

縞状北投石中の放射性核種の分布について

佐々木信行¹⁾・流郷 忍²⁾・堀口 昇³⁾

〒760-8522 高松市幸町1-1

Distribution of Radioactive Nuclear Species in Banded Structure Hokutolite from Tamagawa Hot Spring, Japan

Nobuyuki SASAKI¹⁾, Shinobu RYUGO²⁾, Noboru HORIGUCHI³⁾

1) Faculty of Education, Kagawa University 1-1 Saiwai-cho, Takamatsu, 760-8522, Japan

2) Round One Ltd. 4-19-1 Bandai-cho, Tokushima, 770-0941, Japan

3) Horiguchi Hospital 3329-14 Kawazu-cho, Sakaide, Kagawa, 762-0025, Japan

Abstract

Some radioactive nuclear species ^{226}Ra , ^{228}Ra , ^{228}Th in banded structure hokutolite were detected and the intensity of radioactivity of each nuclear species in each crystal layer were measured by using gamma spectrometer. It was found that, both in normal color type and abnormal color type banded structure hokutolite, there are clear differences of radioactivity between neighboring brown crystal layer and white crystal layer. And as to the relationships between chemical compositions and radioactivity of each crystal layer, it was found that white crystal layer contains more radioactivity than brown layer in both type banded structure hokutolite.

The reasons of these results are following. As to the normal type banded structure, white crystal layer which has lower lead content was formed at lower growth rate than brown crystal layer, and the partition coefficient of radium is slightly larger, and intensity of radioactivity become larger. On the

1) 香川大学教育学部

2) 株式会社ラウンドワン 〒770-0941 徳島市万代町4-19-1 香川大学大学院教育学研究科2009年3月修了

3) 堀口医院 〒762-0025 坂出市川津町3329-14

other hand, as to the abnormal type banded structure, white crystal layer which has higher lead content was formed at high growth rate, and the partition coefficient of radium slightly lower, but because of much barium sulfate and lead sulfate contents, total radioactivity become larger than brown layer.

The crystal growth rate were evaluated from $^{226}\text{Ra}/^{228}\text{Ra}$ ratio and thickness of crystal layers, and 0.096mm/y were obtained. This result is good consistent with the value evaluated by Saito et al. (1963). ^{232}Th content in the banded structure hokutolite was also evaluated from the activity of ^{228}Ra which was made from ^{232}Th . The value is about 70ppm which is about 10 times larger compared with the abundance of thorium element in the earth crust.

キーワード 放射性核種, 縞状北投石, 放射能強度, みかけの分配係数, 結晶成長速度

Key words: radioactive nuclear species, banded structure hokutolite, intensity of radioactivity, apparent partition coefficient, crystal growth rate

1. はじめに

北投石には褐色の結晶層（褐色層）と白色の結晶層（白色層）が交互に縞状に層をなすものが存在する。これを縞状構造（Banded Structure）と呼び、このような構造をもつ北投石を縞状北投石と呼んでいる。通常は褐色層の方が白色層に比べ鉛含有量が大きく、鉄なども同様の傾向をもつものが多い（菅沼, 1930）。しかし、白色層の方が褐色層よりも鉛含有量が大きいという報告もある（柴田・須藤, 1964）。筆者は玉川温泉の縞状北投石に実際にこのような両タイプのものが存在することを見出し、化学分析を行うとともに、前者を色正常、後者を色異常と名付けて区別した（佐々木, 2002）。

一方、縞状北投石の放射能については、菅沼（1930）は白色層の方が褐色層よりも放射能が強いとしており、柴田・須藤（1964）も白色層（淡色層）の方が褐色層よりも放射能が強いと記している。しかし、いずれの報告も具体的な数値データは示されておらず、その詳細は明らかではない。北投石中の放射能の強さは結晶層に含まれる放射性元素のラジウムによるものであると考えられており、核種の同定やその含有量について測定実験が行われている（Saito, Sasaki, and Sakai, 1963; Hamaguchi, Lee, 1963, etc）。しかし、縞状の北投石については系統的な研究はこれまであまり行われておらず、その生成条件についても詳しいところは現在までよくわかっていない。

本研究では、これまで微量成分の分布などの研究を行ってきた縞状北投石の各結晶層の放射性核種の同定および放射能強度を測定し、比較するとともに、結晶層の色と放射能の関係を検討し、色正常のものと色異常のものとで結晶層の色と放射能強度との関係にどのような違いがあるのか（あるいはないのか）についても検討した。また、放射性核種を用いて縞状北投石の各結晶層の生成年代や成長速度なども求め、縞状北投石の成因についても考察したい。

2. 試料および実験

試料は筆者らにより化学分析され報告されている縞状北投石（佐々木, 2002）を用いた（図1）。その各結晶層の化学組成を表1に示す。今回の測定では、この縞状北投石の試料の褐色層と白色

縞状北投石中の放射性核種の分布について

層の各結晶層を削り取り、それぞれ粉碎して粉末状試料として、含有する放射性核種の特定とガンマ線測定を行った。測定には大阪大学ラジオアイソトープ総合センターの、鉛遮蔽体 (Canberra Model737) 中に設置した井戸型ゲルマニウム半導体ガンマ線スペクトロメーター (Canberra GCW2022) を使用した。

3. 結果および考察

測定の結果を表2に示す。注目したガンマ線は齊藤ら (2008) により議論された352keVガンマ線 (^{214}Pb 由来で ^{226}Ra 量の指標), 911keVガンマ線 (^{228}Ac 由来で ^{228}Ra 量の指標), および239keVガンマ線 (^{212}Pb 由来で ^{228}Th 量の指標) の3本である。測定結果を表2に示す。これらの値より、色正常のものについては従来から言われているように、白色層の方が褐色層よりも放射能強度が大きいこと、また、色異常のものについてもやはりおおむね白色層の方が大きい放射能強度をもつことがわかる。これは同様の粉末試料を用いて筆者がこれまでGMカウンター (サーベイメーター) で行った測定結

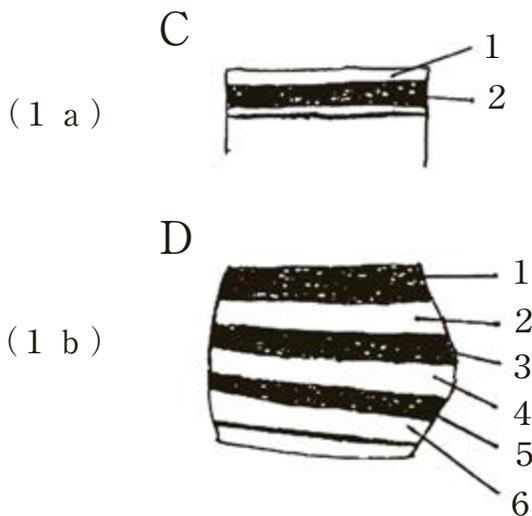


Fig. 1 Banded structure of hokutolite formed at Tamagawa Hot Spring.
 図1 玉川温泉産北投石の縞状構造

Table 1 Chemical compositions of each crystal layer of banded structure hokutolite formed at Tamagawa Hot Spring.

表1 玉川温泉産縞状北投石の化学組成

Sample No.	BaO		PbO		SrO		CaO		Fe ₂ O ₃ *2
	(wt.%)	(mol%)*1	(wt.%)	(mol%)*1	(wt.%)	(mol%)*1	(wt.%)	(mol%)*1	
C1 (w) *3	43.89	94.37	3.73	5.51	0.02	0.06	0.01	0.06	0.20
C2 (b)	45.98	85.08	10.58	13.45	0.24	0.66	0.16	0.81	0.12
D1 (b)	38.08	85.23	8.91	13.70	0.14	0.46	0.10	0.61	0.41
D2 (w)	43.19	85.11	10.13	13.71	0.22	0.64	0.10	0.54	0.16
D3 (b)	40.40	86.74	7.95	11.73	0.28	0.89	0.11	0.65	0.06
D4 (w)	40.74	84.39	9.72	13.83	0.38	1.16	0.11	0.61	0.06
D5 (b)	38.45	86.86	7.65	11.87	0.19	0.64	0.10	0.63	0.45
D6 (w)	43.16	90.40	6.48	9.32	0.07	0.22	0.01	0.06	0.16
S *4	48.43	81.56	14.80	17.12	0.28	0.70	0.14	0.62	0.13

* 1 Composition in mol% as to barium, lead, strontium and calcium.

* 2 Iron ion is not situated in crystal lattice of hokutolite.

* 3 Color of each crystal layer (b:brown, w:white).

* 4 Hokutolite sample formed at Yubana fall till 1989.

Table 2 Radioactivities of several nuclear species in each crystal layer of banded structure hokutolite formed at Tamagawa Hot Spring.

表2 玉川温泉産縞状北投石中の各層の放射能強度 (Bq/g)

Sample	^{226}Ra (Bq/g)	^{228}Ra (Bq/g)	^{228}Th (Bq/g)
C1 (w)	12.1 ± 0.3	< 0.0005	< 0.05
C2 (b)	9.8 ± 0.3	< 0.0005	< 0.05
D1 (b)	25.7 ± 0.3	0.338 ± 0.050	< 0.05
D2 (w)	34.0 ± 0.3	< 0.0005	< 0.05
D3 (b)	28.9 ± 0.3	< 0.0005	< 0.05
D4 (w)	26.4 ± 0.3	< 0.0005	< 0.05
D5 (b)	24.4 ± 0.2	0.309 ± 0.037	< 0.05
D6 (w)	34.0 ± 0.3	< 0.0005	< 0.05
S	2.13 ± 0.05	16.5 ± 0.2	25.3 ± 0.1

果と同様の傾向であり、色正常のものについては菅沼 (1930) による報告と同様の傾向が、また色異常のものについても柴田・須藤らによる記述 (1964) と同様の傾向が得られたことになる。色正常のものと色異常のものでは結晶層の色と鉛含有量の関係が逆になるが、色と放射能に関してはいずれのタイプも白色層の方が大きい放射能強度をもつという傾向を示している。

縞状北投石の色と放射能

従来、北投石の褐色の原因としては鉛や鉄成分の寄与が大きいとされている。鉛含有量と色の関係については、色正常と色異常のものについては逆の傾向があり、色正常では鉛含有量 (mol%) が大きい程結晶の褐色度が大きく (高野・綿抜, 1972)、色異常のタイプでは鉛含有量 (mol%) が大きい程結晶の白色度が大きいこと (佐々木, 2002) がわかっている。また、鉄含有量 (wt.%) と色の関係については、色正常、色異常のいずれについても明瞭な関係は見い出されていないことをすでに報告している。

それでは放射能についてはどうか。色正常のものは鉛含有量 (mol%) と放射能は負の相関をもつことが知られており、今回の測定の結果より色異常のものはおおむね正の相関という逆の関係にあることが明らかとなった。また、鉄含有量と放射能の関係については、色正常、色異常のいずれについても、色の場合と同様、明瞭な相関関係は見い出されない。

鉛や鉄の場合と同様、バリウム、ストロンチウムなどの成分をとっても共通な相関関係をもつ因子はないようにみえる (表2, 表3参照)。それでは色正常、色異常いずれのタイプの縞状北投石についても放射線量に影響を与える共通した因子は何であるのか。

この問題に関して、筆者は2003年に別府で開催された第38回国際温泉科学会大会 (Sasaki, 2003) で、色異常の縞状北投石の結晶層の色の原因は結晶層中に存在する他の共存物質に由来するものである可能性を示唆したが、これは各結晶層中に占める硫酸塩相の割合と色との関係から推定されたものであった。すなわち、色異常の縞状北投石の結晶層の色の原因は結晶層の主たる構成物質である硫酸塩相中の鉛や鉄によるものではなく、他の共存物質によるものとするもので

縞状北投石中の放射性核種の分布について

ある。また、化学組成が縞状に変化する原因としては、溶液の化学組成や温度など結晶成長環境の時間的変化を考えるのが妥当であると結論づけた。

ここで大切なことは、色異常の縞状北投石においては褐色層と白色層で硫酸塩相の割合が大きく異なることである。それは結晶層中に占めるバリウム含有量 (wt.%) や鉛含有量 (wt.%) の総計を見ればよくわかる。すなわち、鉛含有量が大きいものはバリウム含有量も高く、硫酸塩相が多いということであり、これがバルクとして放射能を大きくさせている可能性がある。その放射能源は硫酸バリウムや硫酸鉛に共沈殿するラジウムによるものである。

バリウム含有量や鉛含有量の大きさ (wt.%)

は結晶層中の硫酸塩相の量 (割合) に依存する。しかし、硫酸塩相の割合が大きいからといって硫酸塩相の成長速度が大きいというわけではない。成長速度を見積もるためには実際に成長に要した時間と結晶の量が必要だが、過去に成長した試料からそれを見積もるのは困難である。結晶層中の放射能強度の違いから見積もるという方法もあるが、これについては後述する。

その前に考えてみたいのが、筆者らの開発した現象論的方程式を用いた方法である。これは溶液の化学組成から生成される固溶体結晶の化学組成と結晶成長速度のシミュレーション (佐々木, 1991; 佐々木・綿抜, 1995) を行うもので、この方法を用いれば、与えられた組成の熱水からどのような化学組成の結晶がどのような成長速度で成長するかを計算で求めることができる。逆に、成長した結晶の化学組成からその成長速度や結晶を生成した熱水の化学組成を推定することもできる。

このシミュレーションを行えば、硫酸塩中の鉛含有量が大きなものは大きな結晶成長速度をもち、鉛含有量が小さなものは小さな成長速度で成長したものであることがわかる。成長速度が小さいということは、反応速度と化学平衡の関係で言えば、より化学平衡に近い状態で成長したと考えられるが、いま硫酸バリウム (ないし硫酸鉛) に取り込まれるラジウムの量を考える場合、分配論的には結晶成長速度と分配係数 (みかけの分配係数) の間にはどのような関係があるのかを考える。一般に、溶液と結晶が化学平衡にあるとき、結晶と溶液中にある成分 A と B に関して

$$([AR]/[BR])_{\text{crystal}} = D_{A,B}([A^+]/[B^+])_{\text{solution}} \quad (1)$$

という分配平衡の関係が成り立つ。 $D_{A,B}$ を成分 B に対する成分 A の分配係数 (均質分配係数) という。 $D_{A,B}$ は D_A と略記する。また、溶液と結晶が化学平衡にないときは、一般に D_A は天然においては化学平衡時の分配係数とは異なる値をとり、これをみかけの分配係数 (apparent partition

Table 3 Estimated time after formation of each crystal layer of banded structure hokutolite formed at Tamagawa Hot Spring.

表 3 放射能強度より推定した玉川温泉産縞状北投石中の各層の生成年代 (年)

Sample	Time (y)
C1 (w)	> 100.0
C2 (b)	> 108.2
D1 (b)	82.5
D2 (w)	> 119.1
D3 (b)	
D4 (w)	
D5 (b)	
D6 (w)	
S	> 8.0

coefficient D_A と呼び、 D_A' と表記する。いま、AはBより固相に入りやすい（濃縮する）傾向がある場合（すなわち $D_A > 1$ 、これを固相と液相の間でAはBに対しenrichment systemであるという）、 D_A と D_A' には次の関係がある。

$$D_A > D_A' > 1 \quad (2)$$

逆に、AがBに対して固相に入りにくい傾向がある場合（すなわち $D_A < 1$ 、これを固相と液相の間でAはBに対しdepletion systemであるという）は、

$$D_A < D_A' < 1 \quad (3)$$

の関係が成り立つことが知られている。硫酸バリウムに対してラジウムの分配は前者のenrichment systemであるから、均質分配係数とみかけの分配係数の間には（2）式のような関係がある。したがって、結晶成長速度が小さくなり、溶液と結晶間が化学平衡に近づくと分配係数は大きくなる。同様の関係が硫酸鉛とラジウムについても成り立つが、硫酸鉛に対するラジウムの分配係数は硫酸バリウムに対するそれよりも大きい。一方、硫酸バリウムに対して鉛の分配は後者のdepletion systemであり、結晶成長速度が小さくなり、溶液と結晶間が化学平衡に近づくと硫酸バリウムに対する鉛のみかけの分配係数は小さくなる。ラジウムの取り込みに関し硫酸バリウムと硫酸鉛は競合関係にあるが、平均で考えた場合、やはり成長速度の小さい場合の方が、ラジウムの取り込みに関し、全体としてみかけの分配係数が大きくなり、結晶中により多くのラジウムが取り込まれ、放射能強度が増すと考えられる。すなわち鉛の少ない白色層の方が放射能が強い。これにより色正常型の縞状北投石の放射能分布が説明される。

それでは色異常の縞状北投石の放射能はどのように説明されるのであろうか。ラジウムの取り込みに関し、色正常の場合と同じように考えれば、鉛の少ない褐色層は鉛の多い白色層よりも平衡に近い状態で成長したと考えられるから、層全体としてみかけの分配係数は幾分大きくなるはずであるが、これについてはすでに述べたように褐色層と白色層中の硫酸塩相の割合が重要である。色異常の縞状北投石においては褐色層は硫酸塩相以外のものを含んでおり、硫酸塩相の量は硫酸バリウムと硫酸鉛の合計でおよそ10%程度白色層より下回っている。それにより層全体としてはラジウムの濃度が薄まり、放射能も低くなるものと考えられる。これらを総合して色異常の縞状北投石では白色層の方がラジウムが多くなり、放射能強度が大きくなると考えられる。

放射性核種による縞状北投石の生成速度の算定

北投石中の放射性同位体 ^{226}Ra と ^{228}Ra の量から北投石が生成してからの時間を見積もることができるが、その原理は次のようになる。 ^{226}Ra と ^{228}Ra の半減期はそれぞれ1600年、5.8年であることから、両者の崩壊定数（壊変定数） λ はそれぞれ 0.000433 、 $0.119(\text{y}^{-1})$ となるので、北投石の生成してからの時間を t とすると次のような関係式が成り立つ。

縞状北投石中の放射性核種の分布について

$$N(^{226}\text{Ra}) = N_0(^{226}\text{Ra}) \times \exp(-0.00043t) \quad (4)$$

$$N(^{228}\text{Ra}) = N_0(^{228}\text{Ra}) \times \exp(+0.119t) \quad (5)$$

ここで、 $N_0(^{226}\text{Ra})$ 、 $N_0(^{228}\text{Ra})$ は ^{226}Ra と ^{228}Ra の初期濃度、 $N(^{226}\text{Ra})$ 、 $N(^{228}\text{Ra})$ は t 年後の濃度を表す。

(4)、(5)より

$$N(^{226}\text{Ra})/N(^{228}\text{Ra}) = N_0(^{226}\text{Ra})/N_0(^{228}\text{Ra}) \times \exp(-0.00043t + 0.119t) \quad (6)$$

$N_0(^{226}\text{Ra})/N_0(^{228}\text{Ra})$ は ^{226}Ra と ^{228}Ra の初期濃度比、 $N(^{226}\text{Ra})/N(^{228}\text{Ra})$ は t 年後の濃度比を表すが、前者の比は齋藤ら(2008)によりほぼ $1/20$ であることが示されており、本研究でもこの値を用いるものとする。

しかし、ここで注意しなければならないことがある。大久保ら(Okubo and Sakanoue, 1975)が指摘したように、北投石にはトリウムの同位体 ^{232}Th が含まれることがあるので、その ^{232}Th の崩壊による ^{228}Ra が ^{228}Ra の濃度として含まれている可能性があることである。筆者は今回測定された表2の中のD1、D5層の試料中の ^{228}Ra の値にそれが含まれており、他の層にはそれが含まれていないと考えた。D5層の ^{228}Ra の値がその ^{232}Th 由来の値であり(D5層の ^{232}Th 由来でない ^{228}Ra の残存量は <0.0005 のはず)、D1の値には生成時に含まれていた ^{228}Ra の残りと、生成時に含まれていた ^{232}Th の崩壊による ^{228}Ra の両方が含まれていると考える。したがって、D1とD5の差

$$0.338 - 0.309 = 0.029 \text{ Bq/g} \quad (7)$$

が生成時に含まれていた ^{228}Ra の残存量であると考えられる。なおD5層の ^{228}Ra の値の測定誤差(± 0.037)は主に ^{232}Th 由来の ^{228}Ra の誤差であると考えられるが、 ^{232}Th 由来の ^{228}Ra の値はD1層とD5層でほとんど同じであると考えられるから(7)式の差の値は ^{232}Th 由来でない ^{228}Ra の値として十分有意であると考えられる。その値と ^{226}Ra の値25.7からD1層の生成時からの時間を求めると、式(6)より

$$25.7/0.029 = 1/20 \times \exp(-0.00043t + 0.119t) \quad (8)$$

となり、 $t = 82.5$ 年となる。

また、D2層の ^{228}Ra の値は検出限界の 0.0005 Bq/g 未満であるから、生成時からの時間は式(6)より

$$34.0/0.0005 = 1/20 \times \exp(-0.00043t + 0.119t) \quad (9)$$

となり、 $t > 119.1$ 年ということになる。したがって、D1層とD2層の生成年代の時間差はおよそ

$$119.1 - 82.5 = 36.6 \text{ 年} \quad (10)$$

ということになり，D1層とD2層の間隔はおよそ3.5mmであるから結晶成長速度は平均して

$$3.5 \text{ mm} / 36.6 \text{ y} = 0.096 \text{ mm/y} \quad (11)$$

となる。この値は斉藤ら (Saito N. et al., 1963) による値0.09 mm/y と良い一致を示している。なお、この方法ではC1層とC2層の年代に有意な差は見いだせないで、結晶Cの成長速度を見積もることは困難である。

D1, D5層に含まれるThの含有量

D5層の0.309Bq/gの放射能をもたらす²³²Thの量を求める。まず、²³²Thの半減期は140億年 ($140 \times 10^8 \text{ y}$) であるから、崩壊定数は $\lambda = 4.95 \times 10^{-11} (\text{y}^{-1})$ となる。したがって、²³²Thの1 gあたりの崩壊速度は原子数で

$$\begin{aligned} dN/dt &= -4.95 \times 10^{-11} \times N \\ &= -4.95 \times 10^{-11} \times 1 / 232 \times 6.02 \times 10^{23} \\ &= -1.28 \times 10^{11} / \text{y} \end{aligned} \quad (12)$$

となり，1秒あたり崩壊する原子数は

$$\begin{aligned} 1.28 \times 10^{11} / (365 \times 24 \times 60 \times 60) &= 4.06 \times 10^3 \text{ /sec/g} \\ &= 4.06 \times 10^3 \text{ Bq/g} \end{aligned} \quad (13)$$

となる。したがって，D5層の0.309Bq/gの放射能をもたらす²³²Thの量は1 g中に

$$\begin{aligned} 1000 \text{ mg} \times 0.309 / (4.06 \times 10^3) \\ = 0.0761 \text{ mg} \end{aligned} \quad (14)$$

存在することになる。すなわち，含有率は

$$\begin{aligned} 0.0761 \text{ mg} / 1000 \text{ mg} \times 1000000 \\ = 76.1 \text{ ppm} \\ \approx 76 \text{ ppm} \end{aligned} \quad (15)$$

となる。Thには数多くの放射性同位体が存在するが，D1層とD5層の²³²Th以外の同位体はあまり含まれていない。Thの地殻中の元素存在度は7.2ppmであるから，褐色層のD1, D5は²³²Thだけで

縞状北投石中の放射性核種の分布について

も平均的な地殻のTh含有量のおよそ10倍以上含まれていることがわかる。一般にThの含有量はFeの含有量と相関をもつといわれているが、これが色異常の縞状北投石の褐色層の色と何らかの関わりがある可能性もある。しかし、なぜこの褐色の2層だけに他の層に比べFeやThが多く含まれるのか、そしてその供給源は何であるのか、については興味深いですが、現在のところ明らかではない。Thは粘土鉱物中に固定されやすい（小鯛, 1983）ことから、この2層には鉄を含む粘土鉱物が多く含まれているのかも知れない。

4. まとめ

縞状北投石の各結晶層中に含まれる放射性核種を井戸型ゲルマニウム半導体ガンマ線スペクトロメーターを用いて検出し、それぞれの放射強度を定量的に測定した。その結果、検出した²²⁶Ra, ²²⁸Ra, ²²⁸Thのうち、²²⁶Raについて、色正常タイプのもは白色層の方が褐色層よりも多いこと、また、色異常タイプのもはやはり白色層の方が多いことがみとめられた。

その理由としては、色正常タイプのものについては、鉛含有量の小さい白色層は結晶成長速度が小さく、より平衡に近い条件で温泉水から生成することから、ラジウムが硫酸バリウム相に取り込まれやすくなるものと考えられる。

それに対し、色異常タイプのもは鉛含有量（mol%）の大きい白色層は成長速度が大きく、ラジウムは取り込まれにくくなるが、結晶層に硫酸鉛が多いことや、結晶層に占める硫酸塩相自体が多いため、バルクとしてのラジウム濃度が褐色層よりも高くなり放射能強度が大きくなるものと解釈される。

次に、玉川温泉産の縞状北投石中の²²⁸Raに²³²Th由来のものがあると考え、その影響を差し引いて²²⁶Raと²²⁸Raの放射能強度比より結晶層の生成年代を求めた。それらをもとに結晶成長速度を求めると、およそ0.096mm/y（ ≤ 0.096 mm/y）という値が得られた。これはSaito, Sasaki and Sakai(1963)の結果と良い一致を示す。

²³²Th由来の²²⁸Raの放射能強度から、結晶層中の²³²Thの含有量を求めたところ、褐色層のD1層とD5層でおよそ76ppmという値が得られた。これは地殻中のThの平均元素存在度のおよそ10倍以上であるが、他の層にはあまり含有されていない。Thは粘土鉱物に取り込まれやすく、Fe含有量と相関をもつといわれているが、これらが色異常と何らかの関わりがある可能性がある。

5. 謝辞

本研究のガンマ線測定を行うにあたっては、大阪大学ラジオアイソトープ総合センターの斎藤直教授、大阪大学安全衛生管理部の齊藤敬研究員に大変お世話になった。ここに心より感謝の意を表します。

参考文献

- 1) Okubo, T. and Sakanoue, M. (1975): Radioactive Disequilibrium of Thorium Series Nuclides in Hot Spring Deposits, *Geochem. J.*, 9, 221-226, 1975.
- 2) 小鯛桂一 (1983): ガンマスベクトル検層の校正技術, *地質ニュース*, 341, 49-51.

- 3) 齊藤敬, 山形武靖, 永井尚生 (2008): 玉川温泉の湯花中の放射能, 温泉科学, 57, 206-214.
- 4) Saito, N., Sasaki, Y, and Sakai, H. (1963): Radiochemical Interpretation on the Formation of Hokutolite. *Geochemistry of the Tamagawa Hot Springs*, 182-198, Tokyo.
- 5) Sasaki, N. (2003): Analysis of non-equilibrium partition of elements between minerals and hydrothermal solution. *Mem. Fac. Educ. Kagawa Univ.* II, 41, No.2, P.41-56.
- 6) 佐々木信行, 綿拔邦彦 (1995): 天然無機化合物, 裳華房, 108-130.
- 7) 佐々木信行 (2002): 縞状北投石中の微量成分の分布, 温泉科学, 51, 175-183.
- 8) Sasaki, N. (2003): A classification and formation mechanism of banded structure formed in hokutolite crust. *Proceedings of the 38th Conference of Societe Internationale des Techniques Hydrothermales*.
- 9) 佐々木信行, 堀口昇 (2004): 縞状北投石中の放射能の分布について, 日本温泉科学会第57回大会講演要旨集
- 10) 佐々木信行, 堀口昇 (2005): 縞状北投石中の放射能分布とその解釈. 日本温泉科学会第58回大会講演要旨集
- 11) 佐々木信行, 堀口昇 (2006): 縞状北投石中の放射能分布とその解釈 (その2). 日本温泉科学会第59回大会講演要旨集
- 12) 佐々木信行, 流郷忍, 堀口昇, 綿拔邦彦 (2008): 縞状北投石中の放射性核種の分布と変化, 日本温泉科学会第61回大会講演要旨集
- 13) 佐々木信行, 流郷忍, 斎藤直, 齊藤敬, 綿拔邦彦 (2009): 縞状北投石中の放射性核種の分布と変化 (その2), 日本温泉科学会第62回大会講演要旨集
- 14) 佐々木信行, 斎藤直, 齊藤敬, 綿拔邦彦 (2010): 放射能分布よりみた縞状北投石の生成速度, 日本温泉科学会第63回大会講演要旨集
- 15) 柴田秀賢, 須藤俊男 (1964): 鈾物岩石検索図鑑, 北隆館, 119.
- 16) 菅沼市蔵 (1930): 天然記念物秋田北投石ノ成分成因ニ就イテ, 東京物理学校雑誌, 469, 58-93.
- 17) Hamaguchi, H., Lee, Y.T. (1963): Study of Radioactivity of Hokutolite. *Geochemistry of the Tamagawa Hot Springs*, 153-162, Tokyo.
- 18) Takano, B., Watanuki, K. (1972): Strontium and calcium coprecipitation with lead-bearing barite from hot spring water. *Geochem. J.*, 6, 1-9.
- 19) 南英一 (1954): 玉川温泉の北投石について, 鈾物学雑誌, 2, 1-23.
- 20) Minami, E. (1963): *Geochemistry of the Tamagawa Hot Springs*, Tokyo, 1963.