

ミネラルウォーター中のウラン・トリウム含有量

齋藤 直、山口喜朗、小島貞男¹

大阪大学ラジオアイソトープ総合センター(豊中分館)

¹ 愛知医科大学医学部附属核医学センター

1. はじめに

ウランおよびトリウムの排液・排水中の濃度限度は、他の放射性同位元素と較べてもかなり厳しい数値に規制されている部類に入る。それらの元素の主要な同位体の濃度限度は、 ^{238}U で $2 \times 10^{-2} \text{Bq/cm}^3$ であり、 ^{232}Th で $4 \times 10^{-3} \text{Bq/cm}^3$ である。この厳しい規制は、両核種が α 放射核種であるため、必然的なものである。このため、ウランやトリウム等の核燃料物質・国際規制物資を使用する放射線施設にあっては、その厳しい排水基準をクリアしていることを常にモニターしておく必要がある。そこで、検出感度をあげるために排液・排水の濃縮処理の後、放射線測定用試料を作製するのが一般的であろう。加えて、核種同定を行うためには放射線スペクトロメトリが必要となって、煩雑な手順となってくる。そこで、ウランやトリウムなどの長寿命核種の定量には、放射能測定に代わって元素分析法の利用が考えられる。上記の排水濃度限度は、 ^{238}U では $2 \times 10^{-2} \text{Bq/cm}^3 = 1.6 \text{mg/L}$ となり、 ^{232}Th で $4 \times 10^{-3} \text{Bq/cm}^3 = 1.0 \text{mg/L}$ となって、化学元素の濃度としては決して厳しい数値ではなく、むしろ緩やかな濃度規制とも考えられる。それで、排液中のウラン濃度をその放射能に頼らずに、化学物質として定量しようとするのも当然の帰着といえる。その一例として、試料作製法に工夫をした PIXE 法では、数 μL の試料を基にして排水中のウラン濃度 $10^{-1} - 10^{-7} \text{mol/L}$ ($24 \mu\text{g/L} - 24 \text{ng/L}$) の測定を達成できたと報告されている¹⁾。これは、従前には 1L の試料の濃縮を必要とした原子吸光分析法、数十 μL の試料を必要としていたそれ以前の PIXE 法からみると大幅な改善であると謳われている。しかし、元来ウランの定量には原子吸光法(AES)や原子発光法はあまり適しておらず、放射化分析法あるいは誘導結合プラズマ質量分析法(ICP-MS)などがより高感度測定に適しているといわれている²⁾。上記の排水基準程度であれば、ICP-AES が十分有効であるが、ICP-MS ではより高感度測定が期待される。両方法ともに、排水試料を全く前処理を行わずに、ウランの定量が可能である。トリウムについては、原子吸光法と原子発光法は適用できないので、両元素の定量には ICP-MS が最適であると考えられる。

さらに、ウランは放射性同位元素としての放射線毒性の他に、化学元素として腎臓への慢性的影響があることから、水道水の水質基準の監視項目に加えられて、その暫定目標値が $2 \mu\text{g/L}$ 以下と決められている。この濃度は、放射性同位元素としての排水基準よりも 3 桁も厳しい数値である。2001 年に改訂された上水試験方法³⁾では、ウランの定量を規定していて、水道関係者は放射線管理者よりも厳密な測定を強いられている。分析機器としては、専ら ICP-MS を利用することになるだろうが、実質的に上水中のウラン濃度はあまり高くなく、定量限界値以下として処理されることが多いのではないであろうか。

このように、ICP-MS が水試料中のウラン・トリウム濃度測定において検出感度と試料取扱の簡便さにおいて優れているといえる。同法の適用例として、排液・排水中のウランとトリウム濃度に加えて、水道水や自然水(雨水、河川水、湖沼水)などを測定してみたところ、それらの U 濃度には期待したほどの大きな数値を示すものは見られなかった。この結果から放射線施設からの排水濃度を上水側から嵩上げする恐れはまったくないことがわかった。次に、幾種類かの市販ミネラルウォーターを測定したところ、かなり高濃度のウランを含むものがみられたので、紹介しようと考えた。飲用水の水質基準として問題があるのと、別の視点からみて、ウラン水溶液試料が簡単に入手できることを示すのも意義があるものと思われる。トリウムについては、元々水溶性に乏しいことから予測できる通り、ほとんど検出できなかった。

2. 実験

試料は、ろ過(孔径 $0.45 \mu\text{m}$ の PTFE フィルター)や硝酸添加などの前処理や前処理なしを適宜試みたが、濃縮操作などは加えなかった。ミネラルウォーターの大半は全く前処理をおこなわずに測定に供した。

用いた ICP-MS は、横河アナリティカルシステムズ社製 Agilent 7500s(四重極レンズ型)⁴⁾で、定量あるいは半定量測定をおこなった。基準試料としては、AccuStandard 社の ICP-MS 用 multi-element standard(Th、U を含む 18 元素が各々 $10 \mu\text{g/mL}$)他を希釈して用いた。希釈には Millipore Milli-Q + SimpliLab-UV で製造した超純水を用いた。

3. 結果と考察

種々の水試料等について測定した結果とともに考察を記す。いずれもウランおよびトリウム放射線施設からの排水基準 ($^{238}\text{U} : 2 \times 10^{-2} \text{Bq/cm}^3 = 1.6 \text{mg/L}$ 、 $^{232}\text{Th} : 4 \times 10^{-3} \text{Bq/cm}^3 = 1.0 \text{mg/L}$) に達するような試料は見当たらなかった。特に、トリウムについてはほとんど検出できなかったため、トリウム濃度については特記しない限り検出限界以下であるので記述を省略する。ウランについては、排水基準より厳しい水道水の水質基準 ($2 \mu\text{g/L}$ 以下) と比較しても、十分に低い値であることが多かった。以下、ウラン濃度の多寡はこの水質基準値との比較で行うことにする。

3.1. 雨水

大阪大学の自施設屋上で採取した雨水には、ウラン濃度として $2\text{--}6 \text{ng/L}$ 、トリウムは検出限界以下 ($<2 \text{ng/L}$) であった。これらの濃度はフィルターを透過する極めて微少な浮遊微粒子にも依存するものと考えられる。このウラン濃度を水道水の水質基準 ($2 \mu\text{g/L}$ 以下) と比較すると、十分低い値であるため、雨水そのものの飲用はウランに関してはそのまま問題が無いことがわかる。雨水中のウランの低濃度から、上水中のウラン濃度を上昇させるのは、地上および地中の流水への土壌からの溶出過程であろうと考えられる。これは、地殻中の平均存在度が、ウランでは 4ppm 、トリウムでは 8ppm といわれているので、土壌がウランおよびトリウム濃度を上昇させる原因となることができる。

3.2. 湖沼水(琵琶湖)

滋賀県の琵琶湖は、京阪神地方の上水源として重要な位置を占めている。琵琶湖中央部(北湖南部)および南湖で採取した湖水中の溶存元素の深度分布については、前にも報告した⁵⁾。北湖のウラン濃度は表面から深度 54m の湖底まで、おおよそ $20\text{--}10 \text{ng/L}$ の範囲にあって、深度とともに減少していく傾向があることがわかった。懸濁物の多い深さ 4m の南湖では、ウラン濃度は 45ng/L であった。このことから、湖水中のウランは主に流入水によってもたらされたものであると考えられる。

湖水の上下層が混ざり合うと考えられている冬期での採取(2002年2月4日)⁶⁾では、北湖南部の水深 50m までの湖水中のウラン濃度は $12\text{--}18 \text{ng/L}$ の範囲にあって、表面から湖底までの濃度がほぼ一定であった。

3.3. 水道水

大阪大学の自施設で採取した豊中市から供給されている水道水のウラン濃度は 4ng/L 程度であった。日本の5都市の水道水の平均値が 9ng/L といわれている³⁾ので、この結果は妥当なものであろう。京阪神地方の水道は琵琶湖に依存している部分が多く、先の琵琶湖南湖におけるウラン濃度と比べて低くなっているのは、他の流入河川中の濃度が低いか、あるいは上水処理中においてウラン等も除去されることによる。ウランは凝縮沈殿および砂ろ過の過程で除去効果が認められている³⁾。水道栓に付属させる浄水器はニッケル、亜鉛、銅、鉛などの多量に存在する主要重金属の除去についてわずかばかりの効果がみられる。しかし、ウラン濃度には変化はあらわれなかった。

なお、水道水に水銀が検出されることがある(例えば、 $20\text{--}200 \text{ng/L}$ 程度)。これは高架水槽を経由した水道水に見られて、その原因として高架水槽の清浄が不十分であり、有機物質が蓄積あるいは繁殖しているのではないかと推定している。水銀についての水質基準は「検出されないこと」と規定されているが、 $0.5 \mu\text{g/L}$ 以下であることを指しているため、その点から見ると問題はないことになる。

3.4. 処理水

実験に使用する水は、水道水そのままではなく、何らかの処理をした水を用いることが多い。蒸留水およびイオン交換樹脂を通した脱イオン水はいずれもウラン濃度が $<2\text{ng/L}$ となって検出できなくなった。また、市販試薬としての蒸留水も同様に検出限界以下であった。蒸留水をさらに処理した RO 水では、当然のことながらウランは検出できなかった。このように、何らかの処理によってウランは容易に除去されることがわかる。

3.5. 放射線施設からの排液

大阪大学の自放射線施設の排水貯留槽からの排水に際して、貯留水を採取してウラン濃度を測定したところ、水道水中の濃度と同程度であった。その放射線施設では、過去に国際規制物資(天然ウランおよび劣化ウラン)の使用があったけれども、化学処理はしていないので、排水中に実験に用いたウランが流出していることはないものと考えられる。

3.6. 河川水(芦田川など)

河川水の一例として広島県東部を流域とする芦田川を調べた⁷⁾。芦田川は全長 86km、流域面積 860km^2 の中規模河川である。流域の年間降雨量が 1.2m 程度と少ないために、河川水利用率は 60 % で全国一となっている。中流(45km)の府中市以降では農業排水、生活排水、工業排水が流入して水質の悪い点でも顕著である。ここでは水源から河口までの全区間で約10km毎に採取した河川水を試料とした。河川水中のウランおよびトリウム濃度の測定結果を Table 1 に示す。

Table 1. Uranium and Thorium concentrations in water of Ashida river, Hiroshima Prefecture.

Distance from riverhead	0m	10m	9km	17km	22km	36km	
U concentration (ng/L)	<2	<2	16	30	71	110	
Th concentration (ng/L)	<2	<2	15	6	12	27	
Distance from riverhead	45km	54km	63km	72km	81km	86km	Seawater
U concentration (ng/L)	450	330	160	160	250	180	1500
Th concentration (ng/L)	21	12	8	6	12	9	<2

水源での湧水がウランおよびトリウムをほとんど含まないのは、雨水が砂ろ過で浄化された結果であろう。河川水の透明度は 36km まで良好で、45, 54km でやや土色の着色、63, 72km で濃い茶色、81km で緑色、86km では滞留状態にある河川水は緑土色である。36km までのウランの増加は農業排水の影響と考えられるが、45, 54km では生活排水の影響が大きくなっていく。農業排水では、ウランのみならずトリウム濃度も増加していることから、純然たるリン酸肥料の影響だけでなく、土壌成分の流出も含めた排水と考えられる。63km より下流では、ウラン濃度は逆に減少しているが、これはウランが懸濁物等に吸着された結果、見かけ上の溶存成分として減少していると見なされる。河川水の透明度とウラン・トリウム濃度の相関は特に顕著ではないが、人為的な汚染の指標として有用であることがわかる。

工業排水の影響については、茨木市の大正川(千里万博公園付近を水源とする小河川)で、工場からの排水口に注目して採取した試料について調べた⁸⁾。3 工場の排水口をカバーしたところ、主要な重金属の増加は見られなかった。しかし、A 工場の下流ではトリウム濃度が 4ng/L に増加し、B 工場ではチタン濃度が倍増して $1\mu\text{g/L}$ を超えた。いずれもこれらの特徴的な濃度増加は、下流では消失した。これは工場排水がすぐに拡散して混合されて、総合的な汚濁水に紛れ込んでしまうためであろう。工場排水は現在では十分に排水基準を満足するように処理されているが、微量元素に注目すると汚濁追跡も可能であろうと考えられる。

3.7. 温泉水(代用としての湯の花・入浴剤、チェコの温泉水)

温泉水は地中での滞在時間が長いので、ウランの溶出が十分に行われてウラン濃度が高くなると考えたが、試料採取ができなかったため、湯の花をその代用としてみることにした。登別温泉など日

本各地の温泉の湯の花や温泉の素などが市販されているので、それらを溶解して測定した。登別温泉の湯の花中にはウランとトリウムが 0.1ppm のオーダーでほぼ同量含有されていた。それを入浴剤と称する商品としたものは、ウラン濃度は湯の花に較べて1桁低い。トリウム濃度はそれよりも若干低めである。それはトリウムが非溶存部分に残ったためであろう。いずれの温泉を謳った入浴剤も、溶存ウラン濃度としては特に高濃度のものはなかった。さらに入浴剤はすべてナトリウム濃度のみが高かった。このことから、温泉を謳った入浴剤は、湯の花を食塩で 10 倍程度に希釈したものであると考えられる。このことから湯の花そのものも特にウランとトリウムに富むものはないようである。

後で、外国の温泉水試料を入手したので、その分析も行った。Marianske Lazne, Czech の Ferdinand spring と Rudolf spring で採取した水⁹⁾のウラン濃度は、それぞれ 20ng/L と 55ng/L、トリウム濃度はそれぞれ 6.7ng/L と 3ng/L であった。これらのウラン濃度は、後述するミネラルウォーターと比較すると、低濃度の部類に入るが、トリウム濃度では高濃度の部類に入る。チェコのミネラルウォーターでもトリウムは検出できていないので、飲用水としては見かけ上の透明感も求められるために、混入微粒子が少ないものが賞用された結果であろう。そのような制限のない温泉水ではトリウムの混入をもたらすような地中での過程がむしろ必要条件であるのかも知れない。

3.8. ミネラルウォーター(国産品)

34 種類の国産ミネラルウォーター中のウラン濃度を Table 2 にまとめて示す。沖縄の製品のみが 1 $\mu\text{g/L}$ を超え、他に若干の製品が 0.1 $\mu\text{g/L}$ を超えたが、ほとんどの製品はそれ以下の濃度、さらには検出限界以下の低濃度であった。わが国の硬度の高い地下水を分析した結果では、水質基準を超えるものはなく、最高濃度は 1.7 $\mu\text{g/L}$ であったと報告されている³⁾。また文献¹⁰⁾には、市販のミネラルウォーター中の元素の濃度分布を示すグラフが与えられているが、そこからウランは 3ng/L ~ 1.3 $\mu\text{g/L}$ の範囲にあることが読みとれる。ここでの結果の上限は、それらの報告値とは矛盾しないものである。しかし、文献¹¹⁾には、兵庫の 2 製品に 7 および 8 $\mu\text{g/L}$ の極めて高いウラン濃度が報告されており、上の報告とも Table 2 と合わないように思われる。国産ミネラルウォーターは雑菌を除去する目的で、必ずろ過操作がされており、その技術の向上によって、最近の製品中のウラン濃度が減少したとも考えられる。

国産ミネラルウォーターのすべての製品で、トリウム濃度は検出限界以下であった。これを文献¹⁰⁾に示された 3 種の製品のトリウム濃度：4 ~ 30ng/L と較べると明らかな不一致となる。いずれにせよ、低トリウム濃度もろ過過程の影響として考えられる。

製品の中には、水銀をごく微量含むものがあつた(10~150ng/L 程度)。これは鉱物由来である可能性もあるが、農薬による汚染を受けているとも推定できる。

海洋から採取したミネラルウォーターは飲用水とするためには必然的に相当の処理が不可欠となるが、ホウ素の除去が不完全で、その濃度が水質基準値(1mg/L 以下)を超える製品が見られた。

3.9. ミネラルウォーター(外国産)

海外 15 カ国の 42 種類の市販ミネラルウォーターに含まれるウランおよびトリウムの濃度についての測定結果を Table 3 にまとめて示す。欧州の 66 種類のミネラルウォーターを調査した報告¹²⁾ではウラン濃度は 1 ng/L ~ 9.5 $\mu\text{g/L}$ の範囲にあつた。ここでの結果はその範囲に入るものであつた。唯一の例外(13 $\mu\text{g/L}$)は、文献¹²⁾の試料の場所を示す地図には記載されていない場所で得られたものである。文献¹²⁾の結果とは矛盾しない。しかし、同一製品と特定できる結果ではウラン濃度は 7.9 $\mu\text{g/L}$ と報告されていて¹³⁾、明らかに一致しないが、製品間のばらつきが原因とも考えられる。外国産のミネラルウォーターは明らかに国産品と比較してウラン濃度は広範囲に分布していて、水質基準濃度を超過する製品まで見られる。処理水であることを謳っているにもかかわらず、それらも含めて全ての外国製品に有意のウラン濃度があつたのは、国産品との大きな違いである。

低いウラン濃度(0.01ppb 以下)を示すミネラルウォーターは天然水源から採取したものではなく、脱イオン水に適度のミネラルを添加したものではないかと疑っている研究者がいる¹⁴⁾。これは一般的な水資源のウラン濃度が高いイスラエルで考えられたことであり、そこでのベルギーとルーマニア

のミネラルウォーターの異常(U濃度< 0.01ppb)の原因と考えたものである。しかし、低ウラン濃度が必ずしも処理水の証拠にもならないのは、上述した芦田川の水源についての結果からもいえることである。天然水であっても、ウラン濃度のみならず、鉛など特定の重金属濃度が極端に低いミネラルウォーターもあって、うまく選択すると特定元素の清浄標準として利用が可能かも知れない。市販品の飲料水の中には、RO水であることを謳ったものもあるので、それらも利用できる。しかし、微量元素の濃度については全く保証されていないし、変動も大きいようであることに注意しておかなければならない。

南極の同一水系の河川水でカルシウム濃度とウラン濃度とが極めて強い相関を持つことを示した報告例¹⁵⁾がある。このことから、ミネラルウォーターの硬度とウラン濃度との相関性が期待される。しかし、代表的な硬水製品で極めてウラン濃度が低かったり、軟水にもかかわらず逆に高いウラン濃度を示す製品もある。ウラン濃度は、湧出する地域によって決まって、硬度との相関を一般的な現象とは考えられない。アルプス周辺の湧水は、硬度も高く、同時にウラン濃度も高い。

トリウム濃度もいくつかの製品で測定できた。トリウム濃度とウラン濃度との相関もあるとはいえない。氷河が起源であると謳っているミネラルウォーターには、ウラン濃度が低くても、トリウムが有意量含まれている。

製品の中には、水銀をごく微量含むものがあつた(10~150ng/L程度)。国産品同様に農薬による汚染が原因ではなかろうかと推測している。

3.10. 飲用加工品など

井水を原料とする飲用加工品としては、まず清酒が考えられる。国産ミネラルウォーターで見たように、国内では極端な硬水はないので、清酒醸造用にも同程度の硬水が用いられていると考えられる。清酒中のウラン濃度は~50ng/Lであつた。米穀由来であろう水銀が見られる他、ベリリウムが10ng/L程度見られた。ビールや食酢などにも10ng/Lのウランに加えて、水銀およびベリリウムが見られた。天然果汁が含まれているジュース類にもウランと水銀は必ず含まれているので、これらの元素を原料の推定に利用することも可能である。

このように、飲用加工品に水銀等が含まれていることから、ミネラルウォーター中の水銀汚染は全く問題にする必要がないのかも知れない。

3.11. ウランの同位体比

ウランの同位体²³⁸Uと²³⁴Uの放射能比ARは、ウランの溶出機構が作用している試料にあつては必ず放射平衡の値(AR=1)からずれている。抽出クロマトグラフィーによってウランを濃縮して、ICP-MSで同位対比を測定した報告がある¹³⁾。ここでは、抽出操作を加えず、ウランを高濃度に含むミネラルウォーターをそのまま試料導入して、同位対比を測定してみた。しかし、²³⁴Uの計数がなお不十分であつたので、AR = 1.3 ± 0.4を得たのにとどまった。なお、文献¹³⁾では、AR = 1.115 ± 0.003と報告されている。

4. まとめ

国産品、外国製品あわせて76種類のミネラルウォーターをサーベイした。ウラン濃度を見ると、国産品の中には水質基準目標値を超える高濃度の製品は見られなかった。国産品全てが、何らかの処理(最低でも、常温フィルターリング)が施されていることが、溶存イオン濃度に影響を与えていることはまちがいないであろうが、元々わが国の水資源中のウラン濃度が低いことも反映している。

外国製品のウラン濃度は広範囲に分布している。その中で、特にフランス、イタリア、トルコなどのミネラルウォーターには目標値を超えるウラン濃度を示すものがあつた。これはわが国では許可されない無殺菌(フィルターも通過させない)方式によって原水そのままのウラン濃度をもつ製品となっているのも一因かも知れない。これらは、ウランの試料溶液(>2 μg/L)としても利用可能であろう。その一例として、ウラン同位対比の測定を試みた。

ミネラルウォーターの硬度とウラン濃度とのある程度の相関が考えられるが、一般論とは見ることはできない。

ウランとは対照的に、トリウムは水にはあまり溶解しないといわれているとおり、ほとんどの試料で検出限界以下であった。氷河を水源とするミネラルウォーターには **10ng/L** 程度のトリウムが含まれている例があった。

医学的な見地から理想のミネラルウォーターとは、マグネシウムとカルシウムに富み、ナトリウム含有量の少ないものだと述べられている¹⁶⁾。この基準に合うミネラルウォーターとして、若干数の製品が考えられる。

5. 参考文献と注

- 1) Y. Minagata, T. Kawanishi, and T. Kosako, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., **B179**, 279 (2001).
- 2) See, e.g., S. J. Parry, *Activation Spectrometry in Chemical Analysis* (Wiley, New York, 1991).
- 3) See, e.g., *Standard Methods for Examination of Water, 2001 edition* (Japan Water Works Assoc., Tokyo, 2001) (in Japanese).
- 4) This instrument and others were donated by Agilent Technologies.
- 5) T. Saito, S. Kojima, K. Yokota, and Y. Yamaguchi, KEK Proc. 2001-14 (KEK, 2001), p.171 (in Japanese).
- 6) Sampling was carried out by Dr. K. Yokota (Lake Biwa Institute, Shiga Prefecture) on the research boat Hakken-go.
- 7) Samples were collected by N. Mimura (School of Allied Health Sciences, Faculty of Medicine, Osaka University).
- 8) Samples were collected by D. Akamatsu (School of Human Sciences, Osaka University).
- 9) Samples were offered by Dr. A. Yokoyama (Department of Chemistry, Faculty of Science, Kanazawa University).
- 10) Y. Arata, *Mizu wo Shirou* (Iwanami, Tokyo, 2001), p.134 (in Japanese).
- 11) H. Kofuji and M. Yamamoto, *Radioisotopes*, **48**, 263 (1999) (in Japanese).
- 12) A. Musund, B. Frengstad, U. Siewers, and C. Reimann, *Sci. Total Environ.*, **243/244**, 21 (1999).
- 13) M. E. Ketterer and C. J. Khoury, in *Applications of Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry to Radionuclide Determinations*, vol. 2, ASTM STP 1344, ed. by R. W. Morrow and J. S. Crain (Am. Soc. for Testing and Materials., West Conshohocken, 1995) p.120.
- 14) M. E. Ketterer and C. J. Khoury, in *Applications of Inductively Coupled Plasma-Mass Spectrometry to Radionuclide Determinations*, vol. 2, ASTM STP 1344, ed. by R. W. Morrow and J. S. Crain (Am. Soc. for Testing and Materials., West Conshohocken, 1995) p.120.
- 15) E. Y. Graham, W. B. Lyons, and K. A. Welch, in *Plasma Source Mass Spectrometry — New Developments and Applications*, ed. by G. Holland and S. D. Tanner (Royal Soc. Chem., London, 1999) p. 132.
- 16) P. Garzon and M. J. Eisenberg, *Am. J. Med.*, **105**, 125 (1998).

(Abstract)

Uranium and Thorium Contents in Bottled Mineral Waters

Tadashi Saito, Yoshiaki Yamaguchi, and Sadao Kojima¹

Radioisotope Research Center (Toyonaka Building), Osaka University

¹ Nuclear Medical Center, School of Medicine, Aichi Medical University

Thirty-four types of mineral waters bottled in Japan and 42 types of foreign mineral waters were analyzed especially for U and Th by ICP-MS. Japanese bottled waters exhibited rather low U concentrations below its detection limit of 2 ng/L up to 1.3 μ g/L. They are all below the Japanese water standard for U concentration. Foreign bottles showed a wide range of U contents up to 16 μ g/L and smaller Th contents up to 30 ng/L. Apparently, some foreign mineral waters contained a large amount of U exceeding the Japanese water standard. In spite of this, such mineral waters may be used as a readily-available uranium (and thorium) sample solution. Other various aquatic samples such as rainwater, lake water, river water, and tap water were also analyzed for U and Th. In Japan, U concentrations are of the order of several to several tens of ng/L for various samples in general, which is in accordance with those of bottled mineral waters. Uranium concentrations may be used as a key for environmental monitoring, as exemplified by water of Ashida River, Hiroshima Prefecture.

DRAFT

Table 2. Uranium concentrations in mineral waters bottled in Japan.

Sample	U, ng/L	Sample	U, ng/L	Sample	U, ng/L
Fukui - Ec	3.2	Kagoshima - Za	140	Okinawa - Sh	1,300
Gifu - Hi	92	Kanagawa - Ve	<2	Saitama - Ch	88
Gifu - Ko	20	Kochi - Ma	<2	Tochigi - Ni	3.2
Gifu - Ok	49	Kochi - Um	22	Toyama - Bw	59
Hokkaido - Su	3.3	Kumamoto - Sr	2.8	Toyama - Ho	130
Hyogo - Ro	15	Kyoto - Fu	5.3	Toyama - Ki	8.6
Ibaraki - Vi	<2	Miyagi - Ma	<2	Toyama - Um	110
Iwate - Ry	210	Nagano - Az	3.6	Yamagata - Io	25
Kagoshima - Jo	<2	Nagano - Hy	570	Yamanashi - Fu	11
Kagoshima - Ki	18	Nagano - Ki	14	Yamanashi - Ko	<2
Kagoshima - Sa	13	Nara - Go	32	Yamanashi - Mi	<2
Kagoshima - Sb	6.5				

Note: Thorium contents in all domestic mineral waters were below the detection limit of 2ng/L.

Table 3. Uranium and thorium concentrations in mineral waters bottled in foreign countries.

Sample	U, ng/L	Th, ng/L	Sample	U, ng/L	Th, ng/L
Australia - CV	2,000		Italy - Da	24	
Austria - AM	2,000	14	Italy - Fe	6,600	
Belgium - Sp	3.2		Italy - Ma	6,100	
Belgium - Va	240		Italy - Pn	410	
Canada - Av	5.3		Italy - Ro	230	
Canada - BD	37		Italy - Sa	630	
Canada - IA	28	6.4	Italy - SP	16,000	2.5
Canada - Wh	13		Italy - So(g)*	910	5.1
China - Se	1,400		Italy - So(ng)*	320	
Czech - BA	170		Italy - Su(g)*	2,000	14
Czech - GW	22		Italy - Su(ng)*	2,000	
France - Co	990		Italy - Pr	130	
France - Ev	3,600		Italy - Ul	380	
France - Pe	2,400		Korea - SD	60	
France - Th	330	4.3	New Caledonia - MD	4.1	
France - Va	140		Norway - Fa	2,100	1.7
France - Vi	1,300		Norway - Ol	59	30
France - Vo	660		Turkey - PS	9,200	71
Germany - To	14		USA - CG	290	
Great Britain - TN	140		USA - HK	200	
Great Britain - HS	1,300		USA - Sa	11	

* g and ng mean gas-filled mineral water and non-gaseous water supplied by the same producer, respectively.