

## 福島県における温泉・湧水中の天然放射性核種

金井 豊<sup>1</sup>

Yutaka Kanai (2002) Study on natural radioactive nuclides in spring waters in Fukushima Prefecture. *Bull. Geol. Surv. Japan*, vol.53(7/8), p.559-571, 10 figs.

**Abstract:** To survey the uranium concentration and understand the relationships among uranium series nuclides in the environment, the spring waters in Fukushima Prefecture were studied. The average U concentration in spring waters related to granitic rocks was higher than those related to schist, sedimentary rocks and pyroclastic rocks. Most of the U concentrations are less than 0.2 ppb, and this may be deduced from the reducing underground environment. The U-234/U-238, Ra-226/U-234 and Rn-222/Ra-226 activity ratios are greater than 1. The Ra concentration seemed to have a correlation with the water temperature. The U concentration in waters related to the granitic rocks has positive relationships with the redox potential and dissolved oxygen content and negative relationships with pH. The Rn is dissolved much more than expected from Ra. The source of the excess Rn is assumed to be the Ra in the rock around the micro pass way, and it is qualitatively deduced by using a simple model.

**Keywords:** natural radioactive nuclides, geochemistry, spring, Fukushima.

### 要 旨

温泉・湧水など環境水中のウラン系列核種の濃度と、系列核種相互の関係を明らかにするために、福島県を中心に温泉・鉱泉などの湧水を調査した。その結果、ウラン濃度は花崗岩類、片麻岩、第三紀堆積岩、火山碎屑岩類等のうち花崗岩類分布地域の温泉に相対的に濃度が高く存在し、基盤岩における濃度との関係が示唆された。しかし、絶対量についてはかなり低濃度で、その多くは0.2ppb以下であった。低濃度である原因としては、地下での還元的な環境が原因と推定された。また、U-234/U-238放射能比、Ra-226/U-234放射能比、Rn-222/Ra-226放射能比はいずれも1よりも大きい傾向にあり、娘核種の方が多く溶解していることが明らかとなった。ウラン、ラジウム、ラドン濃度と水質等との間に明らかな関係は見いだせなかったが、ラジウムに関しては水温と相関があるような傾向がみられた。花崗岩地域での試料についてみると、ウランは酸化還元電位、溶存酸素量に正の相関を、pHに対して負の相関を示した。ラドンは溶存ラジウム量から推定されるよりもはるかに過剰にとけ込んでいることが判明した。この過剰ラドンの供給源としては地下の岩石中ラジウムと考えられ、地層中の細かな水みちを通過する間に岩石表面のラジウムからラドンが供給されるというモデル計算を行って、定性的な確認を行った。

### 1. はじめに

環境水中のウランなどの天然放射性核種は、水が地層あ

るいは岩石と長期にわたって接触した結果、水中に溶け出したものと考えられている。これらの水中濃度は、ウランのバックグラウンド濃度を知る上で有用であると共に、ウラン系列核種間の関係からその詳細な挙動を検討できるものと考えられる。

著者らは、これまで地表物質やより深部の地質ならびに水の履歴と水質との関わりを明らかにしようとして、福島県および茨城県を中心に温泉・鉱泉水などの湧水や地表水等を調査し、その水質結果について報告した(金井ほか, 1998; 1999)。一方、地下水中のウラン系列核種については、岐阜県の東濃鉱山周辺域における濃度や放射能比について報告してきた(金井ほか, 1991)。本研究では、福島県を中心とした地域において温泉・鉱泉水などを採取し、それに含まれる天然のウラン系列核種を分析したので、その結果について報告する。

ウラン系列に属する核種のうち、半減期が十分に長く通常の分析手法で分析可能な核種には、ウラン-238(半減期:45億年)を親核種としてウラン-234(25万年)、トリウム-230(7.5万年)、ラジウム-226(1600年)、ラドン-222(3.8日)等がある。トリウムは溶存しにくく溶存量が少ないため、本研究ではウラン-238、ウラン-234、ラジウム-226、ラドン-222を測定対象とした。

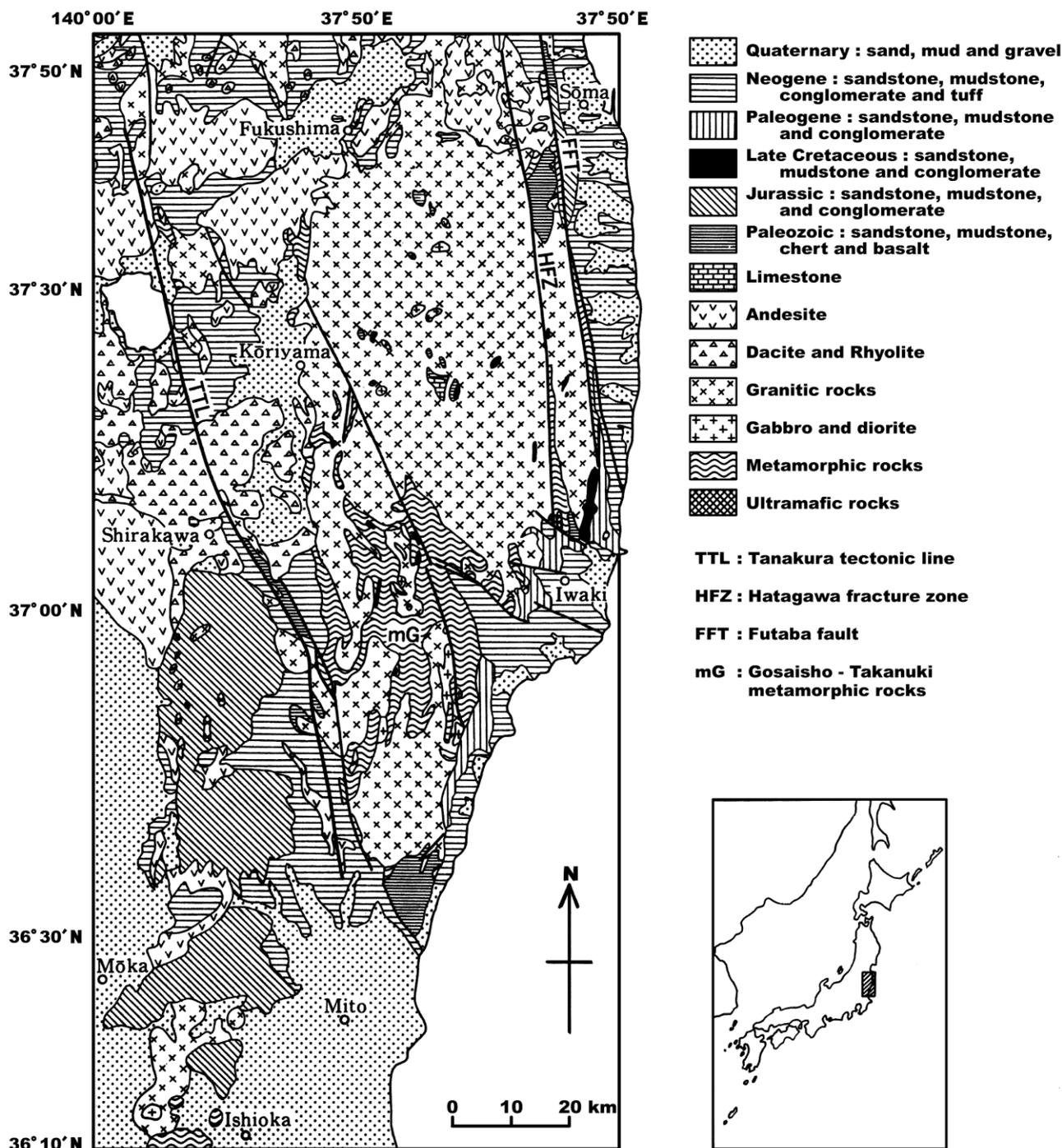
なお、本研究は地質調査所時代に行われた重点基礎研究「環境中のラドン・トロン地球化学的研究」の研究の一部を含んでいる。試料水の採取を快く許可して下さいた源泉の管理者ならびに関係者に厚く感謝する。

<sup>1</sup> 深部地質環境研究センター (Research Center for Deep Geological Environments, GSJ)

## 2. 調査地域の地質概略

調査の対象地域は金井ほか(1998)とほぼ同様で、阿武隈山地、常磐炭田地域、および脊梁山地の第四紀火山である吾妻・安達太良火山周辺である。本調査地域の地質に関しては金井ほか(1998)に詳しいので、ここではその概略を述べる。

阿武隈山地は白亜紀花崗閃緑岩を主とし、変成岩、中生界堆積岩などを含む。東側は双葉断層をはさんで第三紀以降の地層が、西側は棚倉構造線をはさんで八溝山地が接している。相馬地域には古生界の堆積岩類が、八基地域には古生界の変成岩・堆積岩類がそれぞれ分布する。常磐炭田地域はいわき周辺の阿武隈山地東縁に位置し、主として第三系堆積岩類が分布する。一方、吾妻・安達太良火山



第1図 調査地域の地質概念図(金井ほか(1998)を引用)

Fig.1 Outline of geology in surveyed area (cited from Kanai *et al.*(1998).

は、阿武隈帯中の火山フロント上に位置する第四紀の安山岩質火山である。これらをまとめた地質概念図を第1図に示した(金井ほか, 1998; 村田ほか, 1992)。

### 3. 試料および分析方法

試料は、金井ほか(1998)で水質を報告した試料のうち阿武隈山地の白亜紀花崗岩類・中生代変成岩類、常磐炭田地域の第三紀堆積岩類の分布地域、および吾妻・安達太良火山地域から採取されたものを用いた。試料の採取地点を第2図および前回報告した電気伝導度等の値とともに第1表に示した。

試料水の採取法としては、鉱泉・温泉水が源泉で採取できるものに関しては可能な限り源泉で採取した。浸みだした水を溜めているものについては、その溜池から採取した。ウラン分析は、現場で試料水をポリエチレン瓶に500ml採取し、塩酸(1+1)5mlを添加して持ち帰り、実験室でウランの分析を行った。試料水中のウランは、水酸化物共沈分離後、硫酸溶液として陰イオン交換カラムに流し、塩酸で洗浄してウランの分離精製を行った。蛍光法でウランを定量した後、アルファスペクトロメリーでU-234/U-238放射能比を測定した(Kanai, 1986; Kanai *et al.*, 1986)。

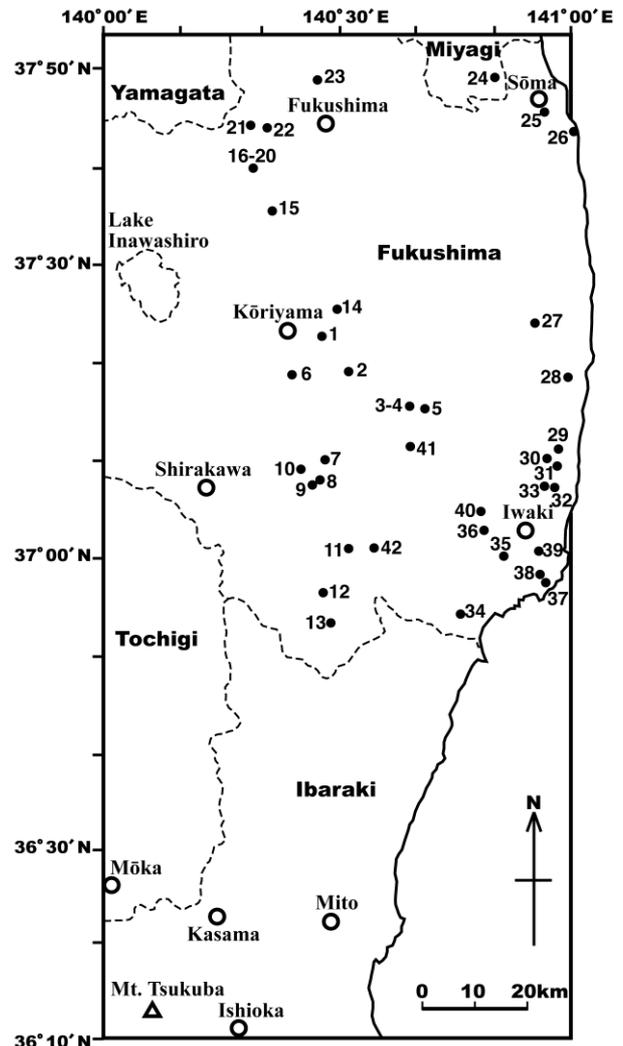
ラジウムは、ウランと同様に現場で試料水をポリエチレン瓶に1L採取し、塩酸(1+1)10mlを添加して実験室に持ち帰った。試料水に塩化バリウム溶液を加えた後、硫酸アンモニウム溶液を加えて硫酸バリウムの沈殿を作り、ラジウムを共沈させた。沈殿を分離後EDTAに溶解してキュリー瓶に封入し、1ヶ月静置して放射平衡となったラドンガラスラインで液体シンチレータに濃縮分離して、液体シンチレーションカウンターで測定した。ラジウム標準溶液から生長したラドンについても同様に操作して測定し、比較してラジウムを定量した。

ラドン分析は、現場で1Lガラス容器に試料水を取り、液体シンチレータを加えてよく振とうしてラドンを抽出し、液体シンチレータをバイアルに分離した(池田・阿部, 1977)。その分離時間を記録しておき、バイアルを実験室に持ち帰ってから液体シンチレーションカウンターで計測し、時間補正してラドンを定量した。

### 4. 結果と考察

試料水中のウラン、ラジウム、ラドン濃度分析結果をまとめて第2表に示した。また、第3表にはそれぞれのデータの最小、最大、平均値について、採取された地域の地質との関連でまとめて示した。

水質の場合と同様、ある地点における泉質は、鉱泉・温泉水の利用状況や採取日時によって大きく変動している可能性がある。今回のデータはその泉質を特定するものではなく、ある時期の一断面と考えた方がよい。また、試料を



第2図 試料採取地点  
Fig.2 Locations of samples.

源泉部分ではなくパイプでひかれた採取口でとった試料もあった。このため、一部気体状のラドンの損失もあったかもしれないので、泉質を特定するものではないことを断っておきたい。しかし、多数のデータを用いれば地球化学的な因子を抽出することができる。そこで、第2表のデータを使用して以下の検討を行った。

#### 4.1 試料水中のウラン濃度

鉱泉・温泉水等に含有されるウラン濃度は、検出限界(0.01ppb)から5.54ppbまでのかなり広い範囲にあり、全試料についての算術平均で0.29ppbであった。第3図にヒストグラムを示したが、そのほとんどが0.2ppb以下の濃度であり、かなり低濃度である。これまでに報告されている国内の温泉水中のウラン濃度は、0ppbから68ppbという報告値があるが(金井,1990)、本調査結果はその範囲にある。従来の報告値も低濃度と高濃度とに二極化した分布を示している。また、亀谷・松村(1983)は山陰地方の温泉水のウラン

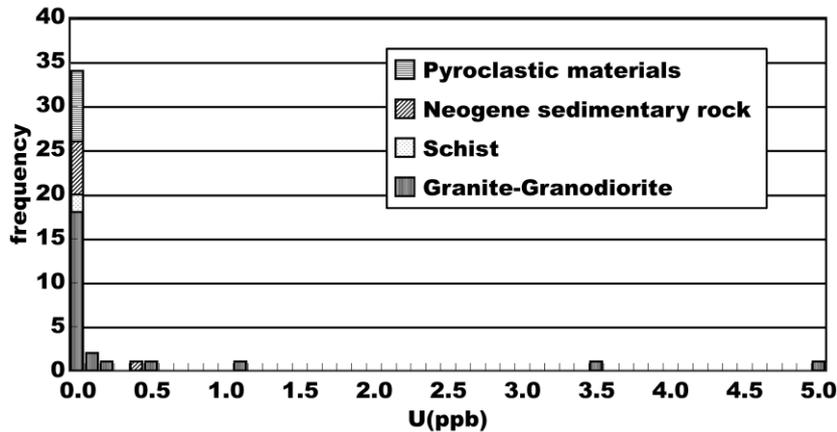
第1表 試料の一覧 Table 1 List of samples.

| Station Name No. | location                  | *1 condition | *2 Geology | *3 temperature (°C) | *3 Flowrate (l/m) | *3 type | *3 depth (m) | *4 measured T. (°C) | *5 Cond. (μS/cm) (v.s. N.H.E.) | *5 Eh (mV) | pH    | *5 DO (mgO/l) |
|------------------|---------------------------|--------------|------------|---------------------|-------------------|---------|--------------|---------------------|--------------------------------|------------|-------|---------------|
| 1                | 88110904 福島県田村郡三春町奇藤      |              | Gd         | 12                  | 16                | a       | 1            | 14.2                | 161.3                          | 447        | 6.33  |               |
| 2                | 88110905 福島県郡山市田村町糠塚下滝    | a            | G          | 17.5                | 21                | a       | 1.8          | 13.2                | 47.4                           | 356        | 6.55  |               |
| 3                | 88111006 福島県田村郡小野町谷津作     | pump         | Gd         | 25.2                | 18                | a       | 4.3          | 20.2                | 184.1                          | 244        | 9.76  |               |
| 4                | 88111007 福島県田村郡小野町谷津作     | a            | Gd         | 27.5                | 36                | a       | 2.45         | 25.9                | 229.0                          | -74        | 9.90  |               |
| 5                | 88111008 福島県田村郡小野町湯沢      |              | Gd         | 19                  | 20                | pump    | 8            | 18.0                | 144.0                          | 204        | 6.14  |               |
| 6                | 88111009 福島県郡山市田村町守山      |              | Gd         | 15                  | 15                | pump    | 1.3          | 18.0                | 175.6                          | -87        | 10.24 |               |
| 7                | 88111010 福島県石川郡石川町母畑      |              | Gd         |                     |                   |         |              | 13.0                | 77.1                           | 294        | 6.88  |               |
| 8                | 88111011 福島県石川郡石川町立ヶ岡     |              | Gd         |                     |                   |         |              | 11.1                | 34.0                           | 333        | 7.20  |               |
| 9                | 88111112 福島県石川郡石川町猫崎温泉    |              | Gd         |                     |                   |         |              | 13.1                | 147.5                          | 365        | 6.03  |               |
| 10               | 88111113 福島県石川郡石川町新屋敷成亀   | pump         | Gd         |                     |                   |         |              | 15.8                | 80.1                           | 298        | 8.00  |               |
| 11               | 88111114 福島県東白川郡鮫川村富田     | a            | Gd         | 15                  | 1.9               | a       | 0.4          | 17.9                | 188.7                          | 209        | 10.04 |               |
| 12               | 88111115 福島県東白川郡高町山形      |              | Gd         | 38                  | 35                | a       | 0.7          | 30.7                | 233.0                          | 201        | 9.82  |               |
| 13               | 88111116 福島県東白川郡高町湯岐      |              | G          | 15                  | 5.2               | a       | 1            | 14.0                | 195.8                          | 364        | 6.68  | 4.6           |
| 14               | 89102401 福島県田村郡三春町尼ヶ谷     |              | G          |                     |                   |         |              | 43.9                | 214.0                          | 682        | 2.68  | 7.1           |
| 15               | 89102402 福島県二本松市岳温泉とび穴大通り |              | V          |                     |                   |         |              | 20.3                | 41.4                           | 387        | 7.03  | 8.4           |
| 16               | 89102403 福島県福島市土湯温泉町川上    |              | V-t2       | 41                  | 35                | a       |              | 20.4                | 689.0                          | 381        | 7.08  | 2.8           |
| 17               | 89102404 福島県福島市土湯温泉町川上    |              | V-t2       | 38                  | 24                | pump    | 360          | 20.4                | 859.0                          | 384        | 7.28  | 6.5           |
| 18               | 89102405 福島県福島市土湯温泉町川上    |              | V-t2       |                     |                   |         |              | 20.3                | 981.0                          | 373        | 7.28  | 6.0           |
| 19               | 89102406 福島県福島市土湯温泉町川上    |              | V-t2       | 72                  | 7                 | a       |              | 20.4                | 966.0                          | 364        | 7.47  | 6.8           |
| 20               | 89102407 福島県福島市土湯温泉町川上    |              | V-t2       | 69                  | 13.3              | a       |              | 47.3                | 2220.                          | 80         | 2.94  | 0.0           |
| 21               | 89102508 福島県福島市町庭坂高湯      |              | V          |                     |                   |         |              | 12.6                | 73.2                           | 731        | 6.59  | 6.8           |
| 22               | 89102509 福島県福島市桜本字木通沢     | a            | V          |                     |                   |         |              | 20.3                | 1008.                          | 328        | 8.47  | 7.1           |
| 23               | 89102510 福島県福島市飯坂町十網町     |              | t3-d       |                     |                   |         |              | 15.0                | 135.3                          | 68         | 9.78  | 5.7           |
| 24               | 89102511 宮城県伊具郡丸森町大内青葉    | a            | t4         |                     |                   |         |              | 12.9                | 127.8                          | 193        | 7.67  | 7.3           |
| 25               | 89102512 福島県相馬市程田潜石       | a-p          | t4         |                     |                   |         |              | 16.8                | 161.0                          | 189        | 7.55  | 7.8           |
| 26               | 89102613 福島県相馬市蒲庭前迫       | a            | t4         | 12                  | 10                | a       | 1.8          | 24.8                | 207.0                          | 167        | 9.73  | 4.7           |
| 27               | 89102614 福島県双葉郡大熊町野上      | a            | Gd         | 25.5                | 18                | a       |              | 14.5                | 283.0                          | 149        | 7.56  | 2.4           |
| 28               | 89102615 福島県双葉郡富岡町上郡山前沢   | a-p          | Gd         | 11                  | 16                | a       |              | 18.6                | 780.0                          | 671        | 3.00  | 7.1           |
| 29               | 89102616 福島県双葉郡広野町折木亀ヶ崎   | a-p          | Gd         |                     |                   |         |              | 15.8                | 321.0                          | 188        | 10.06 | 3.8           |
| 30               | 89102617 福島県いわき市大久町大久下谷地  | pump         | Gd         |                     |                   |         |              | 15.7                | 201.0                          | 44         | 8.69  | 0.5           |
| 31               | 89102618 福島県いわき市大久町大久入間沢  | a-p          | Gd         | 17                  | 4                 | a       |              | 16.1                | 844.0                          | 624        | 4.14  | 5.0           |
| 32               | 89102719 福島県いわき市四倉町白岩     | a            | t3-t1      |                     |                   |         |              | 15.8                | 370.0                          | 277        | 9.97  | 4.5           |
| 33               | 89102720 福島県いわき市四倉町玉山     | a            | Gd         |                     |                   |         |              | 17.9                | 647.0                          | 107        | 7.91  | 0.8           |
| 34               | 89102721 福島県いわき市三沢町弓張     | pump         | S2         |                     |                   |         |              | 35.4                | 3480.                          | 312        | 7.62  | 4.6           |
| 35               | 89102722 福島県いわき市常磐湯本町三函   |              | Gd         |                     |                   |         |              | 16.1                | 322.0                          | 218        | 10.22 | 0.7           |
| 36               | 89102723 福島県いわき市内郷高野町白狐   | pump         | Gd         |                     |                   |         |              | 16.4                | 244.0                          | 240        | 7.03  | 6.4           |
| 37               | 89102824 福島県いわき市小名浜上神白地切  | a-p          | t3         |                     |                   |         |              | 14.2                | 1545.                          | -5         | 8.84  | 0.7           |
| 38               | 89102825 福島県いわき市小名浜上神白追分  | pump         | t3         | 14.8                | 40                | pump    | 3            | 15.6                | 316.0                          | 382        | 7.26  | 3.2           |
| 39               | 89102826 福島県いわき市平古野谷      | pump         | t2         |                     |                   |         |              | 16.5                | 187.2                          | 285        | 7.21  | 2.4           |
| 40               | 89102827 福島県いわき市好間町大利成沢   | pump         | Gd         |                     |                   |         |              | 18.2                | 179.1                          | 58         | 10.17 | 1.4           |
| 41               | 89102828 福島県いわき市三和町中三坂湯の本 |              | Gd         | 13                  | 0.6               | a       | 1.5          | 19.5                | 351.0                          | 232        | 10.17 | 1.5           |
| 42               | 89102829 福島県東白川郡古殿町松川入道   | pump         | S1         |                     |                   |         |              |                     |                                |            |       |               |

\*1:condition  
a:artesian flowing well  
a-p:artesian flowing-pool  
pump:pumping up

\*2 G:granite, Gd:granodiorite  
V:pyroclastic materials  
S1:Takenuki-schist, S2:Gozaisho-schist  
t1:Paleogene, t2-t4:Neogene, d:Diluvium(pleistocene)

\*3:cited from "Hot springs in Fukushima Prefecture (Fukushima Prefecture,1967)"  
\*4:underlined value is the measured temperature after cooling  
\*5 Cond:conductivity Eh:redox potential DO:dissolved oxygen



第3図  
ウラン濃度と岩質との関係

Fig.3  
Correlation between U concentration and rock types.

濃度を報告している。0.06-35 ppbの範囲で分布し平均は10.2ppb(n=10)であるが、その半数は1ppb以下の低濃度である。

これらに含まれるウランは地下において岩石から溶出したウランであり、従って、地下水等が接していた岩石に大きく依存すると推定される。前報(金井ほか, 1998)では、試料水を採取した地域の岩質とその試料水中のイオン溶存量との関係を検討したが、岩質との関係は明らかではなかった。ウラン濃度について採取地点の地質との関連でみると(第3表参照)、花崗岩質のところの湧水は算術平均で0.46ppb、第三紀の堆積層で0.08ppb、火山碎屑岩質のところでは0.02ppb程度となり、ウラン含有量の高い花崗岩質の地質の地域では比較的高いことが解ったが、全体的にはかなり低濃度である。一般的に地下深部は還元的环境下ではウランは溶解しにくい低濃度であったと考えられる。しかし、今回の調査では酸化還元電位は-87~731mV(v.s.N.H.E.)の範囲にあり、還元的环境下から酸化的な環境まで様々な状況下の試料であるが、低濃度であった。全試料の酸化還元電位とウラン濃度との関係を第4図に示したが、明確な相関は認められていない。より詳細

な検討には、源岩の状態と環境とをおさえてウラン濃度を調査する必要がある。

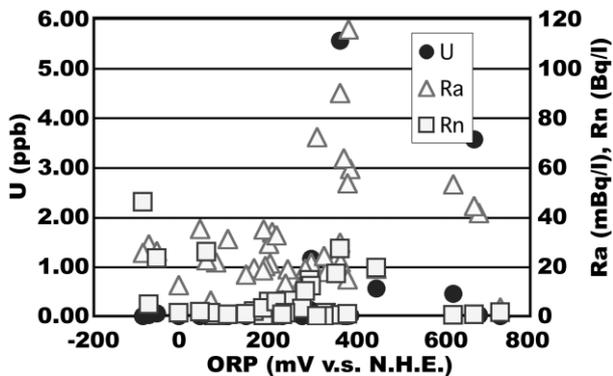
また、酸化的な環境と推定される河川水のウラン濃度に関して幾つか報告があり、亀谷ほか(1991)によって0.005-0.062ppb平均0.022ppb(n=27)、津村・山崎(1992)によって0.001-0.199ppb平均0.028ppb(n=69)という値が報告されている。

#### 4.2 試料水中のラジウム濃度

本調査域の鉱泉・温泉水等に含有されるラジウム濃度は、4-115 mBq/lの範囲であった。これらに含まれるラジウムの濃度は測定誤差が大きく、相対誤差は50%前後がほとんどで、中には200%、300%というものもある。このようにラジウムの場合には、一見濃度のばらつきは次に述べるラドンほど大きくないが、これはラジウムの検出限界に近いところであったためと考えられる。

ラジウムについては、放射能泉の調査などで古くから各地で濃度が調べられている。高濃度の方が関心事であったため、それらは高レベルの測定値がほとんどであり、海外ではソ連の油田湧出水で4000-5000 Bq/lという高濃度が、また日本では兵庫県の有馬新温泉での記録で14 Bq/lという報告がある(岩崎, 1968;1969)。通常では、数十mBq/l程度と推定され、本研究もその範囲内と考えられる。国内での調査では、Nakai(1940)が477カ所の鉱泉、15の油田・天然ガス田を調査した結果を報告している。

測定誤差は大きいものの、地質との関係でラジウム濃度をみると、第3表に示されるように火山碎屑岩で幾分高くなっている傾向が見られる。第5図はラジウムのほかにウラン、ラドンの濃度分布を岩質毎に分け、更に放射能泉として知られている山梨県の増富温泉(Kanai, 1989)、ウラン鉱山のある東濃鉱山の地下水データ(金井ほか, 1991)もあわせてヒストグラムとして示してある。岩石中のラジウム濃度は、酸性岩で $(1.37 \pm 0.17) \times 10^{-12}$  g/g、中性岩で $(0.51 \pm 0.05) \times 10^{-12}$  g/g、塩基性岩で $(0.38 \pm 0.03) \times 10^{-12}$  g/gという値(無機化学全書, 1953)がある。本研究結果によると、火山



第4図 温泉・湧水中のウランやラジウム、ラドン濃度と酸化還元電位との関係

Fig.4 Correlation between U, Ra and Rn concentrations and redox potential.

第2表 福島県における湧水・地表水のウラン,ラジウム,ラドン濃度と放射能比

Table 2 Concentrations of U, Ra and Rn and activity ratios in spring waters taken from Fukushima Prefecture.

| No. | geology | concentrations           |                            |                           | activity ratios                    |                                     |                                     |                                     |                                      |
|-----|---------|--------------------------|----------------------------|---------------------------|------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|--------------------------------------|
|     |         | <sup>238</sup> U<br>μg/l | <sup>226</sup> Ra<br>mBq/l | <sup>222</sup> Rn<br>Bq/l | <sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U | <sup>226</sup> Ra/ <sup>238</sup> U | <sup>226</sup> Ra/ <sup>234</sup> U | <sup>222</sup> Rn/ <sup>238</sup> U | <sup>222</sup> Rn/ <sup>226</sup> Ra |
| 1   | Gd      | 0.56                     | 19 ± 11                    | 19.5 ± 0.1                | 1.09±0.04                          | 2.7± 1.6                            | 2.5± 1.6                            | 2.8±0.1                             | 1.0 ± 0.6                            |
| 2   | G       | 0.02                     | 23 ± 11                    | 17.2 ± 0.1                | -                                  | 93. ± 91.                           | -                                   | 6.9±3.5                             | 7.4 ± 3.5                            |
| 3   | Gd      | 0.28                     | 19 ± 11                    | 6.23± 0.03                | 1.04±0.08                          | 5.4± 3.3                            | 5.2± 3.6                            | 1.8±0.1                             | 3.3 ± 2.0                            |
| 4   | Gd      | 0.02                     | 29 ± 11                    | 4.80± 0.03                | -                                  | 116. ±101.                          | -                                   | 1.9±1.0                             | 1.7 ± 0.6                            |
| 5   | Gd      | 0.05                     | 26 ± 10                    | 23.2 ± 0.1                | 1.02±0.14                          | 42. ± 25.                           | 41. ± 30.                           | 3.7±0.8                             | 8.9 ± 3.6                            |
| 6   | G       | <0.01                    | 21 ± 11                    | 0.19±0.01                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 9.0 ± 5.0                            |
| 7   | Gd      | <0.01                    | 25 ± 12                    | 45.8 ± 0.1                | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 1.8 ± 0.8                            |
| 8   | Gd      | 0.13                     | 15 ± 10                    | 14.5 ± 0.05               | 1.19±0.08                          | 9.1± 7.0                            | 7.6± 6.4                            | 9.0±0.7                             | 9.9 ± 6.9                            |
| 9   | Gd      | 0.02                     | 18 ± 10                    | 1.19±0.01                 | -                                  | 71. ± 76.                           | -                                   | 4.8±2.4                             | 6.7 ± 3.9                            |
| 10  | Gd      | 0.01                     | 22 ± 10                    | 0.51±0.01                 | -                                  | 173. ±255.                          | -                                   | 4.1±4.2                             | 2.4 ± 1.2                            |
| 11  | Gd      | 1.15                     | 21 ± 10                    | 12.1 ± 0.04               | 1.14±0.04                          | 1.5± 0.7                            | 1.3± 0.7                            | 8.5±0.1                             | 5.7 ± 2.7                            |
| 12  | Gd      | <0.01                    | 34 ± 11                    | 3.58±0.02                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 1.1 ± 0.3                            |
| 13  | G       | <0.01                    | 29 ± 10                    | 5.81±0.03                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 2.0 ± 0.7                            |
| 14  | G       | 5.54                     | 30 ± 10                    | 27.2 ± 0.1                | 1.11±0.03                          | 0.4± 0.1                            | 0.4± 0.1                            | 3.9±0.0                             | 9.2 ± 3.2                            |
| 15  | V       | 0.02                     | 41 ± 11                    | -                         | 1.34±0.22                          | 167. ±128.                          | 124. ±116.                          | -                                   | -                                    |
| 16  | V-t2    | 0.01                     | 59 ± 20                    | -                         | 1.18±0.40                          | 476. ±640.                          | 404. ±680.                          | -                                   | -                                    |
| 17  | V-t2    | <0.01                    | 53 ± 21                    | -                         | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | -                                    |
| 18  | V-t2    | 0.04                     | 115 ± 45                   | -                         | 1.37±0.51                          | 232. ±148.                          | 169. ±171.                          | -                                   | -                                    |
| 19  | V-t2    | <0.01                    | 63 ± 21                    | -                         | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | -                                    |
| 20  | V-t2    | 0.02                     | 90 ± 22                    | -                         | 1.21±0.18                          | 361. ±268.                          | 298. ±266.                          | -                                   | -                                    |
| 21  | V       | 0.05                     | 22 ± 10                    | 0.12±0.01                 | 2.24±0.18                          | 35. ± 23.                           | 16. ± 11.                           | 1.9±0.5                             | 5.6 ± 3.0                            |
| 22  | V       | <0.01                    | 4 ± 11                     | 1.60±0.02                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 4.6 ±14.7                            |
| 23  | t3-d    | <0.01                    | 24 ± 11                    | 0.00±0.01                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | -                                    |
| 24  | Gd      | <0.01                    | 6 ± 12                     | 1.20±0.02                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 2.0 ± 3.9                            |
| 25  | t4      | 0.01                     | 20 ± 11                    | 0.06±0.01                 | 1.00±0.15                          | 161. ±253.                          | 161. ±277.                          | 4.8±5.6                             | 3.0 ± 2.2                            |
| 26  | t4      | 0.05                     | 35 ± 12                    | 0.18±0.01                 | 1.20±0.20                          | 56. ± 30.                           | 47. ± 33.                           | 2.9±0.7                             | 5.2 ± 2.0                            |
| 27  | Gd      | 0.11                     | 19 ± 11                    | 1.84±0.02                 | 1.25±0.12                          | 14. ± 10.                           | 11. ± 9.                            | 1.3±0.1                             | 9.6 ± 5.7                            |
| 28  | Gd      | <0.01                    | 17 ± 13                    | 0.79±0.01                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 4.8 ± 3.7                            |
| 29  | Gd      | 3.56                     | 44 ± 12                    | 0.60±0.01                 | 1.08±0.03                          | 1.0± 0.3                            | 0.9± 0.3                            | 1.4±0.0                             | 1.4 ± 0.4                            |
| 30  | Gd      | 0.01                     | 18 ± 12                    | 3.14±0.02                 | 5.53±2.12                          | 148. ±241.                          | 27. ± 54.                           | 2.5±2.5                             | 1.7 ± 1.1                            |
| 31  | Gd      | <0.01                    | 35 ± 12                    | 1.74±0.02                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 5.0 ± 1.7                            |
| 32  | t3-t1   | 0.45                     | 53 ± 12                    | 0.50±0.01                 | 1.44±0.09                          | 9.5± 2.4                            | 6.6± 2.1                            | 8.9±0.4                             | 9.5 ± 2.4                            |
| 33  | Gd      | <0.01                    | 14 ± 11                    | 3.07±0.02                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 2.1 ± 1.6                            |
| 34  | S2      | <0.01                    | 31 ± 11                    | 0.62±0.01                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 2.0 ± 0.8                            |
| 35  | Gd      | <0.01                    | 72 ± 12                    | 0.05±0.01                 | 1.25±0.29                          | -                                   | -                                   | -                                   | 0.7 ± 0.3                            |
| 36  | Gd      | 0.01                     | 33 ± 12                    | 5.84±0.03                 | 6.28±0.89                          | 261. ±355.                          | 42. ± 62.                           | 4.7±4.7                             | 1.8 ± 0.7                            |
| 37  | t3      | 0.04                     | 13 ± 11                    | 1.27±0.01                 | 1.40±0.20                          | 26. ± 29.                           | 19. ± 23.                           | 2.6±0.7                             | 9.8 ± 8.5                            |
| 38  | t3      | <0.01                    | 12 ± 11                    | 1.24±0.01                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 1.0 ± 0.9                            |
| 39  | t2      | <0.01                    | 15 ± 11                    | 0.88±0.01                 | 1.00±0.38                          | -                                   | -                                   | -                                   | 5.9 ± 4.6                            |
| 40  | Gd      | 0.04                     | 19 ± 11                    | 9.94±0.04                 | -                                  | 38. ± 32.                           | -                                   | 2.0±0.5                             | 5.3 ± 3.1                            |
| 41  | Gd      | <0.01                    | 23 ± 12                    | 25.8 ± 0.1                | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 1.1 ± 0.6                            |
| 42  | S1      | <0.01                    | 6 ± 11                     | 0.73±0.01                 | -                                  | -                                   | -                                   | -                                   | 1.2 ± 2.1                            |

± : errors indicate the statistic counting errors

- :notdetermined

第3表 ウラン, ラジウム, ラドン濃度と放射能比の範囲と平均

Table 3 Ranges and averages of concentrations of U, Ra and Rn, and activity ratios in spring waters.

|   | U               | Ra    | Rn   | Activity Ratio                  |                                  |                                  |                                   |
|---|-----------------|-------|------|---------------------------------|----------------------------------|----------------------------------|-----------------------------------|
|   | $\mu\text{g/l}$ | mBq/l | Bq/l | $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ | $^{226}\text{Ra}/^{238}\text{U}$ | $^{222}\text{Rn}/^{238}\text{U}$ | $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ |
| (1) Granite-granodiorite (n=25)   |                 |       |      |                                 |                                  |                                  |                                   |
| min.  | <0.01           | 6     | 0.1  | 1.02                            | 0.4                              | 14                               | 0.7                               |
| max.  | 5.54            | 72    | 45.8 | 1.19                            | 261                              | $69.1 \times 10^3$               | $1.80 \times 10^3$                |
| AVE   | 0.46            | 25    | 9.4  | 1.10                            | 65                               | $16.2 \times 10^3$               | 419                               |
| STD   | 1.29            | 13    | 11.4 | 0.06                            | 79                               | $20.7 \times 10^3$               | 471                               |
| (2) Schist (n=2)  |                 |       |      |                                 |                                  |                                  |                                   |
| min.  | <0.01           | 6     | 0.6  | -                               | -                                | -                                | 20                                |
| max.  | <0.01           | 31    | 0.7  | -                               | -                                | -                                | 116                               |
| AVE   | <0.01           | 19    | 0.7  | -                               | -                                | -                                | 68                                |
| STD   | -               | 17    | 0.1  | -                               | -                                | -                                | 68                                |
| (3) Neogene sedimentary rocks (n=7)                                       |                 |       |      |                                 |                                  |                                  |                                   |
| min.  | 0.00            | 12    | 0.0  | 1.44                            | 9.5                              | 89                               | 0                                 |
| max.  | 0.45            | 53    | 1.3  | 1.44                            | 161                              | $2.55 \times 10^3$               | 100                               |
| AVE   | 0.08            | 25    | 0.6  | 1.44                            | 63                               | 854                              | 39                                |
| STD   | 0.17            | 15    | 0.5  | -                               | 68                               | $1.14 \times 10^3$               | 45                                |
| (4) Pyroclastic materials (n=8)   |                 |       |      |                                 |                                  |                                  |                                   |
| min.  | <0.01           | 4     | 0.1  | 1.18                            | 35                               | 193                              | 5.6                               |
| max.  | 0.05            | 115   | 1.6  | 2.24                            | 476                              | 193                              | 457                               |
| AVE   | 0.02            | 56    | 0.9  | 1.47                            | 254                              | 193                              | 231                               |
| STD   | 0.02            | 36    | 1.0  | 0.44                            | 171                              | -                                | 319                               |
| min.: minimum    max.: maximum    AVE: average    STD: standard deviation |                 |       |      |                                 |                                  |                                  |                                   |

砕屑岩地域の温泉水の方が花崗岩地域の温泉水よりも高いという結果となっているが, 詳細な検討をするためには実測データの数が少ないので, もう少しデータ数を増やす必要がある。また, 水中のラジウム濃度は, 他の水質組成や流路にある物質(例えば鉄やマンガンの沈殿物)等によって大きく規制されるので, それらについても検討する必要がある。

### 4.3 試料水中のラドン濃度

本研究において測定されたラドン濃度は, 0-46 Bq/lの範囲で, 平均では6.8Bq/lの濃度である。ラドンについても, 放射能泉の調査などで古くから各地で濃度が調べられており(例えば, 大島ほか, 1954; 下方・石原, 1961; 堀内ほか, 1979; 石井ほか, 1984), それらは高レベルの測定値が多い。これまでに報告されたラドン濃度に関しては, かなり大きな分布の幅がある。国内でも山梨県増富温泉の $1.2 \times 10^5$  Bq/lという高濃度が報告されている(御船, 1984)。それはいろいろな地質環境や温泉の形態などにもよっていると考えられる。

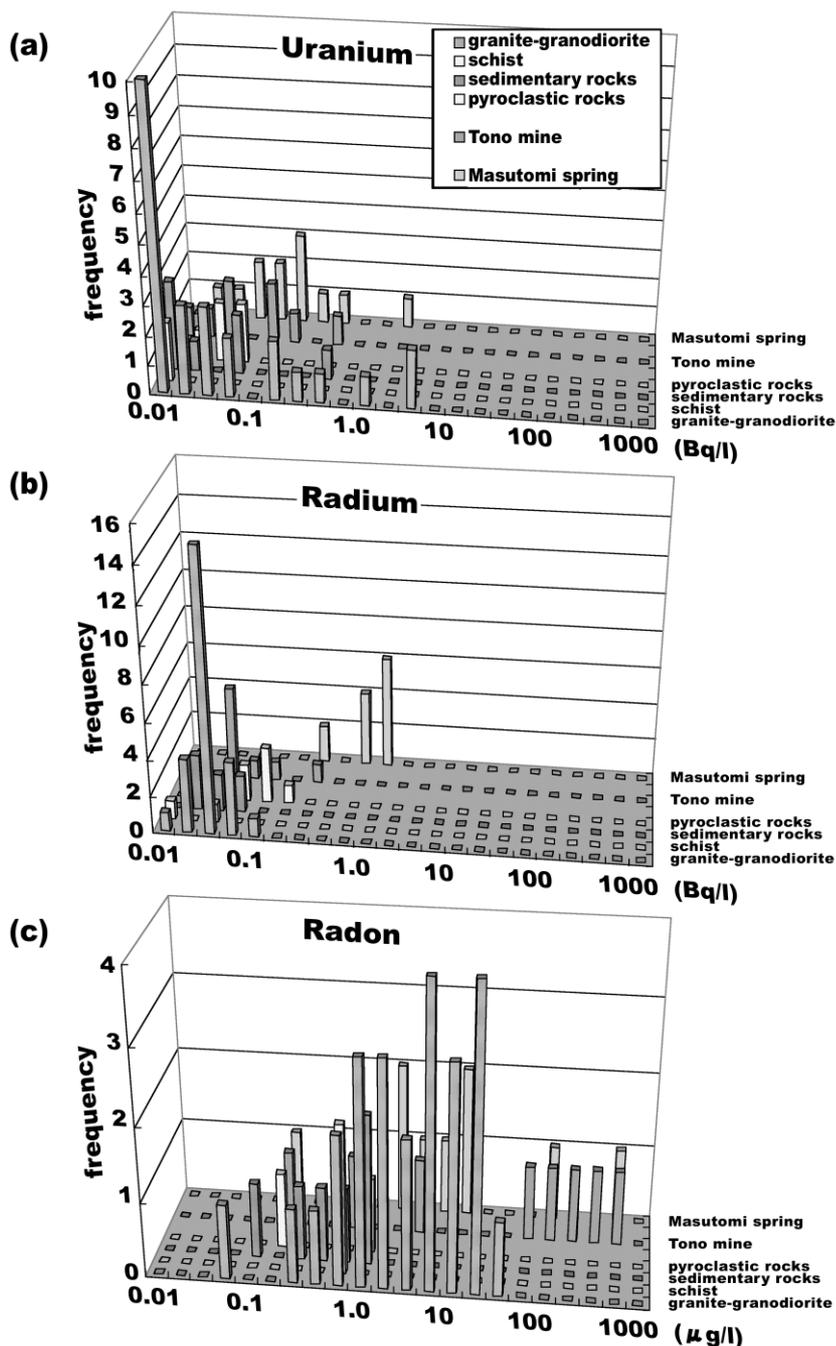
鉱泉・温泉水等に含有されるラドン濃度と, 関連する地質との関係を第3表並びに第5図に示した。これらに含まれるラドンは, 地質が花崗岩に関連する地域において他の地質の地域よりも1桁以上高い濃度を示している。すなわち, ラドンの起源となるウランやラジウム濃度がそのまま地下水や温泉水・湧水に反映されていると考えられる。

### 4.4 ウラン・ラジウム・ラドンの放射能比

ウランには比較的長半減期の核種としてU-238, U-234が存在している。U-234はウラン系列の親核種であるU-238からTh-234, Pa-234を経て生じる核種で, これら中間の核種の半減期はU-238とU-234に比べて遙かに短いために, U-238との関係が重要となる。

これら両者の放射能比U-234/U-238を第2表ならびに第6図(a)に示した。何れも1よりも大きな値となった。U-238とU-234はウランの同位体で化学的には同じ挙動をすると考えられるが, 溶解に関してはU-234の方が溶けやすい。それはU-234の一つ前の親核種であるTh-234は, U-238が $\alpha$ 壊変でTh-234となるときに $\alpha$ 反跳によって結晶格子から飛び出して溶解しやすい状態にあると考えられているからである(Kigoshi, 1971)。従って, U-234/U-238放射能比が1よりも大きくなっているのは, こうした $\alpha$ 反跳の効果といえる。

U-234/U-238放射能比は, ウラン濃度が低濃度になるに従い大きくなる傾向が見られる。これは増富温泉の湧水でも見られた傾向で, ウラン濃度が小さくなると $\alpha$ 反跳の効果が相対的に大きくなるためとして説明される(Kanai, 1989)。U-234からはTh-230を経てRa-226となる。Ra-226/U-234放射能比も, 同じく第2表ならびに第6図(b)に示した。何れも2試料を除いてその放射能比は1よりもかなり大きかった。ラジウムはウランに比べて酸化還元環境の影響をあまり受けないので, 一般的にウランよりは溶液中に溶け出し易いといえる。例外的な2試料はNo.14とNo.29で, いずれもウラン



第5図  
岩質毎の(a)ウラン濃度, (b)ラジウム濃度, (c)ラドン濃度のヒストグラムと東濃鉱山, 増富温泉との比較

Fig.5  
Histograms of (a) U, (b) Ra and (c) Rn concentrations in relation to rock type and comparison with those of the Tono mine and Masutomi spring.

濃度が特に高い試料であった。No.29の試料はpHが低く、共に溶解反応が進んだため放射能比が1に近くなったと考えられる。No.14の試料は中性近くの泉質であるが、ラジウムよりもウランの方がより多く溶存しており、その理由についてはラジウムの親核種のTh-230が不溶性のためにラジウムが少ない可能性があるが、詳細は不明である。

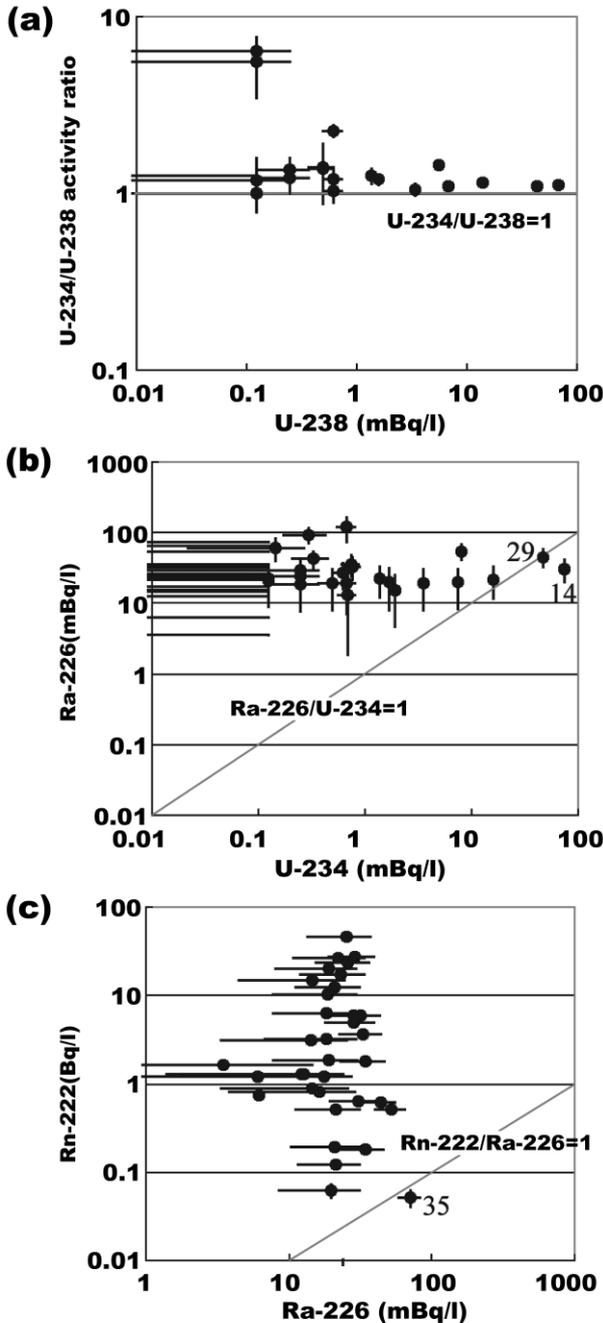
ラドン(Rn-222)はRa-226から生じる気体である。Rn-222/Ra-226放射能比を第2表ならびに第6図(c)に示した。ラドンがラジウムに比べてかなり高濃度で存在していることがわかる。例外の1試料は、湯本温泉からの試料であるが、温度

が高くタンクからオーバーフローする試料水であったため、ラドンが抜けていた可能性がある。ラドンは水に対する溶解度がかかなり高いため、親核種のラジウム以上に存在している。ラドンの半減期は3.8日程度でラジウムの1600年と比べると遙かに短いので、こういう状況は親核種のラジウムの除去過程が働いているか、ラドンがよそから加わっている可能性が考えられる。地下水は移動しているのであるから、岩石のマイクロフラクチャーを通過している間に岩石中のラジウムから溶液中に放出されたラドンが短時間のうちに蓄積していったものと考えられる。

#### 4.5 試料水の化学組成との関係

地下水や湧水中の溶存成分は、岩石-水相互作用を通して溶解・沈着をしながら存在している。一つの成分は、ほかの成分との関連で存在しているとも言える。そこで、ウランやラジウム、ラドンと、ほかの化学成分や物性との関連を検討してみた。

ウランやラジウム、ラドン濃度と他の溶存イオン量との関係、例えば電気伝導度をパラメーターとして検討してみた

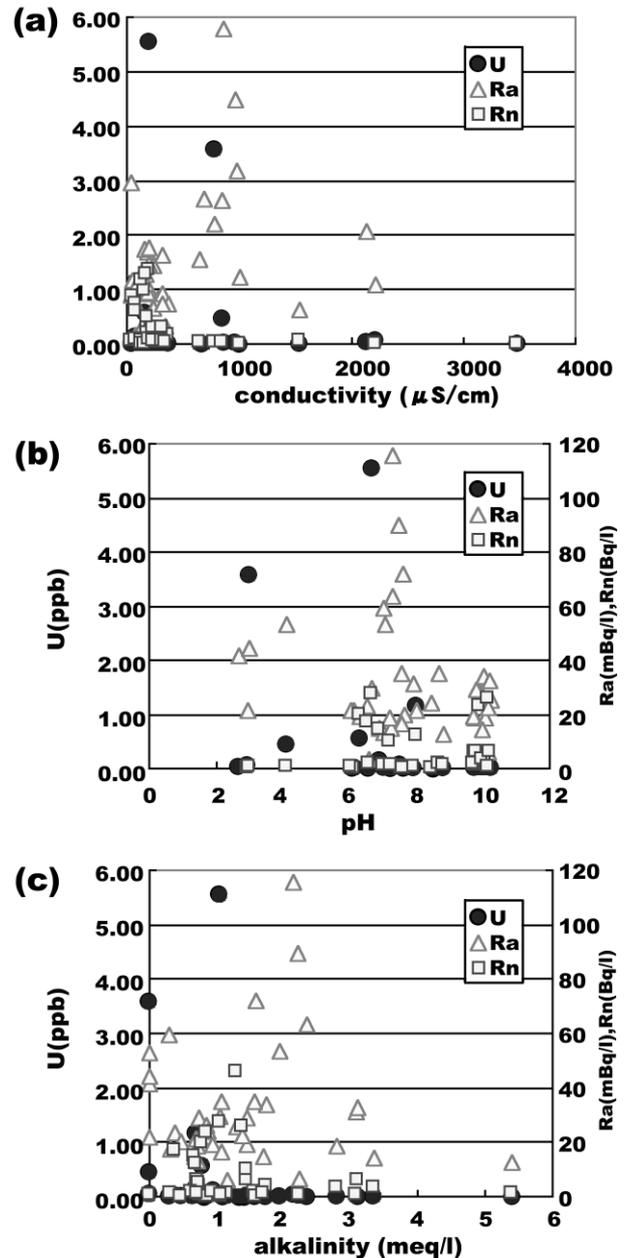


第6図 温泉・湧水中の(a) U-234/U-238放射能比, (b) Ra-226/U-234放射能比, (c) Rn-222/Ra-226放射能比

Fig.6 (a) U-234/U-238, (b) Ra-226/U-234 and (c) Rn-222/Ra-226 activity ratios in spring waters.

ころ、第7図(a)のごとく明確な関係はつかめなかった。また、pHやアルカリ度、酸化還元電位との関係を検討した(第7図(b),第7図(c), 第4図参照)が、明確な関係はつかめなかった。

そこで、特にデータの多い花崗岩地域での試料についての相関関係を調べ、第4表に示した。ウランは酸化還元電位、溶存酸素量に正の相関を、pHに対して負の相関を示した。この関係は、還元的な環境ではウランが溶けにくいこと、



第7図 温泉・湧水中のウランやラジウム、ラドン濃度と(a)電気伝導度, (b)pH, (c)アルカリ度との関係

Fig.7 Correlation between U, Ra and Rn concentrations and (a) conductivity, (b) pH and (c) alkalinity.

第4表 花崗岩に関連する地域の温泉・湧水中の放射性核種濃度・放射能比と水質との相関関係

Table 4 Correlation matrix among radioactive nuclides and water qualities in spring waters related to a granitic area.

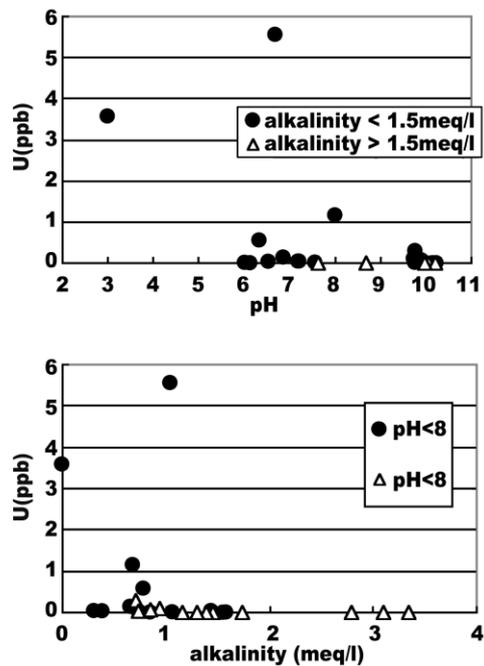
|                                      | Tw   | Cond. | Redox | pH    | DO    | U     | Ra    | Rn    | <sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U | <sup>226</sup> Ra/ <sup>238</sup> U | <sup>222</sup> Rn/ <sup>238</sup> U | <sup>222</sup> Rn/ <sup>226</sup> Ra | total ion | HCO <sub>3</sub> | F     | Cl    | SO <sub>4</sub> | Na    | K     | Ca    | Mg    | SiO <sub>2</sub> | PO <sub>4</sub> |
|--------------------------------------|------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------------------|--------------------------------------|-----------|------------------|-------|-------|-----------------|-------|-------|-------|-------|------------------|-----------------|
| Tw                                   | 1.00 | 0.61  | -0.27 | 0.30  | 0.24  | -0.15 | 0.61  | -0.09 | 0.25                               | -0.11                               | 0.04                                | -0.16                                | 0.59      | 0.04             | 0.71  | 0.62  | 0.55            | 0.62  | 0.41  | 0.35  | -0.19 | 0.09             | -0.26           |
| Cond.                                |      | 1.00  | 0.19  | -0.13 | 0.25  | 0.01  | 0.83  | -0.22 | 0.05                               | 0.03                                | -0.15                               | -0.25                                | 0.99      | 0.13             | 0.86  | 0.97  | 0.97            | 0.96  | 0.87  | 0.84  | 0.17  | 0.19             | -0.09           |
| Redox                                |      |       | 1.00  | -0.78 | 0.62  | 0.49  | 0.18  | -0.28 | -0.22                              | -0.26                               | -0.31                               | -0.23                                | 0.12      | -0.23            | -0.14 | 0.09  | 0.29            | 0.03  | 0.41  | 0.24  | 0.36  | 0.18             | 0.31            |
| pH                                   |      |       |       | 1.00  | -0.47 | -0.49 | -0.18 | 0.15  | 0.35                               | 0.35                                | 0.28                                | 0.12                                 | -0.04     | 0.58             | 0.21  | -0.06 | -0.28           | 0.10  | -0.49 | -0.33 | -0.64 | -0.44            | -0.29           |
| DO                                   |      |       |       |       | 1.00  | 0.46  | 0.09  | -0.23 | -0.64                              | -0.77                               | -0.87                               | -0.23                                | 0.16      | -0.40            | 0.29  | 0.17  | 0.34            | 0.10  | 0.35  | 0.12  | 0.10  | 0.33             | -0.40           |
| U                                    |      |       |       |       |       | 1.00  | 0.20  | 0.21  | -0.30                              | -0.41                               | -0.37                               | 0.13                                 | -0.06     | -0.26            | -0.20 | -0.08 | 0.11            | -0.15 | 0.24  | 0.12  | 0.38  | 0.24             | 0.00            |
| Ra                                   |      |       |       |       |       |       | 1.00  | -0.10 | -0.24                              | 0.13                                | 0.10                                | -0.20                                | 0.78      | 0.03             | 0.61  | 0.77  | 0.83            | 0.75  | 0.75  | 0.65  | 0.14  | 0.17             | -0.17           |
| Rn                                   |      |       |       |       |       |       |       | 1.00  | -0.40                              | -0.38                               | 0.21                                | 0.97                                 | -0.21     | -0.11            | -0.12 | -0.17 | -0.24           | -0.19 | -0.20 | -0.16 | -0.18 | -0.07            | 0.14            |
| <sup>234</sup> U/ <sup>238</sup> U   |      |       |       |       |       |       |       |       | 1.00                               | 0.59                                | 0.14                                | -0.42                                | 0.38      | 0.52             | 0.42  | -0.09 | -0.12           | 0.65  | -0.40 | -0.37 | -0.36 | -0.13            | -0.13           |
| <sup>226</sup> Ra/ <sup>238</sup> U  |      |       |       |       |       |       |       |       |                                    | 1.00                                | 0.54                                | -0.46                                | 0.43      | 0.66             | -0.09 | 0.00  | -0.24           | 0.61  | -0.47 | -0.28 | -0.31 | -0.33            | -0.23           |
| <sup>222</sup> Rn/ <sup>238</sup> U  |      |       |       |       |       |       |       |       |                                    |                                     | 1.00                                | 0.15                                 | 0.01      | 0.36             | -0.12 | -0.22 | -0.28           | 0.33  | -0.43 | -0.48 | -0.47 | -0.27            | -0.15           |
| <sup>222</sup> Rn/ <sup>226</sup> Ra |      |       |       |       |       |       |       |       |                                    |                                     |                                     | 1.00                                 | -0.24     | -0.13            | -0.14 | -0.19 | -0.27           | -0.21 | -0.20 | -0.18 | -0.20 | -0.11            | 0.23            |
| total ion                            |      |       |       |       |       |       |       |       |                                    |                                     |                                     |                                      | 1.00      | 0.23             | 0.87  | 0.98  | 0.94            | 0.98  | 0.83  | 0.85  | 0.15  | 0.14             | -0.08           |

Tw: water temperature, Cond: conductivity, Redox: reduction-oxidation potential, DO: dissolved oxygen  
|R| > 0.4 means 90% confidence and |R| > 0.51 means 98% confidence (n=25)

高pHでは水酸化物の沈殿を作り溶けにくいこと、等の理由と矛盾しない結果である。しかし、データが離散的であり大きく離れたデータに引きずられて見かけ上相関があるように見えるに過ぎない可能性もあり、間を埋めるデータを収集する必要がある。一方、著者らが以前筑波トンネル内での湧水調査をしたときには、ウラン濃度とアルカリ度との間には比較的良い相関が見られていた(金井ほか, 1993)。今回は、花崗岩地域に関連する温泉・湧水に絞ってみても、第8図のように明らかではなかった。試料が同一岩体からのものではないこと、アルカリ度があまり大きくないこと、高pHでは溶解度が小さくなることなどが複雑な関係をもたらしている可能性が高い。

前報(金井ほか, 1998)では、試料水を採取した地域の岩質とその試料水中のイオン溶存量との関係を検討したが、岩質との関係は明らかではなかった。そうして、溶存イオン量は岩石の種類によっても影響されるであろうが(例えば、風化・変質鉱物等の微細鉱物の量比等)、むしろ水温や岩石との接触時間に大きく影響を受けているものと考えられた。そこで温度との相関を検討してみた。試料水が高温の場合には測定のため冷却しているので、水温としては温泉の文献値を、文献の無い試料は採取時の実測値を温度として、ウラン、ラジウム、ラドン濃度との関係を第9図に示した。ウラン、ラドンは温度との関係が明らかでない。ラジウムについては弱いながらも傾向がみられ、溶解反応が高温ほど進みやすいことを示唆している。○で示した試料の温度は湧出時のものではなく冷却したものであるから、実際には高温側にプロットされるべきもので、そう考えるとより傾向が強くなる。特に花崗岩と関係する試料については、温度

との相関係数が0.6と高く、有意の相関となっている(第4表参照)。一方、ラドンは相関が見られなかったが、ラドンは気体であり気体の溶液への溶解度は一般に温度と逆相関なため複雑化しているものと思われる。



第8図 花崗岩地域に関連する温泉・湧水中のウラン濃度とpH、アルカリ度の関係

Fig.8 Correlation between U concentration and pH and alkalinity in the sample obtained in a granitic area.

#### 4.6 ラドンの蓄積モデル

環境中のラドンは、様々な観点から注目を浴びているウラン系列核種の一つである。特に地中から湧いてくるラドンやさらには温泉場での室内ラドンは屋外よりも高濃度になるために保健衛生上からも関心が高い(例えば、金井, 1991)。地下水・湧水中のラドンは親核種のラジウムよりもはるかに高い濃度で溶存していることが判明したが、これは地下水中に岩石からかなり供給されていることを示唆している。そこで、ラドン濃度に関する試算を行ってみる。

##### (1) 地上に湧出する地下水

水と気相との間で溶解平衡があるとき、その平衡比  $b$  は水、気相の容積をそれぞれ  $V_w, V_a$ , 各相のラドン量をそれぞれ  $M_w, M_a$  とすると、 $b = (M_w/V_w)/(M_a/V_a)$  なる関係があり、 $b$  として  $0.306(15^\circ\text{C}), 0.263(20^\circ\text{C})$  と与えられている(環境庁自然保護局, 1978; 化学便覧, 1975)。もし、気相が開放系の大気であるならば  $V_a \gg V_w$  であるため、湧き出たラドンはすべて大気に放出されることとなる。もし、浴室のように密閉された室内に湧き出した場合には、平衡状態となり空気中濃度は水中の3-4倍の濃度にまでなることになる。

##### (2) 岩石から溶け出るラドン

仮に地下水が半径  $r$  の円柱状の流路を流速  $v$  で通って上ってきたとする(第10図参照)。流路の壁面のラジウムから生成したラドンの一部 ( $R_a$  の面密度  $\alpha$ , 溶け出る割合  $\beta$ ) が付加したため、ある地点  $x$  と  $x+dx$  の間の微小部分でラドン濃度が  $C(x)$ ,  $C(x+dx)$  に変化したとすると(地下水中のラジウムから生じるラドンは少量のためここでは考えないことにする)、定常状態では

$$\pi r^2 \cdot dx \cdot \{C(x+dx) - C(x)\} = -\lambda_{Rn} \cdot C(x) \cdot \pi r^2 \cdot dx \cdot dt + \lambda_{Ra} \cdot 2\pi r \cdot dx \cdot \alpha \cdot \beta \cdot dt \quad (1) \text{式}$$

$dt = 1/v \cdot dx$  であるから(1)式は、

$$dC(x)/dx = -\lambda_{Rn}/v \cdot C(x) + \lambda_{Ra}/v \cdot (2/r) \cdot \alpha \cdot \beta \quad (2) \text{式}$$

と書き換えられる。(2)式の微分方程式を  $C(0)=0$  の初期条件で解くと、

$$C(x) = (\lambda_{Ra}/\lambda_{Rn}) \cdot (2/r) \cdot \alpha \cdot \beta \cdot \{1 - \exp(-\lambda_{Rn}/v \cdot x)\} \quad (3) \text{式}$$

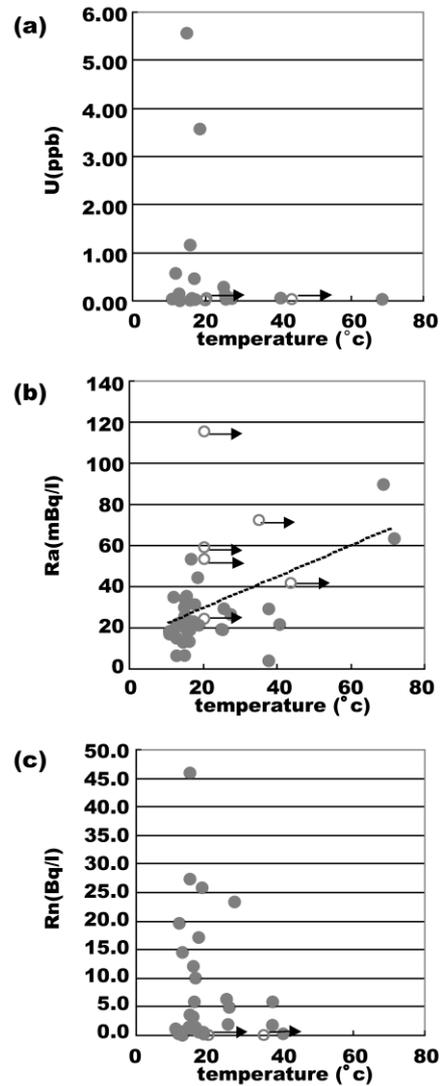
となる。

この(3)式から、十分に長いパスを通過して ( $x \rightarrow \infty$ ) 平衡状態になったラドン濃度は、

$$(\lambda_{Ra}/\lambda_{Rn}) \cdot (2/r) \cdot \alpha \cdot \beta = 6.5 \times 10^6 \cdot (2/r) \cdot \alpha \cdot \beta \quad (4) \text{式}$$

ラドン放射線の濃度(原子数に壊変定数をかけたものが放射能となる)に換算すると、

$$\lambda_{Ra} \cdot (2/r) \cdot \alpha \cdot \beta = 1.4 \times 10^{11} \cdot (2/r) \cdot \alpha \cdot \beta \quad (5) \text{式}$$

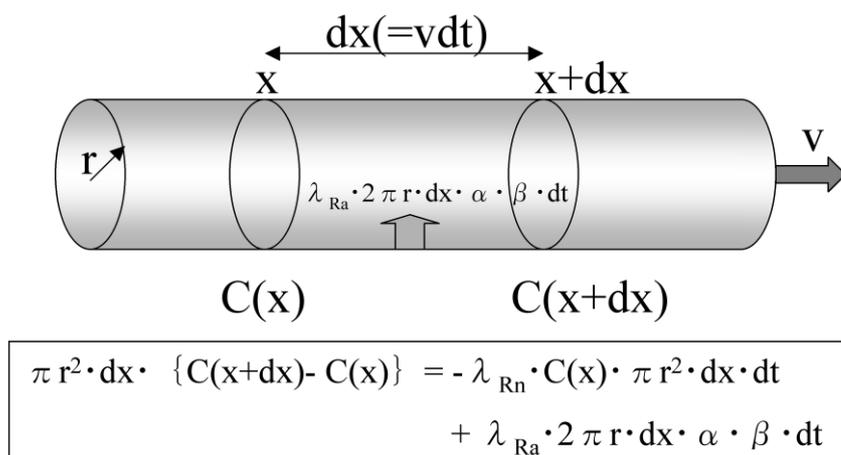


第9図 温泉・湧水の温度と(a)ウラン、(b)ラジウム、(c)ラドン濃度との関係。○は高温泉で冷却して測定したものを示し、実際の温度はより高温側にある。

Fig.9 Correlation between water temperature and U, Ra, Rn concentrations in spring waters. ○ indicates hot spring sample whose temperature was measured after cooling and assumed to be higher.

で与えられ、(3)-(5)式からパスの径が小さいほど高濃度となること、(3)式から流速  $v$  が小さいほど移動距離が短くても飽和濃度に早く達すること、などが定性的に理解される。

(4), (5)式では  $(2/r)$  が(長さ)<sup>-1</sup>のディメンション、 $\alpha$  が(長さ)<sup>-2</sup>のディメンションを有するので(4), (5)式は(長さ)<sup>-3</sup>のディメンションとなり濃度を示している。平均的な花崗岩でのラジウム濃度は  $10^{-12}$  g/g のオーダーである。岩石の密度を2.6として、壊変によって生じたラドンの反跳距離は約  $0.1 \mu\text{m}$  なので(Tanner, 1980), その範囲にあるラジウムを面密度  $\alpha$  と仮定すると、 $\alpha$  は約  $7 \times 10^4 \text{ atom/cm}^2$  と計算され



第10図  
過剰ラドン溶出のモデル図

Fig.10  
A model for excess radon.

$\alpha$  : surface density of Ra  
 $\beta$  : dissolution factor

る。今回の調査で最大濃度であった46Bq/l(=4.6×10<sup>-2</sup> Bq/cm<sup>3</sup>)のケースではβを1と仮定すると、パスの半径はr=4×10<sup>-5</sup> cm, 約0.4 μmとなる。実際にはもっと複雑であろうが、微細なマイクロフラクチャーをゆっくりと浸透してラドンを溶かし出しているものと推定される。

### 5. まとめ

環境水中のウラン系列核種の濃度を明らかにし、さらに系列核種間における詳細な挙動を明らかにするために、福島県下を中心とした地域の温泉・湧水等を採用して分析を行い、その中のウラン、ラジウム、ラドン濃度ならびにそれらの間の放射能比を明らかにした。

(1)花崗岩類, 片麻岩, 第三紀堆積岩, 火山碎屑岩類等のうち, ウランは花崗岩類の分布地域の温泉に相対的に濃度が高く存在し, 基盤岩における濃度との関係が示唆された。しかし, 絶対量についてはかなり低濃度で, その多くは0.2ppb以下であった。低濃度である原因としては, 地下での還元的环境が原因と推定された。

(2)ウラン-238, ウラン-234, ラジウム-226, ラドン-222等の間の放射能比は, いずれも概して娘核種の方が放射能が高く, U-234/U-238放射能比, Ra-226/U-234放射能比, Rn-222/Ra-226放射能比はいずれも1よりも大きい傾向にあった。

(3) ウラン, ラジウム, ラドン濃度と水質等との間に明らかな関係は見いだせなかったが, ラジウムに関しては水温と相関があるような傾向がみられた。花崗岩地域での試料についてみると, ウランは酸化還元電位, 溶存酸素量に正の相関を, pHに対して負の相関を示した。

(4)ラドンは溶存ラジウム量から推定されるよりもはるかに過剰にとけ込んでいることが判明した。この過剰ラドンの供給源としては地下の岩石中ラジウムと考えられ, 地層中の細かな水みちを通過する間に岩石表面のラジウムからラド

ンが供給されているものと想定された。モデル計算を行って, 定性的な確認がなされた。

今回, 福島県の温泉・湧水中のウラン系列核種を調査した結果を報告した。環境水中のウランについてのデータの報告例は意外と少ないため, 環境中のウラン濃度の実態把握にはデータ数をもっと増やす必要がある。また, ウラン濃度のみならず, ウランの溶解・沈着反応を支配する因子を解明するため水質分析データも必要となるが, ウラン濃度とペアになった水質分析例は少ないため, 非常に貴重なデータである。今後, 濃度と水質とがペアになったデータをより多く収集し, 詳細な検討を行っていく予定である。

### 文 献

福島県(1967) 福島県の温泉(改訂版). 福島県厚生部薬務課編, 80p.  
堀内公子・石井 忠・村上悠紀雄(1979) 伊豆半島温泉群のラドン, トロン, ラジウムの同時定量について. 温泉科学, **30**, 84-89.  
池田喜代治・阿部喜久男(1977) 地震予知に関連する地下水の化学的性質. 地質ニュース, **273**, 20-29.  
石井 忠・堀内公子・村上悠紀雄(1984) 高々温泉(>60℃)中のラドン, トロン, ラジウムの存在について. 温泉科学, **35**, 11-19.  
岩崎岩次(1968) 温泉中のラジウム(<sup>226</sup>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(<sup>226</sup>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.  
化学便覧(1975) 日本化学会編 化学便覧. 丸善, 東京.  
亀谷勝昭・松村年郎(1983) 山陰地方の温泉水中の

- $^{238}\text{U}$ ,  $^{234}\text{U}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  および  $^{228}\text{Ra}$  含有量について. *Radioisotopes*, **32**, 18-21.
- 亀谷勝昭・松村年郎・浅田誠(1991) ウラン分析法と河川水中の $^{238}\text{U}$  および $^{234}\text{U}$  濃度調査. *Radioisotopes*, **40**, 122-125.
- Kanai, Y. (1986) Determination of  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$  activity ratios in geological reference materials by alpha spectrometry. *Radioisotopes* **35**, 601-604.
- Kanai, Y. (1989) Behavior of uranium-238 and its daughter nuclides in the Masutomi spring, Yamanashi Prefecture, central Japan. *Geochem. J.*, **22**, 285-292.
- 金井 豊(1990) ウランと先端産業—マクロとミクロの世界—. *地質ニュース*, **426**, 34-41.
- 金井 豊(1991) ラドンと環境問題—地球化学について—. *地質ニュース*, **446**, 33-46.
- Kanai, Y., Imai, N. and Terashima, S. (1986) Determination of uranium in thirty-six geological reference samples by fluorimetry and extractive spectrophotometry. *Geostandards Newsletter*, **10**, 73-76.
- 金井 豊・坂巻幸雄・瀬尾俊弘(1991) 岐阜県東濃地域におけるウラン系列核種の挙動とナチュラルアナログとしての有用性. *地調月報*, **42**, 249-260.
- 金井 豊・坂巻幸雄・笹田正克(1993) 筑波トンネル掘削に伴う湧水中のウラン,  $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比および水質について. *Radioisotopes*, **42**, 143-150.
- 金井 豊・関 陽児・上岡 晃・金沢康夫・月村勝宏・濱崎聡志・中嶋輝允(1998) 水と地表物質との相互作用について—福島・茨城県における湧水・地表水の調査例—. *地調月報*, **49**, 425-438.
- 金井 豊・上岡 晃・金沢康夫・関 陽児・濱崎聡志・月村勝宏・中嶋輝允(1999) 茨城県中部域の源流部に  
おける浅層地下水・地表水の水質変動. *地調月報*, **50**, 591-610.
- 環境庁自然保護局(1978) 鉱泉分析法指針(改訂). *温泉工学会誌*, **13**, 1-75.
- Kigoshi, K. (1971) Alpha-recoil thorium-234: Dissolution into water and the uranium-234/uranium-238 disequilibrium in nature. *Science*, **173**, 47-48.
- 御船政明(1984) ギリシャの放射能泉について. *温泉工学会誌*, **19**, 1-6.
- 無機化学全書(1953) 柴田雄次 監修 XVII-1 ウラン. 丸善, 東京.
- 村田泰章・牧野雅彦・広島俊男・駒沢正夫・中塚 正(1992)阿武隈地域の重力異常について. *地調月報*, **43**, 291-334.
- Nakai, T. (1940) Radium content of mineral springs in Japan. *Bull. Chem. Soc. Japan*, **15**, 333-426.
- 大島良雄・山田尚春・御船政明(1954) 鳥取県下の温泉ラドン含有量に就て. *岡山大学温泉研究報告*, **14**, 1-13.
- 下方鉦蔵・石原 拓(1961) 本邦中部の温泉の放射能(第6報)長野県木曾地方および愛知県北部の温泉のトロンおよびラドン含量. *温泉科学*, **12**, 29-32.
- Tanner, A. B. (1980) Radon migration in the ground: A supplement review. *Proceedings of the Natural Radiation Environment III*, edited by Gesell, T. F. and Lowder, W. M., 5-56, National Technical Information Service, Springfield, Va.
- 津村明人・山崎慎一(1992) 二重収束型高分解能誘導結合プラズマ質量分析法による陸水の超微量希土類元素およびアクチノイドの直接定量. *Radioisotopes*, **41**, 185-192.

(受付:2002年4月9日; 受理:2002年5月23日)