

総 説

放射能と温泉

山本政儀^{1)*}, 富田純平²⁾

(平成 27 年 1 月 5 日受付, 平成 27 年 2 月 6 日受理)

Radioactivity and Hot Springs

Masayoshi YAMAMOTO^{1)*} and Jumpei TOMITA²⁾

要 旨

2011 年 3 月 11 日の東北地方太平洋沖での M 9.0 の巨大地震とその後の津波により東京電力・福島第一原子力発電所で破局的事故が発生した。事故によって大量の放射性物質が環境に放出され、住民に対する放射線の影響、特に低線量放射線被ばくが注目されてきた。放射能・放射線については、もともと宇宙には元素誕生以来存在しながら、人間の目にも見えず五感にも感じないため、19 世紀末になってやっと人間の工夫による化学分離、物理的測定法の進歩で発見され、自然界の空気、地殻の岩石や地下水、温泉水などにも多かれ少なかれ含まれている事が明らかになった。放射能泉には、天然の放射性元素、ラジウムやラドンが含まれているのでそれらからの低線量被ばくとの関連で健康影響がどうなのかという関心も高まっている。そこで、放射能・放射線についての概念や基礎知識が深まることを期待して、最初に歴史を鑑みながら放射能のことについて簡単に触れ、本邦の放射能泉研究の現状、放射能泉の人体影響などを概観した。

キーワード：放射能，ラジウム，ラドン，ウラン，温泉，放射能泉，放射能泉の人体影響

はじめに

我々の住んでいる自然界，すなわち地殻の表面，水圏，その上の大気中には，約 46 億年前に地球が創成されたときからウラン (U)，トリウム (Th)，カリウム-40 (⁴⁰K) などの天然放射性核種が希薄な濃度で広く分布・存在している。岩石中に含まれているラジウム (Ra) を溶かし出して地表に湧き出たもの，あるいは地中の比較的浅い所で多量の Ra を含む温泉沈殿物と接触し，その沈殿物中の Ra あるいは Ra の放射壊変で生じた気体状のラドン (Rn) を基準値以上に溶かし込ん

¹⁾ 金沢大学環日本海域環境研究センター低レベル放射能実験施設 〒923-1224 石川県能美市和気オ 24.

¹⁾ Low Level Radioactivity Laboratory, K-INET, Kanazawa University, Wake, Nomi, Ishikawa, 923-1224 Japan. *Corresponding author: E-mail yama1018@staff.kanazawa-u.ac.jp, Tel 0761-51-4440, Fax 0761-51-5528.

²⁾ (独) 日本原子力研究開発機構原子力科学研究所放射線管理部 〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根 2-4. ²⁾ Department of Radiation Protection, Nuclear Science Research Institute, Japan Atomic Energy Agency, Shirakata-Shirane, Tokai, Naka, Ibaraki 319-1195, Japan.

で湧き出たものがラジウム泉やラドン泉と呼ばれる温泉で、これらが温泉法で呼ばれている放射能泉に該当し、その医学的効用についても古くから研究されてきた（例えば、森永，1974；日本温泉科学研究所編，1981）。国内においては、秋田県の玉川温泉，山梨県の増富温泉，岐阜県の恵那地方の温泉，兵庫県の有馬温泉，鳥取県の三朝温泉，島根県の池田，湯抱（ゆがかえ）鉱泉などが強放射能泉として特に有名である。温泉と放射能については、これまでに多くの総説，解説などが報告されている（例えば，村上，1963；岩崎，1968，1969；堀内，1981；山県，1985）。

ここでは、最初に放射能について歴史を鑑みながら、

- 1) 本邦の放射能泉の実態は？
- 2) 放射能泉は危険ではないのだろうか？

などの問い，疑問とも関連してこれまでの研究を振り返りつつ放射能泉を概観した。

1. 放射性元素

放射能や放射線についての知識は、1895年レントゲン（W.C. Röntgen）によるエックス（X）線の発見，翌年のベクレル（N. Becquerel）によるウラン鉱からの放射能の発見，1898年キュリー夫人（M. Curie）のポロニウム（²¹⁰Po），ラジウム（²²⁶Ra）という放射性元素の発見，1903年ラザフォード（E. Rutherford），ソデー（F. Soddy）による放射性元素の壊変法則，さらに1907年ラザフォードによるアルファ線がヘリウム（He）であることの発見などが発端となり急速に深まった。また，放射能の発見により，ラザフォードによるアルファ（ α ）線散乱の実験から原子の中心に正電荷の原子核があることが1911年判明し，さらに1932年のチャドウィック（J. Chadwick）の中性子発見により，現在の原子についての陽子・中性子-電子模型，物質の認識の基礎としての近代科学発展の原点が確立した。このように，放射能の発見は物質観の革命と通して諸分野に大きな革命の波を及ぼした。

放射線は目に見えず五感にも感じない。19世紀末になってやっと人間の工夫による化学分離，物理的測定の進歩で発見され，その後，精密にしかも極微量まで測定することができるようになった。測定には，放射線が物質にあたってイオン化・励起，さらにその飛程に沿って傷跡を残すことを利用する。放射線の種類，エネルギー，数量など目的に応じてそれに適した測定法が開発されている。初期の頃は箔検電器の原理を用いたローリッツエン検電器，IM 泉効計，そして放射線の電離作用を利用した GM 管（ガイガー・ミュラー・カウンター）が使用された。最近では，エレクトロニクスの発達によって測定器も格段に進歩し ³H などの β 線を放出する核種や α 線を放出するラドンなどは，液体シンチレーションカウンターで，U, Th, Ra のような α 線を放出する核種に対しては，通常，化学分離・精製後， α 線スペクトロメーターで，また γ 線を放出する核種は非破壊状態で Ge 半導体検出器を用いた γ 線スペクトロメーターで測定されている。半減期の長い核種（通常1万年以上）に対しては，放射線を測定するよりも原子数を測定する方が有利であり，近年では，誘導結合プラズマ質量分析計（ICP-MS）や加速器質量分析計（AMS）が多用され，鉱物，岩石，土壌，温泉水などの極微量の放射能が正確に測定されるようになっている（小村ほか，2006）。

2. 放射能・放射線は至る所に存在

総ての岩石や土壌には，U や Th およびそれらから壊変した放射性核種（Fig. 1）が多かれ少なかれ含まれている（佐伯，1984）。U や Th は親石元素と呼ばれている。U, Th は原子の大きさは同じぐらいで，U の原子価は IV, VI 価，Th は IV 価である。両者は Mg や Al と同じぐらい陽性

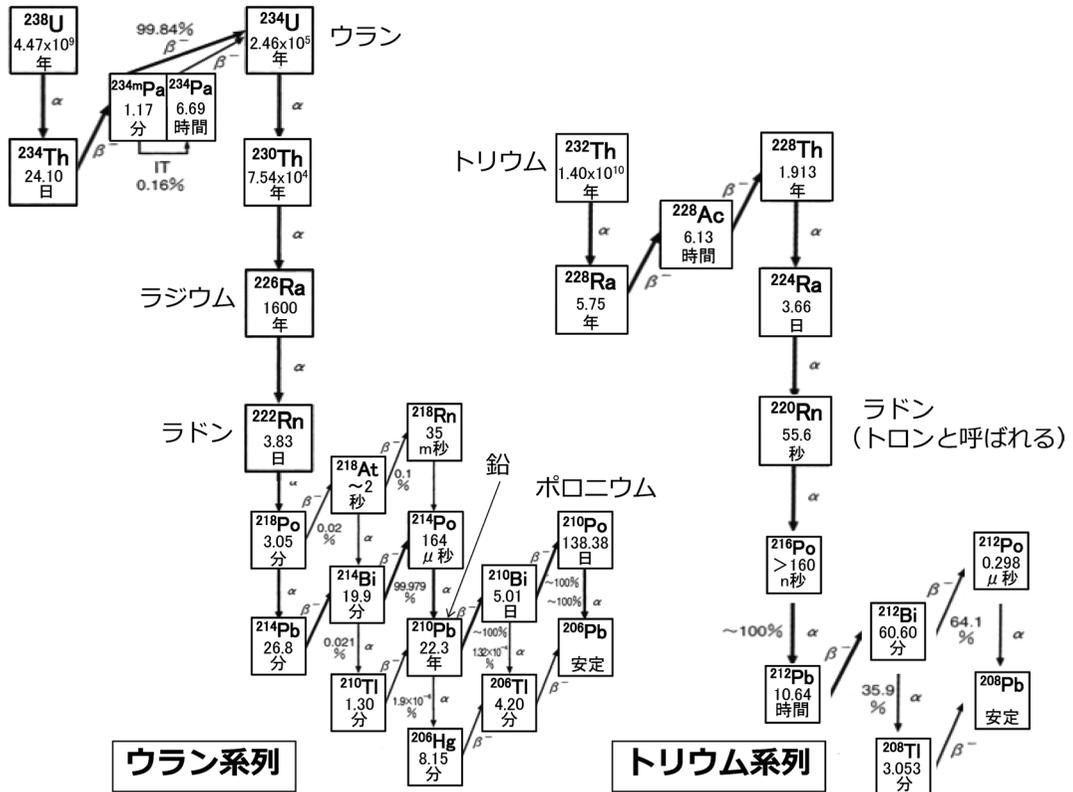


Fig. 1 Uranium and thorium decay series.

Fig. 1 ウラン壊変系列とトリウム壊変系列

であり塩基性酸化物を作るので酸性酸化物 SiO_2 に引かれ、珪酸塩鉱物を作る。地球が固まる際に珪酸塩液相に集積して上昇し、固結して地殻に分布した。天然に存在する通常のUは、質量数238, 235, 234の3つの放射性同位体から成っている。ウラン系列の親(始祖核種)である ^{238}U の存在比は99.28%で、 ^{238}U と同じ系列の ^{234}U は放射平衡状態(^{238}U が1Bqあれば ^{234}U も1Bqある状態)にある。存在比0.72%の ^{235}U は、アクチノウラン系列の親であり、核分裂を起こす点からも重要な核種である。酸性火成岩には約3ppm ($3\mu\text{g g}^{-1}$, 放射能強度は約 $0.04\text{Bq} \cdot ^{238}\text{U g}^{-1}$)のUを含み、超塩基性火成岩よりも100倍も多い。フロリダのリン鉱石には120ppm程度の高濃度のものもある。海水は、平均3.3ppbのUを含み、海水からのUの回収も試みられている。

一方, Th (^{232}Th) は, 火成岩で8~33ppm ($0.03\sim 0.13\text{Bq g}^{-1}$)で, 石灰岩では1ppm程度と低い。Thは難溶性であり、水中ではコロイド粒子になり吸着・除去されやすい。大地には ^{40}K も多く含まれており、平均的地殻1kgあたりの放射能は約63Bq、海水1Lあたりのそれは約11Bqである。ちなみに、体重70kgの人は約140gのカリウムを含み、大部分が筋肉中に存在している。体内の ^{40}K の総放射能強度は $4.4 \times 10^3\text{Bq}$ にもなる。

国内の岩石についてU, Th, K含量が測定されており、地殻の平均濃度は、それぞれ2.7ppm, 9.6ppm, 2.06%である。土壌中の ^{238}U , ^{232}Th , ^{40}K の平均濃度は、それぞれ16, 23, 440Bq kg^{-1} である(佐伯(編), 1984)。花崗岩の多い西南地方で濃度が高く、玄武岩の多い東北地方で低い傾向にある。火山灰で覆われている関東地方は低い。

ウラン系列に属する ^{226}Ra も、土壌や岩石中に広く分布していて、その放射能強度は $15\sim 50\text{Bq kg}^{-1}$ の範囲にある。Ra-226 はウラン系列に属するので岩石中では通常 ^{238}U と放射平衡状態になっていることが多い。Ra-226 の壊変生成物である ^{222}Rn は、地殻中に大部分存在するが、一部地表面より大気中に放出されている。表層地殻からの放出率は、平均で約 $0.7\text{個 cm}^{-2}\text{sec}^{-1}$ である (下, 1998)。土壌からの放出率は、大気圧が下がると上昇し、土壌水分が増加すると減少する。屋外の放射能強度は $5\sim 10\text{Bq m}^{-3}$ で、早朝が最も高く、午後低くなる。屋内の放射能は、建物、材料、換気などによって異なるが、一般に屋外より高く、石やコンクリート造りで密閉の高い建物ほど濃度は高い。国内では、木造、鉄筋コンクリートの建物で異なるが $15\sim 50\text{Bq m}^{-3}$ 程度、一方石造りで密閉のよい建物が多い北欧では数百～数千 Bq m^{-3} の高濃度の家屋が見出されている (下, 1998)。

3. 放射能泉

放射能泉の研究は、ベクレル、キュリー夫人が放射能の現象や Ra, Po を発見 (1898 年) した初期の頃、1903～1905 年頃から主としてオーストリアのマッヘ (H. Mache) が泉効計で地下水や温泉の Rn 放射能の測定をはじめ、まもなくイタリアヤソ連の鉱泥が放射能を有することが知られ、放射能測定が広まっていった (阪上, 1998)。当時の測定器では、Rn のように気体になりやすく、他の放射性元素との分離が容易なもののみが対象となり、Rn や放射平衡を利用して測定が可能な Ra の研究が行われ、放射能を含む温泉 (地下水) の研究は、この両元素が中心であった。このような歴史的背景もあり、放射能泉の対象となる元素は、Ra と Rn のみに限定されている。温泉法では、Rn を $20\times 10^{-10}\text{Ci kg}^{-1}$ (5.5 マッヘ、 ^{222}Rn として 74Bq kg^{-1}) 以上、もしくは Ra を $1\times 10^{-8}\text{mg kg}^{-1}$ (^{226}Ra として 0.37Bq kg^{-1}) 以上を含有する場合に温泉 (hot springs) とみなされ、Rn を $30\times 10^{-10}\text{Ci kg}^{-1}$ (8.25 マッヘ、 ^{222}Rn として 111Bq kg^{-1}) 以上含有する場合には療養泉 (medical springs) と定義されている。

昔の ^{222}Rn 放射能濃度はマッヘと言う単位で表されている。1 マッヘのラドンとは、試料水 1L に 0.001 e.s.u. の飽和電流を与える ^{222}Rn 濃度のことを言い、現在使用されている Bq に換算すると 1 マッヘ = 13.45Bq L^{-1} に相当する。

4. 国内の放射能泉

日本での温泉の定義は 1948 年に施行された温泉法に定められ、放射能泉に関しては Rn と Ra が規定されている。源泉総数は確認されたデータによると 2004 年時点で 27,000 件程度有り、その泉質は、塩化物泉 (27%)、単純温泉 (26%)、硫黄線 (14%)、炭酸水素塩水泉 (9%)、硫酸塩泉 (7%) で、放射能泉は 8% 程度である (日本温泉協会, 2006)。一般に、湧出経路にある岩石・土壌 (さらに、鉱床、温泉沈殿物) は、湧出する温泉の化学成分の供給源として重要な役割をしている。当然、温泉の放射性核種濃度は、湧出経路にある岩石・土壌に含まれる放射性核種の含有量に依存し、溶解反応、反跳化学とも関係し、さらに温泉の湧出量、泉温、化学成分、酸化還元状態、沈殿・共沈反応にも大きく左右される。温泉水中の成分は一定不変ではなく、その変化に対応して放射性核種濃度も変化している。

4.1 温泉水中の Rn (^{222}Rn)

温泉水中の Rn については、大正 2 年ごろまでに 200 ヶ所以上、ついで大正 2 年から 4 年にか

けて約1,000ヶ所のRn濃度測定が行われ, 国内のRn濃度の大部分が明らかにされている(堀内・村上, 1978; 阪上, 1998). その後も, 多くの研究者により測定がなされ, さらに知見が広まっていった. Table 1にそれらの成果として国内および外国のRnの含有量の高い温鉱泉を示す(村上, 1963). 非常に高いRn濃度(数万~数十万BqL⁻¹)の温泉が見出されており, 現在, 強放射能泉と言われている温泉場が上位を占めている. Rnなどのガスは温かい水よりも冷たい水(冷鉱泉)に溶けやすい性質を持っている. さらに, Rnは一般に湧出量の少ない温泉に濃度の高いものが多く, 湧出量が大きくなると濃度は小さくなる. 上位にある増富や池田鉱泉については, 当時湧出量の少ない湧水の測定が盛んに行われ, 長い間そのRnレベルを維持しなかったと報告されている. 増富鉱泉(A9号泉)では, Rn濃度が測定当時161,000BqL⁻¹あったものが, 1981年には20,000BqL⁻¹に漸減した. この日本一Rnを含む温泉は, 現在なくなってしまっている. このように, 温泉中のRn濃度は時間と共に変動し, そのパターンも湧出量, 場所によって異なるのが一般的である. Table 1の上位はすべて鉱泉であるが, 鳥取県三朝温泉は泉温が43℃にもかかわらずRn濃度が9,000BqL⁻¹と高いのが特徴である. 堀内ら(1977, 1978)は, 1970年代からRnとその親核種²²⁶Raの関係をさらに明らかにする目的で, Rn抽出-液体シンチレーション計測器による積分計数法を用いたRn測定法を開発し, これまでに全国数百地点の広範囲なデータを収集してきた. Rnの親核種は²²⁶Raであることから, いわゆる“強ラドン泉”の成因には多量の²²⁶Raが必要であるが, 温泉ではRnが親核種の²²⁶Raとの放射平衡量をはるかに上廻って存在する場合が多い. 堀内ら(1981)によるRn測定がなされた412温泉2651源泉についての統計によると, 放射能線の基準値74Bqkg⁻¹以上の源泉は24%, 療養泉の基準値111Bqkg⁻¹以上の源泉は約19%有り, 3.7~18.5Bqkg⁻¹の源泉は最も多く37%である.

4.2 温泉水中のRa (²²⁶Ra)

Ra-226については, 数~数十mBqL⁻¹の温泉が約40%を占めている. 有馬温泉天満宮の湯の14

Table 1 High radon activities in domestic and foreign hot and mineral springs (Murakami, 1963).

Table 1 ラドン含有量が高い国内外の温鉱泉(村上, 1963)

国内の温泉名	泉温 (°C)	ラドン含量 (マツヘ) (kBq/L)		諸外国の温泉名	ラドン含量 (マツヘ) (kBq/L)	
増富鉱泉 A9号泉	14.5	12000(1500)	161(20)	Oberschlema(ドイツ)		
増富鉱泉 A49号泉	22.0	9230(5000)	124(67)	Hindenburg	13500	182
池田鉱泉 8号線	15.0	4330	58.2	Bismark	3000	40.4
池田鉱泉 9号線	16.6	2750	37.0	Santa Restituta(イタリア)	3850	51.8
池田鉱泉 2号線		1479	19.9	Bramhach(ドイツ)	2269	30.5
増富鉱泉 上河原(下の湯)	19.5	1343	18.1	Jachimsthal(チェコスロバキア)	2000	26.9
増富鉱泉 上河原(上の湯)	12.6	663	8.9	Lacco-Ameno(イタリア)	1940	26.1
増富鉱泉 栗原1号線	19.0	638	8.6	Volde-Marillo(スペイン)	600	8.1
増富鉱泉 大柴	23.2	362	4.9	Seleno-Iswortsobe(ブルガリア)	310	4.2
増富鉱泉 栗原3号線	19.4	355	4.8	Gastein(チェコスロバキア)	267	3.6
増富鉱泉 丹生沢	23.5	330	4.4	Kreuznach(オーストリア)	170	2.3
増富鉱泉 栗原1号線B	20.0	304	4.1	Suldervent(ブルガリア)	160	2.2
恵那ラジウム鉱泉	10.0	222	3.0			
三朝温泉(翡翠の湯)	42.6	702	9.4			

()内は現在の値 (1マツヘ=13.45 Bq/L)

Bq L^{-1} が国内の最高値である (岩崎, 1968). Cl 濃度と Ra 含有量との関係が議論されているが, 常に一定ではなく, Cl 含有量が高くなれば Ra も高くなる傾向が見いだされている. 母岩としての花崗岩質または粗面岩質の酸性岩 (SiO_2 の多い) は塩基性 (SiO_2 の少ない) の玄武岩, ハンレイ岩等と比較して Ra 含有量が多い. 一般的に, Ra 濃度が高くなるためには, そのような母岩が温泉水と反応し, 容易に Ra を溶かし出すことが重要であると考えられている. さらに, 温泉水の滞留時間, 化学組成, 化学反応 (共沈, 溶解度) など重要となる. 岩崎 (1968, 1969) は, 池田鉱泉の母岩である花崗岩と温泉沈殿物を調べた結果, 沈殿物の方に Ra が大量に濃縮されていて, Ra の重要な起源となっていることを指摘している. 堀内ら (1977, 1978) は, Rn 測定の際に Ra も定量し, 測定した 198 温泉 887 源泉について, 基準値 0.37 Bq kg^{-1} 以上の源泉は約 5%, $0.037 \sim 0.185 \text{ Bq L}^{-1}$ の源泉が最も多く約 20%, 3.7 Bq L^{-1} 以上の源泉は 2 つに過ぎないと述べており (堀内, 1981), Rn 濃度と比べて濃度が非常に低い (堀内・村上, 1978). さらに, Ra に関しては, 諸外国の油田塩水など, 海水よりもはるかに濃い塩水において 100 Bq kg^{-1} を超える高濃度の ^{226}Ra が存在することが知られており, 一部の地域では ^{226}Ra 濃度と塩分の間には正の相関があることが見出されている (Kraemer and Reid, 1984; Moise *et al.*, 2000; Sturchio *et al.*, 2001). しかし, “何故高濃度の ^{226}Ra が存在するのか?” の生成機構については, 岩石の溶解, α 反跳, 塩分に依存した Ra のイオン交換, 吸着・脱離反応等の観点から検討がなされてきたが不明な点が多かった (例えば, Krishnaswami *et al.*, 1986; Porcelli, 2008). 近年, 掘削技術の進歩により, 国内でも沿岸域や堆積盆地から 1,000 m を超える大深度掘削井からの高塩分熱水地下水 (大部分は温泉水として利用) が得られるようになっ



Fig. 2 Sampling locations of hot and mineral spring waters (Yamamoto *et al.*, undisclosed for data; Tomita *et al.*, 2009, 2010, 2014; Tomita *et al.*, undisclosed for data from the Hokuriku areas).

Fig. 2 温鉱泉水の採水地点 (図には, 山本ほか (未公表データ), 富田ほか (2009, 2014) 及び Tomita *et al.* (2010, 2014) の他に, 北陸地方で採取した温鉱泉水 (富田ほか, 未公表データ) も含めて計 220 地点を記載してある)

た。著者らは、これらの熱水に着目し、北海道、青森県、秋田県、山形県、新潟県、富山県（氷見市）及び石川県の沿岸域や堆積盆地で得られる大深度井（約 1,000 m 前後）の塩化物泉（計 114 地点）について Ra 同位体 (^{226}Ra 及び ^{228}Ra) を測定してきた。Fig. 2 に著者らがこれまで測定してきた温鉱泉水の試料採取地点を、Fig. 3 (A) にこれら温鉱泉水中の ^{226}Ra 濃度と $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の関係を示す。これらの図には、山本ほか（未公表データ）、富田ほか（2009, 2014）及び Tomita *et al.* (2010, 2014) の他に、北陸地方で採取した温鉱泉水（富田、未公表データ）も含めて記載してある。日本海沿岸域や堆積盆地で採取した高塩分の塩化物泉は、水質及び水素・酸素同位体比からその大部分が化石海水を起源としていると考えられ、 ^{226}Ra 濃度は $0.002\sim 5.1\text{ Bq kg}^{-1}$ の幅広い範囲で見出された。温泉の基準値 0.37 Bq kg^{-1} を超える塩化物泉が 30 地点も存在し、沿岸地域及び堆積盆地においても、いわゆる“ラジウム泉”が普遍的に存在することが分かってきた。北海道積丹半島にある高塩分の温泉では、有馬温泉に匹敵する 5.1 Bq kg^{-1} の ^{226}Ra を含む (Fig. 3 (A))。また、同時に測定した $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比が、岩石の $^{232}\text{Th}/^{238}\text{U}$ 放射能比と同程度からやや高いことより、塩分が高い滞留時間の長い温鉱泉水の Ra は、主に湧出経路の岩石表層に位置する Th からの α 壊変に伴う α 反跳により供給されていると考えられた。さらに、塩化物泉水中の ^{226}Ra 濃度は、ばらつきは大きいものの、塩化物泉水中の塩分が増加すると ^{226}Ra 濃度が増加する傾向 (SO_4 を含まない場合にはより明確な相関がある) にあることを見出し、塩化物泉水中の ^{226}Ra 濃度は概ね塩分依存性の吸着・脱離反応により支配されていることが明らかになってきた。このような知見は、高濃度の Ra 放射能泉の生成機構やその由来（起源）の考え方に極めて重要な事実を示しているものである。

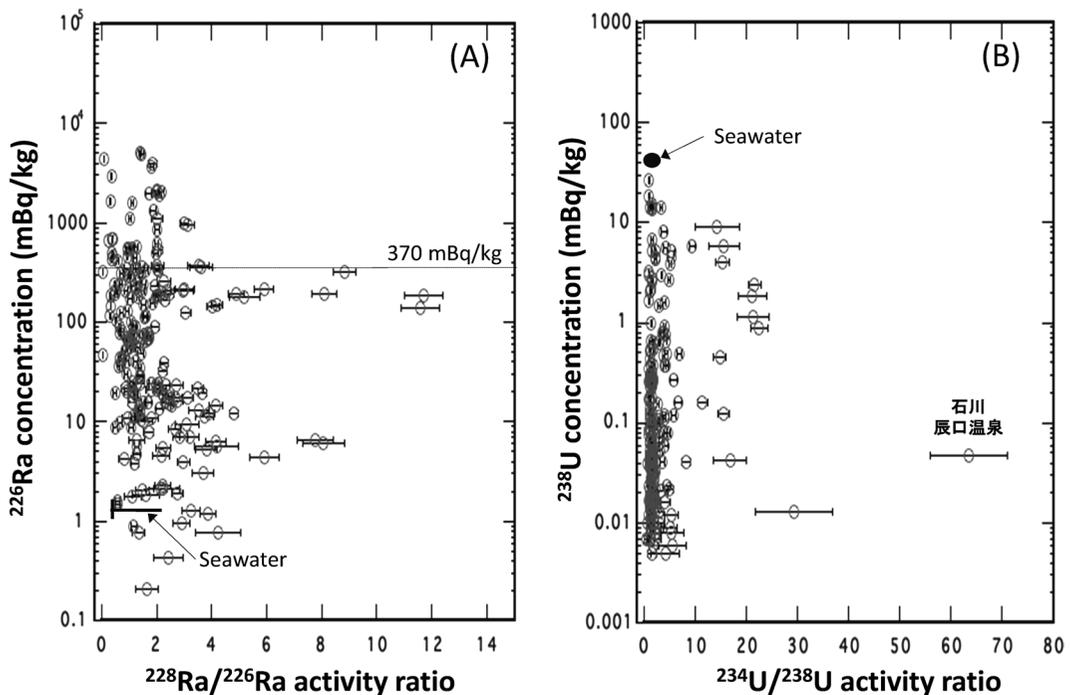


Fig. 3 The plots of (A) ^{226}Ra activity and $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ activity ratio, and (B) ^{238}U activity and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratio of hot and mineral spring waters.

Fig. 3 温鉱泉水の ^{226}Ra 濃度- $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比 (A) および ^{238}U 濃度- $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比 (B) の関係

4.3 温泉水中の U 同位体

上記の Rn や Ra 濃度の以外に、放射性核種の壊変系列における諸核種の存在比を放射平衡の観点で見ると地球化学的な興味ある諸研究課題が含まれている。特に U 同位体については、放射能泉やウラン鉱床などとの関連のみならず、 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比が、温泉水中のウランの起源、湧出経路における溶出過程、温泉水の酸化還元状況など反跳化学とも関連ある事項として研究がなされてきた。

U は、酸性泉や炭酸塩を含む温泉では比較的溶存しやすく、中性付近の温泉水では溶存しにくい傾向にある。阪上ら (1964) によると、Cl や炭酸ガスに富む島根県浅原、小林、池田鉱泉や、湯抱鉱泉には、高濃度の ^{238}U ($0.2\sim 0.9\text{BqL}^{-1}$) が含まれている。これらとは全く異なる強酸性泉にも U が多いことが明らかになっている (野口, 1967)。たとえば、富山県立山地獄谷酸性泉 No. 25, 26 は $0.4\sim 0.5\text{BqL}^{-1}$ 、群馬県香草温泉は 0.12BqL^{-1} 、酸性泉で最も有名な秋田県玉川温泉は $0.01\sim 0.03\text{BqL}^{-1}$ である。

ウラン系列に属する 2 つの U 同位体、 ^{238}U 及び ^{234}U に関しては、1955 年、ソ連の V.V. Cherudintsev *et al.* (1954-1955) が、天然水やウラン二次鉱物で $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比が放射平衡値 (通常の岩石ではこの比が 1.0) になっていないことを見出し、その後種々の天然水で確認され、そのメカニズムも研究されてきた (Fleischer *et al.*, 1978; Ivanovich *et al.*, 1982; Osmond *et al.*, 1983; Ressler *et al.*, 1983; 橋本, 1994)。今日、この U の非平衡現象は疑う余地はなく、地下水の循環、混合、滞留時間評価に利用されている。日本においても、阪上ら (1964) が一早くこの現象に注目し、1968 年に三朝温泉を含む山陰温泉で $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比が平衡値より高いことを見出し、その後も温泉水などで U 含有量と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比の研究が継続されてきた (Sakanoue *et al.*, 1971)。これまでに著者らが採取・測定してきた温泉水中の U 同位体測定結果を Fig. 3 (B) に纏めて示す。一連の研究中に、我々の研究室近くにある石川県辰口温泉で約 15 の高い $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比 (1976 年のボーリング直後の 1977 年に採水) が検出され、今日まで継続的に測定している (Yamamoto *et al.*, 2003)。辰口温泉では、約 30 年間にわたり、 ^{234}U は $2.3\sim 3.07\text{mBqL}^{-1}$ でほぼ一定であるのに対して、 ^{238}U は $0.045\sim 1.02\text{mBq/L}$ 範囲で 20 倍程度変動している。温泉水の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は初期の頃は 10 前後であったが後半は 50~60 前後の値に収束している。このような変動は、 ^{238}U 濃度の低い水と高い水の 2 成分の混合に起因すると考えられるが、 ^{234}U 濃度が変動していないことが極めて珍しい現象である (Fig. 4)。辰口温泉で見出された 50 近い高 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は、国内で最高値である。当地域を含む周辺部の地質は、新第三紀中新世のいわゆるグリーンタフと呼ばれる緑色・青灰色の凝灰岩類を基盤としており、深度 615m までボーリングして、555~575m 深さ (ストレーナ位置) から $140\sim 200\text{Lmin}^{-1}$ で揚湯している。泉質は含食塩・芒硝泉で、泉温は $42\sim 48^\circ\text{C}$ 、pH は $7.2\sim 7.5$ 、還元雰囲気 (2000 年 7 月の Eh 値: -105mV) の温泉である。辰口温泉で見られる高い $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は、中性の還元雰囲気条件下での α 反跳による優先的な ^{234}U 溶出に起因するであろう。このようにウランの非平衡は、U 起源についての湧出経路における地下水の混合、溶出過程、挙動を考察する手がかりを与えるものとして興味深い。

4.4 温泉水中のその他の放射性核種

上記以外の放射性核種として、トリウム系列の ^{232}Th やウラン系列末端の鉛 ^{210}Pb 及びポロニウム ^{210}Po も測定されている。Th は難溶性元素であるため、濃度は極めて低く、初期の頃のデータは信頼性の低いものであった。下方ら (1991) は、中性子放射化分析法を用いて国内の温泉水 153 試料の ^{232}Th 濃度を報告している。それによれば、 ^{232}Th 濃度は $4\times 10^{-6}\sim 4\times 10^{-2}\text{BqL}^{-1}$ の非常に低い幅広い範囲で変動し、 $4\times 10^{-5}\sim 4\times 10^{-4}\text{BqL}^{-1}$ の温泉水が最も多い。蔵王、鳴子、玉川、川湯、川原下、

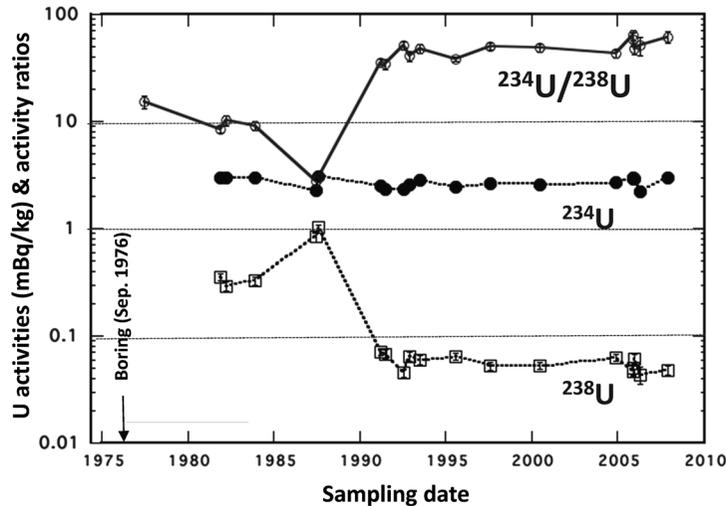


Fig. 4 Time-series data on ^{238}U and ^{234}U activities, and $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratios in the Tatsunokuchi hot spring water of Ishikawa Prefecture.

Fig. 4 石川県辰口温泉での ^{238}U , ^{234}U 濃度と $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比の経年変化

下風呂温泉など酸性温泉が一般的に高い傾向にあった。温泉水中の ^{210}Pb や ^{210}Po のデータも極めて少なく、山本ら (1994) は国内の温泉水 42 試料での結果を報告している。温泉水中の ^{210}Pb , ^{210}Po の濃度は、一部の温泉水で検出されない場合もあったが、それぞれ $0.0\sim 0.56\text{ Bq L}^{-1}$, $0.0002\sim 0.095\text{ Bq L}^{-1}$ で同時に測定した ^{222}Rn 濃度 $0.4\sim 5000\text{ Bq L}^{-1}$ と比べて遥かに低い濃度である。 ^{210}Po 濃度は ^{226}Ra 濃度よりもむしろ ^{222}Rn 濃度と相関がありそうである。 ^{210}Po は火山噴気ガスに比較的高濃度 (小村ら, 1994) で含まれているが、その挙動は複雑で温泉水として湧出するまでに吸着・沈着して除去される傾向が高い。温泉水に含まれる放射性核種の含有量の比較例として、石川県辰口温泉の結果を Fig. 5 に示した。Rn 濃度が最も高く、Ra, Pb, Po, U, Th の順に濃度が漸減している。

4.5 温泉沈殿物

温泉水中の放射能測定以外にも、強放射能泉の温泉沈殿物 (岩崎, 1969) に関心が持たれ、特に北投石と呼ばれる含鉛重晶石 ((Ba, Pb) SO_4) が生成することが知られている。世界でもその生成が知られているのは台湾の北投温泉と秋田県玉川温泉の 2ヶ所のみである。玉川温泉の北投石は、1922年に国の天然記念物、1952年に特別天然記念物に指定されている。玉川温泉の北投石については、北投石の生成過程や主要成分に関する論文 (例えば、齊藤, 1976; 佐々木, 1995, 1997; 大沢ら, 1988; 金井, 2000) は多いが、Ra 濃度に関するデータは少ない。齊藤 (2005) によると、1953~1981年及び1981~1990年の期間に玉川温泉 (赤増池) 中に安山岩を設置しその表面に北投石を生成させた試料では、 ^{226}Ra は $50\sim 80\text{ Bq g}^{-1}$ とかなり高い濃度であった。一方、台湾産の北投石については、 $30\sim 86\text{ Bq g}^{-1}$ の ^{226}Ra 濃度 (Momoshima *et al.*, 1997; Tomita *et al.*, 2006) が見出されており、両者の ^{226}Ra 濃度には大差がないように思われる。その他に、山梨県増富温泉における温泉沈殿物について化学組成と共に、U, Th, Ra 含有量も測定され、その特徴、流下に伴う組成変化、温泉水と沈殿物との関係等が検討されている (金井, 1989)。

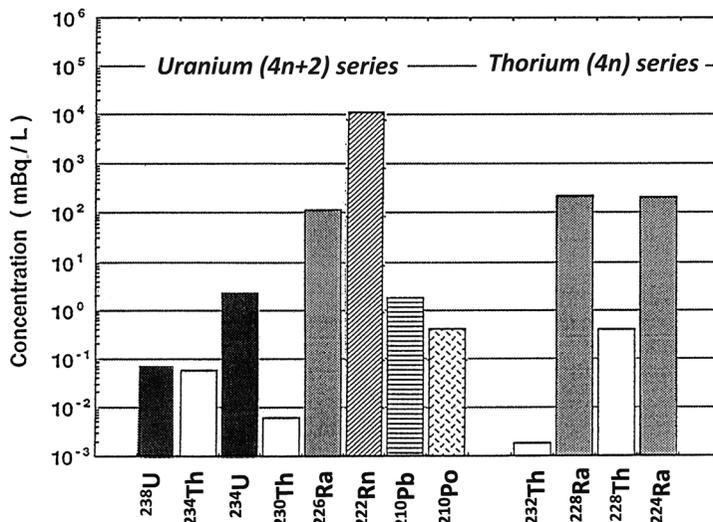


Fig. 5 Comparison of activities among radionuclides detected in the Tatsunokuchi hot spring water of Ishikawa Prefecture.

Fig. 5 石川県辰口温泉で検出された放射性核種の濃度比較

5. 放射能泉の効能

前述してきたように、Ra や Rn は放射性物質であり放射線 (α 線) を放出している。さらにそれらの短寿命娘核種は α, β, γ 線を放出する。放射線は、一度にあるいは継続して沢山浴びれば癌などの放射線障害を起こす危険性を持ち合わせている。日常生活において被ばくを避けることができない自然放射線からの日本人 1 人当たりの被ばく線量 (実効線量) は、宇宙線から 0.3 mSv y⁻¹、大地放射線から 0.33 mSv y⁻¹、自然放射性核種による内部被ばくから 1.47 mSv y⁻¹ で、合計 2.1 mSv y⁻¹ であると評価されている。このうち、ラドンの吸入による内部被ばくは 0.37 mSv y⁻¹ と見積もられている。また、医療被ばくの 3.87 mSv y⁻¹ 等を加えると総計 5.98 mSv y⁻¹ になる (原子力安全研究協会, 2011)。国際放射線防護委員会 (ICRP, 1990) では、住居におけるラドン防護へのアプローチとして、空気中のラドン濃度の対策レベルとして 200~600 Bq m⁻³ を提示している。居住を年間 7,000 時間 (平衡係数を 0.4) とするとこの Rn レベルは年間で 3~10 mSv の被ばくをもたらす。自然放射線による被ばく線量は、世界的にみれば場所によって少なくとも 10 倍程度の違いがあり、その上、Rn 線量の最大値まで含めれば、その違いはさらに広がる。ICRP は、医療と自然放射線からの被ばくを除いて、一般人の 1 年間の被ばく線量限度を 1 mSv と定めている。これは、このレベルを超えたら病気になるという意味ではなくあくまでも目安レベルである。福島第一原子力発電所事故以来、低線量被ばくに国民の不安が高まり、放射能を含む温泉にも関心が高まっている。Rn については、吸入すれば肺に集まり、数十分で体内から排泄される。また、皮膚からも吸収され血液を通して速やかに出ていく。娘核種も含む Rn による被ばく線量の評価には、種々のパラメータが必要であり厳密な評価が困難であるが幾つかの評価がなされている。Mori *et al.* (2013) は、三重県のある温泉で Rn 濃度 3.9 Bq kg⁻¹ の温泉に 2 時間入浴すると仮定 (温泉水から空気中への蒸発率: 10⁻⁴, 平衡計数: 0.4, 線量換算定数: 9.0 × 10⁻⁶ mSv (Bq h m⁻³)⁻¹) すると、実効線量は 1 回あたり 2.8 nSv (毎日 1 回入浴すると年間の線量は 1.0 μSv)、入浴時に 500 ml を飲用

(線量換算定数: $3.5 \times 10^{-6} \text{ mSv Bq}^{-1}$) すると1回あたり 5.1 nSv (飲用による年間の線量は 1.9 μSv) 程度になると試算している. 同じような条件で Rn 濃度 $1,000 \text{ Bq kg}^{-1}$ を仮定すると, 年間の実効線量は入浴から 0.3 mSv, 飲用から 0.5 mSv と見積もられる. 増富鉱泉で今回見出された最も高い ^{226}Ra 含量 (617 mBq L^{-1}) の鉱泉水を毎日 2.2 L, 1 年間飲用し続けると仮定した場合の年間の実効線量は, 0.14 mSv と試算され, いずれの場合にも 1 mSv y^{-1} で問題とならないことがわかる. 御船 (1981) 及び Mifune *et al.* (1988) は, 放射能温泉として Rn 濃度が高いことで有名な三朝温泉地において, 多年生活し, 温泉入浴, 温泉水の飲用を行ってきた住民の疫学的調査を行い ^{222}Rn による障害は認められていないと報告している. いずれにせよ, この程度の放射能泉では心配することはなく, 人体に害を与えるものではないことは明らかと言えよう.

Rn の生理作用については, これまでに次のような可能性が指摘され放射能泉の基本的な考え方になっている. (1) Rn は不活性ガスなので肺や皮膚から体内に入り身体の中の構成成分とも反応せず血液を介して身体全体に運ばれ比較的短時間で排出される (Rn を飲用あるいは吸入した場合, 体内から排泄される半減期は約 40 分程度と報告されている), (2) 脂肪分に溶けやすいので, 内分泌腺や神経繊維のような脂肪含有量の高い臓器に蓄積する傾向がある, (3) 放出する α 線は, 数十 μm (約 20 μm) 程度しか進まないため比較的大きなエネルギーを組織などに与え, 一連の複雑な刺激作用を起こさせる. Rn 温泉の入浴や服用の効能としては, リウマチ性疾患 (骨関節症, 慢性関節リウマチ, 神経痛, 腰痛など), 通風および高尿酸血症, 動脈硬化症, 高血圧, 慢性肝炎, 貧血など多岐にわたっている. これの効能には, 温泉水中の放射能のみならず, 環境の変化, ストレスからの開放, 温度, 温泉水に含まれる他の化学成分などの複合的効果も無視できない. Rn の生理作用 (御船, 1998), ラドン温泉地での経験 (森永, 1998) についての詳細は報文を参照されたい.

療養や治療を目的として, Rn のどのような働きで病気が治るのかについてなど Rn 療法そのものにとりくんでいる所も世界にいくつかある (日本温泉科学研究所編, 1981: 山岡, 1998). Rn 濃度 ($300 \sim 3,000 \text{ Bq L}^{-1}$) の温泉では世界的に見て強直性脊椎炎, 慢性多発関節炎 (慢性間接リウマチなど), 変形性関節炎, 喘息, アトピー性皮膚炎などに有効であると言われている. オーストリアのバドガシュタインは, Rn 療法で温泉や療養施設のある世界的に有名な場所の1つである. バドガシュタインは, オーストリア・ザルツブルクのイタリアとスロバキア国境に近く, 2,000~3,000 m 級のヨーロッパ・アルプス連峰に囲まれたガシュタイン渓谷の最も奥深いところにある. 多くのホテルが 17ヶ所のラドン温泉源から湧き出す 500 万リットルのお湯を引いて温泉プール, 温泉浴治療施設を整備している. 1978 年に測定した結果では, ^{226}Ra および ^{222}Rn 濃度は, それぞれ 0.2 Bq L^{-1} および 662 Bq L^{-1} であった. また, この渓谷では, 第二次大戦前まで金の採掘が行われており, 坑道で働いていた坑夫のリウマチ症状や喘息発作が軽快した. 坑道のラドン濃度が非常に高いということがわかり, 戦後ラドン療法の目的で坑道 (ガシュタイン療養トンネル) を使用している. 坑道内の空気中 ^{222}Rn 濃度は, おおむね $166,500 \text{ Bq m}^{-3}$, 坑道内温度 $37 \sim 41.5^\circ\text{C}$, 湿度は 70~90% で, 温泉医の指導のもとに週 2~3 回入坑し約 1 時間滞在, 2~3 クール繰り返して利用している. 年間, 約 10,000 人の患者が訪れるそうである. 三朝温泉の浴室 54 Bq m^{-3} , 岡山大学三朝分の熱気浴室 $2,080 \text{ Bq m}^{-3}$ と比べると, ガシュタイン療養坑道は, 80~3,000 倍高い (山岡, 1998). その他, アメリカやロシアにもいくつかのラドン療養泉や人工ラドンを用いたラドン病院などがある. 国内外, 何れにしても, 多数の人が放射能泉に入浴している現状は, これまでの疫学的研究やホルミシスの考えと共に, 忘れられてはならないと思う.

6. おわりに

石川県出身の中谷宇吉郎博士が、雪の研究を通じて、「雪は天から送られた手紙である」という詩情あふれる言葉を残している。温泉は「地下から送られた手紙である」と考えると目に見えない地下のロマンに満ち溢れる。放射能、放射線は我々人間の生活において切っても切れない関係にあり、この自然放射線と共存しながら人類は進化してきた。高線量放射線被ばくは人体に危険であることは言うまでもないが、現在、学問の世界で低線量放射線被ばくの問題が議論されている。低線量放射線は生物に有益な働きしているか否かの学問的な解決はまだ先のようなようであるが、放射能泉のようなレベルでは人体に殆ど影響はないと考えられる。Ra や Rn 泉に入りながら「地下から送られた宝物」をゆったりとした気分で楽しみながら健康を維持したいものである。

引用文献

- Cherdyntsev, V.V., Chalov, P.I., Khitrik, M.E., Mamebetov, M.E., Khaidarov, G.Z. (1954-1955) : Transactions of the 3th session of committee for determination of absolute ages of geologic formations, *Izv. Akad. Nauk. SSSR*, **3**, 175-233.
- Fleischer, R.L., Raabe O.G. (1978) : Recoiling alpha-emitting nuclei-Mechanisms for uranium disequilibrium. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **42**, 973-978.
- 原子力安全研究協会 (2011) : 新版生活環境放射線 (国民線量の算定).
- 橋本哲夫 (1994) : 自然界での放射壊変系列の非平衡生起の原因について, *Radioisotopes*, **43**, 212-223.
- 堀内公子, 村上悠紀雄 (1977) : 温鉱泉中のラドンの液体シンチレーションカウンターによる新定量法とその基礎的條件の検討. *温泉科学*, **28**, 39-52.
- 堀内公子, 村上悠紀雄 (1978) : 鉱泉中のラジウム, ラドン同時測定に関する研究その 1—三朝, 勝浦, 白浜, 湯ヶ島, 網代, 増富におけるラジウム, ラドンの同時定量値について—. *温泉科学*, **29**, 68-75.
- 堀内公子, 村上悠紀雄 (1978) : ラジウム, ラドン量より求めた δRn 項による鉱泉中の過剰量ラドンの存在に対する一考察, *地球化学*, **12**, 59-70.
- 堀内公子 (1981) : 日本の温泉の放射能, *温泉科学*, **31**, 69-78.
- ICRP Publication 60 : 1990 Recommendations of the International Commission on Radiological Protection, *Ann. ICRP* **21**, 1-3 (1991).
- Ivanovich, M., Harmon, R.S. Eds. (1982) : "Uranium Series Disequilibrium-Applications to Environmental Problems in the Earth Sciences", Clarendon Press, Oxford.
- 岩崎岩次 (1968) : 温泉中のラジウム (^{226}Ra) の分布と強放射能泉の生成機構 (その 1-3). *温泉工学会誌*, **6**, 18-28 ; 112-114 ; 165-168.
- 岩崎岩次 (1969) : 温泉中のラジウム (^{226}Ra) の分布と強放射能泉の生成機構 (その 4-5). *温泉工学会誌*, **7**, 16-24 ; 109-114.
- Kraemer, T.F., Reid D.F. (1984) : The occurrence and behavior of radium in saline formation water of the U.S. Gulf Coast Region. *Chem. Geol. (Isotope Geoscience)*, **2**, 153-174.
- Krishnaswami, S., Bhusan, R., Baskaran M. (1991) : Radium isotopes and ^{222}Rn in shallow brines, Kharaghoda (India). *Chem. Geol. (Isotope Geoscience)*, **87**, 125-136.
- 金井 豊 (1989) : 山梨県増富温泉における温泉沈殿物の化学組成, *地球化学*, **23**, 77-83.
- 金井 豊 (2000) : ラジウムの地球化学—ラジウムと放射線測定器の 1 世紀—, *地質ニュース*,

554, pp. 17-29.

- 小村和久, 山本政儀, 上野 馨, 内田賢吾, 阪上正信 (1994) : 火山噴出物並びに温鉱泉の ^{210}Pb と ^{210}Po (その1) —火山噴気ガス及びイオウ昇華物の ^{210}Pb と ^{210}Po —. 温泉科学, **44**, 11-17.
- 小村和久, 太田裕二, 青山道夫, 櫻井敬久, 篠原伸夫, 大塚良仁 (2006) : 超低レベル放射能測定
の現状と展望. (社)日本アイソトープ協会 (編), *Radioisotopes*, **55**, 231-232 ; 293-306 ; 351-
359 ; 429-438 ; 501-513 ; 557-565 ; 651-664 ; 691-697 ; 699-707.
- 御船政明 (1981) : 放射能泉と三朝温泉. 温泉科学, **31**, 80-93.
- Mifune, M., Sobue, T., Arimoto H., Komoto, Y., Kondo, S., Tanooka, H (1992) : Cancer mortality
survey in a spa area (Misasa, Japan) with a high radon background. *Jpn. J. Cancer Res.*, **83**,
1-5.
- 御船政明 (1998) : 温泉とラジウム・ラドン. エネルギーレビュー, **18**, 14-16.
- Moise, T., Starinsky, A., Katz, A., Kolodny Y. (2000) : Ra isotopes and Rn in brines and ground
waters of the Jordan-Dead Sea Rift Valley : Enrichment, retardation, and mixing. *Geochim.
Cosmochim. Acta*, **64**, 2371-2388.
- Momoshima, N., Nita, J., Maeda, Y., Sugihara, S., Shinno, I., Matsuoka, N., Huang, C. W. (1997) :
Chemical composition and radioactivity in Hokutulite (Plumbian Baritea) collected at Peito
Hot Spring, Taiwan. *J. Environ. Radioact.*, **37**, 85-99.
- Mori, Y., Deguchi, A., Miwa, C., Iwasaki, Y., Suzumura, E., Maeda, K., Hamaguchi, H. Shimasaki,
H., Mizutani, M., Tanaka, N., Kawamura, Y. (2013) : Estimation of exposure dose due to radon
in radioactive spring water-Case study of a hot spring facility in Mie prefecture. *J. Jpn. Soc.
Balneol. Climatol. Phys. Med.*, **76**, 255-261.
- 村上悠紀雄 (1963) : 温泉と放射能 (I), 温泉工学会誌, **1**, 93-100.
- 森永 寛 (1974) : 放射能泉の医学. 温泉科学, **25**, 45-54.
- 森永 寛 (1998) : ラドン温泉地での経験. 保険物理, **33**, 88-90.
- 日本温泉協会 (2006) : 温泉—自然と文化.
- 日本温泉科学研究所 (1981) : 世界の温泉 : 注目あびるラドン温泉の医学.
- 野口喜三雄, 今橋正征 (1967) : 本邦酸性泉のウラン含量. 温泉科学, **18**, 1-7.
- 大沢信二, 綿抜邦彦, 高野穆一郎 (1988) : コンピュータ・シミュレーションによる北投石生成機構,
温泉科学, **38**, 154-162.
- Osmond, J.K., Cowart, J.B., Ivanovich, M. (1983) : Uranium disequilibrium in ground water as an
indicator of anomalies. *Int. J. Appl. Radiat. Isot.*, **34**, 263-308.
- Porcelli D. (2008) : Investigating groundwater processes using U- and Th-series nuclides. In :
Baxter, M.S. (Ed.), *Radioactivity in the environment Vol. 13*, Elsevier, pp. 105-153.
- Ressler K. (1983) : Uranium recoil reactions, in "Gmelin Handbook of Inorganic Chemistry, 8th
Edition, Uranium, Supplement Volume A6", Springer Verlag, Berlin, pp. 135-163.
- 佐伯誠道 (1984) : 環境放射能—挙動・生物濃縮・人体被ばく線量評価. ソフトサイエンス社.
- 斉藤信房 (1976) : 放射性温泉沈殿物について. 温泉科学, **27**, 31-35.
- 斉藤 敬 (2005) : 玉川温泉産北投石の成長速度の推定, 日本大学文理学部自然科学研究所研究紀要,
40, 203-207.
- 阪上正信, 橋本哲夫 (1964) : $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比の測定, 日本化学雑誌. **85**, 622-627.
- 阪上正信 (1966) : 天然水中の $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比と核年代学への応用. 日本海洋学会誌, **22**, 62-65.
- Sakanoue, M., Komura K. (1971) : Anomalously high $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ ratio in a natural sample. *Nature*,

233, 80-81.

- 阪上正信 (1996) : ラドン研究の源流と現状. 日本分析センター広報, **28**, 16-22.
- 阪上正信 (1998) : ラジウム・ラドン温泉とその放射能測定. 放射線医学物理, **18**, 189-196.
- 佐々木信行, 綿抜邦彦 (1995) : 天然無機化合物-鉱物の世界, pp.108-129, 裳華房.
- 佐々木信行 (1997) : 天然記念物「北投石」100年の歩み, 温泉科学, **47**, 115-124.
- 下 道国 (1998) : ラドンの人体への影響評価専門研究会報告書. 日本保健物理学会.
- 下方鉞蔵, 神谷 宏, 尾崎敦子 (1991) : 本邦温泉のトリウム含量. 温泉科学, **41**, 155-168.
- Sturchio, N.C., Banner, J.L., Binz, C.M., Heraty, L.B., Musgrove, M. (2001) : Radium geochemistry of groundwaters in Paleozoic carbonate aquifers, midcontinent, USA. *Appl. Geochem.*, **16**, 109-122.
- Tomita, J., Sakaguchi, A., Yamamoto M. (2006) : Hokutulite collected from riverbed at Peito Hot Spring in Taiwan, with emphasis on radiochemical studies. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **270**, 567-574.
- 富田純平, 佐竹 洋, 佐々木圭一, 坂口 綾, 井上陸夫, 浜島靖典, 山本政儀 (2009) : 大深度掘削井から得られた Na-Cl 型温鉱泉水中のラジウム (Ra) 同位体—石川県沿岸地域, 温泉科学, **58**, 241-255.
- Tomita, J., Satake, H., Fukuyama, T., Sasaki, T., Sakaguchi, A., Yamamoto M. (2010) : Radium geochemistry in Na-Cl type groundwater in Niigata Prefecture, Japan. *J. Environ. Radioact.*, **101**, 201-210.
- 富田純平, 高田貴裕, 玉村修司, 張 頤, 高畠容子, 秋田藤夫, 長尾誠也, 山本政儀 (2014) : 北海道中・西部における塩化物泉中のラジウム (Ra) 同位体. 温泉科学, **64**, 146-164 (2014).
- Tomita, J., Zhang, J., Yamamoto M. (2014) : Radium isotopes (^{226}Ra and ^{228}Ra) in Na-Cl type groundwaters from Tohoku District (Aomori, Akita and Yamagata Prefectures) in Japan. *J. Environ. Radioact.*, **137**, 204-212.
- 山 登 (1985) : 放射能と温泉. 温泉科学, **35**, 78-81.
- 山岡聖典 (1998) : バードガスタインのラドン療法とその機構解明. *Radioisotopes*, **47**, 729-730.
- 山本政儀, 渡口 輝, 指物和彦, 小村和久, 上野 馨, 阪上正信 (1994) : 火山噴出物並びに温鉱泉の ^{210}Pb と ^{210}Po (その2) —温鉱泉中の ^{210}Pb と ^{210}Po 含有量の測定. 温泉科学, **44**, 18-27.
- Yamamoto, M., Sato, T., Sasaki, K., Hama, K., Nakamura, T., Komura K. (2003) : Anomalously high $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ activity ratios of Tatsunokuchi hot spring waters, Ishikawa Prefecture, Japan. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **255**, 369-373.