傍の温鉱泉については、現場で試料900mlを採取し、シンチレータを含むトルエン*100mlを添加・封入後実験室を持ち帰り、よく振り混ぜ、ラドンを抽出した有機層をテフロン製バイアルに集めた。測定は、液体シンチレーションカウンター(Aloka, LB-1)を用いて行ない、積分計数法により ^{222}Rn を定量した¹¹⁾。

2. 試料採取時点における ^{210}Po と ^{210}Pb 濃度算出法

^{210}Po は半減期が138.38 dと短いため、試料採取後直ちに化学分離をしない場合には、最初存在していた ^{210}Po が試料採取から化学分離までの間に壊変する一方、半減期22.3 yの先行核 ^{210}Pb から半減期5.01 dの ^{210}Bi を経由して成長する ^{210}Po が蓄積していく。試料採取後の経過時間が長いほどこの補正量は多くなる。この関係を最初 ^{210}Pb と ^{210}Po がそれぞれ1単位存在している場合について、どのように変化するのかを図3に示した。図中右側のD{Pb(t)}, D{Po(t)}およびG{Po(t)/Pb(0)}は、 ^{210}Pb , ^{210}Po の壊変の関数および最初の ^{210}Pb から時間の経過と共に ^{210}Bi を経由して成長する ^{210}Po の生成関数を示す。後者の関数はBatemanの方程式を用いて簡単に導き出すことができる。

また一方、 ^{210}Pb の先行核 ^{222}Rn が試料水に高濃度で含まれていて、試料採取直後にこの ^{222}Rn を除去せずに分析までに時間が経過した場合には、図4に示すように ^{222}Rn からの短寿命娘核種(^{218}Po , ^{214}Pb , ^{214}Bi など)を経由して成長していく ^{210}Pb と更にこの ^{210}Pb を経由して成長していく ^{210}Po が蓄積していく。図中右側のD{Rn(t)}とG{Pb(t)/Rn(0)}およびG{Po(t)/Rn(0)}は、図3の関数同様、それぞれ ^{222}Rn の壊変と ^{222}Rn から成長する ^{210}Pb および ^{210}Po の生成関数を示す。

図3および図4を考慮しながら、(1)試料採取後、直ちに分析または攪拌もしくはN₂ガスによるバブルリングで大部分の ^{222}Rn を追い出した場合と(2) ^{222}Rn を追い出さない場合について、採取日における ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度を計算する式をまとめ以下に示す。

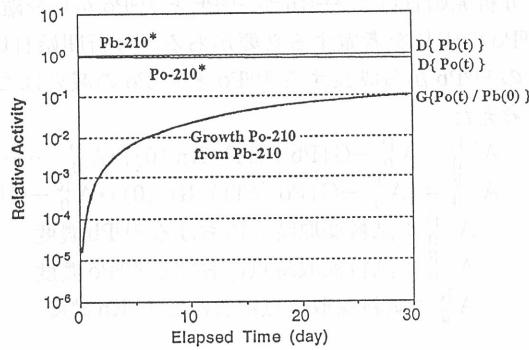
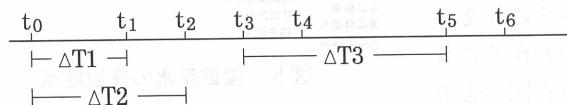


図3 Pb-210とPo-210の減衰とPb-210からのPo-210の成長

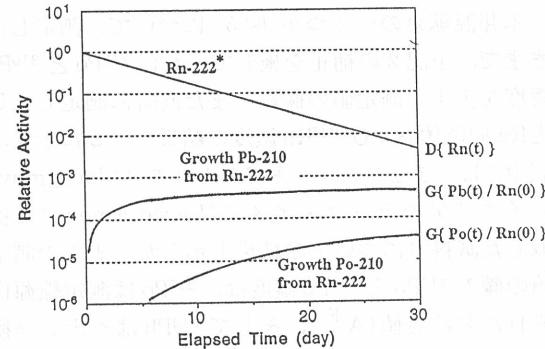


図4 Rn-222の減衰とRn-222からのPb-210とPo-210の成長

* (4g PPO + 0.1g dimethyl-POPOP) / 1 l toluene

t₀ : 試料採取日
 t₁ : 分析開始日
 t₂ : ^{210}Po の測定線源作成日
 t₃ : 陰イオン交換日

} 通常この間は 3 日程度

} 通常この間は 2 ~ 3 日程度

t_4 : ^{210}Po の放射能測定日
 t_5 : ^{210}Pb から成長した ^{210}Po の測定線源作成日

(1) ^{222}Rn を考慮する必要がない場合

(1) ^{222}Rn を考慮する必要がない場合

A_0^D ：試料採取時点における ^{210}Pb 濃度

A_0^F ：試料採取時点における ^{210}Po 濃度

$A_{\frac{1}{2}}^F$: t_2 時点における ^{210}Po 濃度 (t_4 で測定し、 t_2 まで減衰補正した値)

A₂ : t₅ 時点における ^{210}Pb から成長した ^{210}Po 濃度(t₆で測定し、t₅まで減衰補正した値)
 Y : ^{210}Pb の化学収率

(2) ^{222}Rn を考慮する必要がある場合

分析開始日 t_1 で ^{222}Rn が ^{210}Pb と ^{210}Po から分離されるので、 ΔT 1 間での ^{222}Rn からの ^{210}Pb と

^{210}Po の成長を考慮する必要がある。分析開始日 t_1 から ^{210}Po の測定線源作成日 t_2 までの間に、この ^{210}Pb から成長する ^{210}Po と ^{210}Po の減衰はここでは 3 日程度なのでその寄与は無視できると考えた。

$$A_0^P \equiv A_0^P - G\{Pb(\Delta T)/Rn(0)\} \cdot A_0^R \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

A₀' ≡ (A₁' - G{P₀(ΔT1)/Rn(0)} · A₀' - G{P₀(ΔT2)/Pb(0)} · A₀')/D{P₀(ΔT2)} ...④

A : 試料採取時点における ^{210}Pb 濃度
 B : ^{210}Po の半減期
 C : ^{210}Po の濃度

A_{Po}^{f} : 試料採取時点における ^{210}Po 濃度

A_{0}^{R} : 試料採取時点における ^{222}Rn 濃度

測定結果と考察

本邦温鉱泉のいくつか(図5)について、測定したまで、上記2の補正を施していない ^{210}Po と ^{210}Pb 濃度を表1の測定値の欄に、また同時に測定したUとRa同位体および ^{222}Rn 濃度の結果を表2に示す。表中には、チェコスロバキアのヤヒモフ(Jachymov)とイタリアのラッコ・アメノ(Lacco Ameno)で採取した試料水についての結果も示した。表1の測定値の欄の ^{210}Po と ^{210}Pb 濃度は、 ^{210}Po は測定線源作成日における値(A_1^F)、そして ^{210}Pb はイオン交換カラム操作日における値(A_0^D)である。 ^{210}Pb は半減期が22.3yと長く、減衰は無視できるので、 ^{222}Rn を考慮しなくともよい場合にはこの値がそのまま採取日における値に相当する。この表からわかるように、分析した試料の大部分は採取から分析開始まで



図 5 温鉱泉水の採取地点

表1 温鉱泉水中のPo-210とPb-210濃度

試料番号	試料採取地点	採取日	経過時間	測定値		試料採取日における値 Po-210濃度*(mBq/l)	Pb-210濃度 (mBq/l)	放射能比 Po/Pb	備考(計算式)
				ΔT_1 (d)	ΔT_2 (d)				
1	セラマン温泉(口之島)	10/24/92	11	14	0.41±0.03	2.54±0.18	5.3±0.3	0.49±0.04	0.35
2	えびの高原(小地獄)	8/25/92	23	27	0.50±0.47	25.8±2.2	50.0±0.0	-1.4±0.2	(3),(4)
3	霧島国際ホテル源泉	8/27/92	21	25	0.20±0.03	2.76±0.19	5.0±0.0	-0.7±0.2	(3),(4)
4	林田温泉(源泉)	8/24/92	24	28	0.28±0.03	3.36±0.25	6.0±0.0	-0.47±0.04	(3),(4)
5	関平温泉(飯先水)	8/27/92	21	25	0.17±0.02	1.24±0.11	2.1±0.0	-0.14±0.04	(1),(2)
6	塩湯温泉(源泉)	8/27/92	21	25	0.16±0.02	1.57±0.11	2.1±0.0	-0.24±0.11	(3),(4)
7	湯之野温泉(劣災病院浴槽)	8/28/92	20	24	0.21±0.03	1.57±0.11	2.1±0.0	-0.24±0.11	(3),(4)
8	栗野岳温泉(源泉)	8/28/92	20	29	0.57±0.04	2.34±0.18	5.0±0.0	-0.51±0.04	(3),(4)
9	筋湯温泉(源泉)	8/29/92	19	28	0.51±0.04	1.77±0.12	3.5±0.0	-0.68±0.06	(3),(4)
10	べふ峡温泉	10/21/92	14	17	0.68±0.06	7.59±0.61	14.0±0.0	-0.36±0.03	2.15±0.15
11	三瓶温泉(源泉)	8/30/92	18	31	0.36±0.03	2.15±0.15	4.0±0.0	-0.23±0.08	21.5±1.7
12	三朝温泉(御船薬局内湯)	8/31/92	17	30	1.23±0.08	10.6±0.8	11.0±0.0	-0.88±0.31	10.6±0.8
13	有馬温泉(天神湯)	9/8/92	9	18	3.88±0.31	10.6±0.8	11.0±0.0	-0.31±0.23	10.6±0.8
14	塩田温泉(長寿の泉)	10/19/92	19	23	3.12±0.21	7.3±0.5	8.8±0.0	-0.49±0.04	1.4±0.2
15	下呂温泉	11/25/92	1	7	0.49±0.04	2.24±0.18	3.0±0.0	-0.30±0.02	0.35
16	湯谷温泉(新ボーリング6号泉)	3/3/93	7	10	0.29±0.02	1.44±0.11	2.3±0.0	-0.76±0.23	(3),(4)
17	湯の島鉱泉(ラジウム1号泉)	3/3/93	7	10	0.33±0.02	6.35±0.32	6.5±0.0	-0.532±0.67	(3),(4)
18	恵那かんぽ保養センター	3/4/93	6	9	2.35±0.13	17.3±1.0	2.3±0.1	-3.3±1.3	0.72
19	中の湯温泉	10/25/92	10	13	0.96±0.06	2.63±0.25	0.98±0.06	-0.66±0.3	1.7
20	野尻温泉	12/7/92	8	18	1.06±0.09	2.44±0.18	1.0±0.1	-2.3±0.2	0.45
21	棲(くわはし)温泉	12/8/92	7	17	3.57±0.21	21.7±1.8	3.2±0.3	-11±2	0.29
22	中富温泉(源泉)	10/2/92	5	9	1.79±0.07	3.89±0.26	0.61±0.05	-0.61±0.05	(3),(4)
23	岩間温泉	10/2/92	5	9	0.24±0.02	0.62±0.05	0.23±0.03	-0.62±0.05	(1),(2)
24	辰口温泉(上開発源泉)	5/26/93	0	7	0.23±0.03	0.62±0.05	0.23±0.03	-0.6±0.1	0.38
25	川北温泉	12/10/92	0	15	1.44±0.10	11.2±0.9	1.0±0.1	-11.2±1	0.09
26	寺井温泉	12/10/92	0	15	1.24±0.10	9.6±0.8	0.90±0.10	-9.7±0.1	0.09
27	涌泉寺温泉	5/12/93	0	6	0.39±0.04	0.64±0.04	0.39±0.04	-0.6±0.1	0.62
28	赤穂谷温泉	5/12/93	0	6	0.38±0.04	0.56±0.04	0.38±0.04	-0.6±0.1	0.68
29	加賀八幡温泉総湯	5/12/93	0	6	4.59±0.18	1.63±0.08	4.7±0.2	-1.6±0.1	2.9
30	松之山温泉(白川屋)	4/3/93	11	20	0.35±0.03	0.56±0.04	0.35±0.04	-1.8±0.2	(3),(4)
31	田中・しなの荘	4/3/93	11	20	2.76±0.15	4.51±0.41	2.8±0.2	-2.5±0.4	(3),(4)
32	宮野原温泉(宝山庄)	4/3/93	11	20	1.02±0.09	0.65±0.07	1.1±0.1	-0.3±0.1	(3),(4)
33	湯沢温泉(湯元)	4/3/93	11	20	0.66±0.05	1.22±0.12	0.71±0.06	-0.1±0.2	(3),(4)
34	六日町温泉(源泉)	4/3/93	11	20	0.38±0.03	1.44±0.12	0.30±0.06	-6.7±0.7	(3),(4)
35	津金楼	10/27/92	11	15	6.36±0.41	42.4±2.6	5.8±0.5	-13±3	0.44
36	津金楼下道	10/27/92	0	8	40.7±1.9	211±16	39±2	-211±16	0.18
37	不老闊(岩風呂)	10/27/92	0	8	65.2±1.5	565±45	59±2	-565±45	0.10
38	舟生沢	10/27/92	11	15	1.23±9	1860±91	95±11	-340±118	0.28
39	乗研温泉(恐山)	11/2/92	18	24	1.13±0.08	1.84±0.14	0.89±0.11	-7.6±0.7	(3),(4)
40	玉川温泉(大沸泉)	8/31/92	17	21	2.36±0.17	73.6±5.4	2827±207	-	
41	ヤヒモチ(ヤヒモチ)(Jachymov)	8/10/93	26	31	4.91±0.23	1553±154	519±26	-	
42	ラッシュ・アメノ(ラッシュ・アメノ)(Lacco Ameno)	7/17/93	58	62	-	-	-	-	

* : Po-210に対する測定開始までの時間。
 ΔT_2 : 試料採取から分析開始までの時間。

* : Po-210に対する測定線源作成日までの時間。

表2 温鉱泉水中のウラン、ラジウムおよびラドン濃度

試料番号	試料採取地点	放射能濃度			放射能比	
		U-238 (mBq/l)	Ra-226 (mBq/l)	Rn-222 (Bq/l)	U-234 U-238	Ra-228 Ra-226
(沖縄県)						
1	セラマン温泉(口之島)	1.68±0.08	2.70±0.41	n.d.	0.95±0.07	0.31±0.06
(鹿児島県)						
2	えびの高原(小地獄)	27.0±1.2			0.95±0.06	
3	霧島国際ホテル(源泉)	0.019±0.002			1.20±0.20	
4	林田温泉(源泉)	0.26±0.03			1.20±0.17	
5	関平温泉(販売水)	0.041±0.007			1.18±0.28	
6	塩湯温泉(源泉)	0.048±0.007			1.31±0.25	
7	湯之野温泉(労災病院浴槽)	0.35±0.03			0.96±0.10	
8	栗野岳温泉(源泉)	3.00±0.12			0.96±0.06	
(大分県)						
9	筋湯温泉(源泉)	0.54±0.03			1.85±0.11	
(高知県)						
10	べふ峡温泉	0.49±0.04			4.35±0.40	
(鳥取県)						
11	三瓶温泉(源泉)	1.00±0.09			1.41±0.17	
12	三朝温泉(御船棲局内湯)	18.1±0.5			0.97±0.04	
(兵庫県)						
13	有馬温泉(天神湯)	0.10±0.01			1.33±0.21	
14	塩田温泉(兵庫 長寿の泉)	5.23±0.24	185±9		2.12±0.12	2.11±0.14
(岐阜県)						
15	下呂温泉	0.30±0.03	2.13±0.41	11.0±0.5	1.43±0.16	2.21±0.61
16	湯下温泉(新ボーリング6号泉)	0.16±0.01	20.2±1.1	6.3±0.1	11.4±1.0	1.13±0.08
17	湯の島鉱泉(ラジウム1号泉)	2.12±0.11	46.3±2.6	3460±350	1.30±0.08	0.042±0.007
18	恵那かんぽ保養センター	0.43±0.03	4.77±0.33	45±2	1.01±0.08	1.28±0.12
(長野県)						
19	中の湯温泉	0.052±0.007	4.50±0.44	5.2±0.2	1.71±0.28	2.16±0.29
20	野沢温泉	0.067±0.007	0.95±0.24	0.4±0.02	1.06±0.16	2.91±0.31
21	桜(かけはし)温泉	0.30±0.03	1.57±0.12	31±1	1.10±0.13	0.58±0.09
(石川県)						
22	中宮温泉(源泉)	0.10±0.01	45.2±0.8		2.96±0.25	0.83±0.02
23	岩間温泉	0.11±0.01	5.48±0.52		1.69±0.14	2.24±0.26
24	辰口温泉(上開発源泉)	0.059±0.007	112±4	16±1	45.9±4.2	1.55±0.08
25	川北温泉	0.063±0.007	191±9	5.1±0.3	1.47±0.21	2.45±0.19
26	寺井温泉	0.037±0.004	7.07±0.78	3.6±0.1	1.00±0.14	2.85±0.26
27	涌泉寺温泉	0.014±0.003	13.0±0.9	11±1	2.52±0.81	3.54±0.38
28	赤穂谷温泉	0.007±0.002	11.3±0.8	3.3±0.2	2.23±1.03	3.74±0.34
29	加賀八幡温泉総湯	0.052±0.007	2.08±0.27	9.3±0.5	3.00±0.49	1.49±0.25
(新潟県)						
30	松之山温泉(白川屋)	0.10±0.01	224±7	5.7±0.3	1.29±0.18	1.28±0.06
31	田中・しなの荘	0.27±0.03	3.85±0.48	4.8±0.2	1.19±0.15	1.21±0.14
32	宮野原温泉(宝山荘)	0.11±0.01	24.9±1.6	2.4±0.1	1.02±0.19	1.13±0.12
33	湯沢温泉(湯元)	0.085±0.011	1.84±0.41	3.3±0.1	1.35±0.25	1.61±0.49
34	六日町温泉(源泉)	0.037±0.007	18.7±0.8	20±1	1.12±0.31	1.22±0.08
(山梨県:増富温泉)						
35	津金楼	0.32±0.03	617±9	72±6	1.62±0.19	2.00±0.05
36	津金楼下道	0.53±0.03	243±7	1710±50	1.09±0.08	0.70±0.05
37	不老閣(岩風呂)	0.53±0.05	37.4±4.8	5000±50	1.15±0.14	0.69±0.05
38	丹生沢	4.45±0.21	318±6	3750±40	2.21±0.13	0.048±0.008
(青森県)						
39	薬研温泉(恐山)	n.d.	n.d.	21±1		
(秋田県)						
40	玉川温泉(大沸泉)	14.0±0.5			1.05±0.05	
(外 国)						
41	ヤヒモフ(Jachymov)	0.43±0.03	718±52		1.23±0.04	0.29±0.06
42	ラッコ・アメノ(Lacco Ameno)	0.034±0.001	n.d.		1.02±0.06	

表3 試料採取直後と数日後に分析を開始した場合におけるPo-210とPb-210濃度の比較

試料採取地点 (Rn-222濃度)	ΔT_1 (d)	ΔT_2 (d)	測定値(mBq/l)		試料採取日における値(mBq/l)		
			Po-210*	Pb-210*	計算式	Po-210	Pb-210
津金楼下道 (1700Bq/l)	0	8	40.7±1.9	211±16	(1),(2)	38.9±2	211±16
	11	15	50.3±2.2	863±41	(3),(4)	36.4±3.4	170±53
不老閣(岩風呂) (5000Bq/l)	0	8	65.2±1.5	565±45	(1),(2)	58.7±1.7	565±45
	11	15	92.1±5.2	2490±83	(3),(4)	48.8±7.3	463±107

ΔT_1 : 試料採取から分析開始までの時間. ΔT_2 : 試料採取からPo-210測定線源作成日までの時間.

*: Po-210に対しては測定線源作成日における値, 一方Pb-210に対しては陰イオン交換日における値.

に10日から20日前後経過したものであり, 採取直後に²²²Rnを除去する操作を行なっていない. それ故, この測定値の値を用いて単純に議論することは危険であるが, A₁^Fについて見ると, 諸温鉱泉水によりその²¹⁰Po濃度は, 0.2~733mBq/lと3桁以上異なっていることは注目に値する.

温鉱泉水は, レベルは異なるが必ず²²²Rnを含んでいると考えてよい. 採取日における²¹⁰Poと²¹⁰Pb濃度を計算する前に, 現場で試料採取直後にFe(OH)₃共沈操作を実施したものと, 同一の試料をポリタンクに入れ密封した状態で実験室に持ち帰り, 数日経過した後に分析したものとで, ²¹⁰Poおよび²¹⁰Pb濃度がどの程度異なるのかについて検討した. 試料水は, できるだけ高濃度の²²²Rnを含む温鉱泉水が最適であると考え, 山梨県の増富温鉱泉水を用いた. 表3に, 津金楼下道(津金樓の手前約100mの道路脇のパイプから湧出している鉱泉水)と不老閣の岩不風で採取した試料水についての結果を示した. 試料採取後直ちに分析した値と, 11日後に分析した測定日における値を比較すると両試料ともに²¹⁰Poと²¹⁰Pb濃度の増加が認められ, その傾向は²¹⁰Pbで著しい. ²²²Rnを数千Bq/l含んでいるので, この増加は明らかに²²²Rnからの²¹⁰Roと²¹⁰Pbの蓄積に起因しているものと考えられる. これらの値を用いて, 試料採取後直ちに分析したものについては①と②式, 11日後に分析したものは表左側の採取時における²²²Rn濃度を用いて③と④式から採取日における²¹⁰Pbと²¹⁰Poをそれぞれ計算した. その結果から, それぞれの試料水について²¹⁰Poと²¹⁰Pb濃度の2つの計算式から導いた値が比較的よく一致していることが確認できる. しかしそく見ると11日後に測定し③と④式で計算した値が²¹⁰Poと²¹⁰Pb共に①と②で計算した値より多少低い傾向にあり, 試料保存中に一部の²²²Rnが漏洩, あるいは20lをポリ瓶に採取する時点で, 一部のRnが散逸した可能性が考えられる. このような実験から²²²Rn測定用の試料採取と²¹⁰Po, ²¹⁰Pb用の20l採取ができるだけ同じような条件で行ない, 20lのポリタンクを密封して実験室に持ち帰るならば, 少少時間が経過しても③と④式で採取日における²¹⁰Poと²¹⁰Pb濃度を計算できることがわかる. しかしながら, このような方法で得た²¹⁰Pbについては, 表からわかるように, かなり大きな誤差をともなう. それ故, ²¹⁰Poと²¹⁰Pb濃度の精度のよい測定を行なう場合には, 現場で試料採取後できるだけ早く分析を始めることが必要である.

ここまで述べたように, ²²²Rnを測定してあれば, 時間の経過した試料についての採取日における²¹⁰Poと²¹⁰Pb濃度を一応評価可能なので, 表1に示した測定値の結果について計算を試みた. 試料採取後直ちに分析した試料については①と②式, 分析までにかなり時間が経過し, かつ²²²Rn濃度の測定を行なってある試料については③と④式を用いて計算し, その結果を表1の右欄に試料採取日における値として示した. 採取日における²¹⁰Po濃度についてみると, 測定日における値とそれほど大きく異なることがこの表からわかる. 一方²¹⁰Pbについては負になる値もいくつか見られ, 測定時点におけるこれらの²¹⁰Pbはそのほとんどが²²²Rnからの成長によることが示唆される. 試料番号35~38の増富温鉱泉水については, もとからの²¹⁰Poと²¹⁰Pbが非常に多いことがわかる. 一方試料番号17の湯の島鉱泉水も²²²Rn濃度は増富温鉱泉水に匹敵

するが、 ^{210}Pb はほとんどなく、 ^{210}Po が大量に存在する。なお、両計算条件に合致しない試料(試料番号1～14, 22, 23, 40, 41および42)については、今回採取日における正確な値を評価することができなかったが、これらの試料の採取日における ^{210}Po 濃度は測定値と大きく異なると考える。

^{210}Pb についてのデータが少ないので、 ^{210}Po 濃度(試料採取日における値)について表2に示した ^{222}Rn および ^{226}Ra 濃度との関係を図6および図7に示す。図中には、試料採取日における ^{210}Po 濃度が得られた試料のみプロットしてある。これらの図から ^{210}Po 濃度は ^{226}Ra 濃度よりもむしろ ^{222}Rn 濃度と相関があると考えてよい。 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は大部分が1以下であるが ^{210}Pb 濃度が負になった試料については1以上になる可能性もあり、この比での検討が温鉱泉水の滞留時間の推定や起源、さらに ^{222}Rn 起源の指標として有効なように思える。別報¹²⁾に示したように、火山噴気凝縮水の ^{210}Po 含有量は高い。それとの関連で、火山性温鉱泉中の ^{210}Po 濃度は当初高いであろうと考えたが、本報告のえびの高原(試料番号2)，それから南に約5km離れた林田温泉(試料番号4)，さらに南西に約3km離れた霧島国際ホテルの源泉(試料番号3)の ^{210}Po 濃度はそれほど高くない。このことは、 ^{210}Po の化学挙動についての興味ある知見である。 ^{210}Po は、火山噴気ガスに含まれているとしてもそれが温泉水として湧出するまでに沈着して除去される傾向が大きいことがわかった。

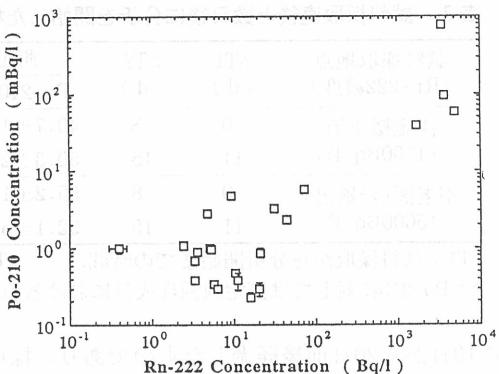


図6 Rn-222濃度とPo-210濃度との相関

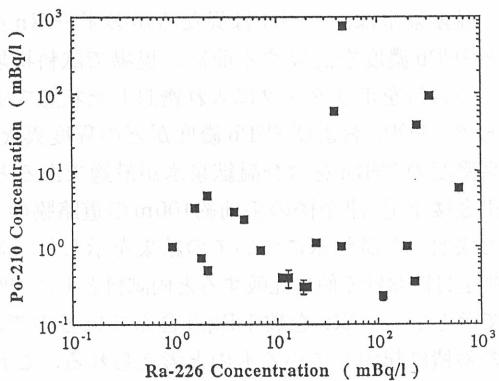


図7 Ra-226濃度とPo-210濃度との相関

謝 意

温鉱泉水の採取に際しては、東邦大学理学部の吉池雄蔵氏(玉川温泉水)，金沢大学文学部の守屋以智雄教授(セマラン温泉水)，動力炉・核燃料開発事業団の片桐裕美氏(薬研温泉水)，当施設の大学院生桑原潤氏(新潟県内の温泉水)に多大の御協力をいただき、さらに原稿とりまとめにあたっては当施設中本美智代氏にご協力いただき、感謝致します。

参考文献

- Ishizu, R., In: The Panama-Pacific International Exposition, The Mineral Springs of Japan with Tables of Analyses, Radioactivity, Notes on Prominent Spas and List of Seaside Resorts and Summer Retreats. St. Louis (1915).
- 堀内公子，村上悠紀雄：地球化学，12, 59 (1978).
- Nakai, T., Bull. Chem. Soc. Jpn., Supplement, 15, 94 (1940).

- 4) 岩崎岩次: 温泉工学会誌, 6, 18; 6, 112; 6, 165 (1968).
- 5) 下方鉱藏, 神谷 宏, 岩崎敦子: 温泉科学, 41, 155 (1991).
- 6) Kuroda, K., Yokoyama, Y.: Bull. Chem. Soc. Jpn., 21, 58 (1948).
- 7) Hataye, I.: Memoirs of the Faculty of Science, Kyushu Univ., 3 (2), 63 (1958).
- 8) Holtzman, R.B.: The National Radiation Environment, 227 (1964).
- 9) 金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設年次報告, LLRL-AR-7, 5 (1983); LLRL-AR-12, 6 (1988).
- 10) 同上, LLRL-AR-13, 5 (1989).
- 11) 堀内公子: 温泉工学会誌, 13, 95 (1978).
- 12) 小村和久, 山本政儀, 上野 馨, 内田賢吾, 阪上正信: 温泉科学, 44, 11 (1994).

吉　　幸

吉　　幸	
1-1-1	吉　　幸
1-1-2	吉　　幸
1-1-3	吉　　幸
1-1-4	吉　　幸
1-1-5	吉　　幸
1-1-6	吉　　幸
1-1-7	吉　　幸
1-1-8	吉　　幸
1-1-9	吉　　幸
1-1-10	吉　　幸
1-1-11	吉　　幸
1-1-12	吉　　幸
1-1-13	吉　　幸
1-1-14	吉　　幸
1-1-15	吉　　幸
1-1-16	吉　　幸
1-1-17	吉　　幸
1-1-18	吉　　幸
1-1-19	吉　　幸
1-1-20	吉　　幸
1-1-21	吉　　幸
1-1-22	吉　　幸
1-1-23	吉　　幸
1-1-24	吉　　幸
1-1-25	吉　　幸
1-1-26	吉　　幸
1-1-27	吉　　幸
1-1-28	吉　　幸
1-1-29	吉　　幸
1-1-30	吉　　幸
1-1-31	吉　　幸
1-1-32	吉　　幸
1-1-33	吉　　幸
1-1-34	吉　　幸
1-1-35	吉　　幸
1-1-36	吉　　幸
1-1-37	吉　　幸
1-1-38	吉　　幸
1-1-39	吉　　幸
1-1-40	吉　　幸
1-1-41	吉　　幸
1-1-42	吉　　幸
1-1-43	吉　　幸
1-1-44	吉　　幸
1-1-45	吉　　幸
1-1-46	吉　　幸
1-1-47	吉　　幸
1-1-48	吉　　幸
1-1-49	吉　　幸
1-1-50	吉　　幸
1-1-51	吉　　幸
1-1-52	吉　　幸
1-1-53	吉　　幸
1-1-54	吉　　幸
1-1-55	吉　　幸
1-1-56	吉　　幸
1-1-57	吉　　幸
1-1-58	吉　　幸
1-1-59	吉　　幸
1-1-60	吉　　幸
1-1-61	吉　　幸
1-1-62	吉　　幸
1-1-63	吉　　幸
1-1-64	吉　　幸
1-1-65	吉　　幸
1-1-66	吉　　幸
1-1-67	吉　　幸
1-1-68	吉　　幸
1-1-69	吉　　幸
1-1-70	吉　　幸
1-1-71	吉　　幸
1-1-72	吉　　幸
1-1-73	吉　　幸
1-1-74	吉　　幸
1-1-75	吉　　幸
1-1-76	吉　　幸
1-1-77	吉　　幸
1-1-78	吉　　幸
1-1-79	吉　　幸
1-1-80	吉　　幸
1-1-81	吉　　幸
1-1-82	吉　　幸
1-1-83	吉　　幸
1-1-84	吉　　幸
1-1-85	吉　　幸
1-1-86	吉　　幸
1-1-87	吉　　幸
1-1-88	吉　　幸
1-1-89	吉　　幸
1-1-90	吉　　幸
1-1-91	吉　　幸
1-1-92	吉　　幸
1-1-93	吉　　幸
1-1-94	吉　　幸
1-1-95	吉　　幸
1-1-96	吉　　幸
1-1-97	吉　　幸
1-1-98	吉　　幸
1-1-99	吉　　幸
1-1-100	吉　　幸
1-1-101	吉　　幸
1-1-102	吉　　幸
1-1-103	吉　　幸
1-1-104	吉　　幸
1-1-105	吉　　幸
1-1-106	吉　　幸
1-1-107	吉　　幸
1-1-108	吉　　幸
1-1-109	吉　　幸
1-1-110	吉　　幸
1-1-111	吉　　幸
1-1-112	吉　　幸
1-1-113	吉　　幸
1-1-114	吉　　幸
1-1-115	吉　　幸
1-1-116	吉　　幸
1-1-117	吉　　幸
1-1-118	吉　　幸
1-1-119	吉　　幸
1-1-120	吉　　幸
1-1-121	吉　　幸
1-1-122	吉　　幸
1-1-123	吉　　幸
1-1-124	吉　　幸
1-1-125	吉　　幸
1-1-126	吉　　幸
1-1-127	吉　　幸
1-1-128	吉　　幸
1-1-129	吉　　幸
1-1-130	吉　　幸
1-1-131	吉　　幸
1-1-132	吉　　幸
1-1-133	吉　　幸
1-1-134	吉　　幸
1-1-135	吉　　幸
1-1-136	吉　　幸
1-1-137	吉　　幸
1-1-138	吉　　幸
1-1-139	吉　　幸
1-1-140	吉　　幸
1-1-141	吉　　幸
1-1-142	吉　　幸
1-1-143	吉　　幸
1-1-144	吉　　幸
1-1-145	吉　　幸
1-1-146	吉　　幸
1-1-147	吉　　幸
1-1-148	吉　　幸
1-1-149	吉　　幸
1-1-150	吉　　幸
1-1-151	吉　　幸
1-1-152	吉　　幸
1-1-153	吉　　幸
1-1-154	吉　　幸
1-1-155	吉　　幸
1-1-156	吉　　幸
1-1-157	吉　　幸
1-1-158	吉　　幸
1-1-159	吉　　幸
1-1-160	吉　　幸
1-1-161	吉　　幸
1-1-162	吉　　幸
1-1-163	吉　　幸
1-1-164	吉　　幸
1-1-165	吉　　幸
1-1-166	吉　　幸
1-1-167	吉　　幸
1-1-168	吉　　幸
1-1-169	吉　　幸
1-1-170	吉　　幸
1-1-171	吉　　幸
1-1-172	吉　　幸
1-1-173	吉　　幸
1-1-174	吉　　幸
1-1-175	吉　　幸
1-1-176	吉　　幸
1-1-177	吉　　幸
1-1-178	吉　　幸
1-1-179	吉　　幸
1-1-180	吉　　幸
1-1-181	吉　　幸
1-1-182	吉　　幸
1-1-183	吉　　幸
1-1-184	吉　　幸
1-1-185	吉　　幸
1-1-186	吉　　幸
1-1-187	吉　　幸
1-1-188	吉　　幸
1-1-189	吉　　幸
1-1-190	吉　　幸
1-1-191	吉　　幸
1-1-192	吉　　幸
1-1-193	吉　　幸
1-1-194	吉　　幸
1-1-195	吉　　幸
1-1-196	吉　　幸
1-1-197	吉　　幸
1-1-198	吉　　幸
1-1-199	吉　　幸
1-1-200	吉　　幸
1-1-201	吉　　幸
1-1-202	吉　　幸
1-1-203	吉　　幸
1-1-204	吉　　幸
1-1-205	吉　　幸
1-1-206	吉　　幸
1-1-207	吉　　幸
1-1-208	吉　　幸
1-1-209	吉　　幸
1-1-210	吉　　幸
1-1-211	吉　　幸
1-1-212	吉　　幸
1-1-213	吉　　幸
1-1-214	吉　　幸
1-1-215	吉　　幸
1-1-216	吉　　幸
1-1-217	吉　　幸
1-1-218	吉　　幸
1-1-219	吉　　幸
1-1-220	吉　　幸
1-1-221	吉　　幸
1-1-222	吉　　幸
1-1-223	吉　　幸
1-1-224	吉　　幸
1-1-225	吉　　幸
1-1-226	吉　　幸
1-1-227	吉　　幸
1-1-228	吉　　幸
1-1-229	吉　　幸
1-1-230	吉　　幸
1-1-231	吉　　幸
1-1-232	吉　　幸
1-1-233	吉　　幸
1-1-234	吉　　幸
1-1-235	吉　　幸
1-1-236	吉　　幸
1-1-237	吉　　幸
1-1-238	吉　　幸
1-1-239	吉　　幸
1-1-240	吉　　幸
1-1-241	吉　　幸
1-1-242	吉　　幸
1-1-243	吉　　幸
1-1-244	吉　　幸
1-1-245	吉　　幸
1-1-246	吉　　幸
1-1-247	吉　　幸
1-1-248	吉　　幸
1-1-249	吉　　幸
1-1-250	吉　　幸
1-1-251	吉　　幸
1-1-252	吉　　幸
1-1-253	吉　　幸
1-1-254	吉　　幸
1-1-255	吉　　幸
1-1-256	吉　　幸
1-1-257	吉　　幸
1-1-258	吉　　幸
1-1-259	吉　　幸
1-1-260	吉　　幸
1-1-261	吉　　幸
1-1-262	吉　　幸
1-1-263	吉　　幸
1-1-264	吉　　幸
1-1-265	吉　　幸
1-1-266	吉　　幸
1-1-267	吉　　幸
1-1-268	吉　　幸
1-1-269	吉　　幸
1-1-270	吉　　幸
1-1-271	吉　　幸
1-1-272	吉　　幸
1-1-273	吉　　幸
1-1-274	吉　　幸
1-1-275	吉　　幸
1-1-276	吉　　幸
1-1-277	吉　　幸
1-1-278	吉　　幸
1-1-279	吉　　幸
1-1-280	吉　　幸
1-1-281	吉　　幸
1-1-282	吉　　幸
1-1-283	吉　　幸
1-1-284	吉　　幸
1-1-285	吉　　幸
1-1-286	吉　　幸
1-1-287	吉　　幸
1-1-288	吉　　幸
1-1-289	吉　　幸
1-1-290	吉　　幸
1-1-291	吉　　幸
1-1-292	吉　　幸
1-1-293	吉　　幸
1-1-294	吉　　幸
1-1-295	吉　　幸
1-1-296	吉　　幸
1-1-297	吉　　幸
1-1-298	吉　　幸
1-1-299	吉　　幸
1-1-300	吉　　幸
1-1-301	吉　　幸
1-1-302	吉　　幸
1-1-303	吉　　幸
1-1-304	吉　　幸
1-1-305	吉　　幸
1-1-306	吉　　幸
1-1-307	吉　　幸
1-1-308	吉　　幸
1-1-309	吉　　幸
1-1-310	吉　　幸
1-1-311	吉　　幸
1-1-312	吉　　幸
1-1-313	吉　　幸
1-1-314	吉　　幸
1-1-315	吉　　幸
1-1-316	吉　　幸
1-1-317	吉　　幸
1-1-318	吉　　幸
1-1-319	吉　　幸
1-1-320	吉　　幸
1-1-321	吉　　幸
1-1-322	吉　　幸
1-1-323	吉　　幸
1-1-324	吉　　幸
1-1-325	吉　　幸
1-1-326	吉　　幸
1-1-327	吉　　幸
1-1-328	吉　　幸
1-1-329	吉　　幸
1-1-330	吉　　幸
1-1-331	吉　　幸
1-1-332	吉　　幸
1-1-333	吉　　幸
1-1-334	吉　　幸
1-1-335	吉　　幸
1-1-336	吉　　幸
1-1-337	吉　　幸
1-1-338	吉　　幸
1-1-339	吉　　幸
1-1-340	吉　　幸
1-1-341	吉　　幸
1-1-342	吉　　幸
1-1-343	吉　　幸
1-1-344	吉　　幸
1-1-345	吉　　幸
1-1-346	吉　　幸
1-1-347	吉　　幸
1-1-348	吉　　幸
1-1-349	吉　　幸
1-1-350	吉　　幸
1-1-351	吉　　幸
1-1-352	吉　　幸
1-1-353	吉　　幸
1-1-354	吉　　幸
1-1-355	吉　　幸
1-1-356	吉　　幸
1-1-357	吉　　幸
1-1-358	吉　　幸
1-1-359	吉　　幸
1-1-360	吉　　幸
1-1-361	吉　　幸
1-1-362	吉　　幸
1-1-363	吉　　幸
1-1-364	吉　　幸
1-1-365	吉　　幸
1-1-366	吉　　幸
1-1-367	吉　　幸
1-1-368	吉　　幸
1-1-369	吉　　幸
1-1-370	吉　　幸
1-1-371	吉　　幸
1-1-372	吉　　幸
1-1-373	吉　　幸
1-1-374	吉　　幸
1-1-375	吉　　幸
1-1-376	吉　　幸
1-1-377	吉　　幸
1-1-378	吉　　幸
1-1-379	吉　　幸
1-1-380	吉　　幸
1-1-381	吉　　幸
1-1-382	吉　　幸
1-1-383	吉　　幸
1-1-384	吉　　幸
1-1-385	吉　　幸
1-1-386	吉　　幸
1-1-387	吉　　幸
1-1-388	吉　　幸
1-1-389	吉　　幸
1-1-390	吉　　幸
1-1-391	吉　　幸
1-1-392	吉　　幸
1-1-393	吉　　幸
1-1-394	吉　　幸
1-1-395	吉　　幸
1-1-396	吉　　幸
1-1-397	吉　　幸
1-1-398	吉　　幸
1-1-399	吉　　幸
1-1-400	吉　　幸
1-1-401	吉　　幸
1-1-402	吉　　幸
1-1-403	吉　　幸
1-1-404	吉　　幸
1-1-405	吉　　幸
1-1-406	吉　　幸
1-1-407	吉　　幸
1-1-408	吉　　幸
1-1-409	吉　　幸
1-1-410	吉　　幸
1-1-411	吉　　幸
1-1-412	吉　　幸
1-1-413	吉　　幸
1-1-414	吉　　幸
1-1-415	吉　　幸
1-1-416	吉　　幸
1-1-417	吉　　幸
1-1-418	吉　　幸
1-1-419	吉　　幸
1-1-420	吉　　幸
1-1-421	吉　　幸
1-1-422	吉　　幸
1-1-423	吉　　幸
1-1-424	吉　　幸
1-1-425	吉　　幸
1-1-426	吉　　幸
1-1-427	吉　　幸
1-1-428	吉　　幸
1-1-429	吉　　幸
1-1-430	吉　　幸
1-1-431	吉　　幸
1-1-432	吉　　幸
1-1-433	吉　　幸
1-1-434	吉　　幸
1-1-435	吉　　幸
1-1-436	吉　　幸
1-1-437	吉　　幸
1-1-438	吉　　幸
1-1-439	吉　　幸
1-1-440	吉　　幸
1-1-441	吉　　幸
1-1-442	吉　　幸
1-1-443	吉　　幸
1-1-444	吉　　幸
1-1-445	吉　　幸
1-1-446	吉　　幸
1-1-447	吉　　幸
1-1-448	吉　　幸
1-1-449	吉　　幸
1-1-450	吉　　幸
1-1-451	吉　　幸
1-1-452	吉　　幸
1-1-453	吉　　幸
1-1-454	吉　　幸
1-1-455	吉　　幸
1-1-456	吉　　幸
1-1-457	吉　　幸
1-1-458	吉　　幸
1-1-459	吉　　幸
1-1-460	吉　　幸
1-1-461	吉　　幸
1-1-462	吉　　幸
1-1-463	吉　　幸