

# 鉱泉中のラジウム、ラドン同時定量に関する研究 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——

東京都立大学理学部化学教室  
堀内公子、村上悠紀雄  
(昭和53年6月24日受理)

## Study on the Simultaneous Determination of Radium and Radon in the Same Water Sample of Mineral Springs. Part 1

——Simultaneously Determined Contents of Ra and Rn in Water Samples of Misasa, Katsuura, Shirahama, Yugashima, Aziro and Masutomi. ——

Kimiko Horiuchi and Yukio Murakami

Department of Chemistry, Faculty of Science, Tokyo Metropolitan University.

### 緒 言

**Abstract** 鉱泉中のラジウムとラドンの同時定量法を確立した。鉱泉中のラジウムとラドンの同時定量法はこれまでに報告されていない。本研究では、ラジウムとラドンの同時定量法を確立するため、ラジウムの抽出方法とラドンの測定方法を検討した。ラジウムの抽出方法としては、水溶液中のラジウムをトルエン溶液中の液相沈殿法による直接抽出法を用いた。ラドンの測定方法としては、液体スцинチレーターによる積分計数法を用いた。この方法により、鉱泉中のラジウムとラドンの同時定量が可能となった。

### 1. 緒 言

鉱泉中のラドンは1910年東大真鍋教授、石谷氏等が3年にわたり190ヶ所<sup>1)</sup>についてエングラ型泉効計で測定したのに始まり、さらに種々の方式の泉効計で測定がつづけられ<sup>2)</sup>また衛生試験所、石津、衣笠、服部らにより<sup>3)</sup>広く調らべられ1000ヶ所をこえるにいたった。また飯盛<sup>4)</sup>のIM泉効計は感度もよく携帯に適し現地でのラドン測定が簡易になって急速にひろまり、今日に於いても主として用いられている<sup>5)</sup>また島津HS-I型放射能測定器<sup>6)</sup>あるいはKY式ローリツエン計器などの改良もおこなわれた<sup>7)</sup>一方ラジウムには精密ラドン計<sup>8)</sup>がつくられ、鉱泉中のラジウムの定量がはじめて試みられ<sup>9)</sup>476ヶ所に及んだ研究がある<sup>10)</sup>しかし感度はよいが長時間を要する。例えラドン計定数を測定していたとしてもなお一試料に少なくとも4~5時間を必要とするような困難さがあるが、広く用いられている状態である。

一方ラジウムとラドンが平衡量存在するか否か両者の関係を知ることは、ラドンに注目している

医学利用の立場では重要なことであり、また両元素の地球化学的行動を知る上に、ひいては温泉の湧出機構を知る上に極めて重要なことで深い関心がもたれている。したがって同一研究者によりラジウムとラドンは同一源泉での同一試料に試みた研究若干もおこなわれている。例えば増富鉱泉につき I M 泉効計、精度ラドン計で<sup>11)</sup>三朝温泉につき I M 泉効計とローリツエン験電器で<sup>12a)</sup>また別府温泉にて HS-I 型放射能測定器とローリツエン験電器によっておこなわれた例<sup>12b)</sup>などがあるが、きわめて限られた地域での定量であり、しかもことなる測定器で得た結果である。一般的にラジウム、ラドンの定量に関してはことなる研究者がことなる日時の試料を、しかも定量下限のことなる測定器で求め、その値によってラジウムとラドンの平衡量等を論ぜざるを得ない状況であった。

ラドンがトルエンによくとけることに基づき、液体シンチレーションカウンター(以下 LSC)で測定する方法<sup>13)</sup>が提案され、その後細かく実験条件を検討し<sup>14)</sup>、しかもいままで測定されていないような低レベルのものの測定までおこなうことが出来るようになった<sup>15)</sup>。またラジウムは放射平衡にあるラドンをトルエン中に捕捉して測定することで可能なことが示された<sup>16)</sup>。

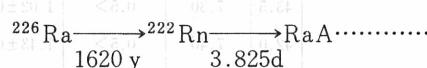
これらの場合、いずれも LSC で積分計数法によるとき、得られた計数率がただちに絶対崩壊率を与えることがわかり<sup>16),17)</sup>、またその感度もラドンの 1 個の  $\alpha$  に対して同時に放射平衡にある崩壊生成物の放出するものも測るために  $3\alpha + 2\beta$  をはかるので、感度が 5 倍にもなり  $5 \times 10^{-13}$  Ci まで測れるのが大きな特色である。

したがって同一人が同一試料で同一の測定器 (LSC) を用いて、ラドンとラジウムの測定をおこない、これら両者の関係を一層あきらかにしようとして本研究をはじめた。また常水と鉱泉の区別が  $20 \times 10^{-10}$  であり<sup>5)</sup>、I M 泉効計では 1 試料の測定に約 5 時間を要するため、このような低レベルのものは測定されてもデーターとして記録されていないか、おこなわないのが実情であった。しかし最近特に関心をもたれている環境放射能を扱うとき、ラドンの寄与は大きく低レベルであっても無視することは出来ない<sup>18)</sup>。LSC を用いるとき低レベルのラドンが測定可能であり、この点を明らかにすることも企図して本研究がおこなわれてきた。本報ではこれらのデータの一部を報告し、つづいて続報を出してから、くわしい考察をおこなうこととする。

## 2. 実験

ラドンの定量についてはすでに述べてお<sup>り</sup><sup>5),14),15)</sup>。それに従った。ラジウムについて使用薬品、器具および使用機器や測定法の詳細は文献<sup>16),19)</sup>にゆずり、実験法の大要をのべると次の如くである。鉱泉中のラジウムを濃縮するには広く用いられる硫酸バリウム共沈法によった。沈でん作成後上清液を除くには傾斜法がよく、沈でんを攪拌しないよう先端を細くして折りまげた小さなガラス管をゴム管の先につけてサイフォンでおこなう。母液をとりさったのち、アルカリ性として EDTA-4 Na 溶液で溶解し、これをキュリー瓶 (300mL) にうつして密封し 1 ヶ月放置する。放射平衡になったラドンをラドン捕集装置<sup>16)</sup>にて液体シンチレーター (LS) 中に捕集し、LSC にて積分計数法を用いて測定する。若干の注意すべき点について述べる。

### 2.1 放射平衡の成立



Rn の極大値は 65.97 日であるが 30 日経つと極大値の約 99.56% になるので、いままでには通常 1 ヶ月放置後の測定がおこなわれて来た。しかし本法では感度がよいので必ずしも 30 日おく必要はない、密封後の経過時間を d とするとき、生成しているラドンは次の式で求められる。N : 密封か

泉質を分類する最も重要な指標は、硫酸イオン濃度である。しかし、この重要性は、独立の田畠学園で、古くから確立された方法によるものである。本研究では、既存の測定法を用いて、各温泉の硫酸イオン濃度を測定した。

表1 Ra, Rn 同時定量値

泉名	略記 泉質名	温度 °C	pH	Rn ×10 <sup>-12</sup> Ci	Ra ×10 <sup>-12</sup> Ci	Rn/Ra	備考
三宅島 阿古源泉	Na-Cl泉 含臭素強食塩泉	52.5	5.6~5.8	0.5>	0.85±0.05	0.59	49.5 採水掘さく自噴
湯ヶ島 一号泉西平町営	Ca-Na-SO <sub>4</sub> 泉	47.0	7.75	31.1±0.7	2.08±0.06	14.95	49.5 "
" 東流 おつきの湯	Ca-Na-SO <sub>4</sub> 泉	32.5	6.86	0.87±0.49	2.38±0.07	0.37	49.5 動力揚湯
" 浄蓮莊裏	"	51.0	7.20	0.5>	0.91±0.04	0.55	49.5 "
" 世古の大湯	"	41.5	7.60	111.3±1.4	1.34±0.05	83.06	49.5 動力揚湯
" 湯ヶ島館 1	"	47.7	8.10	34.4±0.7	1.26±0.04	27.30	49.5 世古山, 吉野 動力揚湯
" " 2	"	37.5	7.30	21.5±0.3	1.71±0.26	12.57	49.8 鶴亀
" " 3	"	48.5	8.00	252±1	5.86±0.42	43.00	49.8 弁慶, 牛若, 箱湯
" 志げの湯	単純硫黄泉	22.0	7.10	19.2±0.8	1.44±0.23	13.33	49.8 採水
別所 大滝	単純硫黄泉	42.4	8.80	5.24±0.6	0.91±0.09	5.76	49.5 大滝
別所 大師の湯	単純硫黄泉	37.4	8.90	9.89±0.61	0.95±0.05	10.41	49.5 採水
別所 石湯	"	38.0	8.80	10.2±0.6	0.75±0.04	13.60	"
" 3号泉	"	52.0	8.90	24.2±0.60	1.12±0.09	21.61	" 動力揚湯
" 3号泉	"	45.0	8.95	5.90±0.51	3.80±0.06	1.55	49.5 採水 自然湧出
沓掛 共同浴場	"	35.5	9.15	41.2±0.7	2.33±0.06	17.68	"
湯郷 鶯の湯一号源泉	Na-Mg-(Ca)-Cl 泉	46.8	7.4	63.9±0.9	4.83±0.36	14.27	"
三朝 鶯の湯	Na-Cl 泉	38.5	6.5	6,260±55	2.61±0.38	2,398.47	49.8 採水
" 煙草屋浴槽	"	42.4	6.55	5,606±44	2.39±0.45	2,345.61	"
" 山田区共同湯	"	42.0	6.42	14,718±69	3.45±0.36	4,266.09	"
" ひすいの湯 (たつのや)	"	67.5	6.42	1,520±24	15.78±0.47	96.32	"
" 石湯	"	44.3	7.80	319±5	9.69±0.54	32.92	"
" 溫研飲泉	"	51.6	6.99	2,440±12	10.09±1.03	0.24	銀瓶もは具器
" 溫研男子浴室	"	52.5	6.90	383±5	4.67±0.50	82.01	" 中東進 ゆ
関金 温清樓	単純温泉 硫酸水素水	49.0	7.95	5,379±21	1.57±0.26	3,426.10	新規土井
鳥飼 小鳥	"	38.7	7.50	4,941±19	6.96±0.49	709.91	晉にさ晉スモ
浅津 亀屋	Na-Cl 泉	56.0	7.55	401±6	2.58±0.28	155.43	"
東郷 寿の湯	"	66.1	7.38	167±4	0.64±0.27	260.94	ひとひき湯平根
吉奈 大湯	単純温泉・アルカリ単純温泉	48.5	7.30	0.5>	1.24±0.23	0.40>	動力揚湯
新嵯峨 沢 源 泉	Na-SO <sub>4</sub> 泉	43.5	7.30	0.5>	1.02±0.30	0.49>	49.8 採水
嵯峨 沢 源 泉	"	42.0	7.40	0.5>	1.43±0.30	0.35>	"
嵯峨 沢 八 丁 苑	"	35.0	7.40	0.5>	2.80±0.44	0.18>	"
月ヶ瀬 いで湯反の沢	Ca-Na-SO <sub>4</sub> 泉	44.0	7.70	0.5>	1.98±0.32	0.25>	"
" 小戸橋の湯	"	50.0	7.60	0.5>	0.91±0.28	0.55>	"

泉 名	略記 泉質名	温度 ℃	pH	Rn ×10 <sup>-12</sup> Ci	Ra ×10 <sup>-12</sup> Ci	Rn/Ra	備 考
三朝 大橋中の湯 (川の中湧出)	Na-Cl 泉	48.2	6.75	1,623±19	8.02±0.04	202.37	"
" 大橋下の湯 (ラジウム泉)	"	48.8	6.65	1,528±18	5.63±0.50	271.40	"
" 大橋上の湯 (トリウム泉)	"	46.0	7.40	228±6	2.44±0.37	93.44	"
" 一陽荘 A	"	46.0±0.5	6.70	6,446±30	5.96±0.5	1,081.54	"
" 一陽荘 B	"	48.0	6.42	876±20	1.50±0.33	584.00	"
" 岡山大温研男子 浴室(不老庵)	"	42.5	7.55	2,009±15	1.14±0.41	1,762.28	"
" 温研分室 女子浴室	"	34.1	7.45	670±9	3.02±0.38	221.85	"
" 熱気浴室	"	48.0	7.38	4,154±21	2.71±0.46	1,532.84	"
" 温研分室 I 熱気室	"	46.2	7.4	1,743±12	2.98±0.41	584.90	"
" 温研分室 II 熱気室	"	46.2	7.4	5,482±21	2.81±0.46	1,950.89	"
" 西藤館鳳凰の湯	"	43.3	7.15	4,011±21	3.87±0.35	1,036.43	"
" 西藤館飲泉	"	52.4	6.98	13,755±63	5.42±0.50	2,537.82	"
" 御船氏宅	Na-Cl 泉	47.5	7.00	1,456±13	2.82±0.44	516.31	49.8 採水
" 中島(共同湯)	"	48.0	7.70	710±9	4.34±0.36	163.59	"
" 川原の湯	単純温泉	62.5	6.98	520±9	29.04±0.75	17.91	"
" 木屋旅館 (楽泉の湯)	Na-Cl 泉	63.5	7.00	1,504±14	6.34±0.47	237.22	"
" 花屋	Na-HCO <sub>3</sub> 泉	46.0	6.86	13,834±40	3.51±0.41	3,941.31	"
月ヶ瀬 聖の湯	Ca-Na-SO <sub>4</sub> 泉	(47.0)	7.60	0.5>	2.95±0.43	0.17>	温度41年 測定
船原 鮎池の湯	Na-SO <sub>4</sub> -Cl 泉	93.5	7.60	12.4±0.96	1.31±0.25	9.47	49.8 採水
" 木之股の湯	"	72.0	7.20	46.1±0.90	2.71±0.21	17.01	"
" 昭和の湯	"	37.5	7.40	0.5>	1.03±0.24	0.49	" 動力揚湯
" 滝の湯	"	61.0	7.70	0.5>	2.34±0.44	0.21	" 動力揚湯
椿 源 泉	単純温泉	31.7	9.20	4.35±0.95	1.34±0.32	3.25	49.9 採水
白浜 垣谷	Na-Cl 泉	52.2	6.80	2.45±0.97	4.58±0.44	0.53	49.8 山吉
" 文珠	"	57.0	7.15	1.11±0.90	4.43±0.48	0.25	" 田村
" みゆき2号	Na-HCO <sub>3</sub> 泉	83.0	7.30	0.68±0.89	7.63±0.53	0.09	" 田村
" みゆき3号	Na-Cl 泉	81.0	7.30	0.49±0.89	0.98±0.18	0.50	" 田村
" 東亜一号	Na-HCO <sub>3</sub> 泉	58.5	6.86	2.16±0.77	3.82±0.42	0.57	" 田村
" 磯湯	Na-Cl 泉	66.5	7.00	2.68±0.82	1.35±0.24	1.99	"
" 垣谷2号	"	54.0	6.35	4.30±0.84	1.12±0.27	3.84	49.8 焼津
" 甘露の湯	Na-HCO <sub>3</sub> 泉	87.0	7.18	1.99±0.78	6.26±0.32	0.32	"
" 若葉、古賀の井	"	64.3	7.00	2.52±0.79	7.26±0.32	0.35	49.8 富士
" 長生	"	78.5	7.25	0.5>	6.26±0.29	0.08>	"
" 上山	Na-Cl 泉	76.5	6.85	0.5>	2.78±0.34	0.18>	"

泉 諸 名	別名 略記 泉質名	温度 °C	pH	Rn ×10 <sup>-12</sup> Ci	Ra ×10 <sup>-12</sup> Ci	Rn/Ra	備考
白浜生絹	Na-Cl泉	67.5	6.90	2.77±0.71	1.60±0.27	1.73	出水・中湯入・機械式
勝浦宮本周三 1	"	34.0	6.45	7.91±0.64	2.48±0.33	3.19	出水・自噴
" 宮本周三 2	HCO <sub>3</sub> 単硫	33.8	6.8	6.85±0.48	2.02±0.33	3.39	出水・自噴
" 那智温泉KK	Na-Cl泉	34.0	6.86	13.0±0.7	2.61±0.34	4.98	出水・自噴
" 大桑	"	24.0	6.2	7.19±0.64	3.52±0.32	2.04	" 自噴 (當時は動力揚湯)
" 西本商事	"	30.0	6.8	15.9±0.7	2.21±0.31	7.19	" 自噴
" 中の島 4号泉	含S-Na·Cl泉	55.2	7.2	0.5>	3.79±0.32	0.13>	" エアリフト
" なぎさや 2号	単純硫黄泉	43.0	6.4	13.7±0.6	2.80±0.39	4.89	" 小型
" なぎさや 4号	"	41.2	8.0	13.1±0.6	2.34±0.26	5.60	" 動力揚湯
" 岩崎医院	単純CO <sub>2</sub> 泉	17.8	6.4	17.8±0.6	3.39±0.32	5.25	" 動力揚湯
" 尾畠山	含S-Na·Cl泉	53.0	8.2	19.9±0.8	1.67±0.32	11.92	" 堀さく自噴
" 安田徳松	"	38.6	7.2	20.2±0.6	1.88±0.32	10.74	" 動力揚湯
" 開発公社二河 一号くまのじ	含S-NaCl·HCO <sub>3</sub> 泉	36.8	8.80	21.6±0.6	3.93±0.35	5.50	49.9 採水堀さく自噴
" 開発公社二河二号	単純CO <sub>2</sub> 泉	40.1	8.80	19.8±0.6	1.72±0.28	11.51	49.9 採水堀さく自噴
太地観鯨荘	Na-Cl泉	32.6	8.20	20.5±0.6	2.66±0.34	7.71	49.9 採水堀さく自噴
網代静洋閣	Na-Cl+強塩泉	56.5	7.70	0.5>	2.29±0.44	0.22>	49.11 採水
白銅商店 国鉄	Na-Cl泉	55.0	7.40	0.5>	3.12±0.52	0.16>	" 溝水
" 網代観光ホテル 1	Na-Cl 強塩泉	54.0	7.05	0.5>	1.42±0.44	0.35>	" 溝水
" 網代観光ホテル 2	"	64.0	7.30	0.5>	2.32±0.47	0.22>	" 溝水
白鳥マンション 小山いと	Na-Cl泉	56.0	6.86	0.5>	1.74±0.44	0.29>	" 溝水
駒嶺ふで	"	61.0	6.20	0.5>	1.37±0.44	0.36>	" 溝水
グリーンヒル協会	"	46.5	6.90	0.5>	1.53±0.45	0.33>	" 溝水
青山光雄他	"	62.2	6.60	0.5>	1.04±0.50	0.33>	" 溝水
和田木 1号	"	50.0	6.60	0.5>	1.41±0.43	0.35>	" 溝水
和田木 2号	"	56.5	6.70	0.5>	0.53±0.24	0.94>	" 溝水
和田木 3号	"	48.0	7.20	0.5>	1.08±0.42	0.46>	" 溝水
和田木 4号	"	45.0	7.10	0.5>	0.81±0.41	0.62>	" 溝水
日本殖産観光KK	"	64.5	7.00	0.5>	1.97±0.40	0.25>	" 溝水
南熱海温泉 久七丸	"	68.5	7.10	0.5>	1.30±0.44	0.38>	" 溝水
松風苑	単純温泉	44.0	9.00	0.5>	2.44±0.45	0.20>	" 溝水
網代温泉KK	Na-Cl強塩泉	36.0	7.00	0.5>	1.95±0.51	0.26>	"
増富金泉湯	Na·Ca(Mg)-Cl泉	30.0	6.22	199±3	7.55±0.57	26.36	50.4 採水
" 津金楼	"	24.0	6.10	696±6	4.78±0.57	145.61	"

泉名	略記泉質名	温度 ℃	pH	Rn $\times 10^{-12}$ Ci	Ra $\times 10^{-12}$ Ci	Rn/Ra	備考
増富津金楼下道	"	20.0	6.01	27,200±40	8.18±0.56	3,325.18	"
"不老闇1	"	32.0	6.30	233±4	7.97±0.59	29.23	" 動力揚湯
"不老闇2	"	18.0	5.73	16,000±30	4.44±0.50	3,603.6	50.4採水
自然湧出							
"俊正寮	"	39.0	6.50	88.2±3	2.33±0.49	37.85	"
大岳還元井	Na-Cl泉	67.5	8.20	0.5>	0.58±0.12	0.86>	50.7採水
"7号井	"	96.2	8.40	0.5>	0.60±0.13	0.83>	"
"8号井	"	92.4	8.40	0.5>	2.17±0.23	0.23>	"
"9号井	"	97.0	8.10	0.5>	1.40±0.23	0.36>	"
"10号井	"	96.8	8.60	0.5>	2.13±0.23	0.23>	"
八丁原生産井4号井	"	97.8	6.80	0.5>	1.56±0.23	0.32>	"
"4号井	"	95.5	5.95	339	1.59±0.21	213.21>	51.8採水
湯田中金具屋源泉	Ca-Na-SO <sub>4</sub> -Cl泉	97.6	8.20	2.20	0.2>	11.00>	
"地獄谷後楽館野天	"	74.2	7.40	36.0	0.24±1.3	150.00	
"日洗場外	"	54.2	7.40	5.8	0.27±1.3	21.48	
"西正旅館	Ca-Na-SO <sub>4</sub> -Cl泉	94.8	7.9	21.0	0.2>	105.0>	
松代一陽館外	Na-HCO <sub>3</sub> -Cl泉	33.9	6.3	21.0	0.53±0.11	39.62	
瑞浪鬼岩松泉閣	単純Rn泉	16.0	6.0	3,070	0.96±0.11	3,197.92	
"瑞浪鉱泉源泉	"	17.3	5.4	4,650	0.2>	23,250>	
"日吉、明世鉱泉	"	14.2	5.4	874	0.61±0.11	1,432.79	

らの時刻dにおけるラドンの生成量、N<sub>0</sub>:Raと平衡量のラドン量とするときN=N<sub>0</sub>(1-e<sup>-λd</sup>)の関係が成立している。したがって5日で平衡量の59.59%，10日で83.67%のラドンが生成しているので短期間で測定が可能となる。

## 2.2 ラドンの捕集

操作法は文献<sup>14,19)</sup>を参照

## 2.3 放射能の測定

積分計数法と計数率、バックグラウンドの計数率と正味計数率の算出などは文献を参照<sup>16,17)</sup>

放射能測定で計数率と測定時間について次の如き考慮をした。即ち、標準偏差σでM±σの範囲内に真の値の入る確率は68.3%で、M±2σに入る確率は95%であることより、相対誤差が1%以内になるのに必要な測定時間と試料のcpmの関係を求めたものが表2である。用いたLSCは古いためバックグラウンド計数率が上昇し45cpmもあり、したがって100分測定として計算したものである。

5×10<sup>-12</sup>Ciで正味計数率55.5cpmの場合、500分測定すれば標準偏差は、55.5±0.81cpmであり相対誤差は1.45%になる。試料が強くなるにつれ急速に時間がかかることがわかる。通常はこのような短かい測定時間ではないのでもっと相対誤差は小さくなる。したがって試料の最初の1分間の値をみるとおよその必要な所要時間の見当がつく。

本法では積分計数法を用いており、適当なゲインにおいて種々のウインド幅で測定し、それより積分バイアス曲線をつくり、これを0に外挿してえられた値が絶対崩壊率(dpm)である<sup>17)</sup>この値

表2 計数率と測定時間

水 1 ℓ 中の ラドンの放射能	正味計数率 cpm	測定時間 分	標準偏差 cpm	相対誤差 %
* $3 \times 10^{-9}$ Ci	33,300	5	81.7	0.25
** $2 \times 10^{-9}$ Ci	22,200	5 ± 0.005	66.7	0.30
$5 \times 10^{-10}$	5,550	20	16.7	0.30
$5 \times 10^{-11}$	555	100	2.54	0.46
$5 \times 10^{-12}$	55.5	500	0.81	1.45
$5 \times 10^{-13}$	5.55	1440***	0.26	4.64

B G : 45 cpmで100分測定の場合

\* 放射能泉の定義

\*\* 鉛泉の定義 (常水と区別する限界値)

\*\*\* B G も試料と同じ時間測定した場合

B G と試料の測定時間、計数率をそれぞれ  $t_b$ ,  $n_b$ ,  $t_s$ ,  $n_s$  とする時、全所要時間  $t$  を  $t_b/t_s = \sqrt{n_b/n_s}$  になるようにわけて測定すれば、  $t$  時間内で統計誤差は最も小さくすることができる。

値には差が大きくなることがわかる。そして(a)と(b)の差は小さくなる傾向がある。積分バイアス曲線をつくらないならば、低いもの ( $10^{-10}$  Ci以下) では(c)法でよく、また高い ( $10^{-9}$  Ci以上) ものでは(b)法でよいことがうかがえる。

をうる場合の実験値の一例をしめした。本報で用いた LSC では 3 チャンネルの計数率が同時に得られるので簡単のためこれより外挿した場合(a)、また、式よりの計算(b)も可能である<sup>20)</sup>。また本法での一番幅のひろい  $100 \sim \infty$  の値をそのままとった値(c)とを表にして示した。その結果からみると、(b)方式はいつも(a)方式より定量値が少し高くなる傾向がある。実験方法からみて当然(c)は(a)より低い値となる。計算した値ではいずれにせよ有効数字 2 衔目で少しの差を生じている。試料の放射能の強いものほど(c)と(a)の

表3 絶対崩壊率の求め方の比較

	積分バイアス曲線より $N_0$ の 外挿値 (a)	式による $N_0$ の計算値 (b)	最初のチャンネルの読み 100 ~ ∞ をとる (c)
計数率	$18,790.8 \pm 43.4$	$18,812.0 \pm 43.4$	$18,766.0 \pm 43.4$
Ci 数	$16.93 \pm 0.04 \times 10^{-10}$	$16.94 \pm 0.04 \times 10^{-10}$	$16.91 \pm 0.04 \times 10^{-10}$
計数率	$5,118.0 \pm 22.7$	$5,126.4 \pm 22.8$	$5,108.5 \pm 22.6$
Ci 数	$4.61 \pm 0.02 \times 10^{-10}$	$4.62 \pm 0.02 \times 10^{-10}$	$4.60 \pm 0.02 \times 10^{-10}$
計数率	$4,998.0 \pm 22.5$	$5,007.4 \pm 22.5$	$4,989.4 \pm 22.5$
Ci 数	$4.50 \pm 0.02 \times 10^{-10}$	$4.51 \pm 0.02 \times 10^{-10}$	$4.54 \pm 0.02 \times 10^{-10}$
計数率	$49.08 \pm 3.25$	$49.70 \pm 3.38$	$48.86 \pm 3.24$
Ci 数	$4.42 \pm 0.29 \times 10^{-12}$	$4.48 \pm 0.30 \times 10^{-10}$	$4.40 \pm 0.29 \times 10^{-12}$

## 2.4 ラジウムのキュリー数の算出

得られた計数率  $N$  から  $^{226}\text{Ra}$  のキュリー数への換算は文献を参照<sup>16), 21)</sup>

## 2.5 ラジウムの全放射化学的収率の求め方

電子総合技術研究所検定のラジウム標準溶液を購入して用いる。希釈の一例を示す。購入したラジウム標準溶液が全放射性物質量  $10.1\mu\text{g} \pm 3\%$ 、比放射性物質量  $2.02\mu\text{g}/\text{gr} \pm 2\%$  であるとらアンプルを開封し重量を測定する。1 mlをとり100 mlにうずめる。再びアンプルの重量をはかり用いたラジウムの量を正確に出す。希釈したラジウム溶液は、 $2.02 \times 10^{-8}$  Ci/g 見当である。その1 mlを100 mlにうすめ  $2.02 \times 10^{-10}$  Ci 見当のものをつくる。まったく同様の操作をおこない  $10^{-12}$  Ci

オーダーのものから順次高い標準溶液をつくっておく。これらの標準溶液を用いて全く同じ操作をしてラドンの測定値を出すことは全放射化学的収率(E·A·Y)を同時に求めることになる。このさいラジウム標準溶液は $10^{-10}$ Ciといった高いものでなく、試料のラジウム量(最初1分計測して推定する)を見当をつけ、それに近い濃度のものを用いるのがよい。したがってあらかじめ何種類か作っておくと便利である。

## Yasuo KANNOH

## 謝辞

本研究の調査研究費の一部は日本温泉工学会研究助成金によるものであり茲に記して深く謝意を表します。又試料採取にあたっては多大の御援助をいただきました(財)中央温泉研究所の方々に厚く感謝いたします。

## Summary

## 文 献

- 1) 真鍋, 石谷, 東京数物誌 **5** 227 (1910), **6** 182, 221, 276, 293 (1911), **7** 10, 32, 33, 36, 151, 222, (1912), **8** 16, 22, 25, (1913)
- 2) 池内, 東京数物誌 **7** 177 (1912); 小野, 東京数物誌 **7** 421 (1912); 近藤, 鹿児島県公報, (1913.8)
- 3) R. Ishizu, The Mineral Springs of Japan (1915), 衛生試験所彙報 第34号 119 (1927)
- 4) 飯盛, 理研彙報 **10** 1105 (1931)
- 5) 鉱泉分析法指針(改訂) 昭和53年5月 環境庁; 温泉工学会誌 **13** No.1 14 (1978)
- 6) 初田, 地学 No.4 26 (1951)
- 7) 木村, 黒田, 横山, 日化誌 **69** 33 (1948)
- 8) 飯盛, 放射化学実験法 38 (1934) 共立出版KK
- 9) 中井, 日化 **58** 292 (1937)
- 10) 中井, Bull. Chem. Soc. Jap. **15** 333 (1940)
- 11) 中井, 日化 **58** 638 (1937)
- 12a) 梅本, 日化 **73** 756 (1952)
- 12b) 古賀, 野崎, 川上, 日化 **78** 642 (1957)
- 13) 野口, 村上 第17回日本化学会年会講演番号2 E07 (1964); 久保, 留目, 野口, 村上 第17回日本温泉科学大会, 講演番号33 (1964); 第18回同大会講演番号1 (1965)
- 14) 堀内, 村上, 温泉科学 **28** No.2 39 (1977)
- 15) 堀内, 村上, 温泉科学 **27** No.1 27 (1976)
- 16) 本間, 村上, J. Radioanal. Chem., **36** No.1 173 (1976)
- 17) 本間, 村上, 分析機器 **15** No.5 35 (1977)
- 18) 国連科学委員会報告(UNSCEAR) (1977)
- 19) 堀内, 村上, 温泉工学会誌 **13** No.2 (1978) 印刷中
- 20) 野口, Radioisotopes **24** No.10 745 (1975)
- 21) 村上, 衛生化学 **20** 156 (1974)