

## (4) 北投石を水に浸した場合のラドンの出かた

京都大学理学部地質学鉱物学教室

初田 甚一郎・西村 進

放射能鉱物から直接水中へラドンの溶出する仕方については、これまでに研究された例をあまり聞かない。天然の湧泉にはラドン含有率の著しいものがあるがそのラドンが何処から供給されたものかについての疑問がある。非常に深所から供給されたものとするれば、地表に達する迄にラドンの寿命から考えて相当減衰する筈で、従って三朝温泉の様なラドン含有率の高いものでは地下に莫大な親元素を仮定しないと説明出来ない。\*

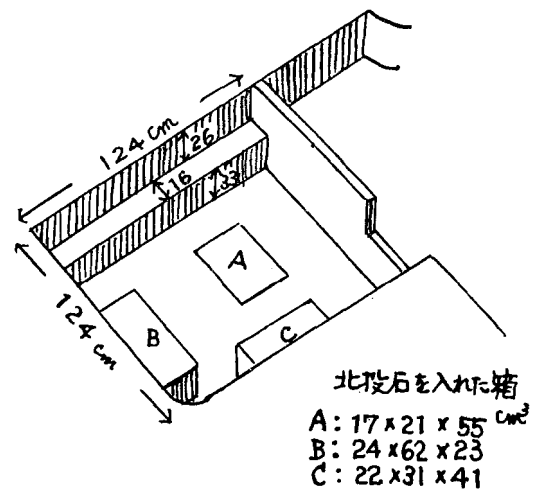
この難点の解決策として比較的浅い所にラジウムの二次的沈澱物の存在を仮定する考え方もある。この様な問題とも関連し、又一方ラジウム鉱物を浴槽中に浸して自然に恵まれない都会で人工ラジウム泉を造ることが行われているが、この場合果してどれ程実際にラドンの溶出があるかという点を明らかにするために標題にかかげた様な研究を行った。未だ研究途中なので不完全であるが一応報告する。

### 浴槽に於ける溶出のしかた

実際の浴槽について測定した結果は次の通りである。京都市内某公衆浴場：浴槽の構造

は第1図の通りである。中央の仕切りで東西両浴槽間の湯の交流はそのままでは殆んどないと考えてよい。

第1図 浴槽見取図



実験を行った湯槽の容量は約 808 立である。この浴槽の中央底に沈められた木箱 A の中に北投石約 39.0 kg, この他、木箱 B, 金属箱 C に計 44.5 kg が入れてある。

6月11日は平常通り営業して翌12日午前3時に新しい井戸水を張り、12時より加熱しはじめた。測定試料は 14時36分、38°C の湯を中央底より約 20cm 附近の部分で大型注射器で

\* 今例えば三朝温泉の温度を 70°C とし、1 l 中のラドン量を  $0.52 \times 10^{-7}$  curie とし、極端な場合として

$\rho$  : 地下水中の Rn 濃度

$\rho_e$  : 岩石中 Ra に平衡の Rn 濃度とせば  $\rho = \alpha \rho_e$

$\alpha$  : Rn の水に対する分配係数

としても地下水の流れる通路の壁全体が少なくとも  $0.43 \times 10^{-9}$  g Ra/g の Ra content を必要とする。これを仮りにウランとして存在するものとするれば  $1.3 \times 10^{-3}$  gu/g を必要とする。

400cc採集した。測定にはHS泉効計を用い、ラドン濃度1.46マツヘを得た。この浴槽に用いた井戸水をタンク内より採集し、ラドン量を測定して0.54マツヘを得た。従って両者の差0.92マツヘに相当するラドンは少なくとも北投石から出たものと見做せる。

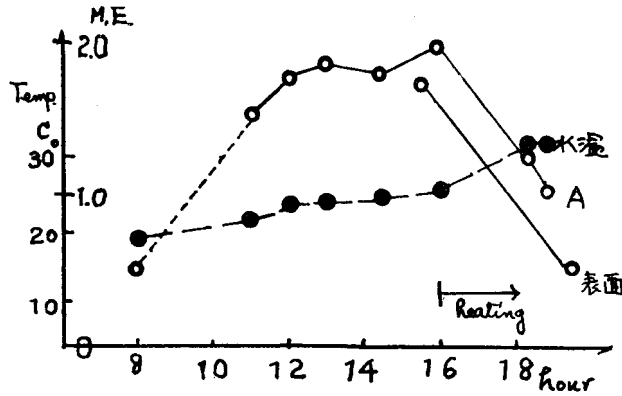
第二回の実験は7月6日午前8時注水、11時より1~2時間間隔で測定した。今回の測定では中央底の木箱A中より採水した、これら

の結果を図2に示す。最初1.67マツヘから次第に少し増加の傾向を示し、最高約2マツヘに達し、16時より熱した所ラドン量は急激な減少を示した。尚表面近くでも同じ傾向を示している。実験中採水以外なるべく湯を攪乱しない様にしたが表面と底とでラドン量の相違は案外少ない。

実験室に於ける実験

北投石を平均直径約6.5mmに砕いたもの

第2図 浴槽中に於けるラドンの溶出



第1表 水温と溶出ラドン濃度との関係

温 (°C) 度	測定日	ラドン濃度 (Mache)	浸漬時間 (hours)	補正されたラドン濃度 (Mache)
48.0	14, July	0.619	23.3	0.58
38.0	20, July	0.726	20.0	0.67
31.8	11, July	0.774	21.8	0.77
23.5	12, July	0.990	23.8	0.91
19.0	19, July	1.04	22.2	1.02
14.0	13, July	1.20	21.8	1.20

\* 勿論全時間を恒温状態に保つのが実験としては望ましいが、室温より低い温度に長時間保つことは困難であるので、各温度で条件を一定にするため恒温に保つ時間を4時間とした。ラドンの溶出に実際的に関係するのは最後の数時間と考えて差支なからう。尚室温より低い温度に保つためには時々温度計を見ながら氷片を加えた。

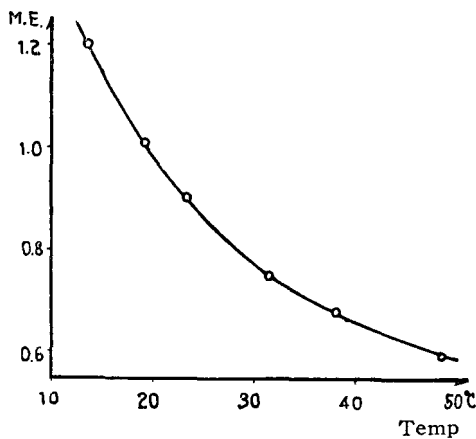
648gを分液漏斗に入れ、これに蒸留水200ccを入れて一定時間放置し、後この水を取り出しラドン量を測定した。

ラドンの溶出は当然温度と関係すると思われるので先づ温度との関係を調べた。北投石を21~24時間蒸留水に浸した状態におき、その内最後の約4時間を恒温槽の中に入れて所定の温度に保つた。<sup>\*</sup> また浸漬時間中のラドンの生成に応じて溶出量も異なると思われるの

で一定時間(21.8時間)の浸漬の場合に換算した結果は第1表、第3図の様になる。この結果は温度の上昇とともに著しく溶出率は低下する事を示し、前述の浴槽に於ける結果と傾向が一致する。

次に浸漬時間と溶出量との関係をしらべた。第4図にその結果を示す。1の曲線は恒温槽に入れて40°C、2の曲線は25°Cを保つて浸漬時間を変えて測定したものである。溶出量は時間とともに徐々に増加するが時間の経過とともに増し方はゆるやかになる。

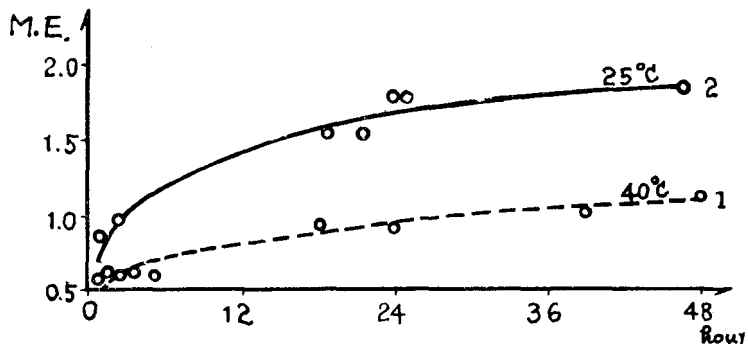
第3図 水温と溶出ラドン濃度との関係



### 結 び

用いた北投石は秋田県玉川温泉のもので、この北投石は Ra  $1.22 \times 10^{-9}$  g/g を含むことが嘗て報告されている。<sup>1)</sup> \*\* 浴用に供しているものは直径約2~7cmの円くなった礫である。比較的きめが粗いがそれでも内部に生成したラドンが表面まで出てくるには相当の時間を要すると考えられる。実験室で用いたものでも同じである。ラドンの溶出にあづかる部分の表面からの厚さを推定するために次

第4図 浸漬時間とラドン濃度との関係



1) 吉村恂(1の29): 北投石並に本邦産褐簾石及びゼノタイムの放射性成分について、理研彙報第8輯第3号223.

\*\*本講演会に於て齊藤信房氏によれば玉川温泉湯川底の北投石は  $1220 \times 10^{-12}$  gRa/g;  $608 \times 10^{-12}$  gRa/g と発表された。

の様な試みをした。

実験に用いた礫を平均直径6.5mm, 北投石の密度を4.33ととり, 表面から0.2, 0.1, 0.05, 0.01mm迄の部分の全質量を計算する

と夫々56.3, 33.8, 16.9, 5.63gとなる。今北投石のラジウムの含有量を $1.5 \times 10^{-9}$ gRa/g,  $1.0 \times 10^{-9}$ gRa/g,  $0.5 \times 10^{-9}$ gRa/gととつて21.8時間に発生するラドン量を求めると夫々

第 2 表 ラ ド ン 濃 度

試料Ra含有量 表面からの深さ	$0.5 \times 10^{-9}$ gRa/g とした場合	$1.0 \times 10^{-9}$ gRa/g とした場合	$1.5 \times 10^{-9}$ gRa/g とした場合
	(Mache)	(Mache)	(Mache)
0.2	63.5	127	191
0.1	42.3	84.6	109
0.05	19.2	38.3	52.0
0.01	6.35	12.7	19.1

第 3 表 試料 Ra 含有量  $1.5 \times 10^{-9}$ gRa/g とした場合

実 験 結 果		試料の表面から一定の深さまでの Rn 濃度* と溶出濃度の比			
温 度	溶 出 Rn 濃 度	0.2mm	0.1mm	0.05mm	0.01mm
(°C)	(M. E.)	(%)	(%)	(%)	(%)
15	1.15	0.60	1.06	2.21	6.02
20	1.00	0.52	0.92	1.92	5.24
30	0.80	0.42	0.73	1.54	4.19
40	0.66	0.35	0.61	1.27	3.46
50	0.57	0.30	0.52	1.10	2.98

第 4 表 試料 Ra 含有量  $1.0 \times 10^{-9}$ gRa/g とした場合

実 験 結 果		試料の表面から一定の深さまでの Rn 濃度* と溶出濃度の比			
温 度	溶 出 Rn 濃 度	0.2mm	0.1mm	0.05mm	0.01mm
(°C)	(M. E.)	(%)	(%)	(%)	(%)
15	1.15	0.91	1.36	3.00	9.06
20	1.00	0.79	1.17	2.61	7.87
30	0.80	0.63	0.95	2.09	6.30
40	0.66	0.52	0.78	1.72	5.20
50	0.57	0.45	0.67	1.49	4.49

第2表の如くなる。又それらを実験結果とくらべると第3~5表の如くなる。今種々の条件を考えてラドンの水に対する平衡分配係数の

10分の1程度が溶出するものとするると約0.07~0.05mm位まで関係あるものとみられる。

このことから温度を一定とするとラドンが

第5表 試料 Ra 含有量  $0.5 \times 10^{-9}$  gRa/g とした場合

実験結果		試料の表面から一定の深さまでの Rn 濃度* と溶出濃度の比			
温度	溶出 Rn 濃度	0.2mm	0.1mm	0.05mm	0.01mm
(°C)	(M. E.)	(%)	(%)	(%)	(%)
15	1.15	1.81	2.72	5.99	18.11
20	1.00	1.57	2.36	5.21	15.75
30	0.80	1.26	1.89	4.17	12.60
40	0.66	1.04	1.56	3.44	10.39
50	0.57	0.90	1.36	2.97	8.98

\* Rn濃度の計算方法

北投石密度×表面から一定の深さまでの体積 (cc) ×試料筒数×試料Ra含有量 (g/g)

$$\times \text{Ra 壊変常数} \times \frac{1000}{\text{試料水容量 (cc)}} \times \frac{1}{3.64} = \text{Rn濃度 (Mache)}$$

水中に溶出する仕方は極めて表面に近い部分のラドン濃度とその分布に大部分支配されるものと思われる。それより内部に於てはラドンは壊変を伴いつつ外の方に拡散してくる訳であるが、拡散は温度と正の関係にあるので、温度が高い程速かに表面の方へラドンは移動する筈である。このことは観測結果を詳

しく吟味すると多少現われているようである。すなわち、各温度に於ける溶出ラドン濃度の測定値およびラドンの水に対する分配係数の 20°C に於ける値を夫々 1.00 として他の温度における値を求めると第6表の如くなり、20°C より高温に於ては測定値の方が大である。これは温度が高い程内部からラドン

第6表

温度	実験結果の 20°C の値に対する比	Rn の水に対する分配係数	同じく 20°C の値に対する比
(°C)			
15	1.15	0.296	1.17
20	1.00	0.253	1.00
30	0.80	0.195	0.77
40	0.66	0.162	0.64
50	0.57	0.138	0.54

の拡散が大となるためと思われる。しかし温度その他の条件を一定にしておくと、ある程度の時間がたつとラドンの拡散は定常的になるものと思われる。それ故に浸漬時間とラドン量との関係を求めることは、実は何時間後

にこの拡散が定常的になるものかをみているのかもしれない。これらの解析的研究、粒度との関係等は今後の問題として残されている。

---

### 質 疑 応 答

- 斉藤（東大）北投石は産地により Ra 含量が違うから、実際について測定された方がよい。又北投石の emanating power の影響は小さいと思うが実験的な結果をはかつていただきたい。北投石は沈澱直後のものと古いものとは違うと思う。時間的な問題をやってもらうとよい。
- 岡部（鳥取大）水につけずに空気中で温度を上げたときもやっていただくとよい。拡散係数は推定のための仮定であろうが、水中の Rn の拡散がおそいとすれば途中の decay も考慮に入れる必要ありと思う。