

## 秋田県内の温泉水中の $^{222}\text{Rn}$ 含有量について (第一報)

武藤 倫子 村上 恭子 佐野 健

秋田県内における温泉水中の  $^{222}\text{Rn}$  含有量レベルとその変動幅を把握し、温泉利用による  $^{222}\text{Rn}$  被曝量算定の基礎資料とするとともに、一方で、放射能泉を探索することを目的に、県内の温泉郷と称されている地域で  $^{222}\text{Rn}$  含有量等の調査を1982年から1992年まで行った。今回は、八幡平地域の源泉の調査結果について示したが、各源泉間の  $^{222}\text{Rn}$  量の差が大きく、また、経時変化の大きい源泉が多かった。一方、温泉法では温泉水 1 ℓ 中に  $^{222}\text{Rn}$  が 3,000 pCi 以上含有している場合は「放射能泉」になる、と規定しているが、 $^{222}\text{Rn}$  量の比較的多い源泉があったものの、放射能泉はなかった。

キーワード：温泉，放射能，ラドン，ラジウム

### I はじめに

近年、これまで人工放射線ほど問題視されていなかった自然放射線が注目されるようになってきた。特に、我々が宇宙線等の自然放射線源から受ける被曝線量の約半分を占めると言われているラドン-222 (以後  $^{222}\text{Rn}$ ) およびその短寿命核種については、肺ガンのリスクになるとの報告もあり<sup>1)</sup>、欧米を中心に、濃度測定や被曝線量評価が盛んに行われている。

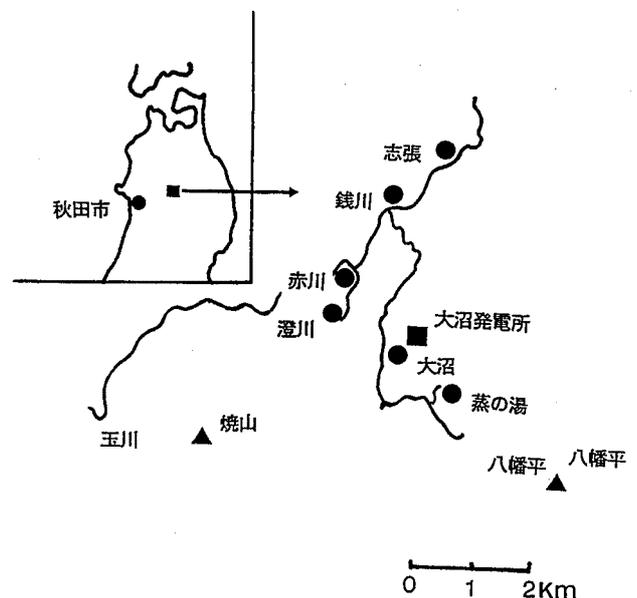
日本においては、1992年度から科学技術庁と地方衛生研究所等の連携のもとに、家屋内を対象にラドン濃度水準調査が実施されており、さらに1996年度から家屋外の調査も予定されている。

一方、温泉法では温泉水 1 ℓ 中に  $^{222}\text{Rn}$  が 2,000 pCi 以上含有している場合、その温泉は「鉱泉」となり、さらに 3,000 pCi 以上含有している場合は「放射能泉」という療養泉になる、と規定している。

当所では、1949年から1984年まで温泉の成分分析（一般依頼検査）を行っていたが、県内には  $^{222}\text{Rn}$  の親核種であるラジウム-226 (以後  $^{226}\text{Ra}$ ) を含む花崗岩がほとんど分布していないこともあって、温泉水中の  $^{222}\text{Rn}$  測定は行われていなかった。しかし、液体シンチレーションカウンターにより比較的低レベルの測定が可能となったことや<sup>2, 3, 4)</sup>、低濃度の  $^{222}\text{Rn}$  を含有する温泉であっても浴室の環境によってはかなりの濃度になるとの報告もあったことから<sup>5)</sup>、秋田県内の温泉水中の  $^{222}\text{Rn}$  含有量を把握し、放射能泉の有無を明らかにする目的で、1982年から1992年まで県内各地の源泉について  $^{222}\text{Rn}$  に関する測定調査を行った。

本報告では、その第一報として  $^{222}\text{Rn}$  と  $^{226}\text{Ra}$  の分析法の検討結果および八幡平地域の源泉中の両成分の含有量および  $^{222}\text{Rn}$  の変動に関する調査結果について報告する。

図1 八幡平地域の温泉



## II 調査方法

$^{222}\text{Rn}$  はガス体であるため、途中で抜気されている源泉、あるいは直接貯留タンクに入っているような源泉、さらに採水時にガス抜けするような源泉は測定の対象としなかった。ただし、地熱水については蒸気と比較するために調査対象とした。対象温泉の分布を図1に示した。また、調査は年3回(5月, 8月, 10月)行ったが、初年度だけ5月から10月まで毎月1回行った。 $^{226}\text{Ra}$  測定は初回のみ行った。

## III 測定方法

$^{222}\text{Rn}$  と  $^{226}\text{Ra}$  の分析方法を図2に示した。温泉分析法指針の「液体シンチレーションカウンター法(LSC法)」によったが、 $^{226}\text{Ra}$  の分析過程での  $\text{BaSO}_4$  の溶解が、指針によるEDTEでは難しかったことから、リン酸を用いた。

また、再現性テストに用いた試料は  $^{226}\text{Ra}$  標準液で調整した。

## IV 結果と考察

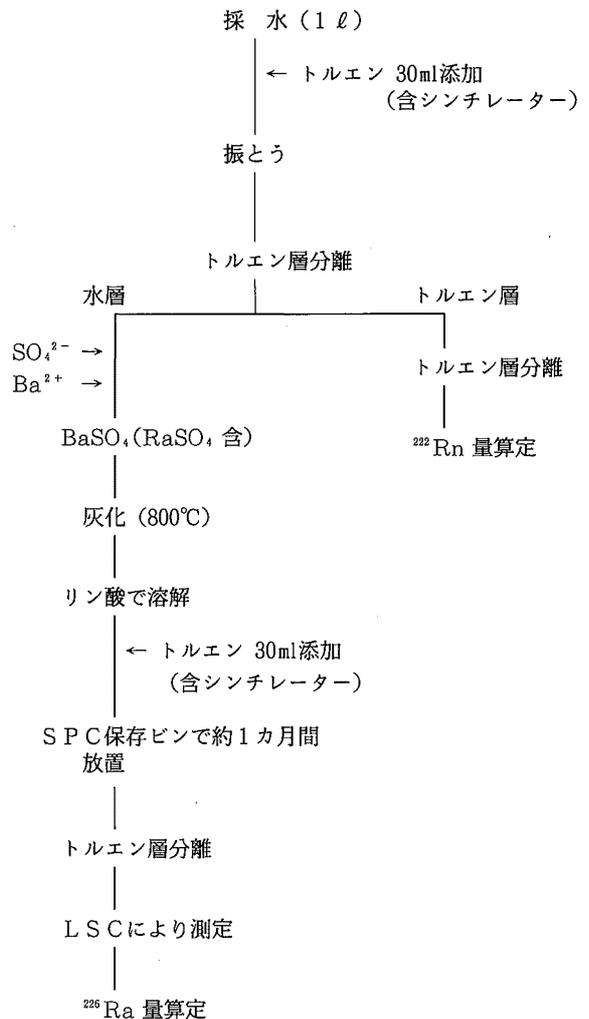
$^{222}\text{Rn}$  と  $^{226}\text{Ra}$  の再現性テストの結果を表1および表2に示した。18°Cでの10回測定によるラドンの変動係数(標準偏差/平均値×100)は6.5%, ラジウムの変動係数は12.6%であった。また、比較的温度の高い源泉での測定誤差を知る目的で、6月の調査時に赤川温泉(泉温: 43.0°C)と蒸の湯温泉(泉温: 75.0°C)について3回の繰り返し試験を行ったところ、両源泉での変動係数は各々13.0%, 10.0%であった(表3)。このことから、泉温による測定誤差は小さいと考えられた。

表4には各源泉の  $^{222}\text{Rn}$  と  $^{226}\text{Ra}$ 、および泉温や蒸発残留物量等の測定値を示した。 $^{226}\text{Ra}$  と  $^{222}\text{Rn}$  が平衡状態を維持していると思われる源泉はなかった。特に、焼山を挟んで八幡平地域の西に位置する玉川温泉では  $^{226}\text{Ra}$  濃度が比較的高いにもかかわらず、 $^{222}\text{Rn}$  の含有量はかなり低かった。高々温泉(>60°C) 21例についてまとめた報告によると、( $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ )は0.06から0.83の範囲にあり、平均は0.23、ただし、1例のみ6.42であった、としている<sup>6)</sup>。今回の結果では、銭川温泉の間欠泉が高温(82°C)にもかかわらず、( $^{222}\text{Rn}/^{226}\text{Ra}$ )で高い値(40.1)を示した。また、地熱発電のために八幡平地域にボーリングされた井戸(地熱井)はおおよそ1,000mの深度であるが、そこから湧出してきた熱水中の  $^{222}\text{Rn}$  含有量は<0.5 pCi/ℓと低い値であった。また、地熱井から熱水と同時に湧出する蒸気の  $^{222}\text{Rn}$  量はおよそ150 pCi/ℓであった。

表5には1982年から1991年までの各源泉の  $^{222}\text{Rn}$  含有量の変化を平均値および標準偏差等で示した。 $^{222}\text{Rn}$  は

ガス体であることから、各源泉ともその含有量の変動幅は大きいと考えられるが、特に、蒸の湯や澄川、大沼等のように、地下から上昇してきた火山ガスが地表水に混入して出来た源泉ではその変化が大きかった。 $^{222}\text{Rn}$  量の最も高かったのは大沼温泉の684.5 pCi/ℓ(1985年10月)、最も低かったのは銭川温泉(川原の湯)の1.2 pCi/ℓ(1983年9月)であり、変動幅の最も大きかったのは澄川温泉(酸の湯)で変動係数は114%であった。

図2  $^{222}\text{Rn}$ ,  $^{226}\text{Ra}$  の分析操作



※ LSC: 液体シンチレーションカウンター

次に、同一温泉敷地内にある源泉の  $^{222}\text{Rn}$  量の変化を図3, 4に示した。( )内は変動係数である。図で明らかのように、銭川温泉の2源泉では、測定値が一部交錯していたものの、泉温の低い「岩の湯」が「中風呂の湯」より2倍近く高い値で推移していた。岩の湯と中風呂の湯間は約10mである。また、赤川温泉には酸性の硫

化水素泉と1980年にボーリングによって湧出したほぼ中性の単純温泉（深度≒200m）があるが、2源泉の泉温を比較するとボーリング井のほうが約13℃高いが、<sup>222</sup>Rn量もボーリング井のほうが高く（≒2.5倍）、銭川温泉の場合と異なっていた。赤川温泉の2源泉間の距離もおよそ10mである。これらのことから、<sup>222</sup>Rn含有量と泉温は相関がないものと推察された。さらに、八幡平地域では一部の源泉で泉温の低下や湧出量の減少、あるいは含有成分の減少等が見られた。銭川温泉の岩の湯においても表6に示したようにCL<sup>-</sup>イオン等の内容成分が大きく変動していたが、<sup>222</sup>Rn量の変動とは相関していなかった。

表1 ラドン水を用いた再現性テスト結果

|      | <sup>222</sup> Rn量 (pCi/ℓ) |
|------|----------------------------|
| 1    | 133.0 ± 4.0                |
| 2    | 135.1 ± 2.4                |
| 3    | 135.2 ± 3.4                |
| 4    | 120.7 ± 3.5                |
| 5    | 128.7 ± 4.4                |
| 6    | 135.4 ± 2.1                |
| 7    | 128.4 ± 2.9                |
| 8    | 119.1 ± 3.0                |
| 9    | 125.0 ± 3.0                |
| 10   | 110.6 ± 3.4                |
| 平均   | 127.1 ± 8.3 (S.D)          |
| 変動係数 | 6.5%                       |

表2 リン酸処理による<sup>226</sup>Ra (22.0 pCi/ℓ)の再現性テスト結果

|      | <sup>226</sup> Ra量 (pCi/ℓ) |
|------|----------------------------|
| 1    | 18.9 ± 0.9                 |
| 2    | 18.9 ± 1.0                 |
| 3    | 18.8 ± 1.2                 |
| 4    | 19.1 ± 0.7                 |
| 5    | 16.3 ± 1.1                 |
| 6    | 19.3 ± 0.8                 |
| 7    | 16.7 ± 0.6                 |
| 8    | 23.0 ± 1.2                 |
| 9    | 18.0 ± 1.1                 |
| 10   | 14.5 ± 0.8                 |
| 平均   | 18.3 ± 2.3 (S.D)           |
| 変動係数 | 12.6%                      |

表3 二源泉における<sup>222</sup>Rnの変動係数

|                            | 赤川          | 蒸の湯          |
|----------------------------|-------------|--------------|
| 温度 (°C)                    | 43.0        | 75.0         |
| <sup>222</sup> Rn量 (pCi/ℓ) | 90.8 ± 14.6 | 228.8 ± 27.9 |
| 変動係数 (%)                   | 16.0        | 12.2         |

測定回数：3回  
1983. 6. 19 (雨)

## V まとめ

秋田県八幡平地域の各源泉について、<sup>222</sup>Rnと<sup>226</sup>Raの含有量およびその変動について調査した。その結果、次のことが分かった。

1. <sup>222</sup>Rn含有量の最も高かったのは大沼温泉の684.5 pCi/ℓ (1985年10月)、最も低かったのは銭川温泉

(川原の湯)の1.2 pCi/ℓ (1983年9月)であった。

2. 最も変動の大きかったのは澄川温泉(酸の湯)で、変動係数は114%であった。

3. 泉温やCL<sup>-</sup>イオン、SO<sub>4</sub><sup>2-</sup>イオン等の内容成分の変動と<sup>222</sup>Rn含有量の変動には相関が見られなかった。

4. 比較的近い源泉であっても,  $^{222}\text{Rn}$  含有の経時的変動は異なっていた.

5. 八幡平地域では, 放射能泉 ( $3,000 \text{ pCi}/\ell$  以上) は見られなかった.

図3 銭川温泉の  $^{222}\text{Rn}$  量の経時変化

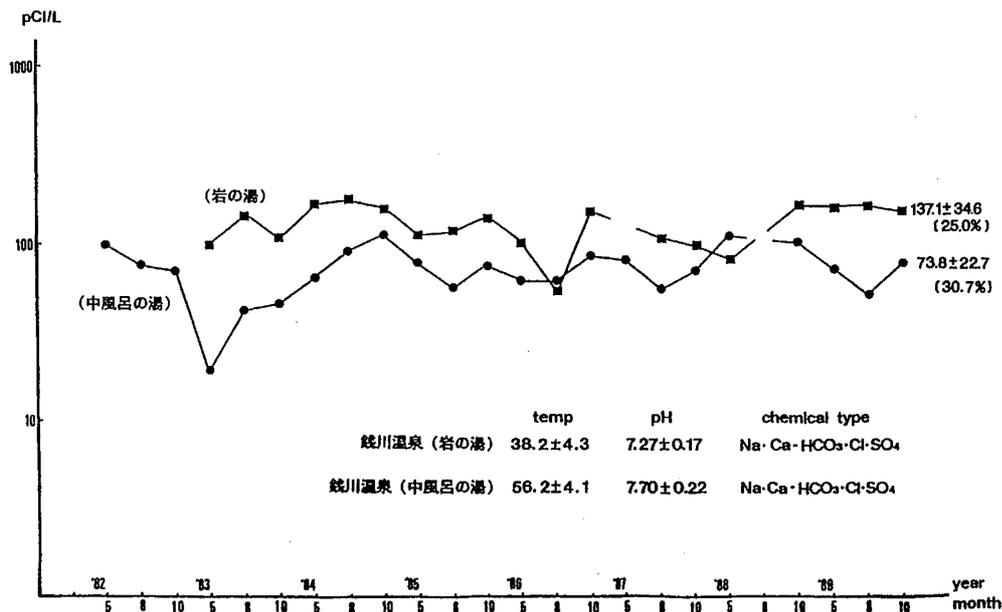


図4 赤川温泉の  $^{222}\text{Rn}$  量の経時変化

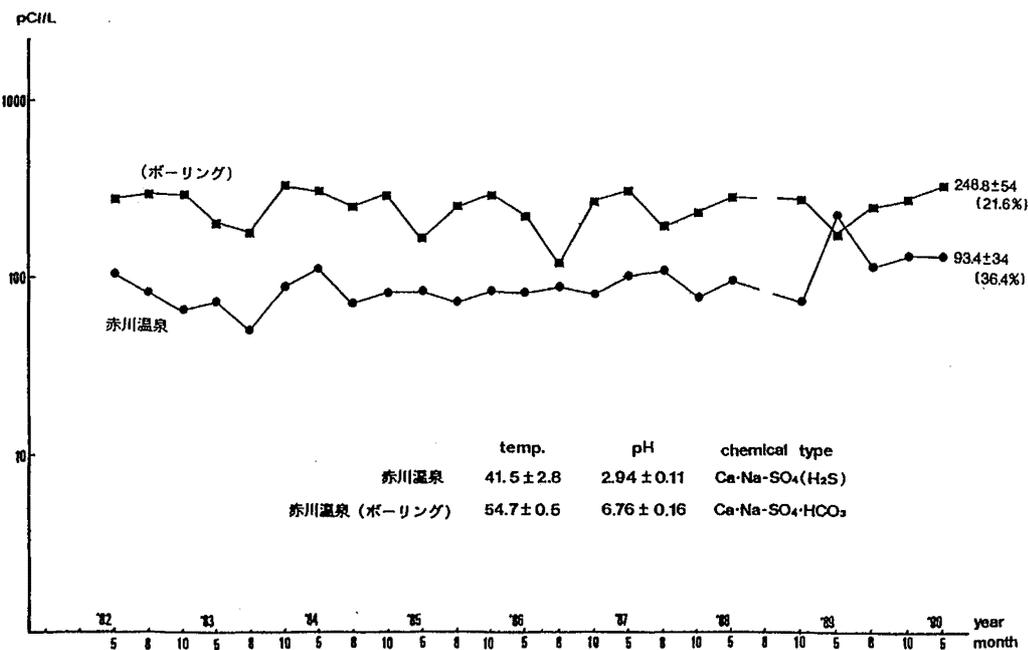


表4 八幡平地域の各源中の  $^{222}\text{Rn}$ ・ $^{226}\text{Ra}$  含有量

| 源泉名       | 泉温 (°C) | PH  | RES.(mg/ℓ) | $^{222}\text{Rn}$ (pCi/ℓ) | $^{226}\text{Ra}$ (pCi/ℓ) |
|-----------|---------|-----|------------|---------------------------|---------------------------|
| 赤川        | 43      | 2.7 | 416        | 98.1 ± 1.6                | 4.1 ± 0.4                 |
| “ (ボーリング) | 54      | 6.8 | 472        | 316.1 ± 4.5               | 10.1 ± 0.9                |
| 澄川(酸の湯)   | 68      | 2.2 | 2037       | 24.2 ± 1.6                | 16.3 ± 0.9                |
| 銭川(中風呂の湯) | 65      | 7.9 | 730        | 109.0 ± 3.3               | 4.0 ± 0.5                 |
| “ (間欠泉)   | 82      | 7.7 | 910        | 80.2 ± 2.0                | 2.0 ± 0.4                 |
| “ (川原の湯)  | 96      | 8.2 | 1084       | 3.5 ± 0.8                 | 7.5 ± 0.9                 |
| 大沼        | 57      | 6.8 | 347        | 621.6 ± 10.7              | 2.5 ± 0.3                 |
| 志張        | 48      | 8.1 | 364        | 221.8 ± 4.4               | 3.5 ± 0.5                 |
| 地熱井 0-8R  | 97      | 7.8 | 2435       | < 0.5                     | 5.2 ± 0.4                 |
| “ 0-3R b  | 97      | 8.0 | 2109       | < 0.5                     | 4.8 ± 0.5                 |
| 玉川(大噴)*   | 98      | 1.1 | 4030       | < 0.5                     | 26.0 ± 1.2                |

※RES.: 蒸発残留物

(1982. 5 測定)

\*: 参考値

表5 八幡平地域の各源中の  $^{222}\text{Rn}$  含有量変化

| 源泉名       | 平均値および標準偏差    | 最高値   | 最低値  |
|-----------|---------------|-------|------|
| 蒸の湯       | 230.2 ± 145.0 | 594.4 | 13.0 |
| 赤川        | 95.4 ± 41.3   | 266.6 | 58.1 |
| “ (ボーリング) | 233.9 ± 69.7  | 337.3 | 39.5 |
| 澄川(酸の湯)   | 99.4 ± 113    | 655.9 | 19.3 |
| 銭川(中風呂の湯) | 69.3 ± 28     | 149.3 | 19.1 |
| “ (間欠泉)   | 13.4 ± 9.2    | 39.7  | 1.7  |
| “ (川原の湯)  | 12.1 ± 15.6   | 66.5  | 1.2  |
| 大沼        | 442.0 ± 153.0 | 684.5 | 22.6 |
| 志張        | 174.3 ± 51.0  | 296.7 | 56.0 |

(1982~1991)

## 文 献

- 1) 辻本 忠, 他. ラドンとその娘核種(その1) —何が問題か—. 原安協だより, 1993, 4
- 2) 本間 義夫, 他. 液体シンチレーションカウンターにおける積分計数法の応用. 分析機器, 1977; 15-5: 227-232
- 3) 堀内 公子, 他. 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条件の検討. 温泉科学, 1977; 28-2: 39-52
- 4) 村上悠紀雄, 他. 天然放射能の天然放射能の測定 —ラドンの測定を中心にして—. トレースアナリシス, 1978; 化学増刊: 147-160
- 5) 堀内 公子, 他. 液体シンチレーションカウンターによる鉱泉中の低レベルラドンの定量について. 温泉科学, 1976; 26-4: 23-28
- 6) 石井 忠, 他. 高々温泉 (>60°C) 中のラドン, トロン, ラジウム存在について. 温泉科学, 1984; 35-1: 11-19