

ISSN 1881-7297

日本保健物理学会専門研究会報告書シリーズ

Vol.2 No.1

水中ラドンに関する専門研究会

2004年12月

日本保健物理学会

日本保健物理学会専門研究会報告書シリーズ ISSN 1881-7297
Vol.2, No.1, 水中ラドンに関する専門研究会

2004年12月

発行者 日本保健物理学会企画委員会
発行所 日本保健物理学会
〒160-0023 東京都新宿区西新宿3-3-11 杉本ビル3F
NPO 事務センター内 日本保健物理学会事務局
TEL : 03-5339-7286
FAX : 03-5339-7285
E-mail : jhps@wwwsocnii.ac.jp
<http://wwwsoc.nii.ac.jp/jhps/index.html>

水中ラドンに関する専門研究会

活動報告書 Rev. 1

平成 16 年 8 月 初版発行

平成 16 年 12 月 Rev. 1 発行

日本保健物理学会

緒言

本報告書は、日本保健物理学会「水中ラドンに関する専門研究会」が平成14年5月から平成16年3月までの間に行った活動をまとめたものである。

(1) 本研究会の設立の背景

地下水にはしばしば高濃度のラドンが含まれている場合がある。このような地下水由来の水を屋内で風呂、炊事、水洗トイレ等に使用した場合、ラドンは水中から屋内空气中に放出される。そのため、水中ラドンは屋内ラドン濃度を高める要因の一つとなりうる。また、地下水を飲料水として利用した場合、飲水することによってラドン及びその子孫核種が体内に摂取される。このように2つの経路から人体に被ばくを与える水中のラドンは、空气中のラドンと同様に潜在的なリスクを人間に与えていることになる。

アメリカの環境保護庁（EPA）では飲料水中のラドン濃度に関する基準が提案されている。すなわち、MCL (Maximum Contaminant Level) : 11Bq/L と AMCL (Alternative Maximum Contaminant Level) : 148Bq/L である。EPAによると、AMCL 以上の濃度の飲料水はラドン低減の必要があり、MCL 以上 AMCL 以下の濃度の飲料水は、飲料水中ラドン濃度を MCL 以下に低減するか又は（水中ラドンによって高められている）屋内ラドン低減の対策を講じるとされている。我が国でも飲料水中のラドン濃度の測定は数多く行われており、それらの結果によると EPA の基準を上回る濃度が数多くの地点で報告されている。このような状況を考えると、我が国においても、水中ラドンに起因する被ばくという保健物理学的な観点からの検討を進める必要がある。

本専門研究会では、水中ラドンに関する測定方法から線量・リスク評価について、これまで各研究者によって蓄積されたデータを今一度整理しつつ、議論することを目的に発足し、検討を重ねた。

(2) 研究会メンバー及び開催記録

本研究会のメンバー（平成16年3月現在）は、次のとおりである。

下 道國（藤田保健衛生大、主査）、堀内公子（大妻女子大）、檜崎幸範（福岡保健環境研）、安岡由美（神戸薬科大）、真田哲也（日本分析センター）、石森 有（サイクル機構）、床次眞司（放医研・ラドン）、吉永信治（放医研・防護体系）、石川徹夫（放医研・ラドン）

本研究会で報告された講演を以下に列挙する。

第1回会合（平成14年8月8日、神戸薬科大にて）

- | | | |
|---------------------------|----------|-------|
| （1）「専門研究会設立の背景について」 | 放医研 | 石川 徹夫 |
| （2）「福岡県における水中ラドン濃度」 | 福岡県保健環境研 | 榑崎 幸範 |
| （3）「国内及び海外におけるラドン濃度規制の動向」 | 放医研 | 床次 眞司 |

第2回会合（平成14年12月17日、放医研にて）

- | | | |
|----------------------------------|----------|-------|
| （1）「井戸水使用によって高められた居住環境中ラドン濃度の事例」 | 福岡県保健環境研 | 榑崎 幸範 |
| （2）「温泉水中のラドン濃度について」 | 大妻女子大 | 堀内 公子 |
| （3）「日本における水中ラドン濃度について」 | 神戸薬科大 | 安岡 由美 |

第3回会合（平成15年7月9日、大妻女子大にて）

- | | | |
|----------------------------|-------|-------|
| （1）「水中ラドン濃度測定装置の相互比較」 | 放医研 | 石川 徹夫 |
| （2）「水中ラドンに起因する健康リスク」 | 放医研 | 石川 徹夫 |
| （3）「岐阜県内鉱泉水に関するラドン濃度比較測定」 | 放医研 | 床次 眞司 |
| （4）「鉱泉分析法指針とEPA法について」 | 神戸薬科大 | 安岡 由美 |
| （5）「疫学的アプローチによる水中ラドンの影響評価」 | 放医研 | 吉永 信治 |

第4回会合（平成15年12月19日、放医研にて）

- | | | |
|--|-------------------------|--------------|
| （1）「Radon-in-water measurements in Hungary and EU」 | Veszprem Univ., Hungary | Nemeth Csaba |
| （2）「増富温泉における比較測定」 | 神戸薬科大 | 安岡 由美 |
| （3）「飲料水中ラドン濃度とがん死亡に関する疫学研究」 | 放医研 | 吉永 信治 |
| （4）「飲料水中ラドンの除去方法」 | 神戸薬科大 | 安岡 由美 |

上記会合以外に、測定器の相互比較を目的として、高濃度のラドンを含む水の現地サンプリング測定を行った。第1回目は、平成15年4月に岐阜県湯乃島ラジウム鉱泉にて、第2回目は平成15年10月に山梨県増富温泉にて実施した。

(3) 本報告書の構成

本報告書は、専門研究会委員が分担して執筆し、水中ラドンの濃度レベル、測定法から水中ラドンに起因する被ばく・リスク評価まで網羅するように構成された。目次及び分担執筆者を次ページに示した。第1章は日本国内の天然水中ラドン濃度レベルについて概括している。第2章は、本専門研究会としてポイントを置いて活動した部分であり、3回にわたって行われた測定法の相互比較実験について2.1から2.3節にまとめてある。また、今までに国内外で用いられてきた水中ラドン測定法を文献によって調査したので、その結果を2.4節で紹介した。第3章は比較実験の結果を受けて、標準的となりうる測定法を手順書的にまとめてある。第3章の内容によって水中ラドンの標準測定法に関して本専門研究会から一つの提案ができたと考えている。第4章は水中ラドンに起因する被ばく（飲水および吸入による被ばく）、第5章は水中ラドンに起因する健康影響評価に関して記述した。

なお、本専門研究会活動に関連して、平成16年7月20日に日本保健物理学会の企画行事として、シンポジウム「水中ラドンー今、何が問題か」が行われた。このシンポジウムでの講演要旨及び総合討論の議事録を本報告書の付録として付けてある。

(4) 変更記録

本報告書の初版は平成16年8月に発行されたが、その後 Rev. 1 にて下記の修正を行った（文中に赤字で示した）。

P10 表 1-1 放射能泉 655 Bq/L → 673 Bq/L に修正（誤記訂正）

P50 22 行目 参考文献 7) …Health Phys., 69, 219-266 (1995) → 266 を 226 に修正（誤記訂正）

目次及び分担執筆者

| | 執筆者 | 頁 |
|---|-------|----|
| 1. 日本における天然水中のラドン濃度 | 安岡、堀内 | 5 |
| 2. 水中ラドン濃度測定法の相互比較 | | |
| 2. 1 比較結果1 <神戸薬科大における結果> | 石川 | 16 |
| 2. 2 比較結果2 <岐阜県内鉱泉による結果> | 床次、石森 | 24 |
| 2. 3 比較結果3 <増富温泉における結果> | 安岡 | 27 |
| 2. 4 各測定法の比較 | 石森 | 37 |
| 3. 水中ラドン標準測定法の検討 <直接法> | 安岡、石森 | 44 |
| 4. 水中ラドンに起因する被ばく | | |
| 4. 1 水中から気中へのラドンの移行による被ばく <井戸水使用家屋における例> | 榎崎 | 54 |
| 4. 2 飲水による被ばく | 石川 | 66 |
| 5. 水中ラドンに起因する健康リスク | | |
| 5. 1 アメリカにおけるリスク評価の解説、規制値の背景 | 石川 | 75 |
| 5. 2 疫学的アプローチによる影響評価 | 吉永 | 82 |
| 付録 シンポジウム「水中ラドンー今、何が問題か」 講演要旨 | | 89 |

1. 日本における天然水中のラドン濃度

I. 緒言

日本において、古くから、ラドン濃度の高い鉱泉水が温泉として広く親しまれており、そのラドン濃度測定は、鉱泉分析法指針¹⁾に基づき行われてきた。一方、ラドンは、肺癌を引き起こす物質として、健康への潜在的なリスクを人に与えていると言われており、米国環境保護庁（EPA）は公共水道に対してラドンの最大汚染レベル（MCL）を11Bq/Lと定めている。²⁾ そのため被ばくという観点からも濃度レベルを把握する必要がある。本章では、今までに国内で行われた天然水中のラドン濃度測定に関するレビューを行った。

II. ラドン温泉

鉱泉分析法指針¹⁾によると、ラドン温泉は表1-1のように分類されており、その成分は源泉において測定することとなっている。日本における高ラドン濃度地帯の情報調査が掘内によって行われており、その報告の中から、ラドンの平均濃度が500Bq/L以上の温泉地域のみを表1-2に示した³⁾。日本温泉・鉱泉分布図及び一覧⁴⁾によると、日本の温泉鉱泉水中の放射能泉（ラドン温泉）の割合は、約8%で、鉱泉水が2%、弱放射能泉4%、放射能泉2%であった。泉温は25度以下の冷鉱泉水が多く、86.5%を占めていた。また、ラドン以外ほとんど他の溶存化学成分を含まない単純冷鉱泉水が主体であった。⁵⁻⁸⁾

III. 地下水、湧水中のラドン濃度

日本では、一般の人が利用する地下水、湧水中のラドンによる集団のリスクという保健物理的観点からのラドン測定例は少ない^{9,10)}。揚水された地下水中のラドンは、減衰や水処理操作により用水として供給されるまでにラドン濃度は減少する¹¹⁾。しかし、家庭用の井戸の場合、揚水中のラドン濃度が蛇口まで保たれている例もある¹²⁾

そこで、今まで報告されている日本における天然水中のラドン濃度を表1-3にまとめた。測定方法において、鉱泉分析法指針¹⁾に準じたトルエン抽出法を用いているデータか、もしくはトルエン抽出法と測定値を比較して大きな差がないことを確認して、他の測定方法を用いているデータを中心にまとめた。表1-3中で飲用に使用されているデータを赤で示した。石井らによって日本名水100選中35ヶ所が測定されており、その中でMCLを超える天然水は14ヶ所であった¹³⁾。また、安岡らが測定した神戸の地下水の中で飲用に使用されている14ヶ所の地下水のうち、9ヶ所がMCLを超えていた¹⁴⁾。飲用に使われている水中のラドン濃度が測定されている例は少なく、今後の調査が必要と思われる。

IV. 天然水中のラドン濃度変動

公共水道中のラドン濃度の変動について、アメリカのノースキャロライナにおいて、2～26ヶ月間の測定期間にわたり測定した14の井戸のうち、13の井戸では、ラドン濃度の相対標準偏差は15%以下であったとDraneらによって報告されている⁴⁵⁾。神戸において、飲用に使われている2つの井戸について2年間(112回測定)と6年間(197回測定)にわたり断続的に測定した結果も、ラドン濃度の相対標準偏差は15%以下であった¹⁴⁾。琵琶湖の湖底の湧出水中のラドン濃度には季節変動(6～8月に低く、12月～2月に高くなる)があると堀内らは報告している⁴⁶⁾。

また、兵庫県南部地震(1995/1/17発生)前に、兵庫県西宮市において、地下水中のラドン濃度が数倍から10倍以上増加したことが、五十嵐らによって報告されている^{47,48)}。

参考文献

- 1) 環境省自然環境局；鉱泉分析法指針，(2002)。
<http://www.env.go.jp/nature/onsen/bunseki/index.html>,
- 2) 石川徹夫，床次眞司，山田裕司；水中ラドンに起因する健康リスク，*Radioisotopes*, **52**, 203-209(2003)。
- 3) 堀内公子；高ラドン濃度地帯の情報調査-温泉水中のラドンの濃度-，国民線量推定のための基礎調査(VIII)，62-73(1995)
- 4) 金原啓司；日本温泉・鉱泉分布図及び一覧，地質調査所，(1992)。
- 5) 堀内公子；放射能と温泉，*放射線科学*, **41**, 420-428，(1998)。
- 6) 堀内公子；ラドン 天然水中のラドン，日本分析センター広報，**28**, 23-30，(1996)。
- 7) 堀内公子；温泉科学 放射能泉，日本分析センター広報，**31**, 37-45，(1997)。
- 8) 堀内公子；温泉水中のラドン濃度，「天然水中ラドン」専門研究会(KURRI-KR-6)，pp43-46，京都大学原子炉実験所，大阪(1997)。
- 9) 福井正美；地下水中ラドン濃度とリスク評価の不確実性，同上，pp125-132，(1997)。
- 10) 福井正美；地下水とラドン，日本原子力学会誌，**37**, 1017-1025(1995)。
- 11) 福井正美，桂山幸典；泉南地域大阪層郡の地下水中における²²²Rn濃度測定，「環境中における自然放射能の動態に関する研究」研究会報告(KURRI-TR-155)，pp52-59，京都大学原子炉実験所，大阪(1977)。
- 12) 安岡由美，石井忠，床次眞司，卓維海，山田裕司，志野木正樹；生活用水中のラドンによる室内ラドン濃度への影響，日本保健物理学会第37回研究発表会講演要旨集，**9**(2003)。
- 13) 石井忠，堀内公子；天然水中ラドン，環境ラドン(下道国，他；編集)，pp160-166，

電子科学研究所, 大阪 (1992) .

- 14) Yasuoka, Y., Shinogi, M. ; Determination of radon concentrations in natural water in the Rokko area (Japan) and evaluation of its effective dose, *Radioisotopes*, **49**, 551-557 (2000)
- 15) 望月定, 丹治辰夫, 西村和明 ; 北海道二股温泉の冷泉水中のラドン濃度, 「天然水中ラドン」専門研究会 (KURRI-KR-6), pp111-114, 京都大学原子炉実験所, 大阪 (1997) .
- 16) 斉藤正明, 高田茂, 岡野安宏, 小池雄治, 鈴木隆司, 半田圓 ; 東京およびその周辺の地下水中ラドン濃度分布, *Radioisotopes*, **42**, 273-278 (1993).
- 17) 長谷川国彦 ; 地下水中のラドン濃度の測定法, 「天然水中ラドン」専門研究会 (KURRI-KR-6), pp1-4, 京都大学原子炉実験所, 大阪 (1997) .
- 18) 大沼章子, 河村典久 ; 愛知県における地下水中ラドン濃度について, 同上, pp103-110 (1997) .
- 19) 下道国 ; 水中のラドン濃度-中部地方の測定値を中心として, 同上, pp97-98 (1997) .
- 20) Shimo, M., Sugino, M. and Hatano, H. Measurement of radon concentration in water of campus, dormitory and student home in south area of Gifu prefecture and northwest area of Aichi prefecture, *Japanese J. of Health Phys.* 38(3) 261-266, 2003.
- 21) Shimo, M. Measurements of radon concentration in domestic water and in river water, The 5th low level counting conference using liquid scintillation analysis, Yokohama, 1996.
- 22) 下 道国 : 液体シンチレータによるラドンの測定, 岐阜医療技術短期大学紀要, 11, 23-30, 1995.
- 23) 徳山秀樹, 五十嵐修一 ; 福井県若狭地区における飲料水中のラドン濃度, 同上, pp15-20 (1997) .
- 24) 柴田せつ子, 川野瑛子, 伊藤琳典, 益田晴恵, 鶴巻道二 ; 大阪周辺の天然水のラドン濃度, 同上, pp99-102 (1997)
- 25) 柚木英志 ; 人形峠周辺の井戸水・河川水中の ²²²Rn 濃度, 同上, pp31-36 (1997) .
- 26) 古田定昭 ; 人形峠周辺における水中ラドン濃度, 同上, pp37-42 (1997).
- 27) 静間清 ; α , γ スペクトロメトリによる水中ラドン濃度の測定 : 広島県内における湧水, 地下水のラドン濃度分布, 同上, pp21-30 (1997).
- 28) 森嶋弥重, 他 ; 三朝地域における水中ラドン濃度, 同上, pp115-124 (1997) .
- 29) 石井忠, 堀内公子, 村上悠紀雄 ; 高々温泉 (>60°C) 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 (1984) .

- 30) 堀内公子, 酒井幸子, 関茂雄, 木暮金太夫; 群馬県の温泉のラドン濃度, 同上, **46**, 79-86 (1996) .
- 31) 堀内公子, 石井忠, 相川嘉正, 加藤尚之, 塚本邦子; 千葉県温泉と放射能, 大妻女子大学紀要-社会科学系-社会情報学研究 **4**, 103-110 (1995) .
- 32) 堀内公子, 石井忠, 村上悠紀雄; 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 (1979) .
- 33) 堀内公子, 村上悠紀雄; 鉱泉中のラジウム, ラドン同時定量に関する研究 その 1, 同上, **29**, 68-75 (1978) .
- 34) 堀内公子; 日本の温泉の放射能, 同上, **31**, 69-78 (1981) .
- 35) 堀内公子, 村上悠紀雄; 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たいする一考察, 地球化学, **12**, 59-70 (1978) .
- 36) 甘露寺泰雄, 堀内公子, 村上悠紀雄; 勝浦湯川地区における Ra, Rn の存在とその起因に関する地球化学的考察, 温泉科学, **29**, 183-191 (1979) .
- 37) 堀内公子, 村上悠紀雄; 液体シンチレーションカウンタによる鉱泉中の低レベルラドンの定量について, 同上, **27**, 23-28 (1976) .
- 38) Horiuchi, K., Ishii, T., Kobayashi, M.; Liquid scintillation counting measurements radon from seepage groundwater in Lake Biwa, Japan, Liquid Scintillation Spectrometry 1992, edited by J.E.Noakes, F.Schönhofer and H.A.Polach. RADIOCARBON 1993, pp.383-390 (1993) .
- 39) 堀内公子, 石井忠, 小林正雄; 黒部川扇状地における地下水の流動解析, 大妻女子大学紀要-社会科学系-社会情報学研究 **7**, 55-61 (1998) .
- 40) 堀内公子; 野川流域の自噴井, 濡水, 地下水中のラドンの分布と環境放射能への寄与に関する研究, とうきゅう環境浄化財団研究助成, **132**, 1-39 (1990) .
- 41) 斎藤正明; 水中ラドン抽出測定における濃度計算の注意点, 「天然水中ラドン」専門研究会 (KURRI-KR-6), pp5-14, 京都大学原子炉実験所, 大阪 (1997) .
- 42) 仲川隆夫, 佐藤修, 橋本哲夫; 液体シンチレーション法による天然水中の ^{222}Rn 濃度の直接測定, *Radioisotopes*, **38**, 20-23 (1989).
- 43) Michihiro, K., Sugiyama, H., Kataoka, T., Simizu, M., Yunoki, E. and Mori, T.; Direct measurement of ^{222}Rn in natural water by a gamma ray spectrometer with a Ge detector, *Radioisotopes* **40**, 38-41 (1991).
- 44) 浜中俊一他; 最尤推定法と最小二乗法による水中ラドンの α 線スペクトル解析, 第 34 回理工学における同位元素研究発表会要旨集, p.144 (1997) .
- 45) Drane W.K., York E.L., Hightower J.H. III, Watoson J.E.; Variation of ^{222}Rn in

- public drinking water supplies, *Health. Phys.*, **73**, 906-911 (1997).
- 46) 堀内公子；地球化学におけるラドン，環境ラドン（下道国，他；編集），pp104-115，電子科学研究所，大阪（1992）。
- 47) Igarashi, G., Saeki, S., Takahata, N., Sumikawa, K., Tasaka, S., Sasaki, Y., Takahashi, M. and Sano, Y. ; Ground-water radon anomaly before the Kobe earthquake in Japan. *Science*, **269**, 60-61 (1995).
- 48) 五十嵐丈二：地震に関連した地下水の水位・ラドン濃度変化のいくつかの特徴と地震予知の可能性. 地球化学, 30, 1-16, (1996).

表1-1 ラドン温泉の基準

| | | |
|-----|-------|-------------|
| | | ラドン濃度 |
| 鉱泉 | | 74 Bq/L 以上 |
| 療養泉 | 弱放射能泉 | 111 Bq/L 以上 |
| | 放射能泉 | 673 Bq/L 以上 |

表1-2. ラドンを含む温泉地域³⁾

| 地名 | ラドン濃度 (Bq/L) | | | 泉数 |
|----------|--------------|--------|-------|-----|
| | 平均値 | 最高値 | 最低値 | |
| 島根県 池田 | 22,812 | 58,258 | 3,081 | 5 |
| 山梨県 増富 | 2,680 | 11,145 | | 80 |
| 鹿児島県 垂水 | 2,442 | | | 2 |
| 岐阜県 恵那高山 | 1,151 | 5,335 | | 25 |
| 岐阜県 恵那笠置 | 791 | 2,081 | | 4 |
| 兵庫県 蓬萊峡 | 782 | | | 3 |
| 鳥取県 三朝 | 742 | | 41 | 277 |
| 岐阜県 恵那鶴間 | 636 | | | 1 |
| 岐阜県 恵那蛭川 | 631 | 1,324 | 124 | 15 |
| 兵庫県 有馬 | 624 | | 3 | 25 |
| 新潟県 村杉 | 616 | 667 | 542 | 6 |
| 長野県 大桑 | 598 | 878 | 70 | 11 |
| 岐阜県 恵那福岡 | 587 | 1,507 | | 6 |
| 新潟県 枋尾又 | 562 | 1,265 | 314 | 8 |
| 岐阜県 土岐稲津 | 538 | 911 | 192 | 2 |

表1-3. 日本における天然水中のラドン濃度（その1）

| 採取場所 | 対象試料 | ラドン濃度 (Bq/L) | 測定法 | 備考 | 著者文献 |
|-----------------------|-----------|------------------|-------------------------------|---|---------------------|
| 北海道 二股温泉 | 冷泉水 | 69.6~112.4 | NaI 検出器法 | 冷泉のラドン濃度の変動と水温変化について | 望月 ¹⁵⁾ |
| 東京 | 井戸水 | 0~45 | トルエン抽出法 | 1114データの解析 湧水・研究・上水道用 (57%) 工業用 (12%) 公衆浴場・雑用水 (16%) 家庭用 (14%) | 斉藤 ¹⁶⁾ |
| 静岡大学 | 井戸水 | 19.8 18.5 | トルエン抽出法, 直接法 ^{A)} | 測定方法の検討 | 長谷川 ¹⁷⁾ |
| 愛知 | 地下水 湧水 | <0.3~896 | トルエン抽出法 | | 大沼 ¹⁸⁾ |
| 愛知県内 花崗岩地帯 | 地下水 | 115 | | | |
| 愛知県内 堆積層・ 変成岩地帯 | 地下水 | 4.3~18.7 | | | |
| 関市及び 周辺 | 市水 | 7.7以下 | トルエン抽出法 | | 下 ¹⁹⁻²²⁾ |
| | 井戸水 | 0.26~22.3 | | | |
| | 地下水 | 2.25 | | | |
| 中部地方 | 温泉水 | 2.1~4700 | | | |
| | 水道水 | 0.85~10.6 | | | |
| | 井戸水 | 49.2~258 | | | |
| | 湧水 | 84.9~288 | | | |
| | 地下水 | 2.5~41 | | | |
| | 沢水 | 3.6~4.4 | | | |
| | 海水 | 検出限界以下 | | | |

注：表中の赤太字は、飲料水に用いられていることを示す。

表1-3. 日本における天然水中のラドン濃度（その2）

| 採取場所 | 対象試料 | ラドン濃度 (Bq/L) | 測定法 | 備考 | 著者 文献 |
|----------------------------|-----------|---------------------------|------------------------|------------------------|-------------------|
| 福井県 若狭地区 | 地下水 | 28.5 (0.7~943) | 直接法 ^{B)} | 花崗岩地帯とその他の 地域で比較 | 徳山 ²³⁾ |
| | 簡易水道 | 5.0 (1.2~59) | | | |
| | 上水道 | 11.2 (1.2~104) | | | |
| 大阪 | 地下水 | 8.7~71.0 | トルエン 抽出法 | | 柴田 ²⁴⁾ |
| 兵庫 | 地下水 | 2.5~65.5 | | | |
| | 河川水 | 0.8 | | | |
| 大阪周辺 | 地下水 | 33.6~170.1 | | | |
| 兵庫県 神戸市 と周辺 | 湧水 地下水 | 2.6~212 | トルエン 抽出法 | | 安岡 ¹⁴⁾ |
| | 飲用水 | 2.6~78.6 | | | |
| 有馬温泉 | 湧水 | 657 1281 | | | |
| 岡山県 上斎原 | 井戸水 | 0.6~82.9 | トルエン 抽出法 | 飲料水等の長期間 (10年以上) 測定 | 柚木 ²⁵⁾ |
| | 河川水 | 0.1~7.7 | | | |
| 人形峠 付近 (広島県, 岡山県) | 坑水 | 15.4~512 | トルエン 抽出法 | 鉱山跡施設周辺の測定 | 古田 ²⁶⁾ |
| | 河川水 | <0.1~11 | | | |
| | 飲料水 | 0.1~230 | | | |
| 東広島市 | 地下水 | 123 (11~459) | α線, γ線 スペクト ロメトリ | 測定方法の検討 | 静岡 ²⁷⁾ |
| 広島県 | 地下水 | 10~2033 | | | |
| | 鉱泉 湧水 | | | | |
| 島根県 | 鉱泉等 | 6.6~3314 | | | |
| 岡山県 | | 30~71 | | | |

注：表中の赤太字は、飲料水に用いられていることを示す。

表1-3. 日本における天然水中のラドン濃度（その3）

| 採取場所 | 対象試料 | ラドン濃度 (Bq/L) | 測定法 | 備考 | 著者 文献 | | |
|------------------------------|-----------------|-------------------|-------------------|--|-------------------|----------------------|----------------------|
| 鳥取県 三朝地区 | | | 直接法(ピコ ラドシステム) | ラドン濃度の季節変動 トルエン抽出法, 直接法, 直接法(ピ コラドシステム)の 比較 | 森嶋 ²⁸⁾ | | |
| 三朝温泉 | 温泉水 | 23.3~512.9 | | | | | |
| 曹源寺 | 鉱泉 | 0.81~40.8 | | | | | |
| 福本 | 井戸水 | 60.9 | | | | | |
| 大柿 | 井戸水 | 1.6~400.2 | | | | | |
| 三徳川 | 河川水 | 5.3~14.6 | | | | | |
| 兵庫県 | | | | | | | |
| 川西 | 井戸水 | 10.7 | | | | | |
| 全国 | 湧水 | 12.98 | トルエン抽 出法 | | 石井 ¹³⁾ | | |
| 名水百選 | 地下水 | 0.24~98.91 | | | | | |
| 全国 | 温泉水 | 0.037~37000 | 不明 | | 堀内 ⁶⁾ | | |
| | 河川 湧水 地下水 | 0.037~370 | | | | | |
| 60度以上 の温泉 宮城県鳴 子温泉等 | 温泉水 | 0.4以下 | トルエン抽 出法 | | 石井 ²⁹⁾ | | |
| 群馬県 県内の主 要な温泉 | 温泉水 | 67.6以下 | | | | 31温泉地 56源泉の データ | 堀内 ³⁰⁾ |
| 千葉県 温・鉱泉 | 温泉水 | 21.3以下 | | | | | 堀内 ³¹⁾ |
| 静岡県 伊豆半 島 | 温泉水 | 8.5以下 | | | | ラドン, ラジウム, トロ ン測定 | 堀内 ³²⁻³⁴⁾ |

注：表中の赤太字は、飲料水に用いられていることを示す。

表1-3. 日本における天然水中のラドン濃度（その4）

| 採取場所 | 対象試料 | ラドン濃度 (Bq/L) | 測定法 | 備考 | 文献 |
|------------------------|----------------|-----------------|-------------|-------------------|---|
| 山梨県 増富温泉 | 温泉水 | 3.2～1006 | トルエン抽出 法 | ラドン, ラジウ ム同時測定 | 堀内 ^{33, 35)} |
| 長野県 杓掛温泉他 | 温泉水 | 1.5以下 | | | 堀内 ³³⁾ |
| 岐阜県 瑞浪温泉 | 温泉水 | 32～172 | | | 堀内 ³³⁾ |
| 和歌山県 白 浜温泉 | 温泉水 | 0.16以下 | | | 堀内 ³⁵⁾ |
| 和歌山県 勝 浦温泉他 | 温泉水 | 0.8以下 | | | 堀内 ³³⁾ , 甘露寺 ³⁶⁾ |
| 岡山県 湯郷温泉 | 温泉水 | 2.4以下 | | | 堀内 ³³⁾ |
| 鳥取県 三朝温泉 | 温泉水 | 8.4～544 | | | 堀内 ^{33, 35)} |
| 鳥取県 関金, 東郷, 浅津温泉 | 温泉水 | 6～199 | | | 堀内 ³³⁾ |
| 大分県 八丁原温泉 | 温泉水 (95度以上) | 12.5以下 | | | 堀内 ³³⁾ |

表1-3. 日本における天然水中のラドン濃度（その5）

| 採取場所 | 対象試料 | ラドン濃度 (Bq/L) | 測定法 | 備考 | 文献 |
|---------------|-------|-----------------|-------------|-------------------|-------------------|
| 茨城県 小川町湧水 | 湧水 | 0.3 | トルエン 抽出法 | | 堀内 ³⁷⁾ |
| 山梨県 増富温泉地域 | 河川水 | 0.7以下 | | 堀内 ³⁷⁾ | |
| 滋賀県 琵琶湖周辺 | 湖底漏出水 | 17.98以下 | | 堀内 ³⁸⁾ | |
| | 湖の水 | 4.48以下 | | | |
| | 河川水 | 8.58以下 | | | |
| 富山県 黒部川扇状地 | 地下水 | 45.6以下 | | 地下水流動解析 | 堀内 ³⁹⁾ |
| 東京都 野川流域 | 湧水 | 1.4～28.4 | 地下水中ラドンの分布 | 堀内 ⁴⁰⁾ | |

測定方法概略

1)トルエン抽出法

鉱泉分析法指針¹⁾に準じた方法で、試料水(約1L)をトルエンシンチレータで抽出し、液体シンチレーションカウンタで測定する方法。⁴¹⁾

2)直接法

乳化剤入りシンチレータに試料水を混合させて、液体シンチレーションカウンタで測定する方法。

A)乳化シンチレータ(パッカード社ULTIMA-FLO M)50mLと試料水50mLを混和。

B)乳化シンチレータ(パッカード社INSTA-GEL)60mLと試料水40mLを混和。

その他 乳化シンチレータ(パッカード社 Pico-Fluor LLT)50mLと試料水50mLを混和。⁴²⁾

3) α 線, γ 線スペクトロメトリ

²²²Rnの娘核種の²¹⁴Pb(半減期26.8分)と²¹⁴Bi(半減期19.9分)が放出す

る γ 線をGe検出器で測定。^{26,43)}

ラドンの α 線を液シ α 線スペクトロメトリで測定。^{26,44)}

4) NaI検出器による測定⁴⁰⁾

²¹⁴Pb(352keV)と²¹⁴Bi(609keV)の γ 線ピークエリアの計数値より水中ラドン濃度を求める方法

5) 直接法(ピコラドシステム)

液体シンチレーションカウンタでパッカード社製ピコラドシステムを用いて測定する方法。

2. 水中ラドン濃度測定法の相互比較

前章でも述べたように、従来から多くの研究者が井戸水、湧水などを対象として水中ラドン濃度の測定を行ってきた^{1,2)}。水中ラドン濃度の測定には液体シンチレーションカウンタが多く使われてきているが、他にもいくつかの方法が考案されている。

例えば、温泉成分を分析する際に指針となる「鉱泉分析法指針（改訂）」（環境省自然環境局監修）^{3,4)}で指定されている IM 泉効計や、Ge 検出器によるガンマ線スペクトロメトリ⁵⁾などである。また海外では、バブリング装置（水試料に空気を送って泡立たせる装置）を使って水中のラドンを気中に追い出し、それを気中ラドンモニタで測定する装置も良く使用されている⁶⁾。アメリカ環境保護庁（USEPA）では液体シンチレーションカウンタの他に、バブリング装置とシンチレーションセルとを組み合わせた測定法を標準的な測定方法として指定している。

このように異なる測定方法が利用される現状を考えると、それらの測定方法を相互に比較しておくことは、測定方法の信頼性を確認するために一つの有効な手段である。我が国においても IM 泉効計と液体シンチレーションカウンタを相互比較した例は報告されている^{7,8)}。しかしながら、バブリング装置と気中ラドンモニタとを組み合わせた装置に関しては、今まで他の装置との比較測定は行われていなかった。また、液体シンチレーションカウンタを用いた方法では、鉱泉分析法指針が一つの標準として考えられてきたが、測定機関（測定者）によっては異なる方法も考案されてきた。本章では、液体シンチレーションカウンタを始めとする代表的な装置を用いて、3 回にわたって行われた比較測定の結果を以下の 2.1 から 2.3 節に示す。2.1 節は既報（石川徹夫ら、Radioisotopes, 53(3), 133-140, 2004）でも発表している内容である。2.4 節では、2.1 から 2.3 節で紹介した測定法のほか、文献によって調べた水中ラドン測定法を紹介した。

2. 1 比較結果 1 <神戸薬科大における結果>

I. 緒言

本節では、同一水源から採取したサンプルを用いて、液体シンチレーションカウンタ、IM 泉効計、電離箱式ラドンモニタ、静電捕集式ラドンモニタの 4 種類の測定器の相互比較を行ったので、その結果を以下に示す。

II. 方法

(1) 試料のサンプリング及び輸送

比較のために用いたサンプルは、神戸薬科大学構内及び香川県内にて採取した地下水である（以降、これらの水源から採取した試料をそれぞれ試料 A、試料 B と呼ぶ）。予備的な実験の結果、これら試料 A、B のラドン濃度はそれぞれ約 220Bq/L、及び 900Bq/L であった。サンプルの採取には、輸送中のラドンの漏れ（あるいは吸着）が比較的少ないガラス瓶を用いた。水源から 1 リットルのガラス瓶に静かに試料を注ぎ、ガラス瓶が満水になってから約 1 分間、水を流し続けた後に、シリコン製の栓をして密封した。サンプルを長時間、輸送あるいは保管すると、容器からラドンが漏えい、あるいは容器にラドンが吸着して濃度が減少する可能性もある。例えばポリエチレンに関しては、2 つの研究^{9,10)}においてラドンの吸着（あるいは内部への吸収）が起これると結論づけている。斉藤⁹⁾は、ポリエチレン瓶（容積：1.1 リットル）に試料を保管した場合、1 日で約 10% の濃度の減少が見られたと報告している。そのため同一水源からサンプルを採取しても、サンプルの輸送・保管条件が異なれば、サンプル間に濃度差が生じてしまう可能性がある。そこで、サンプルの濃度差をできるだけ少なくするために、測定器を一ヶ所（神戸薬科大学）に持ち寄って測定を行った。神戸薬科大学の地下水（試料 A）については、採取した日に同大学の構内で測定を行った。香川県内にて採取したサンプル（試料 B）は冷蔵の宅配便で神戸薬科大学に送付し、同大学にて測定を行った。

(2) 測定器及び測定方法

比較測定に用いた装置は以下の 4 種類である。

①液体シンチレーションカウンタ（Packard 社 Model 2300TR）

液体シンチレーションカウンタは、鉱泉分析法指針^{3,4)}によって標準的な測定法が指定されているので、この方法に準じて測定を行った。トルエンシンチレータを使ってラドンを試料から抽出して、ラドンとその子孫核種が平衡状態に達するまで約 4 時間待った後に液体シンチレーションカウンタにて測定を行った。

異なる測定器による値の違いを見るためには、同一水源から採取したサンプル間の濃度差が少ないことを確認しておく必要がある。そのためサンプル間の濃度のばらつきを調べる目的で、試料 A、B それぞれについて 3 本ずつのサンプルを液体シンチレーションカウンタで測定した。その他の 3 種類の装置では、試料 A、B についてそれぞれ 1 本ずつのサンプル測定からラドン濃度を評価した。

②IM 泉効計（理研計器製）

この装置は、1930年代に理化学研究所の飯盛里安が考案したもので、液体シンチレーションカウンタが普及するまでは我が国で広く用いられてきた経緯がある¹²⁾。この装置は「鉱泉分析法指針^{3,4)}」において、温泉水中のラドン濃度を測定するための装置として指定されているので、現在でも各地の衛生研究所等で使用されている。

例えば、ある場所で湧出した地下水が温泉法^{13,14)}で定義される「温泉」であるかどうかは、温泉を利用する業者、施設にとっては重大な問題である。この「温泉」であるか否かの判定は、登録された分析機関（各地の衛生研究所等）でその地下水成分を分析した結果によって決められる。この成分分析の指針が「鉱泉分析法指針」なので、この指針の中で指定機器となっているIM 泉効計は現在でも使用されているという現状がある。

IM 泉効計の使用実績に関する具体例としては、九州及び沖縄（8県）における温泉水中のラドン分析を報告した文献¹⁵⁾がある。これによると、ラドン分析を行っている県は8県中5県で、そのうち測定機器としてIM 泉効計を使用している県は3県（福岡、佐賀、長崎）であった。平成14年度には福岡県で22件、佐賀県で14件、長崎県で1件のラドン分析が行われている。これらの分析によって、分析対象の地下水が温泉／療養泉^{13,14)}の基準に適合するか否かが判定されている。

IM 泉効計の構造を図3-1-1に示した。この装置による測定は次のような手順で行われている。(1) Aの部分に収納されている箔検電器は、測定前にBの荷電器を用いて荷電しておく。これにより電荷を蓄えた箔が反発して、箔が開いた状態となる。(2) Eの試料を入れない状態でFの穴をゴム栓で閉じる。バックグラウンド放射線の影響等でCの電離槽内でイオンが生じると、検電器から電荷が減少していく。これによって箔が閉じていく。その時の箔の移動速度をAにより測定し、バックグラウンドとする。(3) 校正用の標準線源G（酸化ウランの面状線源）をFから挿入し、箔の移動速度をAにより求める。これからバックグラウンドを考慮して校正定数を決定する。(4) A、B、Dを外してゴム栓をし、Fから試料をCの底に入れる（Fから試料がオーバーフローするまで）。(5) Fにゴム栓をしてC全体を振る。これにより試料E中のラドンがC内に放出される。(6) A、B、Dを取り付けて、箔の移動速度を測定する。なお高ラドン濃度の試料の場合には、箔の移動速度が速すぎて肉眼では観察しにくいいため、蒸留水で希釈してから測定する必要がある。

測定原理としては、箔の動く速度（電荷減少の速度）は単位時間あたりの電離量に比例すると考えられるので、箔の動く速度を標準線源と試料とで比較することによってラドン濃度を推定するというものである。標準線源として使われるウラン代用標準の放射能は、飯盛¹⁶⁾がラジウム標準溶液を用いて検定した実験をもとに、「ラドン当量」とい

う単位で値付けされている。

③パルス型電離箱式ラドンモニタ（製品名；AlphaGUARD, Genitron Instruments 社製）

この装置は、パルス型電離箱式ラドンモニタとして空气中ラドン濃度の測定に広く使用されており¹¹⁾、別売のバブリングキットを接続することによって、水中ラドン濃度の測定も可能である。測定原理としては、(1)バブリングによって、水サンプルから気中にラドンを追い出す、(2)閉鎖系を作ってポンプで空気を循環させることにより、追い出したラドンを電離箱内に導く、(3)アルファ線による電離から生じたパルスをカウントし、単位時間あたりのカウント数からラドン濃度を評価するという原理である。

④静電捕集式ラドンモニタ（製品名；RAD7, DurrIDGE Company 製）

この装置は、静電捕集式ラドンモニタとして空气中ラドン（トロン）濃度の測定に使用されており¹¹⁾、別売のバブリングキットを接続することによって、水中ラドン濃度の測定が可能になる。測定原理としては、(1)バブリングによって水中から気中にラドンを追い出す、(2)閉鎖系を作ってポンプで空気を循環させることにより、追い出したラドンを電界のかかったチェンバー内に導く、(3)ラドンの壊変によって生成した²¹⁸Poは通常プラスに帯電しているため、²¹⁸Poは半球状チェンバー内の電界作用によって半導体検出器（半球状チェンバーの中心に位置する）上に捕集される、(4)半導体検出器によってアルファ線のスペクトルを分析し、²¹⁸Poのカウント数を計測する、(5)²¹⁸Poのカウント数から親核種のラドン濃度を評価するという原理である。なおこの装置は都合により試料Aに関する比較測定しか行えなかった。

III. 結果

サンプル間の濃度のばらつきを調べるために、液体シンチレーションカウンタによって複数のサンプルを測定したところ、試料Aについては 231 ± 4 Bq/L、試料Bについては 908 ± 7 Bq/Lという値が得られた。これらの標準偏差は測定値の2%以内であり、サンプル間の濃度差は十分に小さいと考えられた。

試料A、Bそれぞれについての測定結果を表3-1-1に示した。パルス型電離箱式ラドンモニタ（AlphaGUARD）、静電捕集式ラドンモニタ（RAD7）の測定値に関しては、計数誤差に基づく誤差を示した。IM泉効計は、測定回数が1回であったこと、及び箔の移動速度を測定して濃度を計算することから、計数誤差は評価されなかった。また表3-1-1には液体シンチレーションカウンタの測定値に対する各装置の測定値の比（表3-1-1に比と示しある）も示してある。試料A、Bともに、IM泉効計を除くと3種類の装置の差は±3%以内で

あった。しかしながらIM泉効計は、試料Aについて47%、試料Bについては22%大きい値であった。これには何らかの系統的な要因があると考えられる。

IV. 考察

IM 泉効計による測定値は、他の方法による測定値に比べて大きな差が生じた。測定手順から考えられる IM 泉効計の問題点としては、(1)測定系からのラドンの漏れ、及び(2)「ウラン代用標準」という線源を用いる校正方法が挙げられる。前者に関して言えば、「測定器及び測定方法」の節で言及したように、測定試料を電離槽内に入れる時（電離槽は密閉されていない状態）、あるいは高ラドン濃度の試料を蒸留水で希釈する時に、ラドンが少なからず測定系の外に漏洩していると考えられる。

しかしながらラドンの漏れが測定値の不一致の主要因であったならば、測定値は低めに出るはずである。他の方法に比べて高めの値が出たということは、差の主な原因は校正方法であると考えられる。校正に用いられているウラン代用標準は、飯盛によって¹⁵⁾「ラドン当量」という単位で値付けされているとはいえ、それは70年以上も前の実験である。当時の実験技術を考えると、値付けには相当量の誤差が生じていたことも考えられる。この値付けを再検討するために、既知濃度のラドンを電離槽の中に封入して IM 泉効計を再校正し、ウラン代用標準による校正と比較することが必要であろう。

一方で、空気中ラドンモニタとバブリング装置とを組み合わせた装置（パルス型電離箱式ラドンモニタ、静電捕集式ラドンモニタ）に関しては、液体シンチレーションカウンタと良く一致した結果となった。これらの装置は、（バブリング装置を除いた）空気中ラドンモニタとしては、海外の複数のラドン校正施設で校正が行われている。メーカーの仕様によると校正に基づく誤差は±3%（パルス型電離箱式ラドンモニタ）、±2%（静電捕集式ラドンモニタ）以内ということである。また、液体シンチレーションカウンタでバブリング後の試料を測定したところ、水中ラドンは平衡状態になるまで空気中に追い出されていることがわかった。

以上の実験結果を踏まえると、気中ラドンモニタとバブリング装置とを組み合わせた装置も液体シンチレーションカウンタと同等の測定値が得られる装置とみなしてよいと考えられる。

V. まとめ

水中ラドン濃度測定装置の信頼性確認のために、同一水源から採取したサンプルを用いて、4種類の装置に関する比較実験を行った。液体シンチレーションカウンタを基準にして、他の装置の測定値の比をとってみると、IM 泉効計以外の2種類の装置（バブリ

ング装置+パルス型電離箱式、静電捕集式ラドンモニタ)については概ね良好な結果で、測定値の差は±3%以内であった。空气中ラドンモニタ(パルス型電離箱式、静電捕集式)とバブリング装置とを組み合わせた装置は、持ち運び可能であり、試料採取現場で測定値を得ることが可能である。現在では気中ラドンモニタは感度や可搬性が向上して各研究機関にかなり普及してきている。今後は、液体シンチレーションカウンタとともに、気中ラドンモニタとバブリング装置とを組み合わせた測定方法も、広く使われるようになるかもしれない。

一方でIM泉効計は、試料Aについて47%、試料Bについては22%の差が生じた。また2.2節にて後述する結果では液体シンチレーションカウンタと比べて約80%以上の差が生じた。これには何らかの測定法上の問題点が存在すると考えざるを得ない。IM泉効計の測定値は液体シンチレーションカウンタと比べて差があることは以前から指摘されていたが、鉱泉分析法指針(2000年改定)では依然としてIM泉効計が分析装置として指定されている。そのため今でも放射能泉の認定等に使用されている。今後、IM泉効計に関する測定値の再確認や校正方法の検討が必要であろう。

参考文献

- 1) 福井正美：地下水とラドン，日本原子力学会誌，**37**，1017-1025 (1995)
- 2) 京都大学原子炉実験所：「天然水中ラドン」専門研究会，KURRI-KR-6 (1997)
- 3) 環境省自然環境局編：鉱泉分析法指針(改訂)，温泉工学会誌，**13**，1-21 (1978)
- 4) 環境省自然環境局；鉱泉分析法指針，(2002)。
<http://www.env.go.jp/nature/onsen/bunseki/index.html>
- 5) Michihiro, K., Sugiyama, H., Kataoka, T., Shimizu, M., Yunoki, M. and Mori, T. : Direct measurement of ^{222}Rn in natural water by a gamma ray spectrometer with a Ge detector, *Radioisotopes*, **40**, 38-41 (1991)
- 6) Kitto, M.E., Kuhlend, M.K. and Dansereau, R.E. : Direct comparison of three methods for the determination of radon in well waters, *Health Phys.*, **70**(3), 358-362 (1996)
- 7) 大沼章子, 加賀美忠明, 清水通彦, 茶屋邦男, 浜村憲克：液体シンチレーションカウンタによる愛知県下の地下水中ラドン濃度の定量について，愛知衛所報，**32**，63-67 (1982)
- 8) 歳弘克史, 藤原美智子, 河村憲治：鉱泉のラドン測定における液体シンチレーションカウンタの有用性について，山口県衛公研年報，**35**，72-73 (1992)
- 9) Saito, M. : Correction for loss of ^{222}Rn in water sample in polyethylene bottle,

Radioisotopes, **32**, 109-112 (1983)

10) 阪元重康, 小菅大裕, 古田定昭, 石森有: 各種材料表面へのラドンガスの吸着, *Radioisotopes*, **52**, 29-35 (2003)

11) George, A.C.: State-of-the-art instruments for measuring radon/thoron and their progeny in dwellings- a review, *Health Phys.*, **70**(4), 451-463 (1996)

12) 阪上正信: 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**(2), 189-197 (1998)

13) 堀内公子: 日本の温泉と放射線, *日本放射線技術学会誌*, **57**(12), 1462-68 (2001)

14) 社団法人 日本温泉協会: 温泉必携 (改定第8版) (1998)

15) 宮崎県衛生環境研究所: 温泉水中のラドン測定値について, 第29回九州衛生環境技術評議会 衛生化学分科会予稿集, 16-18, (2003)

16) 飯盛里安: 泉効計の改造とラドンの代用標準, *理研彙報*, **10**, 1105-30 (1931)

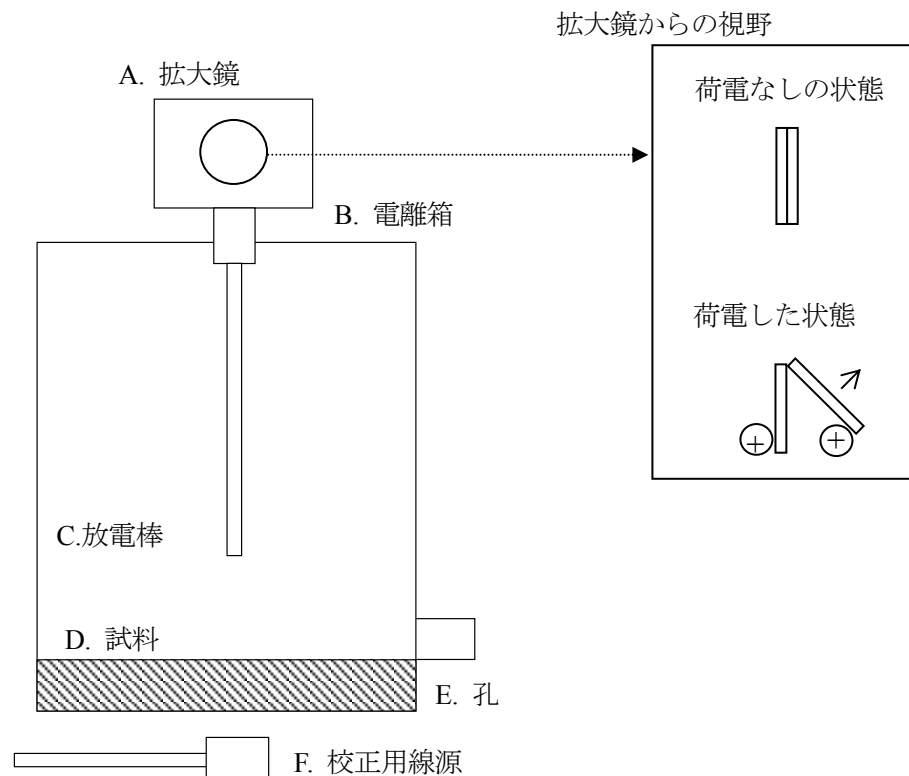


図 2-1-1 IM泉効計の構造

表 2-1-1 異なる装置で測定された水中ラドン濃度の比較

| 試料 | 液体シンチレーションカウンタ | I M 泉効計 | | パルス型電離箱 (アルファガード) | | 静電捕集式ラドンモニタ (RAD7) | |
|----|----------------|------------|------|-------------------|------|--------------------|------|
| | 測定値 (Bq/l) | 測定値 (Bq/l) | 比 | 測定値 (Bq/l) | 比 | 測定値 (Bq/l) | 比 |
| A | 231±4 | 339 | 1.47 | 231±7 | 1.00 | 223±7 | 0.97 |
| B | 908±7 | 1110 | 1.22 | 928±6 | 1.02 | - | - |

2. 2 比較結果2 <岐阜県内鉱泉による結果>

I. 緒言

岐阜県恵那郡に所在する湯乃島ラジウム鉱泉保養所において、源泉及び浴槽について液体シンチレーションカウンタ、IM泉効計、ガス封入型電離箱法、バブリング装置と大気中ラドン測定器を組み合わせた測定システムによる水中ラドン濃度値を比較した。

II. 方法

(1) 液体シンチレーションカウンタ

液体シンチレーションカウンタによる方法については、源泉の水試料を使用して、4つの方法を実施した。

①直接法

②鉱泉分析指針（現地抽出・ポリびん）

③鉱泉分析指針（実験室抽出・ポリびん）

④鉱泉分析指針（実験室抽出・ガラスびん）

鉱泉分析指針ではポリびんを使用することとなっているが、試料中ラドンの漏洩や容器への吸着による測定結果への影響も考えられる（2.1節参照）ことから、ここではガラスびんによる輸送も実施した。輸送に当たってはびん内を満水とした。②～④については、蛇口にシリコンチューブを取り付け、直接1リットルポリビン（またはガラスビン）に採取した。オーバーフローさせる時間は1分間とした。液体シンチレーションカウンタは、パッカード製のTRI-CARB2300TR、評価法は積分バイアス法である。この実験は同一機関が実施した。

このほか、源泉及び浴槽の試料水による、下記の測定も実施した。

⑤鉱泉分析指針（実験室抽出・ガラスびん）

⑥そのほかの方法

⑤では、液体シンチレーションカウンタにパッカード製のTRI-CARB2550TRを用いている他は、④と同じである。

⑥では、水試料180mLとトルエンを溶媒とした液体シンチレータを分液ロートに入れ、現地にて攪拌後液体シンチレータのみをバイアルビンに入れ持ち帰る方法である。

(2) IM泉効計

ガラスビンで採取後、輸送し実験室にて所定の手順で定量した。手順は2.1節に記述した方法と同様である。

(3) ガス封入型電離箱法

ガス封入型電離箱による方法は次の手順によった。

①サンプリング準備

- ・キュリーびんを準備し、あらかじめびん内を真空にする。

②サンプリング

- ・キュリーびんの一方の口を試料に浸し、コックを開け、100mLを目安に採取する。
- ・便利のため、チューブなどを口に取り付けて採取しても良い。

③測定

- ・封入から測定まではラジウム分析法マニュアル¹⁾に従う。
- ・キャリアガスにより、試料中のラドンガスを電離箱に封入（バブリング）する。
- ・平衡に達した後、振動容量電位計により測定を実施する。電荷蓄積法では、検出下限は70mBq/L程度（100mL採取時）。

④キュリーびん中の試料量を測定する。

(4) バブリング装置+大気中ラドン測定器

市販の静電捕集型ラドンモニタ（商品名RAD7）に、オプションの水中ラドン測定キットを接続する方法で、現地で専用のガラスビンに直接採取し測定を行った。手順は2.1節に記述した方法と同様である。

III. 結果と考察

浴槽の括弧内の濃度は女湯の結果でありその他は男湯の浴槽から採取された水試料中のラドン濃度である。液体シンチレーションカウンタ①～④の結果より、鉱泉分析指針（液体シンチレーションカウンタ②）と直接法（液体シンチレーションカウンタ①）との結果は良く一致しているものの、試料を持ち帰る際に、ポリびんでは10%、ガラスびんでは5%程度の漏洩あるいは容器への吸着によるロスが起りうる事がわかる。液シン⑤は④と同様の手法によるものであるが、10%程度の差が観察された。測定者や測定器等による差がこの程度は存在する。これについては次節にて詳細な検討を行っている。液シン⑥については、この時点では簡単な2次較正をただけであるので、参考値にとどめる。液シン⑤、ガス封入型電離箱法、市販ラドン測定器を利用した方法につ

いては、良く一致した。IM泉効計による値は、2.1節での結果と同様に、他の測定器比べて明らかに高い値を示している。

表2-2-1 岐阜県恵那郡湯乃島ラジウム鉱泉保養所における比較実験結果

| 測定方法 | 源泉ラドン濃度 (Bq/L) | 浴槽ラドン濃度 (Bq/L) |
|-----------------------|-------------------|-------------------|
| 液シン① | 3472.1±5.9 | |
| 液シン② | 3447.0±50.9 | |
| 液シン③ | 3096.3±46.6 | |
| 液シン④ | 3269.6±21.0 | |
| 液シン⑤ | 3104±39 | (235±9) |
| 液シン⑥ | 3890 | 353 |
| IM泉効計 | 6090 | — |
| バブリング+電離箱 | 3089 | 225 |
| バブリング+静電捕集 型ラドンモニタ | 3080±106 | 273±20 |

IV. 結言

岐阜県恵那郡に所在する湯乃島ラジウム鉱泉保養所において、水中ラドン濃度比較実験を実施した。IM泉効計による値を除き、浴槽中のラドン濃度は、源泉中のラドン濃度に比して1/10以上も小さくなっていることが明らかとなった。今回の実験では、液体シンチレーションカウンタ法の間でも測定値にばらつきが見られた。このばらつきは測定方法によるものなのか、測定者（測定の習熟度の違い）によるものなのか、測定装置によるもの（装置の機差）なのか、という点は次節にて詳細に検討してある。

参考文献

- 1) 科学技術庁；ラジウム分析法，放射能測定法シリーズ19，p51-54，1990

2. 3 比較結果3 <増富温泉における結果>

I. 緒言

増富温泉（山梨）は、日本におけるラドン濃度の高い温泉として、池田鉱泉（島根）や三朝温泉（鳥取）とともに知られている¹⁾。増富温泉に関して、天野らは温泉入浴時の内部被ばく評価²⁾を行っており、森嶋らは鉱泉湧き出し付近で、最高 $8\mu\text{Gy/h}$ とスポット的に放射線レベルの高い場所があると報告³⁾している。なお、増富温泉は、泉質が含放射能・含二酸化炭素-ナトリウム-塩化物泉で、ラドン以外の成分も含んでいる温泉である⁴⁾。

液体シンチレーションカウンタ、パルス型電離箱式ラドンモニタ、静電捕集式ラドンモニタの3タイプの測定器を用いて、ラドン濃度の高い温泉水を測定した。水中ラドン標準測定法として、液体シンチレーションカウンタを用いる方法^{1,2)}が主流となっている。日本では、鉱泉分析法指針に基づく抽出法が中心であるが、米国環境保護庁（EPA）や米国材料試験協会（ASTM）では非水溶性シンチレータを用いた直接法（以下直接法と呼ぶ）が用いられている。直接法は抽出法に比べ、検出限界値が高いが、簡便で、少量の試料で測定ができる。液体シンチレーションカウンタの測定では、抽出法と直接法を行った。後者は、日本ではあまり行われていないため、詳細に検討した。

II. 方法

(1) 測定方法の比較

温泉水の湧出口にチューブを入れ、サイホンの原理を用いてチューブ（直径 8mm）に温泉水を流して、採水を行った。そして、「①直接法（液体シンチレーションカウンタ）」「②抽出法（液体シンチレーションカウンタ）」「③パルス型電離箱式ラドンモニタ法」「④静電捕集式ラドンモニタ法」の4方法で水中ラドン濃度を測定し、測定結果を比較した。

①直接法（液体シンチレーションカウンタ）

ASTMの方法⁵⁾に基づき試料を作成した。この方法は、EPAで用いられている方法⁶⁾とも類似している。

チューブから流れる温泉水を、空気が入らないよう注意しながら注射器で 10mL 採水し、あらかじめトルエンシンチレータ 10mL を入れたバイアルへ注入した。バイアルの蓋（アルミパッキン）を閉め、シールテープで固定した。試料を5本調整（以後、試料 A と呼ぶ）し、神戸薬科大学（神戸薬大）へ宅配便（冷蔵）で送付した。届いた試料を

室温で1時間以上放置後、30秒間振とうすることにより、水層のラドンをトルエン層に抽出した。ラドンとその子孫核種が永続平衡に達するまで、試料を4時間放置後、液体シンチレーションカウンタ（パーキンエルマ社製 2300TR）で測定した。サンプルの測定時間は、10分以上とし、少なくとも総カウント数が10,000以上になるように設定した。バックグラウンド用試料を、蒸留水10mLとトルエンシンチレータ10mLを入れて調整した。液体シンチレーションカウンタの測定は鉍泉分析法指針に基づいて行い⁷⁾、液体シンチレーションカウンタのウィンドウを50keV-∞、75keV-∞、100keV-∞に設定して得られた3つの積分カウント値を、最小二乗法で外挿することにより、0keV-∞の積分カウント値を得た⁸⁾。この値は、ラドンとその子孫核種から放出されるα線3本とβ線2本を測定した値であり、ラドン測定の計数効率を500%とした。野口-斉藤の式⁹⁾に基づき、気液平衡の計算を行った。

②抽出法（液体シンチレーションカウンタ）

鉍泉分析法指針⁷⁾に基づき測定した（抽出法）。チューブから流れる温泉水をポリビン（1.1L）に採水し、トルエンシンチレータ40mLを加えて、2分間振とうし、温泉水中のラドンをトルエンシンチレータへ抽出した。このトルエンシンチレータ20mLを液体シンチレーションカウンタ用バイアルへ移し、バイアルの蓋を閉めた。試料を3本調整し、宅配便（冷蔵）で大妻女子大学へ送付した。測定は、液体シンチレーションカウンタ（パーキンエルマ社製 2550TR）で行った。

③パルス型電離箱式ラドンモニタ法（商品名；Alpha GUARD, Genitron Instruments 社製）

バブリングによって温泉水100mLから空気中に追い出したラドンをパルス型電離箱式ラドンモニタ内に導き測定した。2.1節で記述した測定法と同じ測定法である¹⁰⁾。測定はすべて現地で行った。

④静電捕集式ラドンモニタ法（商品名；RAD7, Durrige Company 製）

バブリングによって温泉水40mLから空気中に追い出したラドンを静電捕集式ラドンモニタに導き測定した。2.1節で記述した測定法と同じ測定法である¹⁰⁾。測定はすべて現地で行った。

(2) 直接法（液体シンチレーションカウンタ）について

液体シンチレーションカウンタを用いた直接法について、「①採水から測定までの経過時間に伴うラドンの漏洩による減少について」、「②参加測定機関における異なる機種別の液体シンチレーションカウンタによる測定結果の違い（液体シンチレーションカウンタの機種間の系統差）」、「③採水実施者による測定結果の違い」を検討した。直接法で作成した増富温泉の試料を、参加測定機関において測定した結果に、これら①～③を踏ま

えた補正を加えた。

①採水から測定までの経過時間に伴うラドンの漏洩による減少について

神戸薬大の地下水（ラドン濃度 約 230Bq/L）1L 中のラドンをトルエンシンチレータ 50mL へ抽出し、このラドンを抽出したトルエンシンチレータ 10mL と蒸留水 10mL をバイアル内に入れ、30 秒間振とうし、液体シンチレーションカウンタの測定値が 3000cpm 以上となる試料 15 本を作成した。4 時間放置後、2300TR を用いて、このサンプル 15 本（1 本当たりの測定時間 10 分間）を用いて、3 日間（23 サイクル）繰り返し測定した。液体シンチレーションカウンタの測定条件及び計算は、「①直接法（液体シンチレーションカウンタ）」と同様に行った。

②参加測定機関における異なる機種 of 液体シンチレーションカウンタによる測定結果の違い（液体シンチレーションカウンタの機種間の系統差）

同一のサンプルを測定しても、液体シンチレーションカウンタの機種間でラドン濃度の測定結果に±4.5%以内の差が出ることが報告⁸⁾されている。その差を補正するために、同一サンプルを相互の測定機関で測定することにより、液体シンチレーションカウンタの機種間による測定結果の違いについて検討した。神戸薬大の地下水（ラドン濃度 約 230Bq/L）1L 中のラドンをトルエンシンチレータ 50mL で抽出した。このラドンを抽出したトルエンシンチレータ 10mL と蒸留水 10mL をバイアル内に入れ、30 秒間振とうした。このことにより、液体シンチレーションカウンタの測定値が 3000cpm 以上となる試料を作成した。4 時間放置後、このサンプルを神戸薬大の 2300TR で測定し、シールテープを巻いて、サンプル 3 本とバックグラウンド用サンプル 1 本を 4 箇所の測定機関へ宅配便（冷蔵）で送付した。到着したサンプルは、室温で 1 時間以上放置後、液体シンチレーションカウンタで測定した。使用した液体シンチレーションカウンタは、パーキンエルマ社製 2550TR とアロカ社製 LSC-5100、LSC-1050、LB-2 であった。液体シンチレーションカウンタの測定条件及び計算は、上記の「①直接法（液体シンチレーションカウンタ）」と同様に行った。ただし、LSC-1050 は、ウィンドウの設定が困難であったため、³²P のレンジで測定した。気液平衡の計算は、野口-斉藤の式に基づいて計算した⁹⁾。測定終了後、バイアルにシールテープを巻き、神戸薬大へ宅配便（冷蔵）で返送し、再び 2300TR で測定した。

また、増富温泉水で作成した試料 A のうち 3 本については、パーキンエルマ社製 2900TR での測定も行い、2300TR の測定結果と比較した。

③採水実施者による測定結果の違いについて

初心者が「①直接法（液体シンチレーションカウンタ）」の方法で温泉水を採水し、試料 A と同様の試料を作成した。試料数は 3 本で、神戸薬大へ宅配便（冷蔵）で送付した。

到着後の処理および測定条件は「①直接法（液体シンチレーションカウンタ）」と同様に行い、2300TR で測定した。熟練者が作成した試料 A（5 本）を 2300TR で測定した結果と比較した。

④参加測定機関における温泉水の測定結果について

温泉水を採水し、試料 A と同様のサンプルを 12 本作成した。4 箇所の参加測定機関へ、サンプル 3 本とバックグラウンド用サンプル 1 本を宅配便（冷蔵）で送付した。到着後、室温で 1 時間以上放置後、30 秒間振とうし、ラドンをトルエン層に抽出した。永続平衡に達するまで、4 時間放置後、機種間の補正を行った液体シンチレーションカウンタ（2550TR、LSC-5100、LSC-1050、LB-2）で測定した。測定方法は、「①直接法（液体シンチレーションカウンタ）」と同様に行った。ただし、LSC-1050 は ^{32}P のレンジで測定した。気液平衡の計算は、野口-斉藤の式に基づいて計算した⁹⁾。

III. 結果

直接法（液体シンチレーションカウンタ）の試料 A（5 本）を 2300TR で測定した結果を基準値として、各測定結果と比較検討した。測定結果の比較基準として、EPA の報告¹⁰⁾を採用した。この報告では、ラドンを液体シンチレーションカウンタで測定する場合において、同一サンプルの繰り返し測定した場合の受納限界（受け入れることのできる測定結果（減衰補正済み）のばらつきの限界）を±5%としている。また、同一濃度の試料を採水し測定する場合、サンプルの測定結果（減衰等補正済み）の間には±9%のばらつきがある（99%信頼区間）と報告している。今回の試料は天然水のため多少の濃度差が存在し、同一濃度の試料ではないが、この報告をもとに比較した。なお、以下に示したラドン濃度は、すべて採水時の値へ減衰補正を行っている。

(1) 測定方法の比較

直接法、抽出法、パルス型電離箱式ラドンモニタ法、静電捕集式ラドンモニタ法で測定した温泉水中のラドン濃度の結果を表 2-3-1 と図 2-3-1 に示した。直接法の値を基準として全測定法の結果のばらつきは、±9%以内で、99%信頼区間内に入っており、これらの測定法による測定結果の差は小さいことがわかった。

(2) 直接法（液体シンチレーションカウンタ）について

①採水から測定までの経過時間による伴うラドンの漏洩による減少について

同じサンプルを繰り返し測定することにより、採水から測定までの経過時間によるバイアルからのラドンの漏洩と測定結果のばらつきを検討した。なお、ラドン濃度は試料

作成時の値へ減衰補正を行った。初回測定時の値に対して、経過時間による測定結果のばらつきを、図 2-3-2 に示した。1 日経過すると、測定値は約 1.4%減少する結果となった。この減少割合に対してデータのばらつきは大きい、参加測定機関における温泉水の測定結果について、経過時間による補正をおこなった。

②液体シンチレーションカウンタの機種間の系統差について

液体シンチレーションカウンタの機種間の系統差を補正するために、同一サンプルを相互の測定機関で測定した。運搬による影響も考えられるため、経過時間によるラドンの漏洩等の補正は上記の結果には基づかず、同一サンプルを往復させて測定することにより補正を行い、機種間の系統差について検討した。

2300TR の値に対して、LSC-5100、LSC-1050、LB-2 は、3.5%低い値であったが、2900TR、2550TR はほぼ同じ値となった。参加測定機関における温泉水の測定結果について、液体シンチレーションカウンタの機種間の系統差を補正することにした。

③採水実施者による測定結果の違い

熟練者と初心者による測定結果の違いについて、図 2-3-3 に示した。両者の間に、有意差は認められず (T 検定 $p < 0.05$)、結果の差も 2%以内であるため、差はほとんどなかった。直接法は、採水実施者によって、ラドン濃度の結果に差が出ない良い方法であるといえる。

④参加測定機関における温泉水の測定結果について

温泉水を直接法で作成した試料を 2300TR、2550TR、2900TR、LSC-5100、LSC-1050 と LB-2 の液体シンチレーションカウンタで測定した結果を測定日時の時系列で図 2-3-4 に示した。2300TR の測定値を基準として、全測定法の結果のばらつきは、±9%以内で、99%信頼区間内に入っており、これらの液体シンチレーションカウンタにおける測定結果の差は小さいことがわかった。

また、図 2-3-4 の結果を経過時間に伴うラドンの漏洩による補正と液体シンチレーションカウンタの機種間系統差を補正した後の測定結果のばらつきを、図 2-3-5 に示した。これら補正により、各測定結果結果の差は小さくなった。

IV. まとめ

直接法、抽出法、電離箱式ラドンモニタ法、静電捕集式ラドンモニタ法で、温泉水中のラドン濃度を測定した結果を比較した。その測定結果は、直接法で測定した結果の±9%以内 (EPA が示した信頼区間 99%の範囲内) であった。よって、これら 4 つの方法は、ほぼ、同じ結果が得られることがわかった。

液体シンチレーションカウンタ法の直接法を用いて試料を作成し、参加測定機関 (5

機関)の液体シンチレーションカウンタ 2300TR、2550TR、2900TR、LSC-5100、LSC-1050、LB-2 でラドン濃度を測定した。その測定結果は、2300TR で測定した値の±9%以内 (EPA が示した信頼区間 99%の範囲内) にすべて入っていた。このことより、参加測定機関 (5 機関) の液体シンチレーションカウンタによる測定結果へのばらつきは許容範囲内であったと考えられる。機種間の系統差の補正と経過時間による補正することにより、このばらつきはより小さくすることが可能であった。また、この試料作成を熟練者が行った場合と初心者が行った場合で、その測定結果にはほとんど差 (2%以内) がなかった。

直接法は抽出法に比べ、簡便で、少量の試料で測定ができる。しかし、検出限界値は直接法 (60 分測定 1.0Bq/L) の方が抽出法 (60 分測定 0.03Bq/L) よりも高い。以上より、水中ラドン標準測定法として、直接法も、抽出法とともに有効ではないかと思われる。

謝辞

増富温泉における試料採取と直接法の実施にあたって、山梨大学 石井忠氏に、多大なご協力をいただいた。また、本稿をまとめるにあたり、神戸薬大 志野木正樹先生に有益なご討論をいただいた。深謝いたします。

参考文献

- 1) 堀内公子 ; 温泉科学 放射能泉, 日本分析センター広報, **31**, 37-45, (1997) .
- 2) 天野光, 柳瀬信之, 松永武, 笠井篤 ; 生活環境におけるラドン濃度とそのリスク 特殊環境におけるラドン・ラドン娘核種測定, NIRS-M (Natl. Inst. Radiol. Sci.), **73**, 63-78, (1989).
- 3) 森嶋彌重, 古賀妙子, 藤波直人, 菅原務, 御船正明 ; 高自然放射線地域の放射線測定, 大阪ニュークリアサイエンス研究会報告書, 2002, 63-71, (2003).
- 4) 金原啓司 ; 日本温泉・鉱泉分布図及び一覧, 地質調査所, (1992) .
- 5) ASTM ; D5072-98 Standard Test Method for Radon in Drinking Water, (1999).
<http://www.astm.org.html>
- 6) U. S. EPA ; “Methods, Occurrence and Monitoring Document for Radon in Drink (EPA Contract No. 68-C7-0005)” , (1999).
<http://www.epa.gov/OGWDW/radon/proposal.html>
- 7) 環境省自然環境局 ; 鉱泉分析法指針, (2002) .
<http://www.env.go.jp/nature/onsen/bunseki/index.html>

- 8) Yasuoka, Y., Ishii, T., Kataoka, Y., Kubo, T., Suda, H., Tokonami, S., Ishikawa, T., Shinogi, M., ; Determination of Radon Concentration in Water Using Liquid Scintillation Counter, Radioisotopes, 53(3) 123-131 (2004) .
- 9) 齊藤正明 ; 水中ラドン抽出測定における濃度計算の注意点, 「天然水中ラドン」 専門研究会 (KURRI-KR-6), pp5-14, 京都大学原子炉実験所, 大阪 (1997) .
- 10) 石川徹夫, 安岡由美, 榑崎幸範, 床次眞司, 石井忠, 須田博文, 山田裕司 ; 地下水中ラドン濃度測定装置の比較－液体シンチレーションカウンタ、IM 泉効計、電離箱、ラドンモニタで得られた結果－, Radioisotopes, 53(3) 133-140 (2004) .
- 11) U. S. EPA Federal Register. 40 CFR parts 141 and 142 National Primary Drinking Water Regulations; Radon-222: Propose rules Vol. 64, No. 211 / Tuesday, November 2, 1999. Washington, DC: U. S. Government printing Office; (1999).
<http://www.epa.gov/safewater/radon/radfr2.pdf>

表2-3-1 種々の測定方法による測定結果

| 方法 | ラドン濃度 (Bq/L) | | サンプル数 |
|---------------|--------------|------|-------|
| | 平均値 | 標準偏差 | |
| 直接法 | 5469 | 65 | 5 |
| 抽出法 | 5347 | 91 | 3 |
| α ガード法 | 5530 | ---- | 1 |
| ラド7法 | 5152 | ---- | 1 |

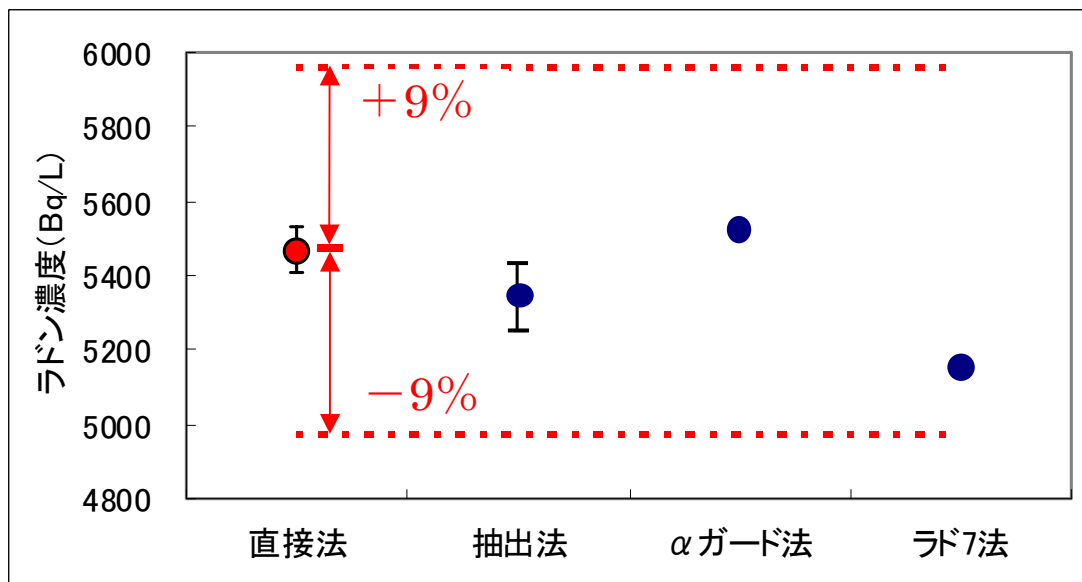


図2-3-1 種々の測定方法による測定結果の比較

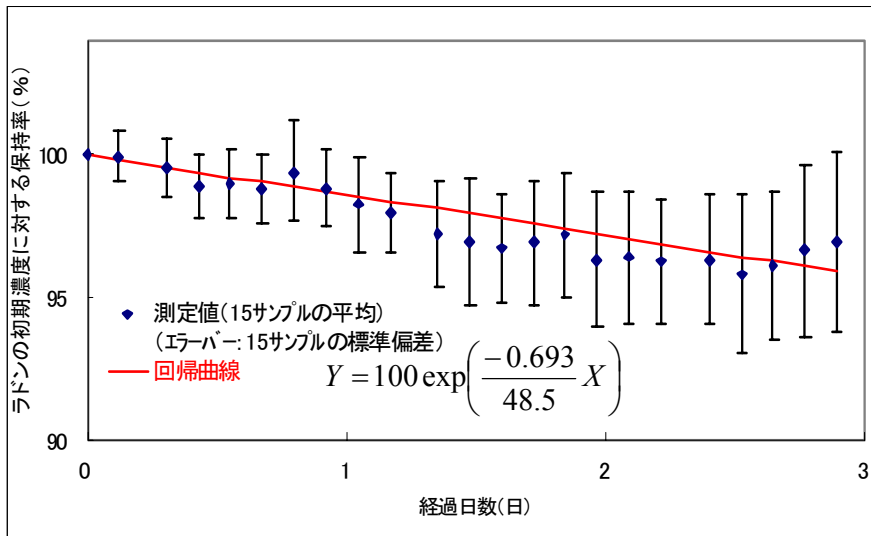


図2-3-2 同一サンプルの繰り返し測定の際の経過時間によるラドンの漏洩(減衰補正済み)

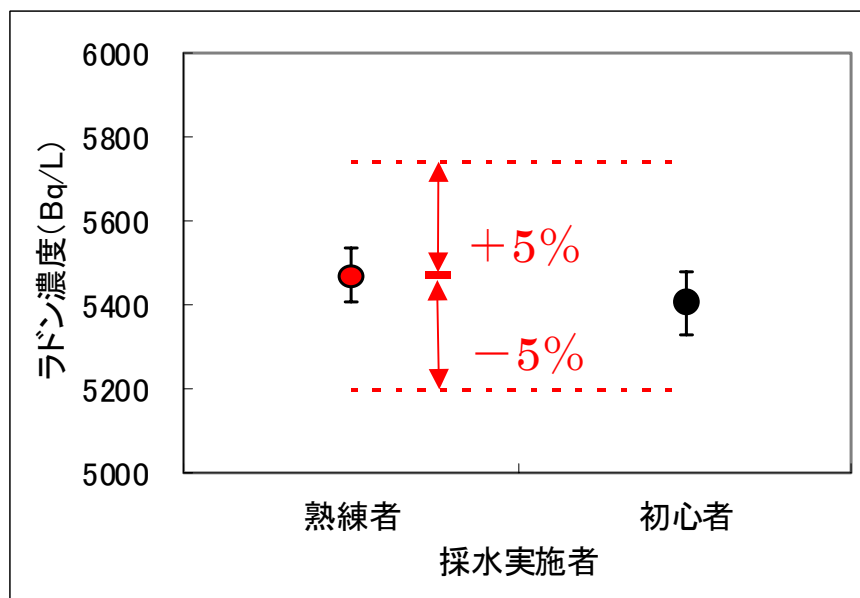


図2-3-3 採水実施者による測定結果の違い

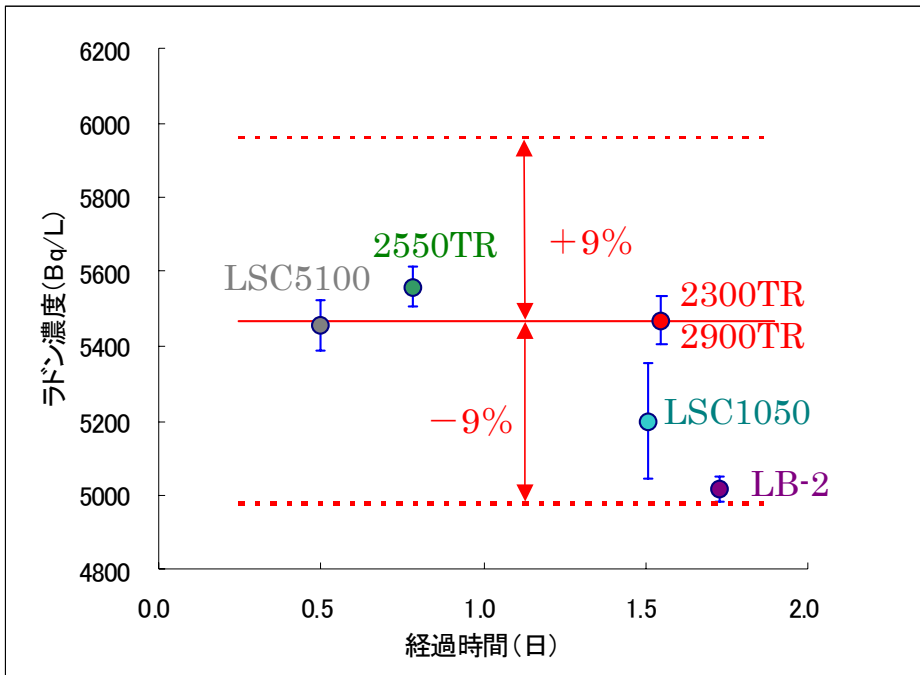


図2-3-4 参加測定機関(5機関)における測定結果のばらつき

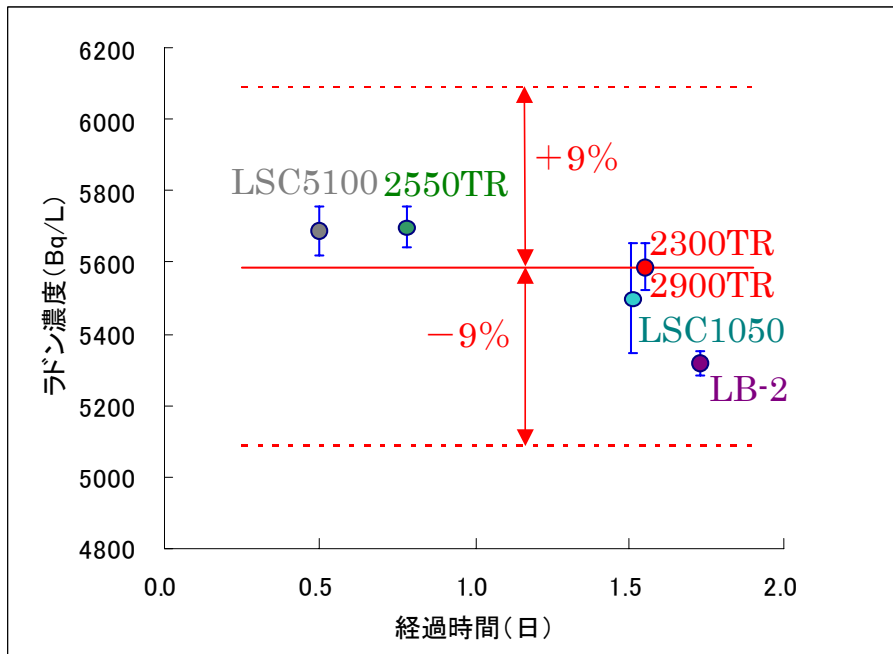


図2-3-5 参加測定機関(5機関)における測定結果のばらつき(補正済み)

2. 4 各測定法の比較

I. 緒言

日本における標準化された水中ラドン濃度測定法といえるものは、鉍泉分析法指針(改訂)⁽¹⁾で定められたIM 泉効計による方法と液体シンチレーションカウンタによる方法のみであるが、多くの研究者によって様々な手法が提案され採用されている。大気中のラドン測定法は基本的にすべて応用が可能であり、また、ラドン測定法以外でもGe半導体検出器を用いたγ線スペクトロメトリが採用された例などがある。本節では、本章(2.1 節から 2.3 節)で使用された手法を中心に、文献にある他の手法も含めて、その特徴について述べる。

II. 測定手法の概要

測定方法としては、試料の処理法により大別すれば、試料をそのまま測定する方法、抽出又はバブリングなどにより、ラドンを取り出してから測定する方法がある。サンプリング方法により分類すればGrabサンプリング法、積分測定法、連続測定法がある。

(1) Grabサンプリング法

1) IM 泉効計

水中ラドン測定を目的に1931年に飯盛里安により開発⁽²⁾され、その後、鉍泉分析法指針で標準法として指定されたこともあり、現在まで国内で広く使用されてきた手法である。試料を測定器内(電離槽)に一定量採取した後、振とうにより電離槽内の空気層にラドンを追い出し、このラドン及びその子孫核種に起因する電離電流を箔検電器により検出する手法を採用しており、その基本原理は1905年にC. Engler と H. Sieving により開発された泉効計(Fontactoscope)までさかのぼることが出来る。測定後バックグラウンドの上昇があるため、複数の試料を測定する際には注意が必要である。複数の研究者により、液体シンチレーションカウンタ法と比較して、系統的な差があること、精度に問題があることなどが指摘されている⁽³⁾⁽⁴⁾⁽⁵⁾。

2) 液体シンチレーションカウンタ

1950年代になって光電子増倍管による計測技術が発達し、シンチレーション光の計測が容易になったこともあり、シンチレーション法が急速に発展した。液体シンチレーションカウンタによる水中ラドン測定法も1960年代には野口や堀内らにより提案、検討され⁽⁶⁾⁽⁷⁾、1978年には鉍泉分析法指針に取り入れられている。このような経緯もあって、

この手法は国内の多くの機関で使用されている。近年、分配係数の計算方法に関して、修正式が提案されている⁽⁸⁾が、結果に大きな差がないことも明らかになっている。

ここでは本法の代表例として(1)鉱泉分析法指針による方法(試料からラドンを抽出後測定する方法)、(2)米国環境防護庁(EPA)が推奨する⁽⁹⁾方法の一つ米国材料試験協会(ASTM)法(直接試料を測定する方法)⁽¹⁰⁾の手順を簡単に紹介する。ASTM法については、第3章で詳述した。液体シンチレーションカウンタ法には多くのバリエーションがあるが、サンプリング時の擾乱、運搬時の漏洩、抽出及び分取時の曝気状態等が誤差原因となることから、これらに配慮しつつ、現場での使用という観点から、煩雑さをさげ、ある程度の誤差を研究者毎に受認しているのが現状である。

鉱泉分析法指針による方法は、鉱泉を対象としており、検出下限は約 30mBq/L (供試量 1 L、60 分測定)。測定手順は以下の通り。

- ①湧水口から直接ゴム管などを用いてポリびんに試料を導き、しばらくオーバーフローさせた後、1リットル採取。
- ②一定量(25~40mL)のトルエンを加え、密栓後、振とうする。
- ③ポリびんのはらをおしてトルエンの一部(20mL程度)をバイアルびんに移す。
- ④トルエン量を秤量後、蛍光剤を加えて、22mLとし、ふたをしてよく振り混ぜる。
- ⑤3時間10分後に液体シンチレーションカウンタにより測定する。

ASTM法は、水道水を対象としており、検出下限は1 Bq/L (供試量 10mL、60分測定の場合)。測定手順は以下の通り。

- ①じょうごの下側から、ホースなどで蛇口から直接導入し、2分間以上乱れのないように静かにオーバーフローさせたものを使用する。
- ②シリンジにより表層3cm以深から12mL程度を採取する。
- ③さらに正確に10mLとする。
- ④10mLの液体シンチレータをあらかじめ入れたバイアルびんに、底のほうから静かに入れる。
- ⑤ふたをして振とうする。
- ⑥同様の手順により計3試料とする。
- ⑦3時間経過してから、50分間液体シンチレーションカウンタにより測定する。

鉱泉分析法指針による方法は、検出感度がASTM法に比べて高いという利点があるものの、抽出及び分取時に曝気されやすいため、注意が必要である。安岡らによると⁽¹¹⁾、

鉍泉分析法指針と ASTM 法では測定値にほとんど差がない結果が得られている。また鉍泉分析法指針に準ずると 1 リットルの試料を採取する必要があるのに対して ASTM 法においては、試料は 10mL 採取すれば測定できる。そのため、特に低レベルの測定でなければ、ASTM 法も有効な方法である。

液体シンチレーションカウンタは、据え置き型が一般的であるので、試料採取現場で結果がわからないという点はあるものの、サンプルを自動連続処理可能なこと、1つのサンプルを繰り返し再測定できることを考えると、精度を要求される測定、あるいは多数のサンプルを処理する測定に適している。また、液体シンチレーションカウンタは汎用の機器であり、空气中ラドンモニタ等に比べると所有している研究機関も多いと推測される。そのため、液体シンチレーションカウンタによる水中ラドン測定法は今後も汎用的な測定法として使われ続けるであろう。

3) ガス封入型電離箱法

ラジウム測定の応用として、キュリーびんに試料を採取し、バブリングによりラドンをガス封入型電離箱に封入し測定する手法である。水中ラドン測定法としては標準化されたものではないが、ラジウム分析法として鉍泉分析法指針やラジウム分析マニュアル⁽¹²⁾で採用されており、原理的にこれらと異なること、大気中ラドン測定法としては、歴史的に国内で標準的な手法として多くの研究機関で採用されていることなどから、精度上の問題点は少ないと思われる。キュリーびんの構造に脆弱性があり、屋外での適用には注意が必要である。試料の水質によって、トルエンや液体シンチレータの分離が困難であったり、にごりがあったりする場合があるが、このような場合にも適用できる。本報告書でこの方法による測定例を示した。試料のバブリング及び電離箱への封入は、ラジウム分析マニュアルに準じた。検出下限は 70mBq/L 程度 (供試量 100mL)。

4) Ge 半導体検出器による γ 線スペクトロメトリ⁽¹³⁾

濃度の低い場合は、トルエンやキシレンで溶媒抽出により濃縮する必要があるが、濃度の高い場合には、そのまま測定することも可能である。平衡状態にあるラドン子孫核種である Pb-214 や Bi-214 からの γ 線を計測し、ラドン濃度を求める手法である^{(14) (15)}。

他に、シンチレーションセルを使用した方法 (バブリングした試料を封入) や活性炭吸着法 (活性炭に吸着した後、① γ 線スペクトロメトリをする、② パージしたのちラドンガスの測定をする) を応用した方法、NaI 検出器を用いた γ 線スペクトロメトリに

よる方法⁽¹⁶⁾、⁽¹⁷⁾などがある。なお、米国ではシンチレーションセル法が液体シンチレーションカウンタ法と比肩しうる手法として、推奨されている⁽⁹⁾。

(2) 積分測定法

国内ではほとんど使用された例はないが、海外ではCR-39や硝酸セルロースフィルムを利用した測定が多く使用されている。比較的長期間の測定⁽¹⁸⁾からGrabサンプリングに近い手法⁽¹⁹⁾まで応用範囲が広い。古い例では、ヨーグルト缶やコーヒー缶を利用して、簡易な測定器を製作し、家庭用水道水を教育目的で測定した例⁽²⁰⁾がある。

(3) 連続測定法

連続測定法は環境放射能測定という観点よりは、地質調査、地震研究、宇宙線研究等を目的に開発が進められている。バブリングによりラドンを気中に放出し、これを電離箱⁽²¹⁾やZnSシンチレーションセル⁽²²⁾で測定する方法、高分子膜を通過した気中のラドンを静電捕集式でフォトダイオード表面に捕集し10000Bq/m³の高ラドン濃度から純水中の0.5Bq/m³の低濃度まで測定を可能にした手法⁽²³⁾があるほか、最近、吸収型プラスチックシンチレータを利用した手法⁽²⁴⁾なども提案されている。地下水面に差し込んだ筒を利用して、気層中に散逸したラドンを測定する手法としては海外ではClipperton probeがある⁽²⁵⁾。

(4) そのほかの方法

近年、比較的安価で取り扱いが簡便で精度の高い大気中ラドン濃度測定器が多く販売されるようになり、それらを利用して水中ラドン濃度を測定することも容易になった。

試料の処理については、バブリングによりラドンを試料から測定器に導く方法が採られ、その際得られる気中ラドン濃度指示値または計数值により、水中の濃度を算出する。Grabサンプリング法では閉鎖した系内での循環等が必要となる。

本報告書(2.1節)ではパルス型電離箱(商品名; Alpha GUARD, Genitron Instruments社製)と静電捕集式の半導体検出器(商品名; RAD7, Durrige Company製)によるGrabサンプリング法の測定例を示した。いずれも持ち運び可能なこと、試料採取現場で測定結果を得られることから、フィールド調査に適した機器として位置づけることができる。これらの装置は、大気中のラドン濃度として数Bq/m³程度が検出下限値であり、100mL程度の供試量の場合、数十~数百mB/L程度が検出下限となる。もともと大気中ラドンの連続測定を目的としたものであり、系内のロスの評価が必要となる。また、同一測定器で多試料を測定する際には、濃度が大きく異なる試料を測定した場合につい

て、指示特性などを研究者自身で把握する必要がある。ほかにシンチレーションセル法（商品名；model AB-5, radon measurement system, Pylon 製）があるが、シンチレーションセル法の検出下限が数十Bq/m³程度と高く、比較的高濃度の試料に適用できる。

いずれにせよ、放射能測定器としてはラドンに特化していること、適用にあたっては、ある程度専門的な知識が要求されることから、精度的には比較的高いものの、汎用性という観点では、まだ課題は残っている。

III. まとめ

以上、水中ラドン測定法について概説したが、汎用的な手法としては、標準化が進んでいる点と多点測定の見点から液体シンチレーションカウンタ法が優れている。また、今後、比較的安価で取り扱いが簡便となってきたことから、市販のラドン専用測定器の利用も進むものと思われる。

参考文献

- 1) 環境省自然環境局；鉱泉分析法指針，（2002）.
<http://www.env.go.jp/nature/onsen/bunseki/index.html>
- 2) 飯盛里安：泉効計の改造とラドンの代用標準，理研彙報，1105-1130，1931.
- 3) 歳弘克史、藤原美智子、河村憲治：鉱泉のラドン測定における液体シンチレーションカウンタの有用性について，山口県衛公研年報，35，72-73，1992.
- 4) 長谷川圀彦：地下水中のラドン濃度測定法，福井正美、堀内公子編、「天然水中ラドン」専門研究会報告書，京都大学原子炉実験所，KURRI-KR-6，1-4，1997.
- 5) 石川徹夫，安岡由美，榎崎幸範，床次眞司，石井忠，須田博文，山田裕司；地下水中ラドン濃度測定装置の比較－液体シンチレーションカウンタ、IM 泉効計、電離箱、ラドンモニタで得られた結果－，Radioisotopes，53(3)，133-140，2004.
- 6) 野口正安：(特殊な利用法2) ラドンの測定，Radioisotopes，24，745-748，1975
- 7) 堀内公子，村上悠起雄：鉱泉中のラドンの液体シンチレーションカウンタによる新定量法とその基礎的条件の検討，温泉科学，28，39-52，1977.
- 8) 斎藤正明：水中ラドン抽出測定における濃度計算の注意点，福井正美、堀内公子編、「天然水中ラドン」専門研究会報告書，京都大学原子炉実験所，KURRI-KR-6，5-14，1997.
- 9) Environmental Protection Agency：National Primary Drinking Water Regulations；Radon-222，40 CFR Parts 141 and 142，1999.

- 10) American Society for Testing and Materials (ASTM) :D5072-98 Standard test method for radon in drinking water, 1999. <http://www.astm.org.html>
- 11) Yasuoka, Y., Ishii, T., Kataoka, Y., Kubo, T., Suda, H., Tokonami, S., Ishikawa, T. and Shinogi, M. : Determination of radon concentration in water using liquid scintillation counter, *Radioisotopes*, 53, 123-131, 2004.
- 12) 科学技術庁 : ラジウム分析法
- 13) 科学技術庁 : ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー, 1990
- 14) Michihiro, K., Sugiyama, H., Kataoka, T., Shimizu, M., Yunoki, M. and Mori, T. : Direct measurement of ^{222}Rn in natural water by a gamma ray spectrometer with a Ge detector, *Radioisotopes*, 40, 38-41, 1991.
- 15) 静間清 : α 、 γ スペクトロメトリによる水中ラドン濃度の測定 : 広島県内における湧水、地下水中のラドン濃度分布, 福井正美、堀内公子編、「天然水中ラドン」専門研究会報告書, 京都大学原子炉実験所, KURRI-KR-6, 21-30, 1997.
- 16) S. Danali-Cotsaki, G Margomenou-Leonidopoulou : ^{222}Rn in Greek spa waters: Correlation with rainfall and seismic activities. *Health Phys*, 64(6), 605 - 612, 1993
- 17) 望月定, 丹治辰夫, 西村和明 ; 北海道二股温泉の冷泉水中のラドン濃度, 「天然水中ラドン」専門研究会 (KURRI-KR-6), pp111-114, 京都大学原子炉実験所, 大阪 (1997) .
- 18) M. A. Misdag, A. Merzouki, D. Elabboubi, F. Aitnouh, S. Berrazzouk: Determination of radon equivalent alpha-doses in different human organs from water ingestion using SSNTD and dosimetric compartmental models., *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Vol. 245(3) 513-520 (2000)
- 19) Amrani, D. : Natural radioactivity in algerian bottled mineral waters. *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, Vol. 252(3) 597-600(2002)
- 20) D. L. Henshaw, J. Perryman, P. A. Keitch, J. E. Allen, G. C. Camplin : Radon in Domestic Water Supplies in the UK, *Radiat Prot Dosim* 46(4).285-289, 1993
- 21) M. Fukui : Continuous Monitoring of ^{222}Rn Concentration in Unconfined Groundwater, *J. Hydrology*, 82, 371-380, 1985
- 22) 中谷正生、森俊哉、田辺清人、五十嵐丈二 : 地下水中のラドンの濃度異常と地震発生との関連性の統計的検討, *地震 II*, 44, 335-343, 1991
- 23) 田阪茂樹, 佐々木嘉三, 岡沢裕子, 中川雅人 : 水中ラドン検出器の開発, *Radioisotopes*, 43(3), 125 - 133, 1994
- 24) 斎藤正明, 谷崎良之 : 吸収型プラスチックシンチレータ方式の新規なラドン水連続

測定装置, 第40回理工学における同位元素・放射線研究発表会要旨集, 150, 2003

25) M. B. Pane, J. L. Seidel, M. Monnin, J. P. Morin : Radon as a tracer of fluid motion in fractured aquifers. *Environ. Chem. and Health*, S16, 325-334, 1995

3. 水中ラドン標準測定法の検討 <直接法>

I. 緒言

液体シンチレーションカウンタを用いる方法は、米国環境保護庁 (EPA)¹⁾ や米国材料試験協会 (ASTM)²⁾ や日本の鉱泉分析法指針³⁾ において、水中ラドンの標準測定法として採用されている。その方法には、測定感度のよさ、放射線測定器としての汎用性、サンプルの繰り返し測定が可能である点などの長所がある。短所としては、採水した現地での測定が困難な点であるが、最近ではポータブルの液体シンチレーションカウンタも販売されており現地測定の可能性も広がっている。

この手法には、200mL～1L の試料水から非水溶性シンチレータへラドンを抽出して測定する方法 (抽出法)³⁾、乳化シンチレータと試料水をバイアルの中で直接混和して測定する方法 (乳化シンチ法)⁴⁻⁶⁾、非水溶性シンチレータと試料水をバイアルの中で直接抽出して測定する方法 (直接法)^{1,2,7-8)} などがある。鉱泉分析法指針では抽出法が採用されている。抽出法や直接法は、乳化シンチ法に比べ、クエンチングが小さく、直接法は、抽出法に比べ、簡便で少量の試料で測定ができるが、抽出法の方が検出限界値は低い。

本委員会では、水中ラドンの相互比較の結果から、直接法も水中ラドン標準測定法として有望であると結論した。抽出法については、手順を含め、鉱泉分析指針をはじめとした、関連文献が多いが、直接法については、国内では標準化されておらず、国内で使用された例も少ない。そこで、本委員会の比較測定で基準とした直接法を用いた水中ラドン濃度測定の実施方法について述べる。

II. 方法

(1) 概要

本法は、ASTM の方法に基づき、液体シンチレーションカウンタ用のバイアル内でトルエン系シンチレータ 10mL と試料水 10mL を振とうし、水中のラドンをトルエンシンチレータへ抽出して測定する (以下、直接法と呼ぶ)。サンプル中のラドンを液体シンチレーションカウンタで測定する時の計数効率、ASTM ではラジウム溶液を用いて求めているが、直接法では、積分バイアス法による絶対測定を用いた。このことにより、直接法の検出限界値は 1Bq/L と高くなった。

(2) 試料採取

試薬

①トルエンシンチレータ

2,5-diphenyloxazole (4 g) と 1,4-bis[2-(5-phenyloxazolyl)]benzene (0.1 g)
を液体シンチレーションカウンタ用のトルエン 1 L に溶かした溶液

器具

- ① 20mL の液シン用バイアル (アルミパッキンの蓋)
- ② 10mL 用注射器 (容積 12mL) 及び注射針ゲージ 18G
- ③ 蛇口のサイズに合うチューブ (長さ 1m以下)
- ④ 温度計
- ⑤ 記録用紙 (表 3-1)

現地操作

- ① トルエンシンチレータを 10mL 入れたバイアルを 3 本準備する。バイアル及びトルエンシンチレータを入れたバイアルを秤量しておく。採水場所まで、できるだけ遮光して運ぶ。
- ② 蛇口にチューブを装着し、水を 10 分以上放流する。現場の気温と水の温度を測定する。
- ③ 注射器に注射針を装着する。
- ④ 注射針を水中に入れ、採水する。注射器を上むけにして、水を押し出し、注射器内部の空気を追い出す。この作業を何度か繰り返す。
(図 3-1 ①, ②)
- ⑤ チューブを上むけにして、注射針をすべて水中に入れ、注射筒の中の水を押し出した後、12mL 採水する。(図 3-1 ③)
- ⑥ 水から注射針を出し、試料水を 11mL に合わせる。このときの採水時刻を記録する。
- ⑦ トルエンシンチレータが入ったバイアルの底に注射針の先をつけ、静かに試料水を 10mL 入れ、蓋を締める。(図 3-1 ④)
- ⑧ 抽出時の水温測定用としてバイアルに水を 20mL 採水する。

(3) 測定及び濃度の計算

放射能測定

- ① 試料の入ったバイアルを秤量する。
- ② 30 秒間振とうする。(図 3-1 ⑤)
- ③ 水温測定用のサンプルで抽出時の水温を測定する。
- ④ ラドンの入っていない水 10mL にトルエンシンチレータ 10mL をバイアルに準備し、バックグラウンドとする。同様に 30 秒間振とうする。
- ⑤ 振とう後、暗所にて、トルエン抽出したラドンが永続平衡となるまで (4 時間)

放置する。

- ⑥ 測定は、積分バイアス法により行う。
- ⑦ 液体シンチレーションカウンタの3つのチャンネルのウィンドウ幅を 50keV-∞、75keV-∞、100keV-∞に設定する。
- ⑧ バックグラウンドバイアルの計数率 B_{50} , B_{75} , B_{100} , を求める。
- ⑨ 試料バイアルの計数率 A'_{50} , A'_{75} , A'_{100} , を測定する。サンプルの測定時間を記録する。

ラドンの放射能の算出

- ① 試料の正味全計数値 N_{cpm} の計算

サンプルの計数率 A'_{50} , A'_{75} , A'_{100} からバックグラウンドの計数率 B_{50} , B_{75} , B_{100} を差し引き、正味の計数率 A_{50} , A_{75} , A_{100} を求める。各チャンネルのウィンドウの下限 50keV、75keV、100keV を x 軸にとり、これに対応する A_{50} , A_{75} , A_{100} を y 軸としてプロットし、最小二乗法で $x = 0$ に外挿し、外挿値 N_{cpm} を得る。

- ② 試料及びトルエンの体積を秤量結果から計算する。
- ③ バイアルの全容積から試料及びトルエンの容積を差し引いて、気層の容積を求める。
- ④ 試料の正味全計数値 N_{cpm} より、抽出前の試料水中ラドン濃度 $Cv0$ (Bq/L) を求める。

$$Cv0 = (N \cdot e^{\lambda t} \cdot A \cdot 1000) / (Eff \cdot 60 \cdot Vt)$$

$$A = (1/Dt) \cdot (Va/Vw) + (Vt/Vw) + (Dw/Dt)$$

$$Dt = 18.2 \times \exp(-T/46.5)$$

$$Dw = 9.12 / (17.0 + T)$$

λ : ラドンの壊変定数 (日⁻¹) (0.693/3.824)

t : 採水から測定 (測定の間時間) までの時間 (日)

A : 温度 T°Cにおけるバイアル内の水層・トルエン層・気層の分配の補正項 (野口の式)⁹⁾

Eff : 5 (ラドンとその子孫核種から放出される α 線 3 本と β 線 2 本を測定)

V : 容積 (mL),

Vw : 試料水の容積, Vt : トルエンの容積,

V_a : 気層の容積 (トルエンの比重 : 20 度において 0.867 (g/mL))

D : ラドン分配係数 (平衡状態における液体中のラドン濃度と
空気中のラドン濃度の比)

D_t : トルエンのラドン分配係数

D_w : 水のラドン分配係数

(4) 変更点

直接法は、ASTM の方法に準じているが、一部変更している点があるので、下記に述べる。

- ① ASTM では、バイアルの蓋はポリキャップを使用することとなっているが、ポリキャップは、強く振とうすると中の液が漏れることがあるため、アルミキャップとした。EPA では、アルミキャップを採用している。
- ② 採水時の水の抵抗を小さくするため、注射針のゲージを 20G から 18G へと太いサイズに変更した。
- ③ ASTM の方法では、漏斗をチューブの先に装着すると記載されているが、この直接法では、漏斗を用いなかった。漏斗使用の有無による結果への影響はほとんど見られなかった。
- ④ 振とう時間を 10 秒から 30 秒へと長くした。
- ⑤ EPA 及び ASTM では、既知量のラジウムを用いたラドンの検量用サンプルを使用している。それは、既知量のラジウムが溶解した水溶液 10mL とシンチレータ 10mL をバイアルにいれ、ラジウムと子孫核種のラドンが平衡状態になるまで約 30 日間放置する。そして 30 秒間振とうして、ラドンをシンチレータへ抽出し、既知量のラドンを含む検量用サンプルを作成する。サンプル測定時に、この検量用サンプルも測定し、液体シンチレーションカウンタの測定条件を決定し、ラドンの計数効率を算出する。しかし、日本では、ラジウム溶液の使用は困難であるため、直接法では積分バイアス法を用いた。

III. 留意事項

(1) 直接法についての検討

EPA では、ラドンを液体シンチレーションカウンタで測定する場合において、同一サンプルの繰り返し測定した場合の受納限界 (受け入れることのできる測定結果 (減衰補正済み) のばらつきの限界) を $\pm 5\%$ としている。また、同一濃度の試料を採水し測定する場合、サンプルの測定結果 (減衰等補正済み) の間には $\pm 9\%$ のばらつきがある (99%信頼区間) と報告している。¹⁰⁾ このデータを基準に直接法について検

討する。

安岡らは、ほぼ同濃度のラドンの試料水を測定した場合、測定結果は、鉱泉分析法指針で採用されている抽出法の方が、ASTM法よりも、0.2-4%低くなると報告しているが、両者の間の差は小さく、増富の共同実験においても、両者の差は小さかった。また、測定サンプルの形態が抽出法では一層であるのに対し、直接法では二層に分離している。この形態の違いによる液体シンチレーションカウンタで測定したときの値への影響は、一層（抽出法タイプ）の方が二層（ASTM法タイプ）よりも3%高くなると安岡らは報告⁸⁾しているが、この違いは小さいため無視できる。

増富の共同実験の結果の中で、15本のサンプルを繰り返し23回測定した結果より、採水から1.5日以内に測定すればこの受納限界以内で測定でき、遅くとも3日以内に測定しなくていけないことがわかった。また、液体シンチレーションカウンタは、様々な機種が販売されているが、パーキンエルマ社製2300TR、2900TR、2550TR及びアロカ社製LSC-5100、LSC-1050、LB-2で、ほぼ同じ濃度のサンプルを増富の共同実験で測定した。各測定結果（減衰等の補正済み）は2300TRの測定結果に対し、±9%の範囲であり、大きな差は見られなかった。

直接法は抽出法に比べ、簡便で、少量の試料で測定ができる。しかし、検出限界値は直接法（60分測定 1.0Bq/L）の方が抽出法（60分測定 0.03Bq/L）よりも高い。よって、ラドン濃度の低い試料を測定する場合には、抽出法の方が有効である。

(2) EPA法

EPAにおける水中のラドン濃度測定の標準法は、米国公衆衛生協会（APHA）のSM-7500Rn¹¹⁾が用いられているが、実施にあたり、困難な点があり、本法では採用しなかった。EPA法とASTM法との違いは、採水方法とシンチレータの種類であり、EPAの方法を記載する。

- ① ビーカーの中にバイアルを入れ、そのバイアルビンの中にホースを入れて、試料水をホースに流し、試料水をビーカーからあふれさせる。
- ② バイアル内に空気が入らないように、ビーカーの水の中でバイアルの蓋を閉める。
- ③ 試験室に持ち帰り、バイアルの中の試料水が15mLになるように試料水を抜き取り、ミネラルオイルシンチレータ（パーキンエルマ社製）を5mL加える。
- ④ 既知量のラドンを含む検量用サンプルをラジウム²²⁶の水溶液を用いて作成する。サンプル測定時に、この検量用サンプルも測定し、液体シンチレーションカウンタのウィンドウ幅をアルファ領域に設定し、ラドンの計数効率を算出する。

日本においてはラジウム溶液の使用は困難なため、EPAの方法は、本法では

採用しなかった。

(3) 気液平衡の計算

バイアル内の水層・トルエン層・気層の分配の補正式として、野口-斉藤の式¹²⁾を下記に示す。共同実験では、野口-斉藤の式を用いて計算している。試料水 10mL とトルエンシンチレータ 10mL のサンプルとし、抽出時の温度によって、野口の式と野口-斉藤の式で、結果がどのように変動するのかを図 3-2 に示した。直接法で測定する場合、両式の計算結果に大きな違いはなかった。

① 野口-斉藤の式

$$Cw0 = Ct \cdot \{ (m/mw) \cdot Xw1/Xt1 + Wt/Ww + (m/Xt1) \cdot (1/Ww) \cdot P1 \cdot Va / (R \cdot T) \}$$

R : 気体定数 (=8.314J·K⁻¹mol⁻¹),

P : ラドン分圧 (P1=101 325 Pa).

T : 絶対温度 (K),

W : 重量 (kg), Ww : 試料水重量, Wt : トルエン重量,

C : ラドン濃度 (Bq·kg⁻¹),

Ct : 抽出後のトルエン中のラドン濃度

Cw0 : 抽出前の水中のラドン濃度

m : 1 mol の質量,

mw=18.02/1000 (kg·mol⁻¹), mt=92.14/1000 (kg·mol⁻¹),

X : ラドン 1atm と気液平衡にあるときのラドンのモル分率,

Xw1 : 試料水中のラドンのモル分率,

Xt1 : トルエン中のラドンのモル分率,

$Xw1 = \exp[-251.751 + 13002.6/T + 35.0047 \cdot \ln(T)]$.

$Xt1 = \exp[12673/(R \cdot T) - 67.505/R]$

気層容積 Va (m³) を直接実測するのではなく、算出によって求める必要がある時は

$$Va = Vo - Vw - Vt$$

$$Vw = Ww / \rho_w(T)$$

$$Vt = Wt / \rho_t(T)$$

V : 容積 (m³)

Vo : 抽出容器内の容積, Vw : 試料水の容積

Vt : トルエンの容積, Va : 気層の容積

ρ : 液体の密度 (kg·m⁻³)

$\rho_w(T)$: 試料水の密度, $\rho_t(T)$: トルエンの密度

$$\rho_w(T) = 999.8 / [1 - 6.427 \times 10^{-5}(T-273.15) + 8.505 \times 10^{-6}(T-273.15)^2 - 6.79 \times 10^{-8}(T-273.15)^3]$$

$$\rho_t(T) = 866.6 / [1 + 1.028 \times 10^{-3}(T-291.15) + 1.779 \times 10^{-6}(T-291.15)^2]$$

参考文献

- 1) U. S. EPA ; “Methods, Occurrence and Monitoring Document for Radon in Drink (EPA Contract No. 68-C7-0005)” , (1999).
<http://www.epa.gov/OGWDW/radon/proposal.html>
- 2) ASTM ; D5072-98 Standard Test Method for Radon in Drinking Water, (1999).
<http://www.astm.org.html>
- 3) 環境省自然環境局 ; 鉱泉分析法指針, (2002) .
<http://www.env.go.jp/nature/onsen/bunseki/index.html>
- 4) 長谷川国彦 ; 地下水中のラドン濃度の測定法, 「天然水中ラドン」 専門研究会 (KURRI-KR-6), pp1-4, 京都大学原子炉実験所, 大阪 (1997) .
- 5) 徳山秀樹, 五十嵐修一 ; 福井県若狭地区における飲料水中のラドン濃度, 同上, pp15-20 (1997) .
- 6) 仲川隆夫, 佐藤修, 橋本哲夫 ; 液体シンチレーション法による天然水中の ^{222}Rn 濃度の直接測定, *Radioisotopes*, **38**, 20-23 (1989).
- 7) J. H. Hightower, III, and J. E. Watson, Jr. “ ^{222}Rn in water: a study of two sample collection methods, effects of mailing samples, and temporal variation of concentrations in North Carolina groundwater.” , *Health Phys.*, **69**, 219-226 (1995)
- 8) Yasuoka, Y., Ishii, T., Kataoka, Y., Kubo, T., Suda, H., Tokonami, S., Ishikawa, T., Shinogi, M., ; Determination of Radon Concentration in Water Using Liquid Scintillation Counter, *Radioisotopes*, in press (2004) .
- 9) 野口正安 ; 特殊な利用方法 (2) ラドンの測定, *Radioisotopes*, 24, 745-748 (1975)
- 10) U. S. EPA Federal Register. 40 CFR parts 141 and 142 National Primary Drinking Water Regulations; Radon-222: Propose rules Vol. 64, No. 211 / Tuesday, November 2, 1999. Washington, DC: U. S. Government printing Office; (1999).
<http://www.epa.gov/safewater/radon/radfr2.pdf>
- 11) Standard Method 7500-Rn, Standard Method for the examination of Water and Wastewater. 19th Edition Supplement. Clesceri, L., A. Eaton, A. Greenberg, and M. Franson, eds. American Public Health Association, American Water Works

Association, and Water Environment Federation. Washington, DC. 1996.

12) 齊藤正明；水中ラドン抽出測定における濃度計算の注意点，「天然水中ラドン」専門研究会（KURRI-KR-6），pp5-14，京都大学原子炉実験所，大阪（1997）．



① 試料水を注射器でサンプリング



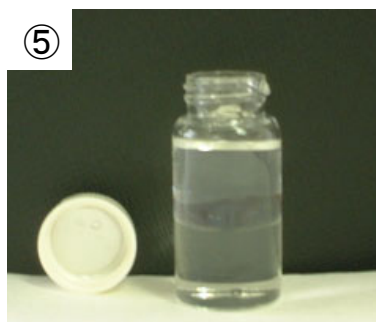
② 注射器を上向きにして空気を抜く



③ チューブを上向きにして，注射針を試料水に入れてサンプリング



④ 注射針をシンチレータ（10mL）の中につけて試料水（10mL）を注入。



⑤ アルミパッキンの蓋をする。



⑥ 試験室に持ち帰り，30秒間振盪する。

図3-1 試料の作成方法

表3-1 採水時の必要事項一覧

| | |
|-------|---------|
| 測定場所 | |
| 住所 | |
| 測定方法 | |
| 採水年月日 | 年 月 日 |
| 水源の形態 | 地下水 湧き水 |
| 採水方法 | |
| 天候 | |
| pH | |
| 採水時 | 水温 °C |
| | 気温 °C |
| 抽出時 | 室温 °C |
| | 抽出温度 °C |

| | 風袋(g) | 風袋+トルエン(g) | 風袋+トルエン+水(g) | 採水日時 | 抽出日時 | 備考 |
|----|-------|------------|--------------|------|------|----|
| 1 | | | | | | |
| 2 | | | | | | |
| 3 | | | | | | |
| 4 | | | | | | |
| 5 | | | | | | |
| 6 | | | | | | |
| 7 | | | | | | |
| 8 | | | | | | |
| 9 | | | | | | |
| 10 | | | | | | |

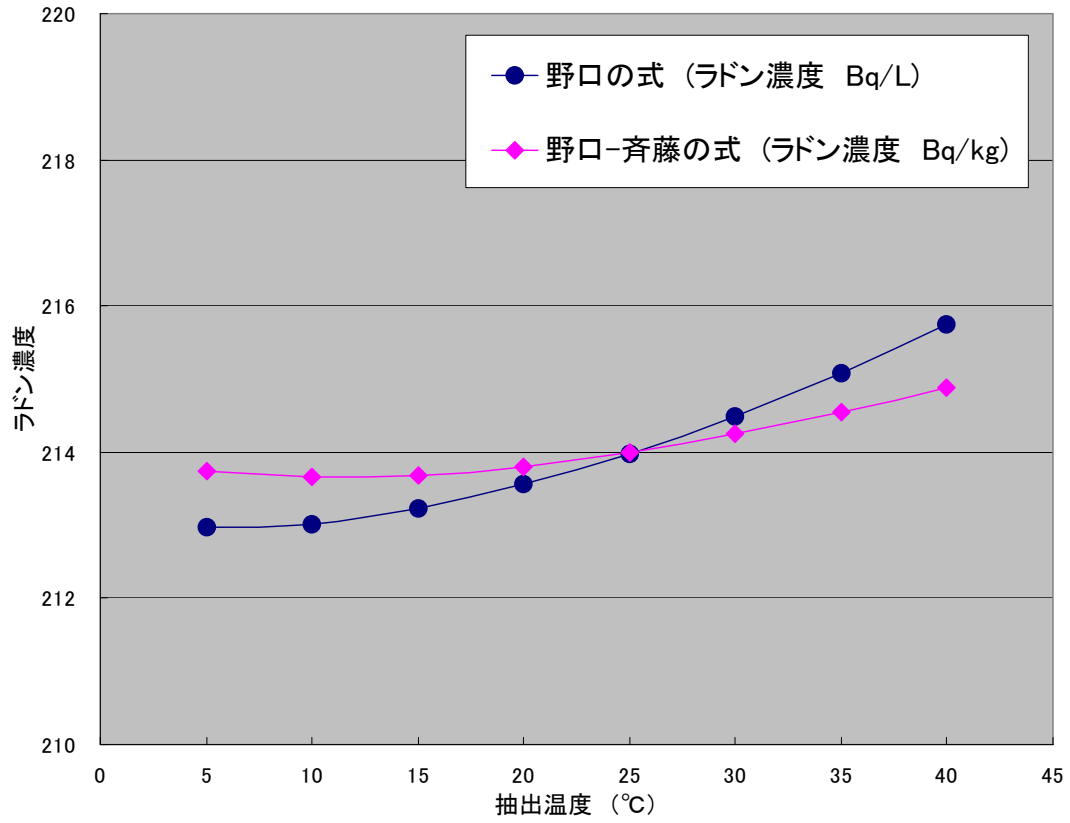


図3-2 ラドン濃度の計算方法の比較
 野口の式と野口-斉藤の式
 条件 試料水10mLとトルエンシンチレータ10mL

4. 水中ラドンに起因する被ばく

高濃度のラドンが含まれている水を屋内で風呂、炊事、水洗トイレ等に使用した場合、ラドンは水中から屋内空気中に放出される。そのため、水中ラドンは屋内ラドン濃度を高める要因の一つとなりうる。また、地下水を飲料水として利用した場合、飲水することによってラドン及びその子孫核種が体内に摂取される。このように、水中ラドンは2つの経路から人体に被ばくを与える可能性がある。本章では、これら2つの被ばくについて事例を含めて紹介する。4.1 では水中から気中へのラドンの移行による被ばくを、4.2 では飲水による被ばくに関して紹介する。

4. 1 水中から気中へのラドンの移行による被ばく <井戸水使用家屋における例>

I. 緒言

チェコ、米国、カナダをはじめとする世界各国のウラン鉱山労働者の追跡調査から高濃度ラドンによって長期間曝露されると、肺がんのリスクが高くなることが明らかとなっている¹⁾。また、ウラン鉱山だけでなく、鉄、錫、蛍石などの鉱山労働者も、肺がんの発生率が作業労働中のラドン曝露量に比例して増加していることが分かっている。したがって、諸外国では国際放射線防護委員会 (ICRP) の勧告²⁾に基づき、居住環境でのラドン濃度の基準値の設定やラドン低減化策が進められている。わが国でもラドンの被ばくに対する安全基準の設定が望まれており、1994年から科学技術庁 (現文部科学省) を中心に本格的な調査が実施されてきた。

ラドン及びラドン子孫核種による実効線量 1.2 mSv/y は一般公衆が1年間に自然放射線から受ける被ばく線量の世界平均値 2.4 mSv/y の1/2に相当する¹⁾。ラドン及びラドン子孫核種による被ばくでは、短寿命のラドン子孫核種の寄与が大きく、被ばくは主に室内において生じていることから、ラドン及びラドン子孫核種は室内汚染の一つとしても感心が高い。室内のラドンは、建物の基礎を囲む土壌及び岩石、土壁やコンクリートなどの建築材料などによってもたらされ、室内のラドン濃度は建屋の大きさ、家屋の気密性、換気方法や室内空気中のエアロゾル個数濃度と密接な関係がある。また、生活習慣に依存する室内空気の換気率の低下などで人為的に高められることもある。このほか井戸水や天然ガスの使用も屋内ラドン濃度を高める要因と考えられている。

居住環境におけるラドン濃度の実態調査に関する報告は多いが、ラドン発生の原因やラドン濃度の変動を引き起こす要因に関する研究は多くない。また、水中ラドン濃度の高い井戸水を生活用水として使用している一般家屋を対象とした居住空間でのラドンの動態を明らかにした例も見あたらない。そこで、本研究では井戸水を生活用水として利用している家屋の居住者が、ラドン及びラドン子孫核種から受ける実効線量を 1998～

2002年にわたって得られたラドン濃度とその空間分布及び時間的変動を基に推定した。

II. 方法

(1) 調査家屋の概要

本調査対象家屋は福岡市から南へ10km離れた筑紫野市に所在している。その1 km 南西には弱放射能泉の二日市温泉がある。本家屋は住宅街にあり、木造モルタル造りの平屋で、築30年が経過している。生活用水には井戸水と水道水を併用している。そのうち井戸水は主として風呂及び洗濯に用いられている。

(2) 測定の概要

本調査では平均的なラドン濃度をなるべく多数の地点で測定するため、活性炭吸着法を用いたピコラド（短期間測定用）とラドポット^{3,4)}（長期間測定用）の2種類のパッシブ型ラドン濃度測定器を使用した。ラドン濃度の空間分布を把握する目的で、1998年4月にピコラドを調査家屋内の各部屋及び周辺家屋（調査家屋の100m以内の家屋を対象）の居間あるいは事務所に1地点に1台ずつ設置した。曝露時間は24時間とした。年間平均ラドン濃度及びその長期変動を調べる目的で、2000年11月～2002年1月までの期間、ラドポットを調査家屋及び筑紫野市内の戸建て住宅3か所（筑紫野市内で、調査家屋とは地域が異なり、しかも井戸水を使用しない戸建て住宅、以下対照家屋と呼ぶ）に設置した。測定器は1か所に1台ずつ、原則として棚や家具の上に設置し、2か月ごとに交換した。

調査家屋におけるラドン濃度の日変動を明らかにするため、1998年7月(1日間)と2000年10月(3日間)にパッシブ型パルス電離箱（Genitron Instruments GmbH 製 AlphaGuard）を脱衣所（含洗濯場）に設置しラドン濃度を連続的に測定した。1998年7月にはPylon社製のWL Meter (AEP47 サンプルホルダーと AB-5 計数装置を組み合わせたもの)を用いて、1時間ごとの平衡等価ラドン濃度をラドン濃度と同時に測定した。

調査家屋の基礎土壌の放射性核種濃度を明らかにするため庭にある土壌の分析を行った。植物根、石れきなどの異物を除き105℃で乾燥後2 mm のフルイを通した土壌は、スチロール樹脂製U-8 容器に充填、接着剤で封印し1か月後にGe(Li)半導体検出器付ガンマ線スペクトロメータ（〈株〉東芝製 IGC1619E、相対効率18.27%）で測定した。

井戸水及び水道水中ラドン濃度は鉱泉分析法指針に従い、液体シンチレーションカウンタ（PACKARD 社製 TRI-CARB 2260XL）を用いて測定した。井戸水の水質分析も鉱泉分析法指針に従った。空間放射線量率は3"φ×3" NaI (Tl) シンチレーションスペクトロメータ（アロカ社製 JSM-102）を用いて測定した。

Ⅲ. 結果

(1) 屋内ラドン濃度

① ラドン濃度の空間分布

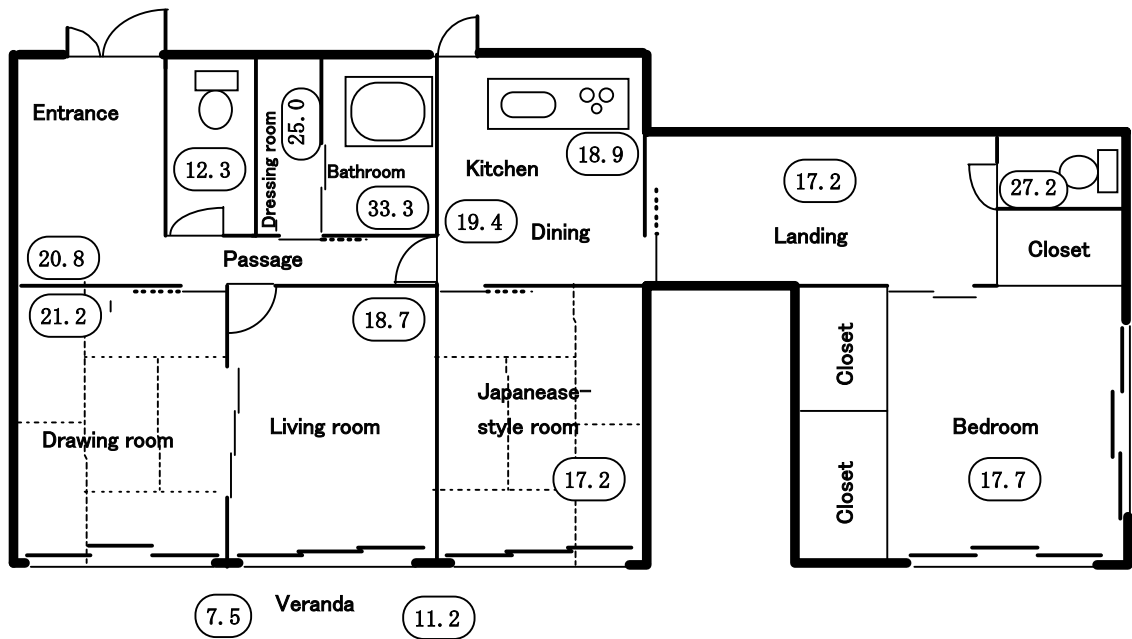


図 4-1-1 調査家屋の部屋配置とラドン濃度(Bq/m³)

ピコラドによって測定されたラドン濃度を図 4-1-1 に示す。調査家屋のラドン濃度は 12.3~33.3 Bq/m³、算術平均値は 20.7 ± 5.5 Bq/m³ であった。ラドン濃度には空間分布がみられ、浴室、脱衣所が高く 25.0~33.3 Bq/m³、その他の部屋や廊下では 12.3~21.2 Bq/m³ であった。なお、ピコラドによる測定の間、浴室は使用されていなかった。一方、周辺家屋のラドン濃度は 4.8~17.1 Bq/m³、算術平均値は 9.2 ± 3.8 Bq/m³ であった(図 4-1-2)。

周辺家屋に高いラドン濃度はみられず、調査家屋のラドン濃度との間には有意な差が認められた($p < 0.01$)。

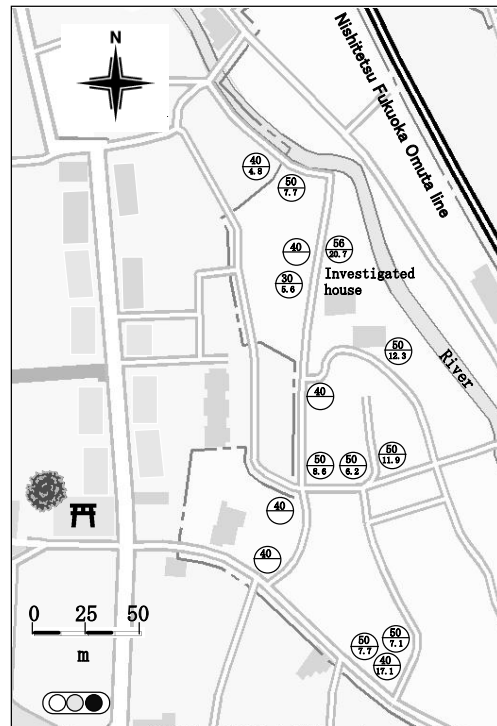


図 4-1-2 調査家屋周辺の地図、及び屋内ラドン濃度と空間放射線量率。円中の上方の値が空間放射線量率 (nSv/h) 、下方が屋内ラドン濃度(Bq/m³)

② 年間ラドン濃度と季節変動

ラドポットによって測定されたラドン濃度を表 4-1-1 に示す。調査家屋における年間のラドン濃度は 14~184 Bq/m³、算術平均値は 45 ± 37 Bq/m³ であった。主に使用するリビング、台所、寝室のラドン濃度の算術平均値は 28 ± 5 Bq/m³ であった。ラドン濃度が高いのは浴室、脱衣所、台所、リビング、寝室、郵便受けの順であった。変動の大きい浴室及び脱衣所における 3~5 月の平均ラドン濃度 177 Bq/m³ は 11~1 月の平均ラドン濃度 44 Bq/m³ に対して約 4 倍の差が認められた。一方、リビング、台所、寝室のラドン濃度に大きな差はみられなかった。対照となる家屋と有意な差が認められたのは調査家屋の浴室で、ラドン濃度は 36~184 Bq/m³、算術平均値は 77 ± 51 Bq/m³ であった ($p < 0.05$)。対照家屋に井戸はなく、生活用水には調査家屋と同じ市営の水道水が使用されていた。なお、調査家屋の屋外ラドン濃度は 2~13 Bq/m³、算術平均値は 7.0 ± 3.0 Bq/m³ であり、対照家屋の屋外濃度と差はみられなかった。

表 4-1-1 パッシブ型測定器（ラドポット）で測定された調査家屋及び対照家屋のラドン濃度

| Installation place | Start | Radon concentration (Bq/m ³) | | | | | | |
|--------------------|---------------|--|----------|----------|----------|----------|----------|----------|
| | | Nov-2000 | Jan-2001 | Mar-2001 | May-2001 | Jul-2001 | Sep-2001 | Nov-2001 |
| | End | Jan-2001 | Mar-2001 | May-2001 | Jul-2001 | Sep-2001 | Nov-2001 | Jan-2002 |
| Investigated house | Bath room | 42 | 65 | 184 | 64 | 53 | 98 | 36 |
| | Dressing room | 46 | 33 | 169 | 39 | 61 | 68 | 52 |
| | Living | 24 | 25 | 36 | 23 | 22 | 14 | 20 |
| | Kitchen | 33 | 52 | 46 | 18 | 26 | 43 | 27 |
| | Bed room | 14 | 21 | 24 | 31 | 28 | 27 | 25 |
| | Post | 5 | 7 | 5 | 8 | 2 | 7 | 13 |
| Other house -1 | Bath room | 24 | 17 | 23 | 15 | 17 | 23 | 20 |
| | Living | 39 | 45 | 37 | 24 | 37 | 47 | 36 |
| | Bed room | 30 | 32 | 32 | 30 | 25 | 34 | 37 |
| | Post | 12 | 23 | 25 | 2 | 17 | 7 | 8 |
| Other house -2 | Bath room | 22 | 9 | 10 | 9 | 7 | 14 | 15 |
| | Living | 11 | 10 | 13 | 7 | 2 | 14 | 13 |
| | Bed room | 10 | 12 | 6 | 12 | 10 | 8 | 10 |
| | Post | 20 | 15 | 15 | 10 | 3 | 8 | 10 |
| Other house -3 | Bath room | 14 | 6 | 18 | 6 | 8 | 19 | 14 |
| | Living | 7 | 23 | 6 | 14 | 13 | 21 | 15 |
| | Bed room | 9 | 10 | 10 | 23 | 12 | 12 | 14 |
| | Post | 5 | 6 | 6 | 7 | 4 | 10 | 12 |

③ 井戸水使用時におけるラドン濃度の変動

井戸水を使用した時の調査家屋脱衣所におけるラドン濃度の変動を図 4-1-3（1998 年 7 月）及び図 4-1-4（2000 年 10 月）に示す。7 月は測定開始から 5 時間後に浴槽（0.3 m³）を井戸水で満水にし、その後の測定期間中浴槽の水はそのままにした。浴槽に井戸水を貯め始めた後に急激なラドン濃度の上昇が認められ、2 時間後には低下した。その後、ラドン濃度は 22 時から再び増加し、翌朝 9 時までの平均ラドン濃度は 61.6 ± 16.8 Bq/m³であった。7 月の気温は 28～30 °C、相対湿度は 64～80 %であった。

10 月は測定開始から 20 時間後に浴槽（0.3 m³）を井戸水で満水にし、その後の測定期間中浴槽の水はそのままにした。井戸水を満たす前の 12 時～20 時の平均ラドン濃度は 18.5 ± 9.6 Bq/m³、21 時～翌朝 11 時までの平均ラドン濃度は 112.3 ± 32.3 Bq/m³であった。浴槽に井戸水を貯め始めた後、7 月と同様に急激なラドン濃度の上昇が認められたが、2 時間後には低下した。その後ラドン濃度は 21 時～翌朝の 11 時まで高レベルで推移し（125.3 ± 23.4 Bq/m³）、12 時～20 時に低くなる（56.9 ± 19.4 Bq/m³）日変動を繰り返した。10 月の気温は 18～20 °C、相対湿度は 65～82 %であった。

急激なラドン濃度の上昇は、井戸水を貯めている間水が勢い良く流れ出すため、井戸水から大気中へラドンの散逸が促進されたためと考えられる。また、その後の比較的高いラドン濃度は浴槽に貯まった井戸水から徐々にラドンが大気中へ揮散しているためと思われる。なお、浴室の窓を開放していた 7 月の最高値は 316 Bq/m³であったが、10 月には浴室の窓を閉めた状態で 964 Bq/m³を検出した。

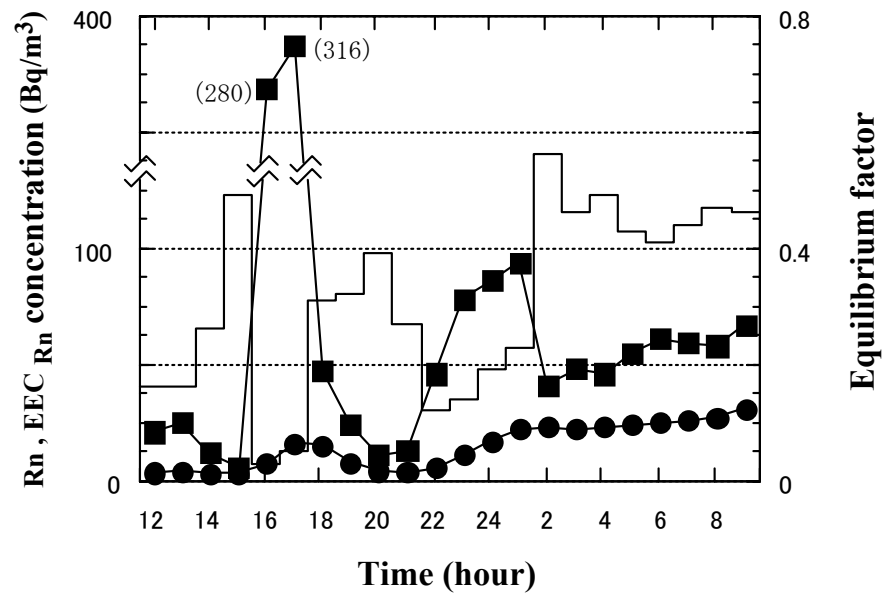


図 4-1-3 調査家屋におけるラドン濃度、平衡等価ラドン濃度(EEC_{Rn})、平衡ファクタの日変動 (7月)。ラドン濃度 (■：左目盛り)、EEC_{Rn} (●：左目盛り)、平衡等価ラドン濃度 (階段状折れ線：右目盛り)

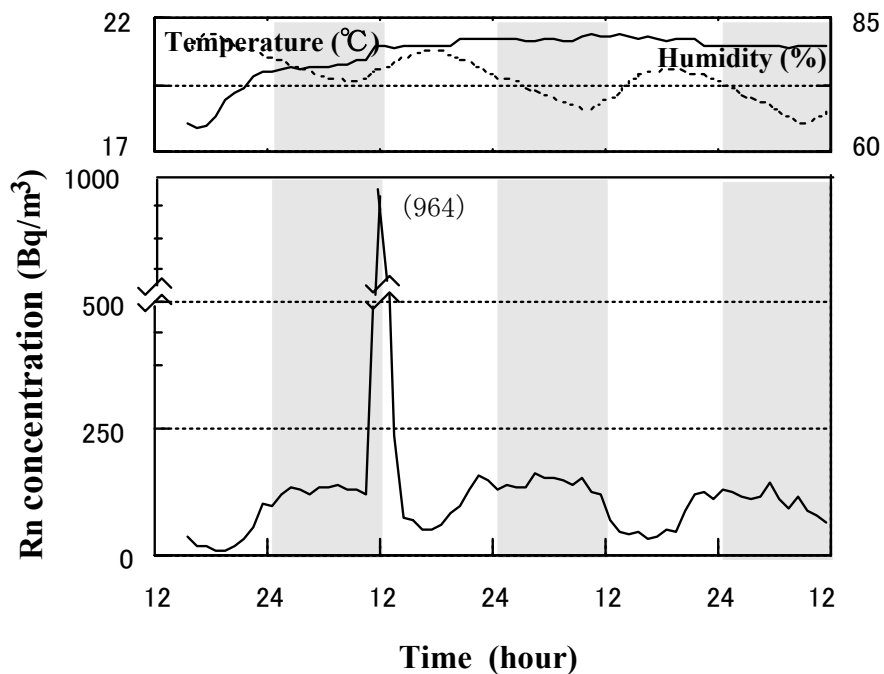


図 4-1-4 調査家屋におけるラドン濃度、気温、相対湿度の日変動 (10月)
 気温 (点線：左目盛り)、相対湿度 (実線：右目盛り)、ラドン濃度 (下方の図)

(2) ラドン濃度影響因子

① 水中ラドン濃度

調査家屋の井戸水中からは 353 Bq/L のラドンが検出された。水道水中のラドン濃度は 1 Bq/L であった。井戸水の水質は pH 6.4、電気伝導率 266 μ S/cm、蒸発残留物 239 mg/L であった。理化学的成分のうち主な陽イオンの濃度は Na⁺ 17mg/L、K⁺ 0.69 mg/L、Ca²⁺ 25 mg/L、Mg²⁺ 4.3 mg/L であった。主な陰イオンの濃度は Cl⁻ 21 mg/L、SO₄²⁻ 22 mg/L、HCO₃⁻ 67 mg/L

であった。井戸水の水質は浅層地下水に多くみられる Ca²⁺-Mg²⁺及び HCO₃⁻が多い、アルカリ土類炭酸塩型であった。

② 土壌中核種濃度

地表面土壌 (0~5cm) 中の核種濃度は ²²⁶Ra 16.6 Bq/kg 乾土、²³²Th 36.7 Bq/kg 乾土及び ⁴⁰K 964 Bq/kg 乾土であった。また、下層土壌 (5~20cm) 中の ²²⁶Ra は 17.6 Bq/kg 乾土、²³²Th 43.8 Bq/kg 乾土及び ⁴⁰K 1,000 Bq/kg 乾土であった。表層と下層の放射能濃度に有意差はみられなかった。

③ 空間放射線量率

調査家屋の庭において測定した空間放射線量率は 50~60 nSv/h、算術平均値 56±5 nSv/h であった。また、調査家屋の周辺では 30~60 nSv/h、算術平均値 45±7 nSv/h であった (図 4-1-2)。調査家屋の庭とその周辺地域の空間放射線量率との間には有意な差が認められた ($p < 0.05$)。

(3) 調査家屋の線量評価

① 平衡等価ラドン濃度及び平衡ファクタ

1998年7月に調査家屋脱衣所においてラドン濃度と同時に測定した平衡等価ラドン濃度は 3.0~31 Bq/m³の範囲で変動し、算術平均値は 15±10 Bq/m³であった (図 4-1-3)。平衡等価ラドン濃度は、夜から朝にかけて増加した後、徐々に減少し、日中に最低値を示した。ラドン濃度とラドン子孫核種濃度との関係を示す平衡ファクタは 0.03~0.56 まで変動し、その算術平均値は 0.31±0.2 であった。夜間には空気が滞留し、ラドン濃度とラドン子孫核種濃度は平衡状態に近づくため、平衡ファクタは大きくなった。一方、居住者が活動的な昼間は空気が攪拌され平衡ファクタは小さかった。

② 積算曝露量

調査家屋の居住者は終日自宅に滞在することが多いことから、UNSCEAR 1993 に従い、年間 7,000 時間を屋内での滞在時間とした。ラドポットによる年間平均ラドン濃度 45 Bq/m³ 及び平衡ファクタ 0.31 に上記の滞在時間を乗じた積算曝露量は 98,000 Bq h/m³ と

見積もられた。

③ 実効線量

調査家屋における実効線量は積算曝露量に線量換算係数を乗じて求めた。線量換算係数は、UNSCEAR 1993 の換算係数 9×10^{-6} mSv/(Bqh/m³) を用いた。その結果、調査家屋における居住者の在宅でのラドンによる年間実効線量は平均 0.88 mSv/y と推定された。

IV. 考 察

(1) 屋内ラドン濃度

① 調査家屋のラドン濃度及び空間分布

調査家屋のラドン濃度は周辺家屋よりも高く、年間ラドン濃度の算術平均値は 45 ± 37 Bq/m³ であった。東京周辺における木造家屋のラドン濃度の算術平均値は 12 Bq/m³⁵⁾、屋内ラドン濃度全国調査における木造家屋の算術平均値は 12.9 Bq/m³ であり、全国平均値は 15.5 Bq/m³ であった⁶⁾。これらの結果から調査家屋のラドン濃度は高い傾向にあることが分かった。また、この値は福岡県内の屋内ラドン濃度の算術平均値 22.4 Bq/m³ よりも高い濃度レベルであった⁷⁾。全国規模で実施された各国の屋内ラドン濃度調査結果を見ると、米国の場合、算術平均値 46.3 Bq/m³⁸⁾、スペインでは幾何平均値 41.1 Bq/m³⁹⁾、英国では平均値 20 Bq/m³¹⁰⁾ となっている。さらに、飯田らは韓国で平均値 26.1 Bq/m³¹¹⁾、中国で平均値 21.5 Bq/m³¹²⁾ と報告している。調査家屋のラドン濃度はわが国及び諸外国の屋内ラドン濃度に較べ高く、井戸水使用時には一時的に濃度が上昇し、EPA の基準値 150 Bq /m³¹³⁾ 及び ICRP の基準値 200~600 Bq /m³¹⁴⁾ を超える場合もみられた。

調査家屋の浴室では年間ラドン濃度の算術平均値に対して 1.7 倍高いラドン濃度が検出された。また、浴室で使用されている井戸水からは高濃度のラドンが検出され、この井戸水からラドンの揮散・移流・拡散によると思われる空間分布も認められた。なお、ピコラドによる測定時に井戸水は使用されていなかったにも関わらず、浴室で高いラドン濃度が検出されたことは、井戸の配管からラドンが漏出している可能性も考えられた。

② ラドン濃度の日変動及び季節変動

室内空気の換気速度に較べるとラドンの半減期(3.8 日)は長く、そのため屋内ラドン濃度は換気の影響を強く受ける。ラドン及びラドン子孫核種濃度は開放的な生活様式を反映した昼間に低く、窓や扉の閉鎖により換気率が低下する夜間から午前中に高い規則的な日変動を示すことが確認された。

浴室及び脱衣所を除く、各部屋のラドン濃度に季節変動はみられなかった。GEORGE ら¹⁵⁾ は屋内ラドン濃度には系統的な季節変動がみいだされないとしている。一方、WILKENING¹⁶⁾ は換気頻度の多い夏よりも換気頻度の少ない冬の方が屋内ラドン濃度は高

い傾向にあることを指摘している。また、FLEISCHER ら¹⁷⁾は冬と夏の屋内ラドン濃度比を 1.1 と報告しており、季節変動に関する統一した見解は出ていない。なお、調査家屋の浴室と脱衣所において、明確な季節変動が認められたのは、水中のラドン濃度が季節によって変化した可能性も考えられる。

(2) ラドン濃度影響因子

① 水中ラドン濃度

公共用に揚水された地下水中のラドンは、水処理操作や用水として給水される間に濃度が減少する。しかし、家庭用井戸から給水される水中のラドン濃度は、この様な処理が行われなため高い傾向にある。また、花崗岩地域の地下水ラドン濃度は一般に高いことが指摘されている^{18,19)}。調査家屋の井戸水は早良花崗岩を帯水層とする裂か水で 353 Bq/L のラドンを含んでいた。大沼ら¹⁸⁾は愛知県の 19 か所の地下水ラドン濃度が 2.6~228 Bq/L であったと報告している。また、斎藤ら²⁰⁾は東京及びその周辺の 1,114 か所の地下水から 0~45 Bq/L、平均値 8 ± 11 Bq/L のラドンを検出している。これらの値と比較しても、調査家屋の井戸水中ラドン濃度は高濃度であることが分かる。井戸水使用時に屋内ラドン濃度が急激に上昇していることから、この高濃度の水中ラドンが大気中へ揮散及び拡散して、屋内のラドン濃度を上昇させた可能性が窺える。

② 土壌中核種濃度

土壌空気中のラドン濃度は地表面近くの大気中レベルよりも約 1,000 倍高く、床下の土壌中で生成した高濃度のラドンが拡散や移流によって家屋内に侵入した場合、屋内ラドン濃度を高める大きな要因となる。恵ら²¹⁾は土壌中²²⁶Ra 濃度と平均ラドン濃度との間に非常によい相関関係を認めている。調査家屋の庭で採取した土壌における²²⁶Ra の濃度は 16.6~17.6 Bq/kg 乾土であった。調査家屋の土壌中²²⁶Ra 濃度は県内で採取した裸地土壌中の²²⁶Ra 濃度(9.9~22 Bq/kg 乾土)の範囲内にあり、調査家屋の土壌空気中のラドン濃度が特に高いとは考えにくい。また、土壌中のラドンが屋内へ侵入しやすい家屋構造でもなかった。

③ 空間放射線量率

屋外環境における空間放射線量率は、地表面土壌中の²³⁸U 系列、²³²Th 系列及び⁴⁰K からのガンマ線による寄与が大きな割合を占めており、屋内ラドン濃度と空間放射線量率には良い相関が認められている²²⁾。調査家屋の庭における空間放射線量率 56 ± 5 nSv/h は、福岡県下の空間放射線量率²³⁾59~64 nSv/h の範囲内であった。これは土壌中の²²⁶Ra、²³²Th 及び⁴⁰K 濃度が特に高い濃度ではないことから理解できる。なお、周辺地域はアスファルト舗装により剥き出しの土壌が少ないため土壌からのガンマ線が遮断された結

果、調査家屋よりも空間放射線量率が低くなったものと推測される。

(3) 調査家屋の線量評価

調査家屋における居住者の在宅での平均実効線量 0.88 mSv/y は、東京の商業ビルにおける就労者の実効線量 0.23 mSv/y²⁴⁾よりも高く、わが国の屋内ラドンによる平均実効線量 0.44 mSv/y に対し 2 倍の線量であった。このことは、水中ラドン濃度の高い井戸水を生活用水として使用している家屋では、水中から大気中へ揮散したラドンによって居住空間でのラドン濃度が高められ、ラドン及びラドン子孫核種から受ける実効線量が一般公衆の線量限度 1 mSv/y を超える結果を生じる可能性があることを示唆している。

V. 結語

ラドンを含む井戸水を使用している木造モルタル平屋造りの屋内ラドン濃度、水中ラドン濃度及び土壌中核種濃度などを測定し、屋内ラドン濃度を高める要因を検討するとともにラドンの挙動及び線量評価を行った。年間のラドン濃度の算術平均値は 45 ± 37 Bq/m³であった。井戸水中のラドン濃度は 353 Bq/L と高く、井戸水を使用する浴室及び脱衣所のラドン濃度は高濃度であった。浴室に隣接する脱衣所での調査では昼間と夜間の生活様式による濃度変化も認められた。屋内生活の大部分を占める居間及び寝室でのラドン濃度は諸外国の規制値よりも低い値であったが、脱衣所内のラドン濃度は井戸水使用時に米国での基準値 150 Bq/m³を超えた。ラドン濃度は井戸水使用時に高く、停止すると低下する傾向がみられた。また、井戸水を汲み上げている配管から家屋内への侵入の可能性も認められた。本調査家屋におけるラドン濃度から UNSCEAR1993 方式により求めた在宅時の平均的な実効線量は 0.88 mSv/y と推定された。

参考文献

- 1) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation ; Sources and effects of ionizing radiation, United Nations, New York (2000).
- 2) International Commission on Radiation Protection (ICRP); Protection against Radon-222 at home and at work, ICRP Pub. 65 (1993).
- 3) W. ZHUO, S. TOKONAMI, H. YONEHARA and Y. YAMADA ; A simple passive monitor for integrating measurements of indoor thoron concentrations, *Rev. Sci. Instrum.* , **73**, 2877 - 2881 (2002).
- 4) S. TOKONAMI, W. ZHUO, H. RYUO, H. YONEHARA, Y. YAMADA and M. SHIMO ; Instrument performance of a radon measuring system with the alpha-track detection technique,

- Radiat. Prot. Dosim.*, **103**, 69 - 72 (2003).
- 5) 杉浦城春, 鈴木隆司, 猪越幸雄 ; 東京都および隣接県における屋内・外ラドン濃度の測定および統計解析, *保健物理*, **30**, 293 - 301 (1995).
 - 6) T. SANADA, K. FUJIMOTO, K. MIYANO, M. DOI, S. TOKONAMI, M. UESUGI and Y. TAKATA ; Measurement of nationwide indoor radon concentration in Japan, *J. Environ. Radioact.*, **45**, 129 - 137 (1999).
 - 7) (財)日本分析センター ; ラドン濃度水準調査総合委託成果報告書(平成4~8年度調査結果), 118 - 119 (1996).
 - 8) U. S. Environmental protection Agency ; Technical support document for the 1992 citizen's guide to radon, Washington, DC, EPA 400-R-92-011 (1992).
 - 9) L. QUINDOS, L. P. FERNANDES and J. SOTO ; National survey on indoor radon in Spain, *Environ. Inter.*, **17**, 449 - 453 (1991).
 - 10) J. C. H. MILES, B. M. R. GREEN, P. R. LOMAS and K. D. CLIFF ; Radon in UK homes : Defining the areas affected, *Radiat. Prot. Dosim.*, **36**, 117 - 120 (1991).
 - 11) W. ZHUO, T. IIDA, K. YAMADA and Y. S. KIM ; An outline survey of indoor and outdoor ²²²Rn concentrations in South Korea, *Health Phys.*, **33**, 401 - 406 (1998).
 - 12) 金益和, 池辺幸正, 飯田孝夫 ; 中国における Passive 法による屋内・外ラドン濃度調査, *保健物理*, **26**, 341 - 349 (1991).
 - 13) U. S. Environmental protection Agency ; A citizen's guide to radon, Washington, DC, EPA 86-0004 (1986).
 - 14) ICRP Publication 60, 1990 Recommendations of the international commission on radiological protection, Pergamon Press, New York (1991).
 - 15) A. C. GEORGE and A. J. BRESLIN ; The distribution of ambient radon and radon daughters in residential buildings in the New Jersey-New York area, in "Natural Radiation Environment III", 2, 1272 - 1292, National Technical Information Center, Oak Ridge, (1980).
 - 16) M. WILKENING and A. WICKE ; Seasonal variation of indoor Rn at a location in the southwestern United States, *Health Phys.*, **51**, 427 - 436 (1986).
 - 17) R. L. FLEISCHER and L. G. TURNER ; Indoor radon measurements in the New York Capital District, in "EML Indoor Radon Workshop", U. S. Dept. of Energy, Environmental measurements Laboratory, New York, EML, 416 (1983).
 - 18) 大沼章子, 佐藤克彦, 茶谷邦男 ; 愛知県における地下水中ラドン濃度の分布, *環境ラドン*, 140 - 149 (1992).

- 19) Y. YASUOKA and M. SHINOBI ; Determination of Radon concentrations in natural water in the Rokko area and evaluation of its effective dose, *Radioisotopes*, **49**, 551 - 557 (2000).
- 20) 齋藤正明, 高田茂, 岡野安宏, 小池雄治, 鈴木隆司, 半田円 ; 東京およびその周辺の地下水中ラドン濃度分布, *Radioisotopes*, **42**, 273 - 278 (1993).
- 21) K. MEGUMI, T. TSUJIMOTO, T. OKA and K. KATSURAYAMA ; Background Radioactivity of Soil in Wakasa Bay Area (Southern Fukui Prefecture), *Hoken Butsuri*, **20**, 259 (1985).
- 22) K. FUJIMOTO ; Correlation between indoor radon concentration and dose rate in air from terrestrial gamma radiation in Japan, *Health Phys.*, **75**, 291 - 296 (1998).
- 23) 科学技術庁 (編) ; 第 41 回環境放射能調査研究成果論文抄録集, 東京 (1999).
- 24) S. TOKONAMI, J. PAN, M. MATSUMOTO, M. FURUKAWA, K. FUJIMOTO, K. FUJITAKA and R. KUROSAWA ; Radon measurements in indoor workplaces, *Radiat. Prot. Dosim.*, **67**, 143 - 146 (1996).

4. 2 飲水による被ばく

I. 緒言

飲料水中に含まれるラドンを体内に摂取したときの被ばく経路は、ラドンを吸入したときの経路とは全く異なる。すなわち、ラドンを吸入した場合には呼吸気道がラドンの取り込み口となるが、飲料水とともに摂取されたラドンは胃が取り込み口となる。摂取によって取り込まれたラドンの体内動態に関しては、1960年代以降積み重ねられてきた研究¹⁻⁸⁾から次のようなことがわかってきている。

胃に入ったラドンは数十分から数時間程度の半減期で小腸へ移動すると考えられている。この半減期は胃の内容物（食事の内容）や、被験者の運動レベル等によって大きく変わるとされている。ラドンは血液に溶けやすいので、小腸に移動した大部分のラドンは血液中に吸収され、血流とともに各臓器に運ばれる（図4-2-1）。そして、血中に溶け込んだラドンは肺から次第に呼気とともに排出される。これは血中の二酸化炭素が呼気を通じて肺から出て行くのと同様の原理である。ラドンは主に、胃→小腸→肝臓→心臓→肺→外気という経路をたどるが、小腸に達した後の各臓器の平均滞留時間は数分程度と考えられており、胃の滞留時間に比べてかなり短い。そのため、被ばくを受ける主要な臓器は胃と考えられている。

一方、ラドンとともに摂取される子孫核種については、親核種のラドンとは異なる経路をたどる。子孫核種は小腸から血液に吸収される割合（ f_1 ）が小さい。ICRPのデータ⁹⁾によると、それぞれの子孫核種について、 $f_1=0.1$ (Po) ; 0.2 (Pb) ; 0.05 (Bi)である。そのため小腸からは吸収されずに、尿中に排泄される割合が高い。また、胃壁の中にある標的細胞は胃の表面から $200\ \mu\text{m}$ の深さにあると考えられている¹⁰⁾。ラドンは気体であるため、胃壁の中を拡散しながら浸透し、標的細胞の近くでアルファ線を放出する可能性がある。その一方で子孫核種は固体粒子であるため胃壁の中には入り込めない。また、アルファ線の飛程（組織中で $50\text{-}60\ \mu\text{m}$ ）を考えると、胃壁の表面からアルファ線が放出されても胃壁の中の標的細胞には届かない。このような理由で、子孫核種からの線量寄与は、ラドンガスからの線量寄与に比べるとはるかに小さいと考えられている。

以上のような理由から、飲料水とともにラドンを摂取した場合に最も被ばくする臓器は胃（胃壁）と考えられている。ラドンを摂取したときの臓器ごとの線量、実効線量に関しては、数人の研究者がモデル計算を行っている。Khurshed⁸⁾の結果によると、ラドン $1\ \text{Bq}$ 摂取あたりの実効線量を $1\times 10^{-8}\ \text{Sv/Bq}$ 、胃の等価線量を $8.4\times 10^{-8}\ \text{Sv/Bq}$ と計算している。なお実効線量のうち約 97%が胃への等価線量からの寄与である。また NRC の計算¹⁰⁾（UNSCEAR2000¹¹⁾に採用されている）によると、胃の等価線量 $2.4\times 10^{-8}\ \text{Sv/Bq}$

に対して実効線量は 3.5×10^{-9} Sv/Bq である。実効線量のうち約 82% が胃への等価線量からの寄与である。

計算モデルによって換算係数が違うのは、採用しているパラメータの違いによる。胃の線量評価に関して重要なパラメータは次の 2 つである。すなわち、(1) ラドンが胃の中に留まっている時間、及び (2) 胃壁の中の標的細胞にラドンが拡散していく割合である。後者のパラメータに関しては、実測から評価することは難しく、モデル計算によって推定することとなる。一方で前者のパラメータに関しては、ラドン子孫核種（ガンマ線放出核種）の体外計測、血中や呼気中のラドン濃度の測定をもとに、胃の中における滞留時間を評価する研究が行われてきている。

以下では前者のパラメータをボランティア被験者について評価する実験を行ったので、その結果を示す。飲水によって体内に取り込まれたラドンは体外から検出することはできないが、ガンマ線を放出するラドン子孫核種 (^{214}Pb 、 ^{214}Bi) は NaI(Tl) や Ge 検出器を用いて体外から検出することが可能である。本報告では、ラドンを含む天然水を摂取した被験者 2 人をホールボディカウンタ（体外計測装置）で測定し、その結果からラドンの胃における半減期を評価したので、その結果を述べる。

II. 方法

(1) ホールボディカウンタによる測定

神戸市内にある井戸からラドンを含む天然水を採取し、これを試料とした。この試料水中ラドン濃度は、液体シンチレーションカウンタによる実験の結果、約 1,100 Bq/L であった。採取した水サンプルは放医研に送られ、ボランティア被験者の飲水実験に用いられた。ホールボディカウンタのジオメトリを図 4-2-2 に示した。ホールボディカウンタは、厚さ 20 cm の鉄で囲まれた中にベッドを置き、その上下に直径 20 cm、厚さ 10 cm の NaI(Tl) 検出器を 1 個ずつ配置した構造をしている。本実験では、胃を中心とする腹部からのガンマ線を測定するために、厚さ 5 cm の鉛コリメータで検出器を遮蔽した。図 5-2-2 に示すように、胃と小腸との間に鉛コリメータが位置するように配置して、胃から小腸への排出速度を評価できるようなジオメトリとした。実験に参加した被験者は 2 人で、以降、被験者 A（身長 173cm、体重 70kg）、被験者 B（身長 168cm、体重 58kg）とする。被験者 A については 1 回、B については 2 回の実験を行った。

各被験者は 0.5L の天然水を摂取した直後から、ホールボディカウンタによる測定を開始した。被験者はベッドに横になったまま 5 分測定を繰り返し行った。繰り返し測定は 20 回以上、トータルの測定時間は 100 分以上であった。各々の 5 分測定データから ^{214}Pb (295keV, 352keV) 及び ^{214}Bi (609keV) の正味計数率を評価し、その時間変化をグラフ

にプロットした。

(2) 体内動態モデル

上述の実験で測定しているのはラドンではなく、ラドン子孫核種であることに注意する必要がある。ラドン子孫核種の体内動態はラドンとは異なるため、測定結果に何らかの解釈を加えてラドンの動態を評価する必要がある。そこでラドン及びその子孫核種の体内動態を評価するためのモデルが開発された。このモデルには、ホールボディカウンタによる計測部位に含まれる主要な臓器（鉛コリメータに囲まれた部分に含まれる主要な臓器）、すなわち胃、肝臓が含まれている。また胃からラドンが排出される先の小腸もモデルには含まれている。その他の臓器・組織は計測部位から外れるか、またはラドン濃度が上記の臓器に比べて低いと考えられることから、考慮されなかった。

モデルには、ラドン及びその子孫核種の胃での半減期をはじめとする各種のパラメータが設定可能である。これらの値を設定するにあたっては、以下のような条件を仮定した。

(1) ラドンとその子孫核種は短期滞留成分と長期滞留成分に分けられる。(2) 短期滞留成分とは、水と一緒に移動する（水中に溶解している）ラドン及びその子孫核種と考える。(3) 胃の内容物と混じりあったラドン子孫核種は長期滞留成分と考える。これは、胃の内容物（固体）は液体に比べて半減期が長いと考えられているからである。(4) 胃の中で水中から気中に揮発したラドンは長期滞留成分と考える。(5) 飲水前にはラドンとその子孫核種は平衡状態に達しているが、ラドンの20%は飲水時に空気中に揮発してしまうものとする。

以上のような条件を仮定してパラメータを設定し、実測値の ^{214}Pb 、あるいは ^{214}Bi の代謝曲線にフィッティングさせた。

III. 結果及び考察

被験者 A に関して、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi の代謝曲線を図 4-2-3 に示した。フィッティングの例を図 4-2-4、使用したパラメータの値を表 4-2-1 に示す。最初に、従来のモデルで良く使われていた半減期 20 分をラドンと子孫核種全て（短期・長期滞留成分とも）に適用してみた（曲線 1）。しかしながら、これでは実測値と大きくかけ離れていることがわかる。そこで、ラドン子孫核種の半分が長期滞留成分として胃の中に留まっていると仮定してみた（曲線 2）。しかしながら、これでも実験で観測された長い半減期を説明できなかった。そこで、ラドン子孫核種のみならず、ラドンガスについても長期滞留成分があると仮定したのが曲線 3, 4 である。曲線 4 は良いフィッティングを示しているが、これは撰

取したラドンの60%が240分の半減期であると仮定して得られたものである。この半減期は、従来の線量評価モデルで良く採用されていた半減期20分よりずっと大きかった。同様のフィッティングを他の実測値にも適用したところ、データのばらつきが大きくて評価は難しかったが、およそ60分以上の半減期が得られた。

本研究では胃の半減期を評価したが、全身の半減期については過去にいくつかの研究がある。Dundulis⁴⁾らは過去の3つの研究¹⁻³⁾をまとめているが、これによると半減期は、45-70分、30-50分、27-33分と評価している。Gosink⁵⁾らは、被験者の状態が半減期に大きく影響することを示している。通常の活動レベルの被験者については、45分から65分の半減期が得られたが、眠っている人や安静にしている人では11.2時間の半減期であったと報告している。本実験において被験者は実験中ずっとベッドに横になっていた。これが一因となって長い半減期が観測されたのかもしれない。また、今回の実験は昼食後、約1時間してから行われた。胃の内容物によっても、半減期は違ってくる可能性がある。

IV. まとめ

ラドンを飲料水から摂取した場合の線量は、ラドンの体内（特に胃）での半減期に依存して変動する。従来の線量評価モデルの多くは、胃での半減期は20分を代表値としていたが、今回の実験で評価された半減期は60分から240分という値であった。この半減期を使うと、線量換算係数（ラドン1Bq摂取あたりの被ばく線量）は数倍大きくなると予想される。今後、さらにデータを収集して代表的な半減期を評価する必要がある。

参考文献

- 1) Anderson, I. O and Nilsson, I. *Exposure Following Ingestion of Water Containing Radon-222*. IAEA Symposium on Assessment of Radioactivity in Man. Vienna: IAEA; 1964: 317-326.
- 2) Hursh, J. B., Morcken, D. A., Davis, T. P. and Lovaas, A. *The Fate of Radon Ingested by Man*. Health Phys. **11**, 465-476 (1965).
- 3) Suomela, M. and Kahlos, H. *Studies on the Elimination Rate and the Radiation Exposure Following Ingestion of ²²²Rn Rich Water*. Health Phys. **23** 641-652 (1972).
- 4) Dundulis, W. P., Bell, W. J., Keene, B. E. and Dostie, P. J. *Radon-222 in the Gastrointestinal Tract: a Proposed Modification of the ICRP Publication 30 Model*. Health Phys. **47**(2), 243-252 (1984).
- 5) Gosink, T. A., Baskaran, M. *Radon in the Human Body from Drinking Water*. Health

Phys. **59**(6), 919–924 (1990).

6) Harley, N.H. and Robbins, E.S. *A Biokinetic Model for ^{222}Rn Gas Distribution and Alpha Dose in Humans Following Ingestion*. Environment. Internat. **20**(5), 605–610 (1994).

7) Sharma, N. Hess, C.T. and Thrall, K.D. *A Compartmental Model of Water Radon Contamination in the Human Body*. Health Phys. **72**(2), 261–268 (1997).

8) Khursheed, A. *Doses to Systemic Tissues from Radon Gas*. Radiat. Prot. Dosim. **88**(2), 171–181 (2000).

9) International Commission on Radiation Protection. *Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers*. ICRP Publication 68, Ann. ICRP **24**(4) (Oxford: Pergamon Press) (1995).

10) National Research Council. *Risk Estimation of Radon in Drinking Water*. (Washington, D.C.: National Academy Press). ISBN 0 309 06292 6. (1999).

11) United Nations. *Sources, Effects of Ionizing Radiation*. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000 Report (New York: United Nations sales publication) (2000).

12) National Council on Radiation Protection and Measurements (NCRP). *Evaluating the Reliability of Biokinetic and Dosimetric Models and Parameters Used to Assess Individual Doses for Risk Assessment Purposes*. NCRP Commentary No. 15, ISBN 0-929600-58-4. (1998).

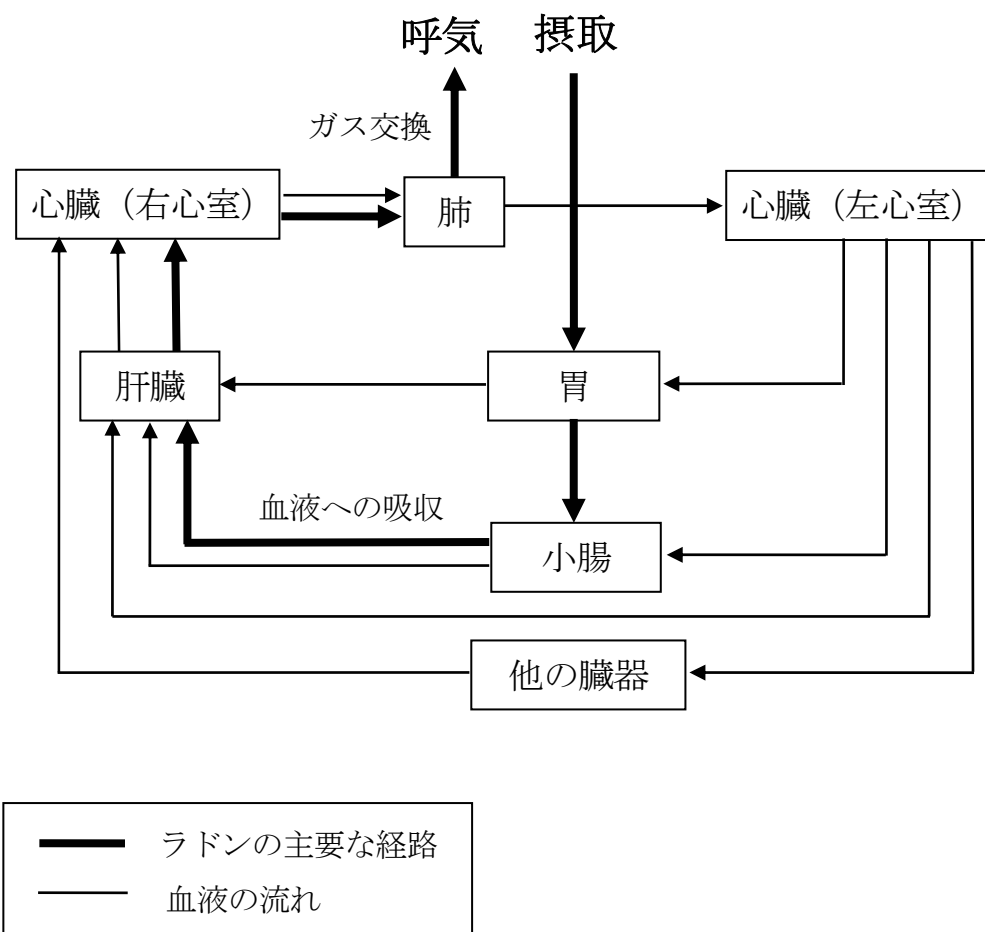


図 4-2-1 飲料水とともに摂取したラドンの体内における経路

遮蔽室 (200 mm 厚の鉄)

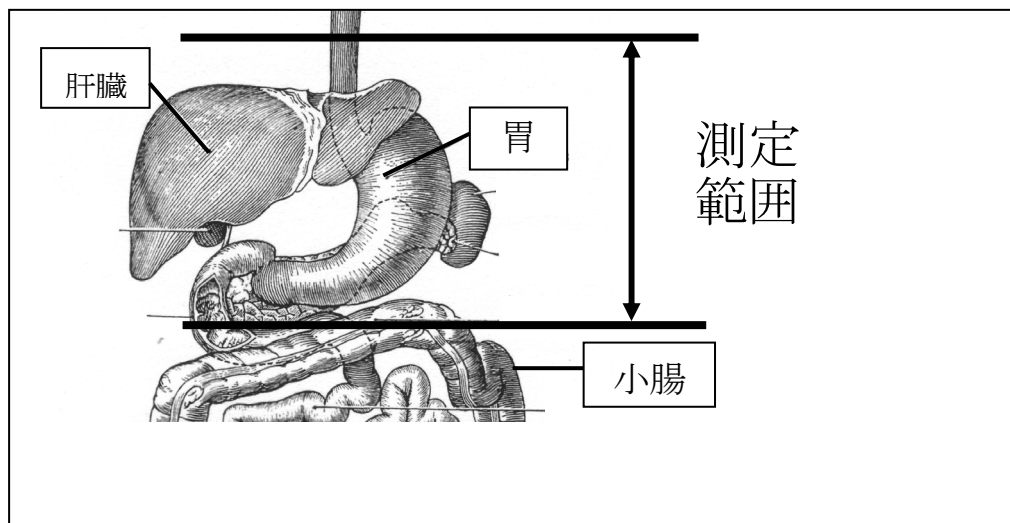
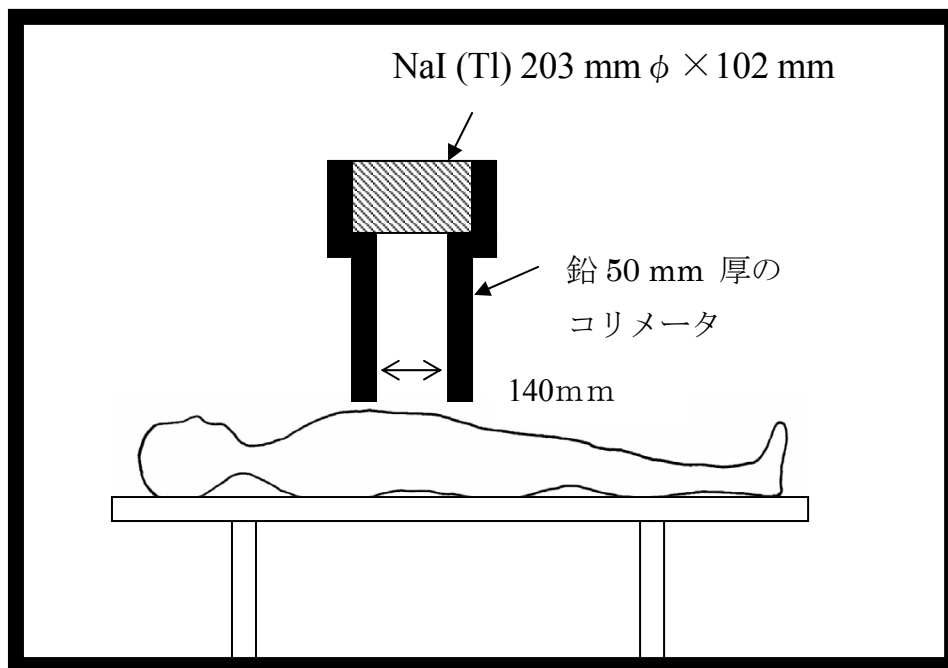


図 4-2-2 ホールボディカウンタ測定ジオメトリと測定範囲

正味計数率
(cpm)

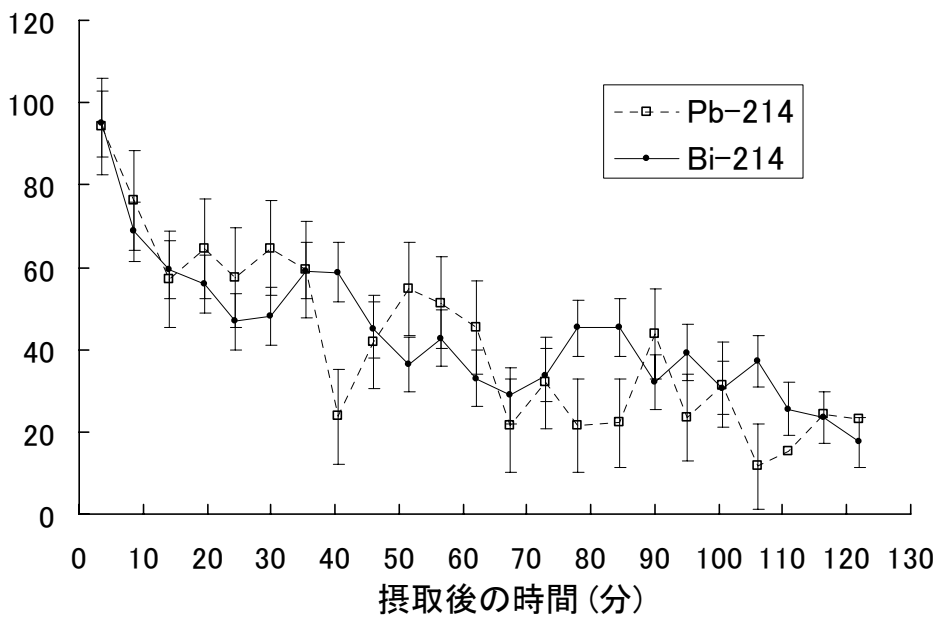


図 4-2-3 被験者 A に関する ^{214}Pb と ^{214}Bi の計数率の変化

^{214}Bi の正味計数率
(相対値)

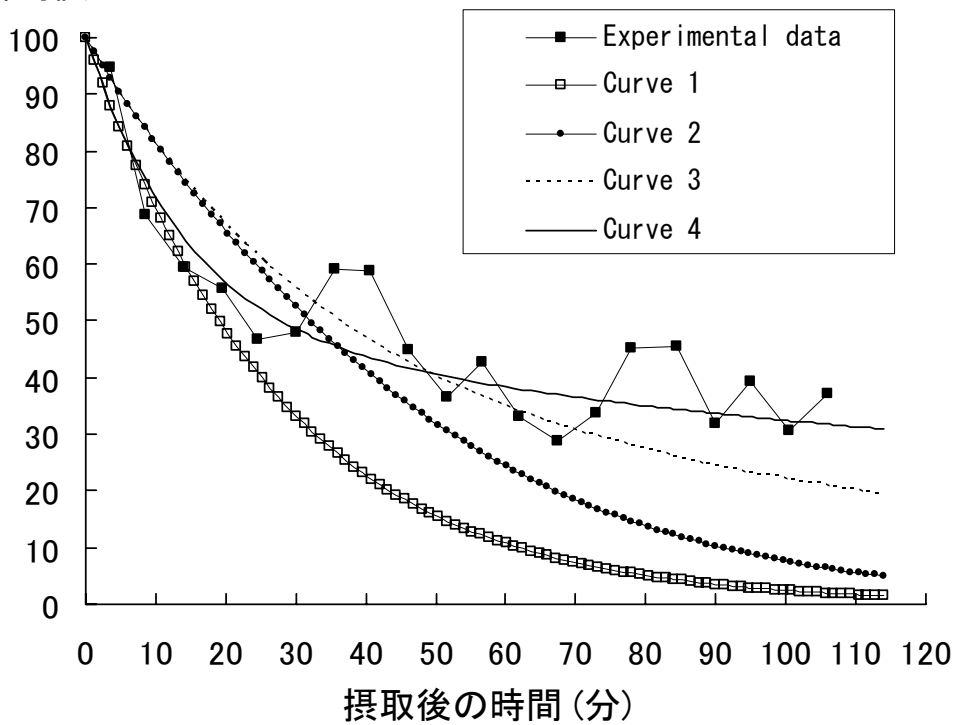


図 4-2-4 ^{214}Bi の計数率の変化とモデルによるフィッティング

表 4-2-1 図 4-2-4 のフィッティングに使用されたパラメータ

| パラメータ | Curve No. | | | |
|----------------------|-----------|-----|-----|-----|
| | 1 | 2 | 3 | 4 |
| ラドンの長期残留成分の割合 | 0 | 0 | 0.5 | 0.6 |
| 上記成分の半減期 | - | - | 100 | 240 |
| ラドン子孫核種の長期残留成分の割合 | 0 | 0.5 | 0.5 | 0.5 |
| 上記成分の半減期 | - | 100 | 100 | 150 |
| 短期残留成分(ラドン、子孫核種)の半減期 | 20 | 20 | 20 | 10 |

5. 水中ラドンに起因する健康リスク

本章では水中ラドンに起因する健康リスクに関して解説する。アメリカでは水中ラドンに起因する健康リスクを評価した結果を1冊の本にまとめて1999年に出版した。この本の要約を既報（石川ら *Radioisotopes*, **52**, 203-209(2003)）に収録してあるので、この内容を5.1節に示す。5.2節では疫学的アプローチによるリスク評価ということで疫学的手法による健康影響評価、これまでに公表された水中ラドンの疫学研究に関して解説してある。

5. 1 アメリカにおけるリスク評価の解説、規制値の背景

I. 緒言

アメリカ研究審議会（National Research Council）は、飲料水中のラドン（ ^{222}Rn ）に起因するリスクを評価した結果を“Risk assessment of radon in drinking water”という1冊の本にまとめて1999年に出版した¹⁾。この本の中では、水中ラドンに関するガン死亡数に関して次のような記述がされている。「1998年のアメリカでは約16万人が肺がんで死亡した。そのうち1万9千人は、住居内でラドンを吸入したことから生じたものであると推定されている；なお、これらの死亡者のほとんどは喫煙者である。1万9千人の死亡のうち160人の死亡は、住居内で使用される水から放出されたラドンを吸入することから生じたものであると推定されている；これらのほとんどは喫煙者である。また、ラドンを含む飲料水の摂取による胃がんは極めて小さく、約20人と評価されている。これに対して、他の原因によって生ずる胃がんは1万3千人である。」

アメリカではこのように水中ラドンに起因するリスクが評価され、その結果が公表されている一方で、我が国においてはこのような検討はあまりなされていないのが現状である。我が国でも、水中ラドン濃度の測定は数多く行われている^{2, 3)}。しかしながら、これらは地震予知や水理学など地球科学的な観点からの研究、あるいは濃度レベルの調査といった種類の研究が多く、水中ラドンに起因する被ばくという観点からの研究は少ない。そこで本報告では、“Risk assessment of radon in drinking water”の要約を解説するとともに、「水中ラドンに起因する被ばく」という観点から、我が国における研究の現状及び課題を取り上げてみたい。

II. アメリカにおける飲料水中ラドンのリスク評価

本節で示す内容は、上述の本“Risk assessment of radon in drinking water”のSummaryを要約したものである。

(1) 飲料水中ラドン濃度の基準値、及びその背景

アメリカにおける水質の基準は、環境保護庁 (Environmental Protection Agency, EPA) によって規制されている。規制となる法律は飲料水安全法 (Safe Drinking Water Act, SDWA) という法律であり、元々は 1974 年に議会を通過したものである。その法律が 1986 年に改正された際に、飲料水における規制すべき放射性物質の一つとしてラドンが取り上げられた。そして EPA は、ラドン濃度に関する基準を公表するように求められた。

そこで 1991 年に EPA は水中の放射性物質に関する基準を提案した。ラドンは発ガンを引き起こす物質であるので、最大汚染レベルの目標値 (Maximum Contaminant Level Goal, MCLG) は自動的にゼロに決められた。また 11 Bq/L という最大汚染レベル (Maximum Contaminant Level, MCL) は、コストを考慮した上で実行可能、かつゼロに近いレベルということで提案された。提案された基準を一般市民に公開してコメントを求めたところ、MCL は 1 Bq/L 以下にすべきであるという意見から 740 Bq/L でよいという意見まで様々であった。しかしながら大多数は、MCL を 11 Bq/L 以上の値にすることを望んだ。

1996 年の飲料水安全法の改正で EPA は、国立科学アカデミー (National Academy of Science, NAS) と契約して、飲料水中のラドンに関するリスク評価を実行するように要求された。そして、(1) 飲料水中のラドン濃度と、飲料水を使うことによる屋内ラドン濃度の増加分との関連を評価すること、(2) その関連をもとに、屋内ラドン濃度の増加分が屋外平均ラドン濃度に等しくなるような飲料水中ラドン濃度を評価すること、(3) そして (2) で評価された水中ラドン濃度に比べて、提案された MCL (11 Bq/L) が小さいのであれば、(2) で評価された水中ラドン濃度を最大汚染レベルの代替値 (Alternative Maximum Contaminant Level, AMCL) として公表すること、を求められた。

そこで、飲料水中ラドンのリスク評価に関する委員会 (The committee on risk assessment of radon in drinking water) がアメリカ研究審議会の中に作られた (以下、委員会と略す)。委員会は 1997 年 5 月に発足し、1997 年 7 月 14-15 日に第 1 回目の会合を行った。そして、9 ヶ月の間に 6 回の会合を持った。その検討の結果が 1999 年に “Risk Assessment of radon in drinking water” という本として出版された。EPA は、この本にまとめられた知見に基づいて、新しい MCL を設定することを求められている。

この本の中で AMCL は 150 Bq/L (約 4000 pCi/L) という値が提案された。これは、アメリカの屋外ラドンレベルの算術平均を $15 \pm 0.3 \text{ Bq/m}^3$ として、水中ラドンから屋内ラドンへの寄与 (水中ラドン濃度と、水を使うことによる屋内ラドン濃度増加分との比) を 1×10^{-4} と見積もったときに、屋外ラドンレベルによって引き起こされるリスクより大きなリスクを与えない水中ラドンレベルとして、提案された値である。

(2) 基準値の適用される水源

上記の基準値 (MCL、AMCL) を適用する対象の水源に関しては、上記の本の中で次のように述べられている。

「飲料水安全法は、個人の所有している井戸を規制するものではない。したがって法的には、個人が所有している井戸に対して何らかのアクションを起こす義務はない。しかしながら、リスクを減少させたいと思う人は、井戸水を検査すべきである。その結果、もしラドン濃度が AMCL を上回っていたらラドンを減少させる行動を取るべきである。加えて、屋内ラドン濃度も測定し、EPA のアクションレベルを超えていたら、屋内ラドン低減の対策を考えるべきである。しかしながら、以前の NRC レポートが結論づけているように、肺ガンのリスク及びラドンに付随するリスクを減少させるためには、タバコを止めるのが一番効果的な方法である。

25 人以上の人、または 15 以上の供給先がある井戸は公共水道と見なされ、規制の対象となる。また、学校のような特別のケースでも、水道の水源を地下水に頼っているとすれば、ラドン規制の対象となりうる。」

(3) 水中ラドンに起因するリスクの評価

水中ラドンに起因するリスクは大きく分けて、飲料水の摂取によるリスクと、水中から気中に放出されたラドンを吸入するリスクに分けられる。

① 飲料水摂取によるリスク

ラドン、あるいはその他の不活性ガスに関する体内動態研究によって、今までに以下のような知見が得られている。摂取によって体内に取り込まれたラドン (あるいは不活性ガス) は、胃腸管から血中に吸収される。ラドンがいったん血中に入ると、血液の流れとラドンの溶解性の程度に応じて、ラドンは各臓器に運ばれる。血中のラドンは肺でのガス交換を通して、やがて体外へと排泄される。このような一連の経路の中で、胃は摂取したラドンの入り口であり、特に注意を向ける必要がある。ラドン及びその子孫核種が胃の中で放出するアルファ線の飛程は、胃壁のある深さに存在する標的細胞に届くほど長くはない。そのため胃壁への線量は、胃の内容物から胃壁へのラドンの拡散の程度に大きく依存する。

以上のような知見を基にして委員会では、(1) 胃の中でのラドンの拡散に関するモデル、及び (2) ラドンの摂取から排出までの体内動態モデルを開発した。胃の中でのラドンの拡散に関するモデルでは、胃壁のある深さに存在する標的細胞のラドン時間積分濃度を評価した。拡散係数を $5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2 / \text{s}$ とした場合、標的細胞における積分濃度は胃の内容物の積分濃度の約 30% であることが示された。またラドンの摂取から排出まで

の体内動態に関しては、組織中の血流に関する情報、及び血液と組織におけるラドンの溶解度に関する情報を取り入れたモデルが開発された。このモデルでは、ラドン子孫核種と親核種のラドンとで沈着、排泄に関する挙動は別々に考えられており、この点が従来のモデルと異なる点である。

これらのモデルによって委員会では、ラドン濃度 1 Bq/m^3 の飲料水を生涯にわたって摂取した場合のガン死亡リスク（年齢、性別について平均）を 0.2×10^{-8} と評価した。

② 吸入によるリスク

ラドンの吸入による肺がんのリスクは、主に鉱山労働者の研究に基づいて評価されている。例えば BEIR IV⁴⁾、NIH⁵⁾、BEIR VI⁶⁾ の報告書では、7つの国における4から11個の集団に関するデータを使用してリスクを評価している。これらのモデルのうち委員会では、BEIRVIモデルによる評価値 ($1.6 \times 10^{-4} \text{ Bq/m}^3$) を採用した。ラドンの水中から気中への移行係数として 1×10^{-4} を使うと水中ラドン 1 Bq/m^3 あたりのリスクは 1.6×10^{-8} と評価される。

③ リスク評価のまとめ

委員会では、上述のように水中ラドンによって生じる被ばく（吸入及び飲水）に起因するリスクを評価した。水中ラドン 1 Bq/m^3 によって生じる生涯リスクの数値をまとめたものを表 5-1-1 に示す。これらの数値を見てわかるように、飲水によるリスクよりも吸入によるリスクのほうがずっと大きいと評価されている。

表 5-1-1 リスク評価のまとめ

| 被ばく経路 | 生涯リスク | | |
|---------------|-----------------------|-----------------------|-----------------------|
| | 男性 | 女性 | 米国全体 |
| 吸入(喫煙者) | 3.1×10^{-8} | 2.0×10^{-8} | 2.6×10^{-8} |
| 吸入(非喫煙者) | 0.59×10^{-8} | 0.4×10^{-8} | 0.5×10^{-8} |
| 吸入(全体) | 2.1×10^{-8} | 1.2×10^{-8} | 1.6×10^{-8} |
| 摂取 | 0.15×10^{-8} | 0.23×10^{-8} | 0.19×10^{-8} |
| 摂取、吸入を合計したリスク | 2.2×10^{-8} | 1.4×10^{-8} | 1.8×10^{-8} |

III. リスク低減

水中ラドンに起因するリスクを低減するために、以下のような方法が提案されている。低減対象となる水中ラドン濃度と MCL 及び AMCL との関係から、3つのケースが考えられる。(1) 水中ラドンが既に MCL 以下である場合。この場合は何もする必要がない。1991年に提案された MCL (11 Bq/L) を適用すると、アメリカにおける大多数の人がこの場合に当てはまる(約14人に1人だけが MCL 以上の濃度の水を日常的に消費している)。(2) 水中ラドン濃度が AMCL (150 Bq/L) 以上である場合。この場合は、水中ラドンを少なくとも AMCL まで減少させることが法律的に要求される(ただし規制が最終的なものとなった場合)。(3) 水中ラドン濃度が MCL と AMCL との間である場合。この場合、水中ラドン濃度を MCL 以下に減少させなければならない。あるいは、EPA によって承認されたプランがあれば、そのプランにしたがって空気中(または水中)ラドン濃度を減少させる対策を立てることで、水中ラドンに起因するリスクを減少させる方法を取ることもできる。

飲料水安全法では、MCL と AMCL との間の濃度を含む公共水道を持つ自治体に対して、空気中ラドン低減のための対策をまかせている。各自治体(州)は、空気中ラドンを低減させるためのプログラム(Multi Media Approach)を開発し、EPA に提出してもよい。ここで言うプログラム(マルチメディアアプローチ)の例としては、空気中ラドン低減のための一般公衆への教育、家のラドン濃度の調査、教育訓練、技術的サポート、低減のための予算といったことが挙げられる。このようなプログラムによって達成が期待されるリスクの減少が、各公共水道を MCL で一つにまとめたときに達成されるであろうリスクの減少に比べて同等か大きいときに、EPA の管理者はそのプログラムを承認すべきである。

1996年の飲料水安全法の改正で EPA は、このようなプログラムに関するガイドラインを策定し、それを公表することを求められた。EPA は現在ガイドラインを開発中である。

IV. 日本における水中ラドン濃度及び基準値

上述のようにアメリカでは水中ラドンに起因するリスクが評価され、ラドン濃度基準が提案・検討されている一方で、我が国における基準、及び濃度レベルに関する現状をまとめると以下ようになる。

(1) 日本における基準

我が国でも、温泉の一つの成分としてラドンを見た場合には、温泉法(1948年公布)⁷⁾によって温泉であるかどうか、また鉱泉分析法指針(環境庁資源保護局監修)⁸⁾によって、医効効果が期待される「療養泉」であるかどうかに関する基準は定められている。それらを要約すると次のようになる。

① 1 kg 中にラドンが 5.5 マッヘ以上含まれていれば（泉温に関係なく）、「温泉」と定義される。なお、ラドン 13.3 Bq/L が 1 マッヘに相当するので、1 kg 中にラドンが 74 Bq/L 以上含まれている地下水であれば、「温泉」である。②温泉の中でも泉温、質、組成の上で薬理学的に医治効果が期待されている温泉を「療養泉」という。1 kg 中にラドンが 8.25 マッヘ（111 Bq）以上含まれているものは「放射能泉」（療養泉の一種）に相当する。③「放射能泉」は 1978 年の鉱泉分析法指針の改定により、「弱放射能泉」（8.25 マッヘ以上、50 マッヘ以下）、及び「放射能泉」（50 マッヘ以上）に呼称が変わった。

なお、温泉を公共的に利用するには、登録された分析機関（各都道府県の保健所、衛生研究所など）で温泉成分を分析し、分析結果を記載した申請書を都道府県知事に提出して許可を受けることになっている。この分析方法の指針が「鉱泉分析法指針」である。この指針によると、ラドン濃度は液体シンチレーションカウンタまたは IM 泉効計を使用して測定することになっている。

以上のように、温泉、あるいは療養泉といったプラスの面から見たラドン濃度に関しては基準はある一方で、被ばくによるリスクという観点から見た基準はないというのが日本の現状である。

（２） 日本における水中ラドン濃度のレベル

我が国においても、多くの研究者が井戸水、湧水などを対象として水中ラドン濃度の測定を行っている^{2, 3)}。測定方法としては、液体シンチレーションカウンタを用いている例が多い。これらの研究の中から、いくつか例を挙げてみる。

阪上⁹⁾は、ラドン濃度が高い鉱泉の例として、次のような場所を挙げている；増富（山梨県）A9号泉 12,000 マッヘ（162,000Bq/L）、池田（島根県）第8号泉 4,330 マッヘ（58,455Bq/L）、三朝（鳥取県）松原井戸水 741 マッヘ（10,000Bq/L）。安岡ら¹⁰⁾は神戸市及びその周辺の井戸水 35 地点を調査したところ、2.6–212 Bq/L の値を得た。この中で飲用に使われている井戸で一番高い濃度は 79 Bq/L であった。斎藤ら¹¹⁾は、東京及びその周辺における地下水中ラドン濃度（合計 1114 例）を調査した結果を報告している。これによると、濃度範囲は 0–45 Bq/L で、その内訳は 10 Bq/L 以下が全体の 81% を占め、10–20 Bq/L が 12%、20–45 Bq/L が 7% であったと報告している。石井ら¹²⁾は日本の名水百選のラドン濃度を測定したところ、0.24–98.91 Bq/L（平均 13 Bq/L）の値を得ている。古田³⁾は人形峠周辺の水中ラドン濃度を平成 3 年度から平成 7 年度にかけて測定した結果を報告している。これによると、飲料水で 0.1–230 Bq/L の測定値を得ており、ある民家の井戸ではこの期間の平均値として、151 Bq/L を記録している。

以上のような調査から、EPA の基準に照らし合わせれば、井戸水、湧水の中で MCL（11 Bq/L）を超える地点は我が国に数多く存在し、中には AMCL（150 Bq/L）を超える地点も

存在していることがわかる。

V. まとめと今後の課題

水中のラドンに関して、アメリカにおけるリスク評価結果の要約と、我が国における濃度基準及び濃度レベルの概要とをまとめてみた。アメリカの濃度基準をそのまま適用すれば、我が国において基準を上回る濃度の飲料水、生活用水がある現状を考えれば、今後被ばくという観点からの検討が必要である。濃度レベルの把握のみならず、4章で述べた被ばくに関連するパラメータについても、今後さらにデータを集積していく必要がある。

参考文献

- 1) National Research Council: "Risk assessment of radon in drinking water", National Academy Press, Washington, D.C. (1999)
- 2) 福井正美: 地下水とラドン, 日本原子力学会誌, **37**, 1017-1025 (1995)
- 3) 京都大学原子炉実験所: 「天然水中ラドン」専門研究会, KURRI-KR-6 (1997)
- 4) National Research Council: "Health risks of radon and other internally deposited alpha emitters (BEIR IV)", National Academy Press, Washington, D.C. (1988)
- 5) NIH (National Institutes of Health): "Radon and lung cancer risk. A joint analysis of 11 underground miners studies", National Institutes of Health, Bethesda, MD (1994)
- 6) National Research Council: "Health effects of exposures to radon (BEIR VI)", National Academy Press, Washington, D.C. (1999)
- 7) 堀内公子: 日本の温泉と放射線, 日本放射線技術学会誌, **57**(12), 1462-1468 (2001)
- 8) 鉱泉分析法指針 (改訂): 温泉工学会誌, **13**, 1-21 (1978)
- 9) 阪上正信: 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**(2), 189-197 (1998)
- 10) Yasuoka, Y. and Shinogi, M.: Determination of radon concentration in natural well water in the Rokko area (Japan) and evaluation of its effective dose, *Radioisotopes*, **49**, 551-557 (2000)
- 11) 斎藤正明, 高田茂, 岡野安宏, 小池雄治, 鈴木隆司, 半田圓: 東京およびその周辺の地下水中ラドン濃度分布, *Radioisotopes*, **42**, 273-278 (1993)
- 12) 石井忠, 堀内公子: 天然水中のラドン, 環境ラドン (下道国他、編集) pp. 160-166, 電子科学研究所, 大阪 (1992)

5. 2 疫学的アプローチによる影響評価

I. 緒言

大気中ラドンの影響については、第二次世界大戦後、鉱山労働者を対象とした疫学研究が相次いで実施され、高レベルのラドン被ばくが肺がんのリスクを増加させることが示されてきた。その結果、住居内環境における比較的低いレベルの大気中ラドン被ばくが一般公衆の健康に与える影響についても懸念され、住居内ラドンと肺がんに関する多くの疫学研究が1980年代後半から実施された。個々の症例・対照研究からは、住居内ラドン被ばくによる肺がんリスクの有意な増加を示す結果は少ないが¹⁾、5ヶ国で実施された8つのケース・コントロール研究を対象としたLubinとBoiceによるメタアナリシス²⁾では、150Bq/m³程度の住居内ラドン被ばくにより肺がんリスクが有意に増加することが示された。

一方、水中にラドンが含まれる場合、飲料水中のラドン摂取による消化器官への被ばくの影響および水中ラドンから大気中に移行したラドン及びその子孫核種吸入による呼吸器官への被ばくの影響が問題となるが、水中ラドンの影響を調べた疫学研究は非常に限られている。本章では、疫学的手法による健康影響評価、これまでに公表された水中ラドンの疫学研究、水中ラドンの疫学研究の限界、の順に紹介する。

II. 疫学的手法による健康影響評価

(1) 疫学研究の種類

疫学研究は調査研究の目的や方法などによって、記述疫学と分析疫学に分類することが出来る。記述疫学は、健康問題の頻度や分布などの点から対象集団の全体像を把握したり説明することを主な目的とし、分析疫学は、疾病の原因を究明したり治療法の効果判定を行うことを主な目的とする。

記述疫学および分析疫学は、いずれも健康や疾病に関連する要因を観察して調査研究を実施するという点で観察研究とも呼ばれる。観察研究の代表的な種類として、地域相関研究(ecological study;生態学的研究とも呼ばれる)、コホート研究(cohort study)、症例・対照研究(case-control study)が挙げられる。地域相関研究では、集団が観察単位で、一方、コホート研究や患者・対照研究では個人が観察単位である。タバコと肺がんの疫学研究を一例として挙げれば、喫煙率と肺がん死亡率を地区別に比較する研究は地域相関研究に該当し、固定された集団(コホート)を対象とし、全てのコホート構成員の喫煙状況を調べ、肺がん発生状況を追跡する研究はコホート研究に該当する。また、肺がん患者と健常者の過去の喫煙状況を調べて比較する研究は患者・対照研究に該当す

る。

観察研究とは対照的に、健康や疾病に関連する要因について研究対象者を人為的に曝露させる研究は介入研究と呼ばれる。介入研究の代表的な種類として、臨床試験、野外研究、地域研究の3つが知られている。介入としては、薬剤投与、ワクチン摂取、栄養指導など、健康によい効果が期待される内容が実施される。

大気中ラドンの影響については観察研究が広く実施されてきた。特に前述したように、鉱山環境における労働者を対象としたコホート研究や一般居住環境における住民を対象とした症例・対照研究により多くの結果が報告されている。一方、水中ラドンの影響については、後述するように、観察研究のうち主に地域相関研究によって調べられてきたが、その数は非常に限られている。

(2) 疫学研究の特徴

疫学研究には多くの長所や短所がある。ラドンの疫学研究としては観察研究が広く実施されてきたが、表 5-2-1 に観察研究の主な長所と短所を示す。地域相関研究は、コホート研究や患者・対照研究に比べて容易に実施出来るが、得られる結果の信頼性の点(因果関係を判断するエビデンスとしての重さ)では他の2つに劣る。また、コホート研究は3つの中でも得られる結果の信頼性が最も高いが、費用や時間の点で実施がしばしば困難である。患者・対照研究は、結果の信頼性の点ではコホート研究と地域相関研究の間にあるが、曝露に関する過去の情報を調べる際に、思い出しによるバイアス、例えば、患者は健常者に比べて過去の曝露情報を熱心に思い出す傾向が強い、を受けやすいなどの短所がある。

表 5-2-1 観察的疫学研究の特徴

| | 研究タイプ | 主な長所 | 主な短所 |
|--------------|---------|--------------------------------------|-----------------------------------|
| 集団を観察単位とした研究 | 地域相関研究 | 要する費用や時間が比較的少ない。既存の資料を利用して開始できる。 | 種々のバイアスを受けやすい。入手できる情報が限られる。 |
| 個人を観察単位とした研究 | コホート研究 | 死亡率などの指標が直接得られ、結果の解釈が容易。複数の疾病を評価出来る。 | 多くの対象者、時間、費用を要する。稀な疾病を調べにくい。 |
| | 症例・対照研究 | 稀な疾病を調べられる。要する費用や時間が少ない。複数の要因を評価出来る。 | 死亡率などの指標が直接得られない。思い出しによるバイアスが大きい。 |

Ⅲ. これまで公表された水中ラドンの疫学研究

(1) 関連文献の検索

米国国立医学図書館が提供している生物医学文献の検索サービス PubMed³⁾を利用し、これまでに世界各国で実施されてきた水中ラドンの疫学研究を検索した。3つのキーワード radon, water, epidemiology を共に満たすのは25文献で、これらの文献のアブストラクトなどから4つ⁴⁻⁷⁾を関連研究として考慮した。表5-2-2にはこれら4つの研究の概要を示す。

表 5-2-2 水中ラドンとがんの疫学研究

| 研究 | ²²² Rn 濃度 (Bq/L) | 追跡年 | 調べたがんの数 | 有意に増加したがん部位 |
|-------------------------------------|--------------------------------------|---------|-----------------------------|-------------------|
| Hess et al. (1983) ⁴⁾ | -670 (郡平均) | 1950-69 | 33,928 | 男女平均：全がん、女性：全がん、肺 |
| Collman et al. (1988) ⁵⁾ | -403 (郡平均) | 1978-82 | 6,795(消化管)、 1,758(白血病)など | なし |
| Collman et al. (1991) ⁶⁾ | 低：<8.4, 中：8.4-50.9, 高：50.9-396 | 1950-79 | 2,706(15歳未満の全がん) | 全がん、白血病 |
| Auvinen et al. (2002) ⁷⁾ | 中央値は患者で80、対照で130) | 1981-95 | 35(白血病) | なし |

(2) 先行研究の主な内容

米国メイン州を対象に Hess らが実施した地域相関研究⁴⁾では、郡別に井戸水中のラドン濃度とがん死亡率(1950-69年)が検討された。水中ラドン濃度は20-180,000pCi/Lであった。群別の平均水中ラドン濃度は、男性の生殖器がん、女性の全がん、肺がんの死亡率と有意な相関が見られた。

また、Collman らは米国ノースカロライナ州を対象に地域相関研究⁵⁾を実施し、群別水中ラドン濃度とがん死亡率(1978-82年)を検討したが、水中ラドン濃度とがん死亡率の間に有意な関連は見られなかった。さらに Collman らは、同じ米国ノースカロライナ州における小児がん(15歳未満)の死亡率(1950-1979年)を地域相関研究⁶⁾によって検討し、水中ラドン濃度が中程度(229-1,375 pCi/L)の郡および高い(1,376-10,692 pCi/L)郡で低い(<228 pCi/L)郡に比べ、小児の全がんおよび白血病の死亡率が有意に高いことを報告した。

Auvinen らは、フィンランドでケース・コホート研究⁷⁾を実施し、井戸水中のウラン、ラジウムおよびラドン濃度と白血病のリスクを検討した。対象は1981-95年に診断された白血病患者35例と全コホートから選ばれた対照274例であった。井戸水中のウラン、ラジウム、ラドンの濃度の中央値は、それぞれ、患者群では0.08, 0.01, 80で、対照群では0.06, 0.01, 130(単位はいずれもBq/L)であった。水中ラドン濃度1Bq/Lあたりの相対リスクは0.79(95%信頼区間:0.27-2.29)であり、この濃度と白血病リスクの間に有意な関連は見られなかった。白血病リスクは水中ウラン濃度や水中ラジウム濃度とも有意な関連はなかった。

このように、水中ラドンの影響についてこれまでの疫学研究の結果は一貫しておらず、不明な点が多く残されている。Auvinen らの研究は個人を観察単位とした唯一の研究で、他の3つの地域相関研究に比べ一般に信頼性が高いため、地域相関研究で示された有意な結果がバイアス等によるものであるとも考えられるが、さらなる疫学研究により知見を積み重ねることが重要である。

IV. 水中ラドンの疫学研究の限界

(1) 関連が弱い場合の疫学研究の限界

関心のある要因の曝露の効果が弱い場合、すなわち、原因(曝露)と結果(疾病)の関連が弱い場合、疫学研究でこれを明らかにすることは非常に困難である。このような場合、疫学研究により統計学的に有意な結果を検出し得るためには大規模な集団を対象とする必要があるが、多くの状況においてそれは容易ではない。本節では、水中ラドンの疫学研究の限界について、被ばく線量の観点から健康へ与える影響の大きさを検討し、また、統計学的検出力の観点から、予想されるリスク増加を検出するために必要となる観察人年を検討した。

(2) 被ばく線量の検討

飲料水中ラドンに由来して被ばくする線量を様々な仮定に基づいて推定した。水(煮沸などしない生水)の年間摂取量については、60および100Lの場合を考慮した。60Lという値は、UNSCEAR1993年報告書⁸⁾で見積もられた平均的な年間摂取量でUNSCEAR2000年報告書にも採用されている。また、線量換算係数については、UNSCEAR2000年報告書を始めとした4つの文献^{1,9-11)}の値を引用した。

表5-2-3には、ラドン濃度が100Bq/Lの水を摂取することによる年間被ばく線量を推定した結果を示す。用いる換算係数により推定される線量は大きく異なるが、上記の水を年間100L摂取する場合、胃の臓器線量は最大でも約0.8mSvであった。また、このと

き、実効線量は0.04mSv程度であった。これら水中ラドンに起因する線量は、水中から大気中へ移行したラドンや、建材や土壌に由来するラドンおよびその子孫核種による被ばくに比べかなり低い。

表 5-2-3 ラドン濃度 100Bq/L の水摂取による年間被ばく線量

| 換算係数の出典 | 換算係数 (Sv/Bq) | 年間線量(Sv) | |
|--|-----------------------------|----------------------|----------------------|
| | | 水 60L 摂取 | 水 100L 摂取 |
| Crawford-Brown (1991) ⁹⁾ | 5.4×10^{-9} (胃) | 3.2×10^{-5} | 5.4×10^{-5} |
| NRC (1999) ¹⁰⁾ | 2.4×10^{-8} (胃) | 1.4×10^{-4} | 2.4×10^{-4} |
| UNSCEAR (2000) ¹⁾ | 3.5×10^{-9} (実効線量) | 2.1×10^{-5} | 3.5×10^{-5} |
| Kendall & Smith (2002) ¹¹⁾ | 8.4×10^{-8} (胃) | 5.0×10^{-4} | 8.4×10^{-4} |

(3) 統計学的検定に要する観察人年の検討

次に、飲料水中ラドンに被ばくすることで増加する潜在的ながんリスクをコホート研究により統計学的に検出するために必要な観察人年を検討した。ここでは、飲料水中ラドンへの被ばくによるがんリスク増加が原爆被爆者と同様であると仮定し、被ばく集団と対照集団のがん死亡率を比較する状況を想定し、両集団の死亡率に有意差を検出するために必要な観察人年を算出した。必要となる観察人年 N の計算にあたっては、Schlesselman¹²⁾の以下の数式を用いた。

$$N \cong \frac{2\bar{p}\bar{q}(z_\alpha + z_\beta)^2}{(p_1 - p_2)^2}$$

$$\bar{p} = (p_1 + p_2)/2$$

$$\bar{q} = 1 - \bar{p}$$

ただし、 p_1 と p_2 はそれぞれ対照集団と被ばく集団におけるがん死亡率を表し、 z_α は標準正規分布の上側 α 点、 z_β は標準正規分布の上側 β 点を表す。また、 D は被ばく集団における平均累積被ばく線量、 ERR は単位線量あたりの過剰相対リスクを表すとすれば、 p_1 と p_2 の関係は以下の式で与えられる。

$$p_2 = p_1(1 + D * ERR)$$

検定は片側検定、第一種の過誤 α は 0.05 とし、検出力は 80%、すなわち第二種の過

誤 β は0.20とした。また、被ばく集団および対照集団のバックグラウンドがん死亡率は 1.8×10^{-3} とした。単位線量あたりの過剰相対リスクは、原爆被爆者の寿命調査(1950-90年)に基づいてPierceら¹³⁾が報告した0.53/Svを用いた。また、線量換算係数はUNSCEAR2000年報告書の値を用いた。バックグラウンドがん死亡率、線量換算係数、過剰相対リスク、水の摂取量に関しては、いずれも年齢依存性があるのが自然だが、ここでは、簡単のためそれら年齢の影響を考慮せずに計算を行った。

被ばく集団で、ラドン濃度が100Bq/Lの水を年間60L摂取する場合は、約 3.4×10^{10} 人年の観察が必要となる。水中ラドン濃度、水摂取量、線量換算係数、単位線量あたりの過剰相対リスクのいずれかが10倍となる状況でも、約 3.4×10^8 人年の観察が必要となる。このように、予想されるリスク増加が小さい場合、疫学研究によってこれを検出することは極めて多くの観察人年が必要となり、現実的には困難である。また、主要な因子の効果が小さい場合、それ以外の、例えば、喫煙、飲酒、食事等のリスク因子がもたらす交絡や修飾の効果が無視できないが、これらの情報を正確に得て、解析の際に調整することは容易ではない。

V. まとめ

大気中ラドンの影響については疫学研究が広く実施されてきたが、水中ラドンの影響についての疫学研究は非常に限られている。いくつかの地域相関研究で水中ラドンとがん死亡率の有意な関連が報告されたが、研究結果は一貫していない。水中ラドンの疫学研究の実施可能性を線量と検出力の観点から検討したところ、水中ラドンによる被ばく線量は必ずしも高くなく、それを疫学研究により明らかにするためには、膨大な観察人年が必要となる。また、ラドン以外の生活習慣等の情報を入手する必要があるが、これは容易ではない。このように、水中ラドンの影響を疫学的に評価することには多くの限界を伴い、また、得られる結果には大きな不確実性を伴う。しかし、自然放射線に対しても規制が設けられていく現状においては、疫学研究の持つ限界を踏まえた上で、科学的かつ社会的に説得力のある疫学研究を計画・実施し、その結果を公表していく必要がある。

参考文献

- 1) United Nations. Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 2000 report to the general assembly, with scientific annexes. United Nations, New York, 2000.
- 2) Lubin JH, Boice JD Jr. Lung cancer risk from residential radon: meta-analysis

of eight epidemiologic studies. *J Natl Cancer I* 89: 49-57, 1997.

3) National Library of Medicine. PubMed.

<http://www.ncbi.nlm.nih.gov/entrez/query.fcgi?db=PubMed>

4) Hess CT, Weiffenbach CV, Norton SA. Environmental radon and cancer correlations in Maine. *Health Phys* 45:339-348. 1983.

5) Collman GW, Loomis DP, Sandler DP. Radon-222 concentration in groundwater and cancer mortality in North Carolina. *Int Arch Occup Environ Health* 61:13-18, 1988.

6) Collman GW, Loomis DP, Sandler DP. Childhood cancer mortality and radon concentration in drinking water in North Carolina. *Br J Cancer* 63:626-629, 1991.

7) Auvinen A, Kurttio P, Pekkanen J, Pukkala E, Ilus T, Salonen L. Uranium and other natural radionuclides in drinking water and risk of leukemia: a case-cohort study in Finland. *Cancer Cause Control* 13:825-829, 2002.

8) United Nations. Sources and effects of ionizing radiation. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, 1993 report to the general assembly, with scientific annexes. United Nations, New York, 1993.

9) Crawford-Brown DJ. Cancer fatalities from waterborne radon (Rn-222). *Risk Analysis* 11: 135-143, 1991.

10) National Research Council. Risk assessment of radon in drinking water. National Academy Press, Washington D.C. 1999.

11) Kendall GM, Smith TJ. Doses to organs and tissues from radon and its decay products, *J Radiol Prot* 22: 389-406, 2002.

12) Schlesselman JJ. Case-control studies - design, conduct, analysis. Oxford University Press, Oxford, 1982.

13) Pierce DA, Shimizu Y, Preston DL, Vaeth M, Mabuchi K. Studies of the mortality of atomic bomb survivors, report 12, part 1. cancer: 1950-1990. *Radiat Res* 146: 1-27, 1996.

付録 シンポジウム「水中ラドン—今、何が問題か」講演要旨

2004年7月20日に日本保健物理学会の企画行事として、シンポジウム「水中ラドン—今、何が問題か」が国立保健医療科学院（東京都港区）で開催された。このシンポジウムの講演要旨、及び総合討論の議事録を以下にまとめた。

<講演要旨（演者）>

| | |
|--|-----|
| EUにおける水中ラドン研究—濃度レベル、濃度規制値、測定法の概要 Csaba Németh (Veszprem Univ., Hungary) | 90 |
| 標準となる水中ラドン測定法の提案..... 安岡由美 (神戸薬科大) | 93 |
| 水中ラドンに起因する被ばく線量—飲水及び吸入..... 石川徹夫 (放医研) | 97 |
| 水中ラドンによる健康影響評価—疫学的アプローチ..... 吉永信治 (放医研) | 100 |
| 三朝温泉におけるラドン療法とその機構解明の現状..... 山岡聖典 (岡山大) | 103 |

<講演要旨（コメンテータ）>

| | |
|--|-----|
| 水中のラドン濃度測定法..... 堀内公子 (大妻女子大) | 107 |
| 水中ラドンの健康影響に関して..... 秋葉澄伯 (鹿児島大) | 108 |
| 水中ラドンの規制に関して..... 米原英典 (放医研) | 109 |
| 地方衛研における水中ラドン測定の実務者として..... 榎崎幸範 (福岡保健環境研) | 110 |

| | |
|-----------------|-----|
| <総合討論 議事録>..... | 112 |
|-----------------|-----|

Radon-in-water measurements in EU countries

*Németh Csaba
NIRS*

- Regulations
- Measurement methods
- Concentration levels

Regulation

- **EU:** only in some countries

| EU states | Public (Bq/l) | Private (Bq/l) | EU states | Public (Bq/l) | Private (Bq/l) |
|------------|---------------|----------------|-------------|---------------|----------------|
| Austria | | | Italy | | |
| Belgium | | | Latvia | | |
| Cyprus | | | Lithuania | | |
| Czech Rep. | 300 | (1000) | Luxemburg | | |
| Denmark | | | Malta | | |
| Estonia | | | Poland | | |
| Finland | 300 | 1000 | Portugal | | |
| France | | | Slovak Rep. | 1000; (50) ? | 1000 ? |
| Germany | | | Slovenia | | |
| Greece | | | Spain | | |
| Holland | | | Sweden | 100 | 1000 |
| Hungary | | | UK | (1000 W.D.) | (1000 W.D.) |
| Ireland | | | | | |

Regulation

EU recommendation:

Commission recommendation of 20 December 2001 on the protection of the public against exposure to radon in drinking water supplies

(2001/928/Euratom)

Regulation

EU recommendation:

- 100 – 1000; (300) Bq/l for public waterworks
- 1000 Bq/l for private wells

Regulation, EU recommendation:

- Estimates on the annual committed effective dose adsorbed by an adult by ingestion of water with 1000 Bq/l: 0.2 – 1.8 mSv.
- Estimates the increase of indoor radon caused by tap water with 1000 Bq/l: 100 Bq/m³. (Sum.: 1000 Bq/l ~ 200 Bq/m³)
- Radon in drinking water is controllable, effective methods for removing radon from drinking water have been developed and are commercially available.

Regulation, EU recommendation:

- An appropriate system needs to be established for reducing significant exposures. An important part of the system is the adoption of reference levels for consideration of remedial or preventive action.
- The same criteria, including the reference levels, may be used for remedial action on the existing water supplies and for setting preventive requirements for new water supplies.

Methods

- Liquid scintillation method
- Lucas cell method
- Etched track detector method

Liquid scintillation method

- Classic: 10 ml scintillator + ~10 ml water, counting
- Developed (1): α / β pulse shape separation
- Developed (2): 100-200 ml water, Rn transfer to ~15 ml scintillator by bubbling or extraction, counting (higher sensitivity)

Lucas cell method

²²²Rn measurements were done using a PYLON AB-5 radon monitor. The dissolved radon gas was separated from the sample together with other dissolved gases and streamed through a 110A type Lucas scintillation cell with the help of a PYLON WG 1001 water-degassing unit at the sampling place. The alpha activity was counted after 3 hours in order to leave time for reaching secular equilibrium between radon and its short lived progenies. The Lucas-cells were calibrated by PYLON 3150 and RNC standard radioactive sources of known activity concentration. (in my practice)

Etched track detector method

The method for the determination of ²²²Rn content of water samples with etched track detector was developed in the Institute of Nuclear Research, Hungary. The small volume (7 cm³) Radamon radon monitor equipped with Tastrak CR-39 track detector is tightly enclosed by a ²²²Rn gas permeable membrane. The radon monitor, prepared in such way, is immersed into an 0.72 dm³ volume glass vessel completely filled with water and tightly closed with a metal cover having sealant on its inner side. The vessels are stored with the cover side facing down to ensure no radon is escaping during exposure under regulated temperature which were 10°C. (in Hungary)

Concentration levels

- Surface waters: < 1 Bq/l
- Ground waters (Bq/l):
 - 1 – 50 in sedimentary rocks
 - 10 – 300 wells in soil
 - 100 – 50.000 in crystalline rock

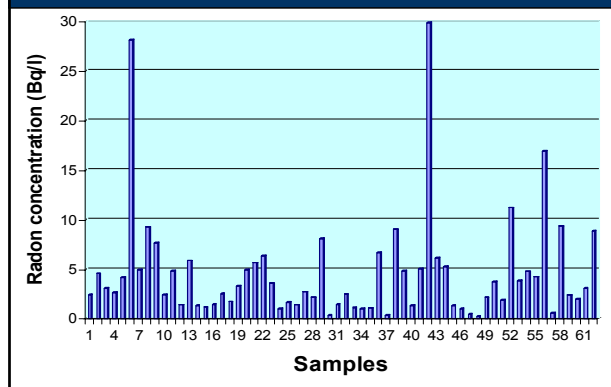
Concentration levels

- high U conc. of rock → high Rn conc.
- high variability with uniform rocks
- significant seasonal variations

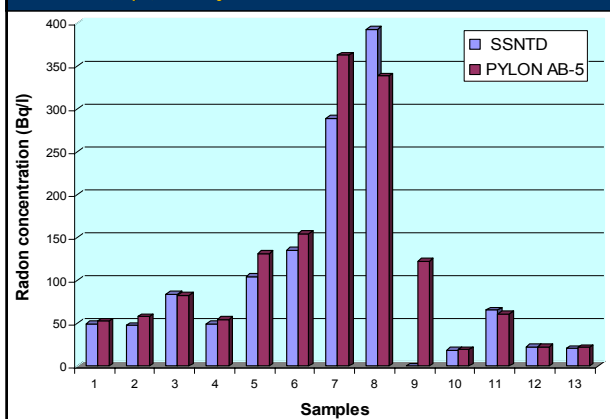
Concentration levels

- Public waterworks: 0.26 – 30 (Bq/l)
- Thermal waters: 18 - 393 (Bq/l)
- Spring waters: 1.5 - 55 (Bq/l)

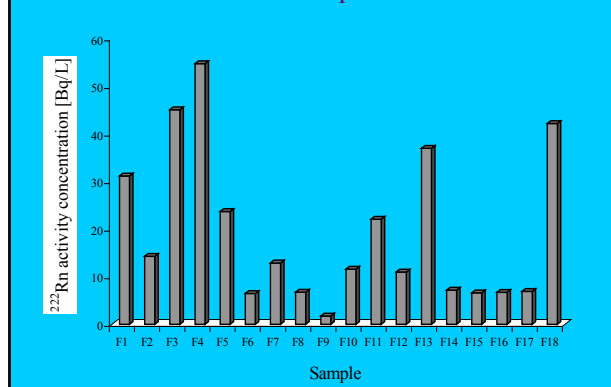
^{222}Rn activity concentration (Bq/l) of drinking waters of public waterworks in Hungary



^{222}Rn (Bq/l) activity concentration of thermal waters of Buda



The ^{222}Rn activity concentration of spring waters from Balaton Upland



1. 緒言

水中ラドン標準測定法として、液体シンチレーションカウンタを用いる方法が主流となっている。日本では、鉱泉分析法指針に基づく抽出法¹⁾が中心であるが、米国環境保護庁 (EPA)²⁻⁴⁾や米国材料試験協会 (ASTM)⁵⁾では非水溶性シンチレータを用いた直接法 (以下直接法と呼ぶ) が用いられている。直接法は抽出法に比べ、簡便で少量の試料で測定ができるが、抽出法の方が検出限界値は低い。抽出法については、手順を含め、鉱泉分析指針をはじめとした、関連文献が多いが、直接法については、国内では標準化されておらず、国内で使用された例も少ない。神戸薬科大学(神戸薬大)の地下水 (約 200Bq/L) を用いて抽出法と直接法を行い、特に直接法を詳細に検討した。

2. 方法

2.1. 測定方法の比較⁶⁾

① 直接法

ASTMの方法⁵⁾に基づき試料を作成した。この方法は、EPAで用いられている方法²⁻⁴⁾とも類似している。

地下水を、注射器で10mL採水し、あらかじめトルエンシンチレータ10mLを入れたバイアルへ注入した。バイアルの蓋を閉め、30秒間振盪し、水層のラドンをトルエン層に抽出した。ラドンとその子孫核種が永続平衡に達するまで、試料を4時間放置後、液体シンチレーションカウンタ (パーキンエルマ社製 2300TR) で測定した。バックグラウンド用試料を、蒸留水10mLとトルエンシンチレータ10mLを入れて調製した。液体シンチレーションカウンタの測定は鉱泉分析法指針に基づいて行い¹⁾、液体シンチレーションカウンタのウィンドウを50keV-∞、75keV-∞、100keV-∞に設定して得られた3つの積分カウント値を、最小二乗法で外挿することにより、0keV-∞の積分カウント値を得た。この値は、ラドンとその子孫核種から放出されるα線3本とβ線2本を測定した値であり、ラドン測定の計数効率は500%とした。野口-斉藤の式⁷⁾に基づき、気液平衡の計算を行った。

② 抽出法

鉱泉分析法指針¹⁾に基づき測定した (抽出法)。地下水1Lをポリビン (1.1L) に採水し、トルエンシンチレータ40mLを加えて、2分間振盪し、水中のラドンをトルエンシンチレータへ抽出した。このトルエンシンチレータ20mLを液体シンチレーションカウンタ用バイアルへ移し、バイアルの蓋を閉め、4時間放置後、「①直接法」と同様に測定した。

2.2 直接法について

液体シンチレーションカウンタを用いた直接法について、「①採水から測定までの経過時間に伴うラドンの漏洩による減少について」、「②異なる機種 of 液体シンチレーションカウンタによる測定結果

の違い（液体シンチレーションカウンタの機種間の系統差）」を検討した。

① 採水から測定までの経過時間に伴うラドンの漏洩による減少について

地下水（ラドン濃度 約 230Bq/L）1L 中のラドンをトルエンシンチレータ 50mL へ抽出し、このラドンを抽出したトルエンシンチレータ 10mL と蒸留水 10mL をバイアル内に入れ、30 秒間振盪し、液体シンチレーションカウンタの測定値が 3000cpm 以上となる試料 15 本を作成した。4 時間放置後、2300TR を用いて、このサンプル 15 本（1 本当たりの測定時間 10 分間）を用いて、3 日間（23 サイクル）繰り返し測定した。液体シンチレーションカウンタの測定条件及び計算は、「①直接法」と同様に行った。

② 異なる機種液体シンチレーションカウンタによる測定結果の違い（液体シンチレーションカウンタの機種間の系統差）⁶⁾

同一サンプルを相互の測定機関で測定することにより、液体シンチレーションカウンタの機種間による測定結果の違いについて検討した。神戸薬大の地下水 1L 中のラドンをトルエンシンチレータ 50mL で抽出した。このラドンを抽出したトルエンシンチレータ 10mL と蒸留水 10mL をバイアル内に入れ、30 秒間振盪した。このことにより、液体シンチレーションカウンタの測定値が 3000cpm 以上となる試料を作成した。4 時間放置後、このサンプルを神戸薬大の 2300TR で測定し、シールテープを巻いて、サンプル 3 本とバックグラウンド用サンプル 1 本を 6 箇所測定機関へ宅配便（冷蔵）で送付した。到着したサンプルは、室温で 1 時間以上放置後、液体シンチレーションカウンタで測定した。使用した液体シンチレーションカウンタは、パーキンエルマ社製 2550TR、2700TR、2900TR、3100TR とアロカ社製 LSC-5100、LS-6100、LB-2 であった。液体シンチレーションカウンタの測定条件及び計算は、上記の「①直接法」と同様に行った。測定終了後、バイアルにシールテープを巻き、神戸薬大へ宅配便（冷蔵）で返送し、再び 2300TR で測定した。

3. 結果

測定結果の比較基準として、EPA の報告⁴⁾を採用した。この報告では、ラドンを液体シンチレーションカウンタで測定する場合において、同一サンプルの繰り返し測定した場合の受納限界（受け入れることのできる測定結果（減衰補正済み）のばらつきの限界）を±5%としている。また、同一濃度の試料を採水し測定する場合、サンプルの測定結果（減衰等補正済み）の間には±9%のばらつきがある（99%信頼区間）と報告している。今回の試料は天然水のため多少の濃度差が存在し、同一濃度の試料ではないが、この報告をもとに比較した。なお、以下に示したラドン濃度は、すべて採水時の値へ減衰補正を行っている。

3.1. 測定方法の比較

直接法及び抽出法の測定結果を表 1 に示した。この比較実験を 10 回実施したところ、直接法の測定結果は抽出法より、0.2%～4%高くなった。これらの測定法による測定結果の差は小さいことがわ

かった。

表1 直接法と抽出法の比較

| 方法 | ラドン濃度 | | 抽出のシンチレータ量 | サンプル水の量 |
|-----|-------------------|--------------------|------------|---------|
| | 平均値 ¹⁾ | 検出限界 ²⁾ | | |
| 直接法 | 223±4 Bq/L | 1 Bq/L | 10mL | 10mL |
| 抽出法 | 223±1 Bq/L | 0.03 Bq/L | 30mL | 1000mL |

1) 3 サンプルの平均値と標準偏差。

2) 60 分測定した場合の検出限界値。

3.2 直接法について

① 採水から測定までの経過時間による伴うラドンの漏洩による減少について

採水から測定までの経過時間によるバイアルからのラドンの漏洩と測定結果のばらつきを検討するため、15本のサンプルを繰り返し測定した。経過時間に伴う、ラドンの初期濃度に対する保持率の減少を図1に示した。

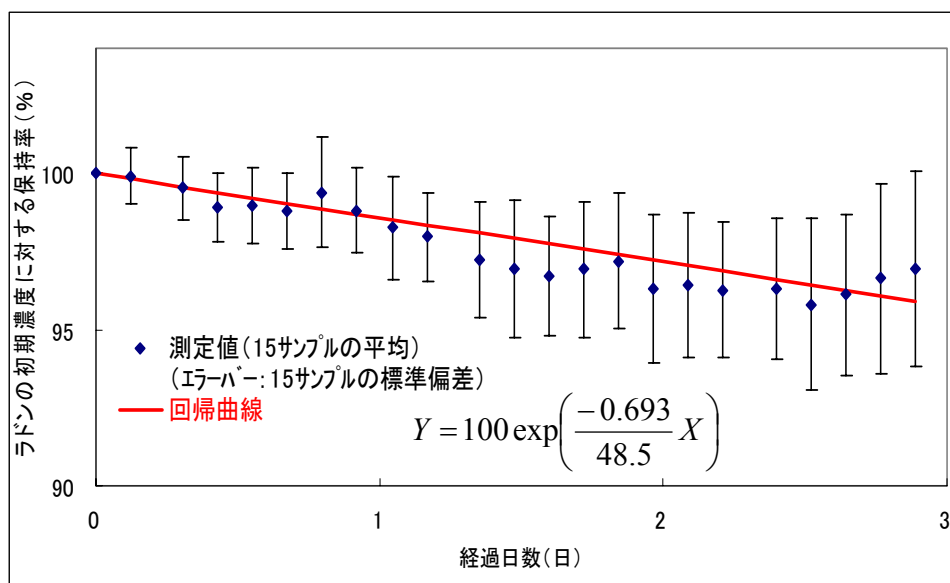


図1. 同一サンプルの繰り返し測定の経過時間によるラドンの漏洩
(減衰補正済み)

なお、ラドン濃度は試料作成時の値へ減衰補正を行った。1 日経過すると、測定値は約 1.4% 減少する結果となった。

② 液体シンチレーションカウンタの機種間の系統差について⁶⁾

液体シンチレーションカウンタの機種間の系統差を補正するために、同一サンプルを相互の測定機関で測定した。運搬による影響も考えられるため、経過時間によるラドンの漏洩等の補

正は上記の結果には基づかず、同一サンプルを往復させて測定することにより補正を行い、機種間の系統差について検討した。

2300TRの値に対して、3100TR、LSC-5100、LSC-6100、LB-2は3～4%低い値であったが、2700TR、2900TR、2550TRは±2%以下となった。

4. まとめ

直接法と抽出法は、ほぼ同じ結果が得られることがわかった。

直接法を用いて試料を作成し、液体シンチレーションカウンタ 2300TR、2550TR、2900TR、LSC-5100、LSC-1050、LB-2 でラドン濃度を測定した。その測定結果は、2300TR で測定した値の±9%以内（EPAが示した信頼区間99%の範囲内）にすべて入っていた。これらの液体シンチレーションカウンタによる測定結果へのばらつきは許容範囲内であったと考えられる。

検出限界値は直接法（60分測定 1.0Bq/L）の方が抽出法（60分測定 0.03Bq/L）よりも高いが、直接法は抽出法に比べ、簡便で、少量の試料で測定ができる。水中ラドン標準測定法として、直接法も、抽出法とともに有効であると思われる。

参考文献

- 1) 環境省自然環境局；鉱泉分析法指針、(2002)。
<http://www.env.go.jp/nature/onsen/bunseki/index.html>
- 2) U.S. EPA；“Methods, Occurrence and Monitoring Document for Radon in Drink (EPA Contract No. 68-C7-0005)”，(1999)。
<http://www.epa.gov/OGWDW/radon/proposal.html>
- 3) Standard Method 7500-Rn, Standard Method for the examination of Water and Wastewater. 19th Edition Supplement. Clesceri, L., A. Eaton, A. Greenberg, and M. Franson, eds. American Public Health Association, American Water Works Association, and Water Environment Federation. Washington, DC. 1996.
- 4) U.S. EPA Federal Register. 40 CFR parts 141 and 142 National Primary Drinking Water Regulations; Radon-222: Propose rules Vol. 64, No. 211 / Tuesday, November 2, 1999. Washington, DC: U.S. Government printing Office; (1999).
<http://www.epa.gov/safewater/radon/radfr2.pdf>
- 5) ASTM；D5072-98 Standard Test Method for Radon in Drinking Water, (1999).
<http://www.astm.org.html>
- 6) Yasuoka, Y., Ishii, T., Kataoka, Y., Kubo, T., Suda, H., Tokonami, S., Ishikawa, T., Shinogi, M., ; Determination of Radon Concentration in Water Using Liquid Scintillation Counter, Radioisotopes, 53(3) 123-131 (2004) .
- 7) 斉藤正明；水中ラドン抽出測定における濃度計算の注意点、「天然水中ラドン」専門研究会（KURRI-KR-6）、pp5-14、京都大学原子炉実験所、大阪（1997）。

水中ラドンに起因する被ばく－飲水及び吸入

放射線医学総合研究所 石川徹夫

1. はじめに

水中ラドンに起因する被ばくとしては、(1) 生活用水として利用する水から屋内空气中に放出されたラドン（及びその子孫核種）を吸入することによる被ばく、(2) 飲料水とともに摂取したラドン（及びその子孫核種）による被ばく、という二つの経路がある。

(1) に関しては、屋内ラドン濃度を高める一つの要因として水中ラドンを捉えることができる。この場合、主に被ばくを受ける部位は呼吸気道であり、建材等から放出されるラドン子孫核種の吸入被ばくと全く同様である。吸入による被ばくに関しては他の場面で数多く議論されてきたので、ここでは水中から屋内空气中へのラドンの移行割合を中心に述べる。一方、(2) の経路による被ばく部位は(1) とは全く異なる。すなわち、飲料水とともに摂取されたラドンは主に胃に被ばくを与える。このようなラドンの摂取による被ばくに関しては1960年代以降、海外を中心に研究が積み重ねられてきたので、それらの概要を紹介するとともに、いくつかの実測データも紹介する。

2. 吸入による被ばく

生活用水中に存在するラドンの散逸による屋内ラドン濃度の増加に関しては、次の式で表される移行係数 (T) が一般的な指標として良く用いられている。

$$T = \frac{\Delta C_a}{C_w}$$

ΔC_a : 生活用水利用による屋内ラドン濃度の平均的な増加 (Bq/m³)

C_w : 生活用水中の平均ラドン濃度 (Bq/m³)

この移行係数に関しては、1980年代から米国を中心に実際の家屋における測定や、モデル計算の結果が報告されてきている^{1,2)}。移行係数は、家屋の換気率、水の使用量、家屋の広さなどの諸条件によって変動しうる。米国 NRC²⁾では、移行係数の代表値として 1.0×10^{-4} を採用している。これは、(1) 過去に複数の文献で報告された移行係数の実測値の分布を取って平均値を評価したところ、 8.7×10^{-5} という値が得られたこと、(2) Nazaroff らのモデル¹⁾を使って再計算したところ、平均値として 1.2×10^{-4} が得られた

ことから、上記2つの数値の間を取って、 1.0×10^{-4} を標準値したものである。

しかしながら、日本と米国では平均的な家屋の換気率、水の使用量、家屋の広さなどが違う可能性もある。そのため、移行係数について日本独自の値を評価しておくことは意義がある。国内において、井戸水を風呂に使用している家屋において、空气中ラドン濃度を連続測定した結果が報告されている³⁾。これによると脱衣室内の空气中ラドン濃度は最高で 964 Bq/m^3 という高い濃度を記録した。上記の移行係数の定義では、家屋全体の平均ラドン濃度を問題としているが、今後は限定された空間での移行係数及び個人の滞在時間を評価したうえで、個人被ばく線量を評価する必要もあるかもしれない。

3. 飲水による被ばく

飲料水とともに摂取したラドンの体内動態に関しては、今までの研究によって次のようなことが一般的な知見として得られている^{4,7)}。飲料水とともに胃に入ったラドンは数十分から数時間程度の半減期で小腸へ移動すると考えられている。この半減期は胃の内容物（食事の内容）や、被験者の運動レベルによって大きく変わるとされている。ラドンは血液に溶けやすいので、小腸に移動した大部分のラドンは血液中に吸収され、血流とともに各臓器に運ばれる。血中に溶け込んだラドンは、ガス交換の原理によって肺から次第に呼気とともに排出される。小腸に達した後の各臓器の平均滞留時間は、胃の滞留時間に比べてかなり短いと考えられている。そのため、ラドンによる被ばくを受ける主要な臓器は胃であるとされている。一方で、ラドン子孫核種は胃から小腸に移動した後、親核種のラドンとは異なる経路を取る。これは、ラドン子孫核種は小腸から血液に吸収される割合 (f_1) が小さいからである。ICRP⁸⁾によると、それぞれの子孫核種について、 $f_1 = 0.1$ (Po); 0.2 (Pb); 0.05 (Bi)である。そのため小腸から吸収されて血中に入る割合は少ない。

吸入被ばくの場合は、ラドン子孫核種からの被ばくのほうがラドンガスからの被ばくに比べてずっと大きいとされている。しかしながら、飲料水とともに摂取したラドン（及び子孫核種）については、ラドンガスからの被ばくが大部分を占めていると考えられている。これは次のような理由によるものである。胃壁の中にある標的細胞は胃の表面から $200 \mu\text{m}$ 程度の深さにあると考えられている²⁾。ラドンは気体であるため、胃壁の中を拡散しながら浸透し、標的細胞の近くでアルファ線を放出する可能性がある。その一方で子孫核種は固体粒子であるため胃壁の中には入り込めない。また、アルファ線の飛程（組織中で $50\text{--}60 \mu\text{m}$ ）を考えると、胃壁の表面からアルファ線が放出されても胃壁の中の標的細胞には届かない。このため子孫核種からの線量寄与は、ラドンガスからの線量寄与に比べるとはるかに小さいと考えられている。

飲料水とともにラドンを摂取したときの臓器ごとの線量、実効線量に関しては、数人の研究者がモデル計算を行っている。Khursheed⁶⁾の結果によると、ラドン1 Bq 摂取あたりの実効線量を 1×10^{-8} Sv/Bq、胃の等価線量を 8.4×10^{-8} Sv/Bq と計算している。なお実効線量のうち約 97% が胃への等価線量からの寄与である。また NRC の計算²⁾ (UNSCEAR2000 に採用されている) によると、胃の等価線量 2.4×10^{-8} Sv/Bq に対して実効線量は 3.5×10^{-9} Sv/Bq である。実効線量のうち約 82% が胃への等価線量からの寄与である。

計算モデルによって換算係数が違うのは、採用しているパラメータの違いによる。胃の線量評価に関して重要なパラメータは次の2つである。すなわち、(1) ラドンが胃の中に留まっている時間、及び(2) 胃壁の中の標的細胞近傍にラドンが拡散していく割合である。後者のパラメータに関しては、実測から評価することは難しく、モデル計算によって推定することとなる。一方で前者のパラメータに関しては、ラドン子孫核種(ガンマ線放出核種)の体外計測⁷⁾や、呼気中のラドン濃度の測定をもとに、胃の中における滞留時間を評価する研究が行われてきている。

参考文献

- 1) Nazaroff, W.W., Doyle, S.M., Nero, A.V. and Sextro, R.G. *Potable water as a source of airborne ²²²Rn in U.S. dwellings: a review and assessment*. Health Phys. **52**, 281-295 (1987).
- 2) National Research Council. *Risk assessment of radon in drinking water*, National Academy Press, Washington, D.C. (1999).
- 3) Tokonami, S., Narazaki, Y., Zhuo, W., Ishikawa, T., Furukawa, M. and Yamada, Y. *A case study of indoor radon enhanced by use of well water in a Japanese wooden house*. Proceedings of the 11th International Congress of the International Radiation Protection Association, (2004).
- 4) Hursh, J.B., Morken, D.A., Davis, T.P. and Lovaas, A. *The Fate of Radon Ingested by Man*. Health Phys. **11**, 465-476 (1965).
- 5) Suomela, M. and Kahlos, H. *Studies on the Elimination Rate and the Radiation Exposure Following Ingestion of ²²²Rn Rich Water*. Health Phys. **23**, 641-652 (1972).
- 6) Khursheed, A. *Doses to Systemic Tissues from Radon Gas*. Radiat. Prot. Dosim. **88**(2), 171-181 (2000).
- 7) Ishikawa, T., Narazaki, Y., Yasuoka, Y., Tokonami, S. and Yamada, Y. *Bio-kinetics of radon ingested from drinking water*. Radiat. Prot. Dosim. **105**(1-4), 65-70 (2003).
- 8) International Commission on Radiation Protection. *Dose Coefficients for Intakes of Radionuclides by Workers*. ICRP Publication 68, Ann. ICRP **24**(4) (Oxford: Pergamon Press) (1995).

1. はじめに

水中にラドンが含まれる場合、飲料水中のラドン摂取による消化器官への被ばくの影響および水中ラドンから大気中に移行したラドン及びその子孫核種吸入による呼吸器官への被ばくの影響が問題となる。しかし、水中ラドンの影響を調べた疫学研究は大気中ラドンの疫学研究に比べて非常に限られている。本発表では、疫学的手法による水中ラドンの疫学研究について、これまでに公表された文献をレビューし、その限界等を被ばく線量や検出力の点から議論する。

2. 水中ラドンの疫学研究のレビュー

水中ラドンの疫学研究を PubMed を利用し検索したところ、4 研究が該当した。この中の 3 つは、地域相関研究 (Ecological study) と呼ばれるタイプで、水中ラドン濃度とがん死亡率/罹患率などを地区別に比較している。集団を観察単位とする地域相関研究は費用や時間の点で比較的实施しやすいが、個人を観察単位とする他の疫学研究、例えば、コホート研究やケース・コントロール研究に比べ、特有のバイアス等があるため、結果の解釈には特別の注意が必要である。

米国メイン州を対象に Hess ら (1983) が実施した地域相関研究では、郡別に井戸水中のラドン濃度とがん死亡率 (1950-69 年) が検討された。水中ラドン濃度は 20-180,000 pCi/L であった。群別の平均水中ラドン濃度は、男性の生殖器がん、女性の全がん、肺がんの死亡率と有意な相関が見られた。

米国ノースカロライナ州を対象に地域相関研究を実施した Collman ら (1988) によると、群別水中ラドン濃度とがん死亡率 (1978-82 年) の間に有意な関連は見られなかった。その後 Collman ら (1991) は、同じ米国ノースカロライナ州における小児がん (15 歳未満) の死亡率 (1950-1979 年) を同様の方法で検討し、水中ラドン濃度が中程度 (229-1,375 pCi/L) の郡および高い (1,376-10,692 pCi/L) 郡で低い (<228 pCi/L) 郡に比べ、小児の全がんおよび白血病の死亡率が有意に高いことを報告した。

フィンランドでケース・コホート研究を実施した Auvinen ら (2002) は、井戸水中のウラン、ラジウムおよびラドン濃度と白血病のリスクを検討した。対象は 1981-95 年に診断された白血病患者 35 例と全コホートから選ばれた対照 274 例であった。井戸水中のウラン、ラジウム、ラドンの濃度の中央値は、それぞれ、患者群では 0.08, 0.01, 80 で、

対照群では0.06, 0.01, 130 (単位はいずれも Bq/L)で、両群に有意な差は見られなかった。水中ラドン濃度1 Bq/Lあたりの相対リスクは0.79(95%信頼区間:0.27-2.29)であり、この濃度と白血病リスクの間に有意な関連は見られなかった。白血病リスクは水中ウラン濃度や水中ラジウム濃度とも有意な関連はなかった。

3. 水中ラドンの疫学研究の限界

関心のある要因の曝露の効果が弱い場合、すなわち、原因(曝露)と結果(疾病)の関連が弱い場合、疫学研究でこの効果を明らかにすることは非常に困難である。このような場合、疫学研究で統計学的に有意な結果を検出し得るためには、一般に大規模な集団を対象とする必要があるが、多くの状況においてそれは容易ではない。水中ラドンの疫学研究についても同様の限界がある。そこで、飲水による水中ラドンからの被ばく線量を推定し、その線量によりの観点から健康へ与える影響の大きさを検討し、また、統計学的検出力の観点から、予想されるリスク増加を検出するために必要となる観察人年を検討した。

3.1. 飲水による水中ラドンからの被ばく線量

水の摂取による水中ラドンからの被ばく線量を様々な仮定に基づいて推定した。水(ここでは、煮沸などしない生水を指す)の年間摂取量は、UNSCEAR1993年報告書で見積もられ、UNSCEAR2000年報告書にも採用されている値の60Lとした。また、線量換算係数については、NRC(1999)やUNSCEAR2000年報告書を始めとした5つの文献の値を引用した。

用いる換算係数により推定線量は最大1桁程度異なるが、ラドン濃度が100Bq/Lの水の摂取による年間線量は、胃の臓器線量で最大で約0.5mSvであった。また、実効線量は最大0.06mSv程度であった。NRC(1999)は換算係数の年齢依存性を検討し、胃の臓器線量と実効線量の換算係数は共に、乳幼児では成人に比べ約10倍程度高いことを示しているが、この年齢依存性を考慮した場合でも、様々な年齢から構成される一般集団では、上記の水を摂取することによる年間の平均線量は多くても、実効線量で0.2-0.3mSv程度、胃臓器線量で2.0-2.5mSv程度であろう。

一方、ラドン濃度が100Bq/Lの水から大気中へ移行するラドン吸入による実効線量は、 10^{-4} の濃度比およびUNSCEAR2000年報告書の換算係数等を用いると、年間0.3mSv程度と推定される。また、建材や土壌に由来するラドンおよびその子孫核種の吸入による実効線量は、UNSCEAR2000年報告書の換算係数等を用いると、屋内ラドン濃度が20Bq/m³の場合では0.5mSvと推定される。このように、水中ラドンの摂取による線量は、大気中ラドンの吸入による線量に比べた場合、かなり低い。

3.2. 水中ラドンによるリスク増加と検出力

飲料水中ラドンに被ばくすることで増加する潜在的ながんリスクをコホート研究により統計学的に検出するために必要な観察人年を、様々な仮定に基づき検討した。ここでは、飲料水中ラドンへの被ばくによるがんリスク増加が原爆被爆者と同様であると仮定し、被ばく集団と対照集団のがん死亡率を比較する状況を想定し、両集団の死亡率に有意差を検出するために必要な観察人年を算出した。検定は片側検定、第一種の過誤 α は0.05とし、検出力は80%、すなわち第二種の過誤 β は0.20とした。また、被ばく集団および対照集団のバックグラウンドがん死亡率は 1.8×10^{-3} とした。単位線量あたりの過剰相対リスクは、Pierceら(1996)が報告した原爆被爆者の寿命調査(1950-90年)の結果を用い、線量・線量率効果係数は考慮しなかった。また、線量換算係数はUNSCEAR2000年報告書の値を用いた。過剰相対リスクやバックグラウンドがん死亡率などに関しては、年齢依存性があると考えるのが自然だが、ここでは、簡単のためそれら年齢の影響を考慮せずに計算を行った。

被ばく集団で、ラドン濃度が100Bq/Lの水を年間60L摂取する場合は、約 3.4×10^{10} 人年の観察が必要となる。水中ラドン濃度、水摂取量、線量換算係数、単位線量あたりの過剰相対リスクのいずれかが10倍となる状況でも、約100分の1の 3.4×10^8 人年の観察が必要となる。

このように、予想されるリスク増加が小さい場合、疫学研究によってこれを統計学的に検出することは極めて多くの観察人年が必要となり、現実的には困難である。また、低線量放射線など、主要な因子の効果が小さい場合、それ以外の、例えば、喫煙、飲酒、食事等のリスク因子がもたらす交絡や修飾の効果が無視できないが、これらの情報を正確に得て、解析の際に調整することは容易ではない。

4. おわりに

飲水による水中ラドンからの被ばく線量はかなり低く、その影響を疫学的に評価することは検出力の点などで多くの限界がある。水中ラドンの影響についての疫学研究は非常に限られているものの、いくつかの地域相関研究で水中ラドンとがん死亡率の有意な関連が報告された。しかし、結果には多くの不確実性を伴うため、その解釈には注意を要する。

日本では自然放射線に対する規制はまだ設けられていないが、一部の地域では欧米諸国で提唱された規制値を上回る濃度のラドンを飲料水中に含んでいる。これらの地域に対しては、疫学研究の持つ限界を踏まえた上で、科学的かつ社会的に説得力のある疫学研究を計画・実施し、その結果を公表していくことは、リスクコミュニケーションの一環として重要であろう。

三朝温泉におけるラドン療法とその機構解明の現状

岡山大学医学部

山岡聖典

三朝の温泉療法はバドガスタインの坑道療法とともにラドン療法として世界的に有名である。ここでは、「不老長寿の湯」、「薬湯」などと呼ばれ親しまれているラドン温泉の適応症（効能）とその機構を明らかにするため、本学医学部附属病院三朝医療センターを中心に実施してきたラドン温泉療法の機構解明の一端を報告することでその代わりとしたい。

ラドン温泉療法の条件と適応症

三朝医療センター・ラドン高濃度熱気浴室内のラドン濃度は $2,080\text{Bq/m}^3$ であり、日本屋内平均濃度より2桁高い。また、概ね温度は 42°C 、湿度は90%であり、高温多湿である。治療の時間・頻度は処方に従って、1日1回40分、隔日に3～4週間、計9～12回のペースを目安に行われる。因みに、国連原子放射線影響科学委員会報告（1993年）の屋内ラドン線量換算係数を用い当該治療の被曝量を算出すると約 $50\sim 67\mu\text{Sv}$ となる。

ラドン温泉療法の適応症の多くは活性酸素疾患であり、概ね表1のようにまとめられる。

表1 ラドン温泉療法の主な適応症

-
- 気管支喘息、肺気腫などの呼吸器疾患
 - 関節リウマチ、変形性関節症、神経痛などの疼痛性疾患
 - 肝臓疾患、消化性腫瘍、胃腸炎などの消化器疾患
 - 高血圧・動脈硬化、糖尿病などの慢性退行性疾患
 - 老年医学領域の疾患
 - アトピー性皮膚炎、歩行系損傷後のリハビリなど
-

ラドンの生理的作用

ラドンの主な生理的作用について、これまで表2に示すような知見があり、適応症の機構解明を行う上で基本的な考え方となっている¹⁾。

ラドン温泉療法の機構の解明例

1) 変形性関節症²⁾と気管支喘息³⁾の改善の機構

変形性関節症と気管支喘息のそれぞれの患者に対し上記治療条件によるラドン高濃度熱

表2 ラドンの主な生理的作用

-
- ・ ラドンは不活性ガスであるため、身体の中の構成成分とも反応しない。気道、あるいは皮膚（約90%は前者）を経て血流に入り、身体全体に運ばれる。
 - ・ 脂溶性が高いため内分泌腺や神経繊維などの高脂肪含有量の臓器に集まる傾向がある。
 - ・ 物理的半減期（3.8日）も短い上身体中の滞留時間も短く、50%はわずか15-30分後に消失する。しかし、この短期間にラドンは組織と接触し、刺激作用を示す。
 - ・ ラドンは α 線源であり、 α 線の特性から身体組織内では約20 μ mしか進まず比較的大きなエネルギーが組織に与えられるため、一連の複雑な刺激作用が生じる。
-

気浴治療を施した。1回目の治療前（対照）・後、治療開始2、4、および6週間目のそれぞれの治療後に採血し、免疫機能、抗酸化機能、活性酸素病関連指標などを分析した。

その結果、i) 両患者ともにConA（リンパ球刺激試験）は有意に増加した。変形性関節症患者にはヘルパーT細胞のマーカーとなるCD4陽性細胞の増加とサブプレッサーT細胞のマーカーであるCD8陽性細胞の減少の有意な変化が見られたが、気管支喘息患者には有意ではないものの逆の変化が見られた。これより、ラドン療法は本来免疫促進的に作用するが、自己免疫疾患の一つである気管支喘息の患者には免疫抑制的に作用する、即ち免疫調節機能を亢進する可能性が示唆できた。ii) ケミカルメディエーターの一つで主に喘息即時型反応初期の気管支攣縮に関与するヒスタミンの値が有意に減少しており、ラドン療法は気管支攣縮を抑制する可能性が示唆できた。

以下の現象は両患者に認められた。iii) 抗酸化酵素であるSODとカタラーゼの両活性と全グルタチオン量がともに有意に増加し、組織障害や血管に関する疾患の原因となる総コレステロール量と過酸化脂質量は有意に減少した。これより、ラドン療法は抗酸化機能を亢進させ酸化傷害を緩和させる可能性が示唆できた。iv) モルヒネ受容体と特異的に結合しモルヒネ様作用を発現する内因性ペプチドであり神経末端から分泌され痛覚の制御に関与する β endorphinの値と抗炎症作用などを示す糖質コルチコイド産生を促すACTHの値がともに有意に増加した。これより、ラドン療法は疼痛の寛解に関与していることが示唆できた。v) 毛細血管・細動脈を収縮させ血圧上昇作用を示すvasopressionの値が有意に減少し、血管拡張作用を示す α ANPの値が有意に増加した

ことから、ラドン療法は組織循環を促進する作用のあることが示唆できた。vi)以上の現象は概ね治療開始4週間後に生じており、ラドン療法の臨床効果が3～4週間目で飽和することと一致した。

2) 温熱効果とラドン効果の比較⁴⁾

温泉には物理効果、化学効果、温熱効果、放射能効果などがあり、比較検討することは重要である。このため、物理効果（水の浮力、圧力）と化学効果（化学成分）を一定にし、1)の血液中の指標について、ラドン吸入開始後の変化特性を検討した。即ち、健常者をラドン高濃度熱気浴室（室温；36°C(体温に調節)、ラドン群）と同地区一般サウナ浴室（48°C、ラドン濃度；54Bq/ m³、温熱群）とに分け、1日1回40分、10日間の吸入実験を行った。

その結果、i)両群ともにSODとカタラーゼの両活性が有意に増加し、過酸化脂質量と総コレステロール値が有意に減少した。ここで、温熱群の酵素活性が増加したのは48°Cに伴うheat shock proteinによるものと考えられた。ii)両群ともにConAは有意に増加した。また、ラドン群のみCD8陽性細胞は有意に減少し、両群ともにCD4陽性細胞は有意に増加した。これより、両者、特にラドン効果として免疫促進作用のあることが示唆できた。iii)ラドン群のみがβendorphinの値が有意に増加したことから疼痛の寛解に関与していることが示唆できた。iv)ラドン群のみがαANP値は有意に増加しvasopression値は有意に減少したことから、高血圧症の予防・治療の可能性が示唆できた。また、両群ともにインスリン分泌機能が有意に亢進したことから、糖尿病の予防・治療の可能性が示唆できた。vi)上記現象はラドン群の方が温熱群に比べ概ね大きく変化した。

即ち、上記実験条件下では温熱効果よりラドン効果の方が抗酸化機能の亢進、組織循環の促進、疼痛の寛解などに相対的に大きく作用することが示唆できた。

3) 低線量放射線の活性酸素疾患に対する予防・治療への応用の可能性

家ウサギを用いたラドン暴露研究⁵⁾も含め、低線量放射線に対する生体適応応答の一つとして組織の抗酸化機能などが活性化されるという動物実験の結果を多く得ている⁶⁾。これに基づき、この作用を活性酸素種がその発症あるいは進展に関与すると考えられている種々の疾患の予防や治療に用いることの可能性について、少し触れてみたい。

例えば、i)事前の低線量照射によりアロキサン誘導I型(insulin依存型)糖尿病⁷⁾や四塩化炭素誘導肝障害⁸⁾などの急性症状が緩和される、即ち、予防の可能性のあることを示唆した。また、ii)事後の低線量照射によりIII価鉄⁶⁾や四塩化炭素⁹⁾の誘導

による肝障害などが緩和される、即ち、急性疾患の治療の可能性のあることも明らかにした。さらに、iii) I型糖尿病のモデルマウスである NOD（非肥満型糖尿病）マウスを用いた実験において、生後13週目に50 cGyの γ 線を1回全身照射することにより、通常、本モデルマウスで15週目以降に発生する尿中へのグルコース排泄を顕著に低下させる¹⁰⁾、即ち、慢性疾患の治療の可能性を示唆する結果も得られている。

これらの緩和効果は、低線量放射線に対する生体の適応応答の結果生じた抗酸化酵素、グルタチオンなどからなる防御機構の誘導現象を利用したものが一因と考察される。発癌をはじめとする種々の放射線による身体的障害や遺伝的障害の発生に基づく線量規制を克服できれば、低線量放射線を種々の活性酸素疾患の予防や治療に応用できる可能性が大きくなるものと考えられる。

なお、ラドン療法の適応症の機構について、主として微量の α 線によっても生じるマイナスイオンの医療効果の観点からも解明する必要があり、検討を進めている。また、本講演に関係した拙著¹¹⁾、¹²⁾があるので参考にされたい。

結 言

現在、高齢化社会の到来とともに長寿健康社会の実現が期待されている。演者は、ラドン療法は健康維持のために行われる軽度のジョギングなどと同様に、生体内に少量の活性酸素を生じさせて抗酸化機能や免疫機能などを亢進させることが機構の一つではないかと考えている。多くの生活習慣病が含まれる活性酸素疾患の低線量放射線による予防や治療への応用の可能性の有無も含めラドン療法の機構の更なる解明が望まれる。

文 献

- 1) P. Deetjen, Radon in der kurmedizin. pp. 32-38, I. S. M. H., Verlag Geretsried(1997).
- 2) K. Yamaoka, F. Mitsunobu, K. Hanamoto, et al, J. Pain 5:20-25(2004).
- 3) F. Mitsunobu, K. Yamaoka, K. Hanamoto, et al, J. Radiat. Res. 44:95-99(2003).
- 4) K. Yamaoka, F. Mitsunobu, K. Hanamoto, et al, J. Radiat. Res. 45:83-88(2004).
- 5) 例えば, K. Yamaoka, Y. Komoto, et al, Arch. Biochem. Biophys. 302:37-41(1993).
- 6) 例えば, K. Yamaoka, S. Kojima, T. Nomura, Free Radic. Res. 32:213-221(2000).
- 7) Y. Takehara, K. Yamaoka et al, Physiol. Chem. Phys. 27:149-159(1995).
- 8) K. Yamaoka, T. Kataoka, T. Nomura, et al, J. Radiat. Res. 45:89-95(2004).
- 9) T. Nomura, K. Yamaoka, Free Radic. Biol. Med. 27:1324-1333(1999).
- 10) M. Takahashi, S. Kojima, K. Yamaoka, et al, Radiat. Res. 154:680-685(2000).
- 11) 山岡聖典, 小島周二, 現代化学(東京化学同人), 346:24-30(2000).
- 12) 山岡聖典, 展望, Isotope News(日本アイソトープ協会), 588:2-8(2003).

水中のラドン濃度測定法

大妻女子大学社会情報学部 堀内 公子

水中のラドン濃度測定法は放射能発見以来約 100 年の歴史の中で測定器の開発につれて、その時代の研究的興味や社会的ニーズに応じて変わってきた。最初に考案され、使用されたのは C. Engler と H. Sieveking (1905) による泉効計 (Fontactoscope) であるが、こうした海外で開発された測定器はすぐわが国にも導入され、使用されてきた。第二次世界大戦以前のわが国に於ける水中のラドン濃度測定は温泉資源調査、地球科学的興味等から温泉水が中心であった。1931 年にはわが国でも IM 泉効計が開発され、その後精密ラドン計、KY 式ローリツツェン検電器なども造り出されている。

1948 年に温泉法が施行され、温泉も法律的に管理・監督されることになった。その結果鉱泉分析法指針により温泉の化学成分が測定されることになり、放射性成分の測定器として IM 泉効計が取り入れられた (IM 法)。IM 泉効計は測定の現場にもっていくことが出来、現場でデータが得られる事から、フィールドワークに最適であった。当時水中のラドン濃度測定は温泉水が中心であったから IM 泉効計が測定器の主流となり、その他の水試料にも使用されるようになった。

1950 年代に入って液体シンチレーションカウンタ (LSC) が開発された。ラドンが有機溶媒に良く溶けることを利用して水中のラドンを有機溶媒に抽出して測定する LSC の「抽出法」が開発された。「抽出法」は 1978 年改定された鉱泉分析法指針にも取り入れられ、IM 泉効計と共に使用され始めた。LSC の普及に伴い温泉の現場から IM 法は「抽出法」に比べて高い値を示す傾向があると報告された。「抽出法」は繰り返し測定が可能で、安定したデータが得られる。また測定下限が低く、スペクトル解析も可能である為温泉水の分析のみならず機器の普及につれて地球科学、水文学、放射化学、温泉探査、地震予知等多くの分野で、利用されるようになった。

近年居住環境におけるラドンの人体被曝線量が問題視されるようになると、地下水ラドン濃度の高い米国の環境保護庁 (EPA) では、飲料水中のラドン、水道から空気中に放出されるラドンの健康影響を重視し、少量の試料をシンチレーターと共存させて直接 LSC で測定する「直接法」を定めた。

今回専門研究会での共同比較実験を機にわが国ではまだデータの少ない「直接法」の詳細な検討がなされた。その結果、「直接法」は「抽出法」とほぼ同じ結果が得られる事がわかった。定められた操作法を正確に守れば作業による誤差も少なく、測定下限はやや高いが抽出法の 1/100 の試料で測定可能であり、機種間の測定結果のばらつきも許容範囲内に収まる事がわかった。測定下限も温泉基準を調べるには十分な値である。定められた操作法を正確に守れば作業による誤差も少ないという結果がまとまったが、最も誤差が大きくなる部分である為十分な注意が必要である。また共同比較実験にはパルス型電離箱、静電捕集式ラドンモニタも参加した。いずれも可搬式測定器でフィールドでの使用が可能である。

現在ではこの他にも多くの測定器、測定法が水中のラドン濃度測定法として開発され、報告されている。今や水中のラドン濃度測定も研究者の目的と興味の対象、試料の量、求める濃度レベルに応じて測定器を選ぶ事が可能になって来ている。

今後も引き続き新しい測定器の開発により水中のラドン濃度測定法も変わることは考えられるが、機器の普及率、応用の広さ等からみて当面は LSC 法が主流となっていくであろう。安定したデータの得られる「抽出法」と同時に、特に低レベルの試料を扱わない限りは操作が簡便で、少ない試料で測定出来、排出される有機廃液も少ない「直接法」が、より環境にマッチした方法として利用されていくと考えられる。

水中ラドンの健康影響について

鹿児島大学大学院 秋葉澄伯

水中ラドンレベルとそのリスクに関する研究はあまり行われていない。しかし、1999年に米国学士院（NAS）が、文献等をレビューして水中ラドンのリスクを推定しており、本シンポでは、これを基にわが国での水中ラドンのリスクを考察したい。

飲料水中のラドンは飲用（または食べ物の一部として摂取）され、消化管壁に放射線被ばくを与える。被ばくレベルは食物中のラドンがどの程度に消化管壁と接触できるかなどの要因に左右される。また、一部は消化管で吸収され、血液に入り肝臓などに放射線被ばくを与える。

水中のラドンの一部は空気に移行し、これが吸入されて呼吸器に放射線曝露を与える。しかし、その移行係数は極めて小さな値（一万分の一程度）と推定されているようである。

米国学士院の報告書は水中ラドンへの曝露による生涯リスクを以下のように推定している。

- 1) 水中ラドンが空気に移行して吸入されることによる過剰生涯リスク：
 1.6×10^{-8}
- 2) 飲料水などとして消化管から体内に入ることによる過剰生涯リスク：
 0.19×10^{-8}

この値は、空気中ラドンによる過剰生涯リスクの100分の一程度である。この数字をわが国に直接適用することはできないが、日米でけた違いの差がある可能性は低い。従って、わが国においても水中ラドンによる健康リスクはほぼ無視できるものであろう。しかし、わが国にはラドン温泉があること、胃癌の罹患率が比較的高いことなどを考えると、この問題に関して、わが国独自の検討を行っておくことは重要であると考えられる。本シンポジウムでは、わが国における水中ラドンの生涯リスクに関して考察を行ってみたい。

水中ラドンの規制について

放医研ラドングループ

米原英典

水中のラドンに関する規制は、主に欧州と米国で取り入れられている。特に欧州については、Csaba Nemeth 氏から詳しくは報告されるが、欧州委員会(EC)から発行された欧州指令書(98/83/EC, 1998)で、総線量で0.1mSvを示し、これからトリチウム、K-40とラドンを除外している。ラドンについては、指令ではなく、1000 Bq/lを越えないように勧告しており、一部の国で、空气中ラドンの濃度の対策レベルとともに取り入れている。

一方米国では環境防護庁(EPA)が1991年に報告、その中で最大の汚染濃度として、300pCi/l (11.1Bq/l)を提案した。これに基づいた、法令が1999年に作成され、2000年に発布している。カナダも2003年に取り入れた。

日本、中国などアジアをはじめとするその他の国については、現在取り入れている国が多い。

EPAなどの線量と規制濃度の関係についての算出方法についてもコメントする。

地方衛研における水中ラドン測定の実務者として

福岡県保健環境研究所 檜崎幸範

1. 緒言

福岡県下の温泉分析に伴い、地下水中のラドン濃度の測定を行ってきた。温泉法によるラドンは放射能泉に分類され 74Bq/kg 以上で鉱泉, 111Bq/kg 以上で弱放射能泉（療養泉）, 673Bq/kg 以上では放射能泉とされている。一方、大気中のラドン及びラドン娘核種による肺に対する実効線量当量 1.2mSv は1年間に自然放射線から受ける全被ばく線量の約半分を占めることが報告された。地下水中のラドンは一旦地上に湧出または揚水されればラドンの大きな放出源となり、線量評価上の重要な因子である。

本シンポジウムでは、福岡県内の地下水ラドン濃度の実態とその分布及び測定器の信頼性ならびに水中ラドン濃度の低減化を含めた生活環境中ラドンの諸問題について報告する。

2. 概要

(1) 1996～2001年にかけて福岡県内63か所で測定された地下水ラドン濃度の地域分布を示した。地下水ラドン濃度は花崗閃緑岩の地質である筑豊地方及び糸島地方に高く、沖積層や洪積層の堆積物である筑後地方では低濃度であった。最高値はP.40の1,130Bq/kg, 最低値はP.62の1Bq/kgであった(図1)。

(2) 温泉法を受けた「鉱泉分析法指針」(環境庁資源保護局監修)に指定されているIM泉効計を用いた測定結果では、液体シンチレーションカウンタの値に対して過大に評価された(表1)。

(3) 浴用上の適応症(慢性胆嚢炎, 胆石症, 慢性皮膚炎, 動脈硬化症, 痛風, 高血圧症, 慢性婦人病), 飲用上の適応症(慢性胆嚢炎, 胆石症, 神経痛, 筋肉痛, 関節痛, 動脈硬化症, 痛風)について科学的根拠や生理作用が明確でない。

(4) 鉱泉あるいは療養泉等の医治効果を期待した温泉法上の基準(下限値)がある一方で、生活環境中のラドン被ばくによるリスクという観点での基準値はない。

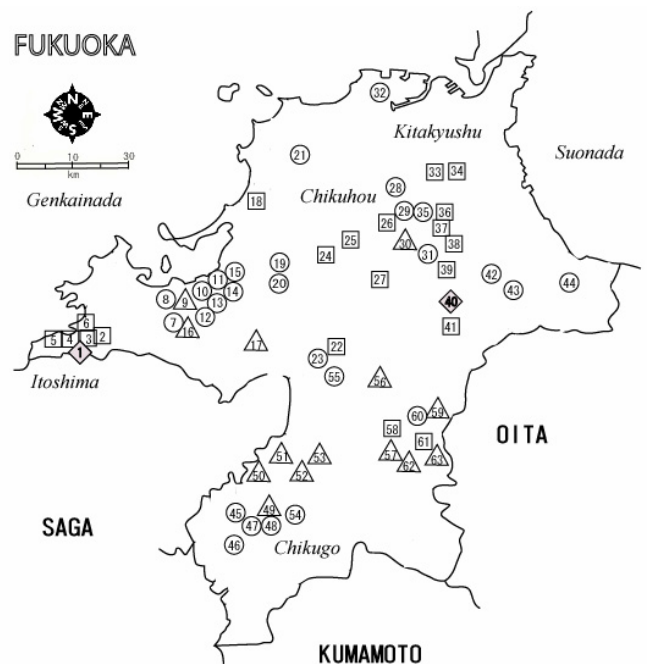


図1 IM-泉効計によるラドン濃度の分布と採取場所

ラドン濃度が ND - 10Bq/kg (△), 11Bq/kg - 73Bq/kg (○), 74Bq/kg - 672Bq/kg (□), 673Bq/kg 以上 (◇)。

表 1 異なる装置で測定された水中ラドン濃度の比較

| Sample | Liquid scintillation counter | IM-fontactoscope | Pulse ionization chamber | | Radon monitor | | |
|--------|------------------------------|-----------------------|--------------------------|-----------------------|---------------|-----------------------|-------|
| | Measured value (Bq/l) | Measured value (Bq/l) | Ratio | Measured value (Bq/l) | Ratio | Measured value (Bq/l) | Ratio |
| A | 231±4 | 339 | 1.47 | 231±7 | 1.00 | 223±7 | 0.97 |
| B | 908±7 | 1110 | 1.22 | 928±6 | 1.02 | - | - |

(5) 保健物理学的な観点から水中ラドンの低減化に関する知見が求められるが、沸騰や曝気によって気中に追い出す以外にラドンの有効な除去方法は見当たらない (図 2, 3)。

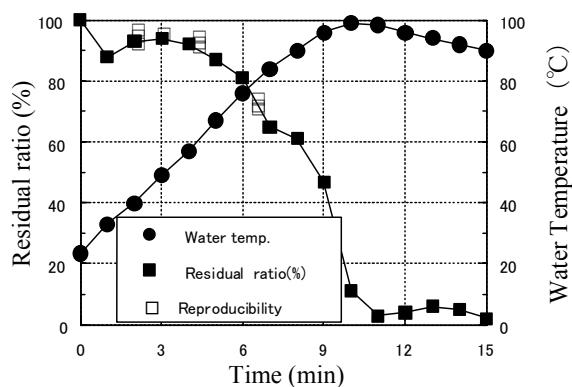


図 2 加熱によるラドンの除去

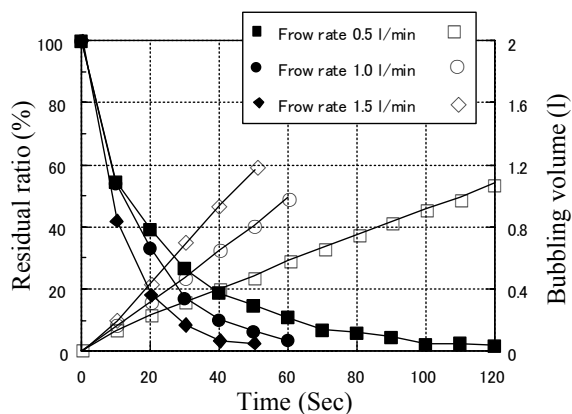


図 3 曝気によるラドンの除去

総合討論 議事録

コメント：

一般の人にとっては、ラドンとラジウムの区別もあまりない。保健物理学会の活動の一環として、一般の人への啓蒙も御願いたい。

質問：

現在は、鉱泉分析法指針の中で IM 泉効計と液体シンチレーションカウンタが指定機器としてオーサライズされている。今回、IM 泉効計の問題点が指摘されたが、今後どのような対応をするか？

回答：

IM 泉効計を使うと高めの値が出ることは、研究者の間では良く知られているし、鉱泉分析法指針の監督官庁（環境省）でも知っている。ただ、IM 泉効計を指定機器から除外すると、従来放射能泉の認定を受けていた温泉の一部が温泉の基準を満たさなくなることが予想され、営業権の問題が生じる。これを考えると、IM 泉効計をただちに削除することは不可能である。今後、時間をかけて検討する必要があると思う。

質問：

EU 各国では水中ラドンに規制を設けている国もある。しかしながら水中ラドンに起因する被ばくは、水中から気中に移行したラドンによる吸入被ばくが主であることを考えると、空気中ラドン、水中ラドンの両方を規制する必要はあるのか？

回答：

水中ラドン濃度の分布を（全国的なレベルで）調査した上で、上水道などの合理的な規制を行うことも考慮して、空気中ラドンの規制だけで十分か、水中ラドンに関する規制も必要か、検討するのが適切だと思う。

質問：

水中ラドン濃度を表す単位として、Bq/kg, Bq/L, Bq/m³などが使われているが、通常どの単位を使うのか？また統一することはできないのか？

回答：

温泉法では、Bq/kg が使われているため、歴史的な経緯を考えると Bq/kg を使うのが適当であるとは言える。ただ現実的には Bq/L もよく使われている。

コメント：

近年水質を管理する上での監視項目として、水中のウラン濃度が追加された。ラドン濃度に関しても、同様に基準が必要なのではないかと思う。

コメント：

ウラン濃度に関しては、化学毒性の面から監視項目に追加された。

質問：

水中ラドン濃度の分布を予測する上で、地質分布図は役に立つか？

回答：

水中ラドン濃度は井戸の深さにも依存すると考えられるが、地質との関連も深いと考えられる。

以上