

JAERI-Research
2000-028



JP0050682



砂質土壌からのラドン散逸に
影響を及ぼす環境因子

2000年7月

小嵐 淳・天野 光・安藤 麻里子

日本原子力研究所
Japan Atomic Energy Research Institute

本レポートは、日本原子力研究所が不定期に公刊している研究報告書です。
入手の問合わせは、日本原子力研究所研究情報部研究情報課（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村）あて、お申し越し下さい。なお、このほかに財団法人原子力弘済会資料センター（〒319-1195 茨城県那珂郡東海村日本原子力研究所内）で複写による実費頒布を行っております。

This report is issued irregularly.

Inquiries about availability of the reports should be addressed to Research Information Division, Department of Intellectual Resources, Japan Atomic Energy Research Institute, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken 〒319-1195, Japan.

© Japan Atomic Energy Research Institute, 2000

編集兼発行 日本原子力研究所

砂質土壌からのラドン散逸に影響を及ぼす環境因子

日本原子力研究所東海研究所環境科学研究部

小嵐 淳*・天野 光・安藤 麻里子

(2000年5月17日受理)

H-3、C-14等の放射性ガスの地表循環挙動を解明するために、希ガスであるRn-222を用いて、土壌からのガスの湧出挙動を解析した。土壌からのラドン散逸への環境因子の影響を調査するために、日本原子力研究所・東海研究所の砂質土壌で、密閉チェンバー法によるラドン散逸率の連続測定を行った。ラドン散逸率と環境因子の相関解析の結果、土壌表層から20 cm程度までの深さの体積含水率が土壌からのラドン散逸率に支配的に影響を及ぼしていることが示され、高含水率でより大きなラドン散逸率の減少を導いた。土壌が乾燥している状態では、大気圧の変化量もラドン散逸との間に負の相関関係が認められ、短時間の気圧の変化は地表面近傍環境におけるガス輸送に影響を与えていることが分かった。また、大気—土壌間の温度差との関連性も見られ、温度勾配によるガス輸送の考慮が必要であることが示された。放射性希ガスであるラドンを対象とした本研究によって、他のガス状物質の表層土壌中輸送や地表面における湧出・沈着挙動に関する基礎的な情報が提供された。

東海研究所：〒319-1195 茨城県那珂郡東海村白方白根2-4

※ 特別研究生：名古屋大学

Environmental Factors Affecting Radon Exhalation from a Sandy Soil

Jun KOARASHI[※], Hikaru AMANO and Mariko ANDOH

Department of Environmental Sciences
Tokai Research Establishment
Japan Atomic Energy Research Institute
Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki-ken

(Received May 17, 2000)

The ^{222}Rn transport from soil into atmosphere was analyzed to elucidate the behavior of radioactive gas including H-3 and C-14 in surface environment. To investigate the effect of various environmental factors on ^{222}Rn exhalation from a sandy soil, measurements of ^{222}Rn exhalation rate were continuously carried out with a closed chamber method in Tokai site, JAERI. From the correlation analysis between the ^{222}Rn exhalation rate and environmental factors, it was indicated that volumetric water content from soil surface to about 20 cm depth affects dominantly the ^{222}Rn exhalation. The negative correlation relationship between the rate and atmospheric pressure change was also recognized only under drying conditions. The rate increased with increase of temperature difference between atmosphere and soil. Further consideration on transport mechanisms by temperature gradient may be necessary to discuss gas transport at soil-atmosphere interface. The basic information on gas transport in soil and on gas exhalation and deposition behavior at soil-atmosphere interface was provided by this research dealing with radioactive noble gas ^{222}Rn .

Keywords : Radon Exhalation, Environmental Factors, Correlation Analysis, Sandy Soil, Chamber, Field Experiment

※ Student Research Fellow : Nagoya University

目 次

1. はじめに	1
2. 実験方法	2
2.1 チェンバー法	2
2.2 実験場所と土壌特性	3
2.3 実験方法と測定項目	4
2.4 ラドン散逸率の算出方法	5
3. 結果と考察	7
3.1 実験結果	7
3.2 ラドン散逸率と環境因子の相関解析	12
3.3 重回帰分析によるラドン散逸率の予測	19
4. まとめ	22
謝辞	22
参考文献	23

Contents

1. Introduction	1
2. Experimental Methods	2
2.1 Chamber Method	2
2.2 Experimental Site and Soil Characteristics	3
2.3 Experimental Procedure	4
2.4 Calculation of Radon Exhalation Rate	5
3. Results and Discussion	7
3.1 Experimental Results	7
3.2 Correlation between Exhalation Rate and Environmental Factors ...	12
3.3 Prediction of Exhalation Rate by Multiple Regression Analysis	19
4. Conclusions	22
Acknowledgements	22
References	23

This is a blank page.

1. はじめに

最近の国連科学委員会の自然放射線源からの被ばく線量評価によると、自然放射線からの世界的な平均年実効線量は 2.4 mSv であり、そのうちラドン (^{222}Rn) 及びその娘核種からの寄与が約半分の 1.3 mSv を担っている⁽¹⁾。この値は、自然放射線源以外の人工起源放射線の公衆に対する年間線量限度 1 mSv に比べても大変大きな値である。

ラドンは土壌や岩石を構成する固体粒子に含まれるラジウム (^{226}Ra) の α 崩壊によって生成する半減期 3.8 日の放射性希ガスである。地表面からのラドン散逸は、固体粒子から土壌間隙中の気相又は液相への放出及び、その後の土壌間隙を媒体とした大気への輸送によって引き起こされる。ラドンの主な発生源は土壌であるから、地表面からのラドン散逸は大気中及び屋内ラドン濃度に影響を及ぼす重要な輸送過程となる。そのため、様々な環境因子の地表面ラドン散逸率の変動への影響を解析することは、自然放射線による被ばく線量評価のみならず、地表面におけるガスの湧出、沈着挙動や地表面近傍土壌中におけるガスの移行挙動をモデル化する際に、どのような環境因子による輸送現象を考慮することが必要であるかというガス挙動に対する基礎的な情報を提供することができる。放射性希ガスであるラドンを対象とした研究によって、地表環境における物理的な輸送過程を明らかにすることができ、原子力施設起因の生物活動の影響を受ける H-3、C-14 ガスの地表面挙動に対して極めて重要な知見を与える。

環境因子のラドン散逸への影響に関して、いくつかの研究が行われてきた⁽²⁻⁶⁾。特に大気圧、土壌温度、含水率との関係が報告されてきたが⁽⁷⁻¹¹⁾、十分なデータは得られておらず⁽¹²⁾、その影響も明確になっていないのが現状である。本研究では、日本原子力研究所・東海研究所構内の砂質土壌で地表面からのラドン散逸率及び大気中温度、湿度、気圧などの気象学的因子、土壌温度、土壌の含水率などの土壌環境因子の測定を行った。土壌からのラドン散逸率とそれらの環境因子の関連性について相関解析を行い、ラドン散逸に支配的に影響を及ぼす環境因子を明確にすることが目的である。

2. 実験方法

2.1 チェンバー法

地表面からのラドン散逸率を測定するために、多くの手法が開発されてきた。米国 National Bureau of Standards⁽¹²⁾によると、ラドン散逸率を測定する方法を、(1)蓄積法、(2)静電誘導法、(3)通気法、(4)吸着法、(5)垂直勾配法、(6)土壌中濃度勾配法の 6 部門に大きく分類している。蓄積法は、対象とする土壌表面に 1 つの面が開いた容器 (チェンバー) を被せて外気を遮断し、チェンバー内の空気中ラドン濃度の時間変化を直接測定して、散逸率を求める方法である。静電誘導法は、蓄積法に静電捕集技術を適用した方法である。通気法は、対象土壌を自然な状態に近づけるために、チェンバーの両端に空気の入出口を設け、低流量で空気を流す方法である。また、吸着法は、測定する表面を粒状の活性炭で覆い、湧出するラドンを活性炭で吸着して捕集する方法である。垂直勾配法、土壌中濃度勾配法は、大気中、土壌中のどちらかのラドン濃度の垂直勾配の測定から間接的にラドンフラックスを求める方法である。

それぞれの方法には一長一短があるが、本研究では比較的軽量で野外実験に適した方法として頻繁に用いられる蓄積法を適用した。蓄積法のようなチェンバーを用いた方法では、(1)チェンバーを埋め込むことで土壌が擾乱されて土壌中のラドンの拡散に影響を与える、(2)チェンバーの設置によって土壌-大気間の境界条件が変わってしまう、(3)チェンバーの形状に依存する偏向が生じる可能性がある、などの問題点もある。

本研究で使用したチェンバーは、底面積が 150 cm×20 cm、高さが 50 cm の寸法であり、材質はアクリル製である。チェンバーをアクリル製としたのは、実験期間中のチェンバー内部の様子を視覚的に捉えるためである。チェンバーの一方の短軸面には、下から 20cm と 43cm のところにストップコック、フィルターホルダーを兼ね備えたサンプリング口が 2 つ取り付けられている。フィルターホルダーには、42 mmφ の孔径 1 μm のメンブランフィルターを取り付けてある。チェンバーのもう片方の短軸面は、4 つの高さでそれぞれ開放できるように 4 枚の板に分割しており、上から順に取り外しが可能になっている。チェンバー内の気密性を高めるために、4 分割している面は 4 枚の板を交互にかませであり、接する部分にはパッキンを取り付けてある。本研究におけるラドン散逸率測定には、蓄積法を適用するために、ストップコックを閉じ、もう片方の側面もすべての板を取り付けてあり、チェンバーは底面を除いて密閉した容器になっている。チェンバーが全体的に細長い形状であるために、補強として底面の外周に沿って厚さ 1 cm、巾 5 cm のアクリル板を巻き付けてある。さらに、土壌に埋設することも考慮してチェンバーの底部は鋭角に尖らせてある。

チェンバーは土台部分と蓋から構成されている。蓋とチェンバー土台部分は、シリコンパッキンで密閉でき、さらに 8 つのパッチ錠で固定できる。こうすることで、チェンバ

一土台部分は土壤に埋設したままの状態を維持でき、実験を効率よく繰り返して行うことが可能になる。同時に、チェンバー設置作業による土壤の擾乱をなくすることができる。

2.2 実験場所と土壤特性

Figure 1 に実験を行った土壤周辺の写真を示す。ラドン散逸率の測定は日本原子力研究所・東海研究所の構内の土壤で行われた。周辺の環境は、松の木を主体とした木々が生えている。土壤を特徴づける要因として、(1)土壤粒子サイズ分布、(2)土壤の間隙率、(3)ラジウム含有量、(4)土壤有機物量、(5)土壤 pH を測定した。



Figure 1. Surrounding environment set the chamber in Tokai Research Establishment, Japan Atomic Energy Research Institute.

土壤粒子サイズ分布は、地表面から深さ 20 cm までほぼ均一で、シルト (<0.075 mm) が 2%程度、砂 (0.075~2.0 mm) が 98%程度、砂礫 (>2.0 mm) が 0.2%程度であった⁽¹³⁾。

土壤の間隙率は土壤の相対的な間隙容積を表わす指標である。土壤の間隙率は 0.53 ± 0.04 であった。一般的に砂質土壤の間隙率は 0.5 程度であるので^(14,15)、この値は妥当な値

である。

土壌深さ 20 cm と 35 cm の土壌を採取して、土壌中に含まれるラジウムの含有量を Ge 検出器による相対測定によって決定した。濃度決定には、土壌を約 60 g 使用し、濃度既知の標準試料 (NBL : NEW BRUNSWICK LABORATORY) を用いた。その結果、土壌深さ 20 cm では $15.47 \pm 0.25 \text{ Bq.kg}^{-1}$ 、35 cm では $14.62 \pm 0.24 \text{ Bq.kg}^{-1}$ であった。岩石中のラジウムの平均濃度は岩石種によって異なるけれども、 $15.54 \sim 48.1 \text{ Bq.kg}^{-1}$ の範囲で報告されており、そのうち砂岩中は 26.27 Bq.kg^{-1} とされている⁽¹⁶⁾。また、日本の土壌中のラジウム濃度の平均値は 29.6 Bq.kg^{-1} と報告されている⁽¹⁹⁾。この値と比較して、今回実験する土壌のラジウム平均濃度は低いといえる。深さの異なる 2 点での濃度がほぼ等しいことから、土壌中のラジウムの含有量はほぼ一様であると考えられる。

土壌有機物量は、土壌を採取し、 105°C で 24 時間乾燥した後、2 mm メッシュのふるいにかけた土壌を 450°C で燃焼し有機物を灰化し、燃焼前後の重量変化より決定した。土壌有機物量は土壌深さ 0~5 cm では 2.5 %、15~20 cm では 1.0 % であった。

土壌 pH は、 105°C で乾燥、2 mm メッシュのふるいにかけた土壌 20 g を 40 mL の KCl 溶液 (1M) 又は 40 mL の脱イオン水と混合しよく攪拌した後、土壌溶液の pH を測定した。土壌 pH は深さ 0~5 cm で 5.1(KCl)、5.7(H_2O)、15~20 cm で 6.3(KCl)、7.1(H_2O) であった。

2.3 実験方法と測定項目

Figure 2 にラドン散逸率と環境因子測定のための実験装置配置図を示す。上述のチェンバー土台部分を深さ 25 cm まで掘り下げた土壌に設置した。実験における測定項目は、チェンバー内ラドン濃度、チェンバー内温度、チェンバー内湿度、チェンバー内気圧、チェンバーの下深さ 5 cm、20 cm における土壌の体積含水率、チェンバーから少し離れた場所での地表から深さ 20 cm、40 cm、60 cm における体積含水率、土壌中深さ 25 cm、50 cm の温度、地表面から約 2 m の高さにおける大気温度、大気湿度である。

チェンバー内のラドン濃度の測定には、パルス電離箱方式のラドンモニター (Alpha GUARD PQ2000, Genitron Instruments, Germany) を用いた。チェンバー内に設置したラドンモニターでは、ラドン娘核種を含む空気中エアロゾルを取り除くためにフィルターを通された空気中のラドン濃度が 1 時間ごとに連続的に測定される。また、ラドンモニターには温度、湿度、気圧も測定する機能が備わっており、チェンバー内の温度、湿度、気圧も同時に測定している。土壌中の体積含水率の測定は、TDR (Time-Domain-Reflectometry : 時間領域誘電反射) 方式の水分計測システム (TRIME-SYSTEM, IMKO) を用いて 1 時間ごとに行った。土壌中温度は熱電対を用いて同様に 1 時間ごとに測定した。また、大気中温度、湿度は温湿度計によって連続的に測定した。

最初のチェンバー土台部分の設置による土壌擾乱の影響をなくすために、チェンバー土台部分を設置後 1 ヶ月以上放置してから実験を行った。

Atmosphere

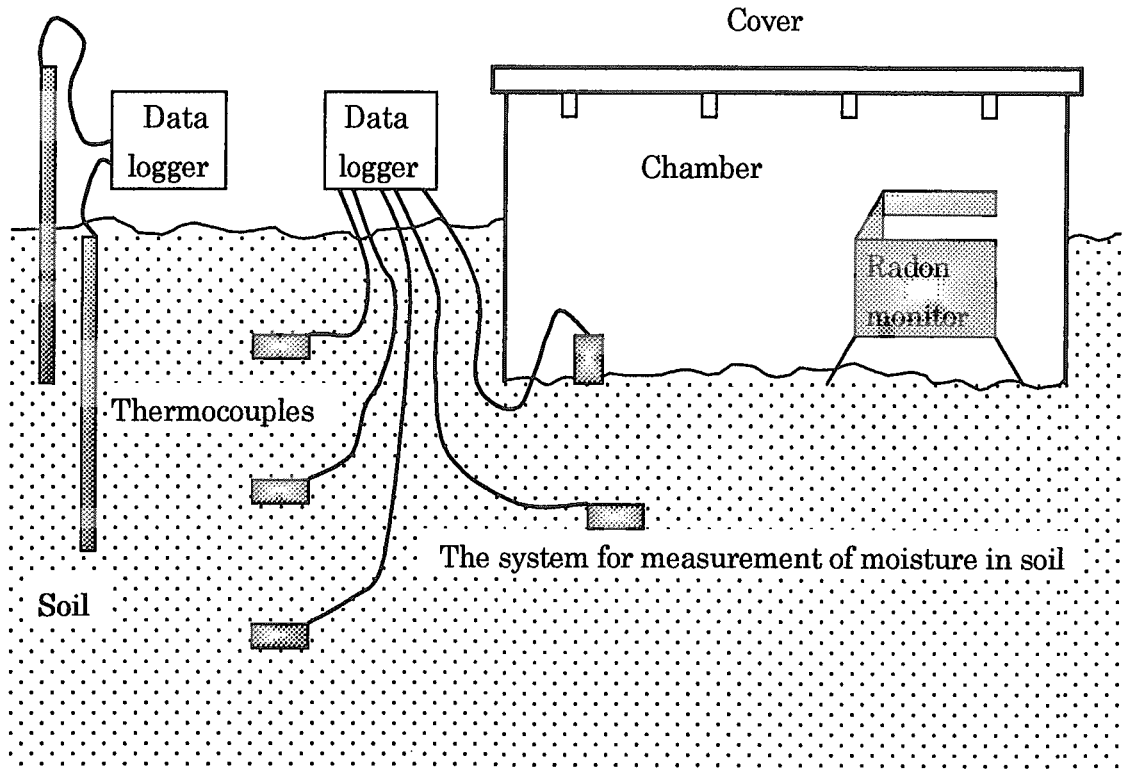


Figure 2. The experimental setup for measuring ^{222}Rn exhalation rate and various environmental factors.

2.4 ラドン散逸率の算出方法

チェンバーの設置による土壌—大気間の境界条件の変化という欠点を克服するために、チェンバーの蓋を閉じ、ラドンの蓄積が始まってから比較的短い時間である 4 時間のチェンバー内ラドン濃度増加から、ラドン散逸率を決定した。チェンバー内のラドン濃度の蓄積からラドン散逸率を算出するために、次の計算方法を用いた。Figure 3 に、チェンバー内のラドンの蓄積からラドンの散逸率を求める例を示す。

$$F = \frac{C - C_0}{\Delta t} H \quad (1)$$

ここで、 F [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$]は土壌からのラドン散逸率、 Δt [s]はチェンバー内にラドンモニターを設置し、チェンバーの蓋を閉じてからの経過時間、 C [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]は時間 Δt 経過後のチェンバー内ラドン濃度、 C_0 [$\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$]は初期のチェンバー内ラドン濃度、 H [m]はチェンバーの高さである。本研究では、チェンバー内のラドン濃度の蓄積する割合が約 4 時間あ

たりで減少し始めるために Δt を 4 時間とした。

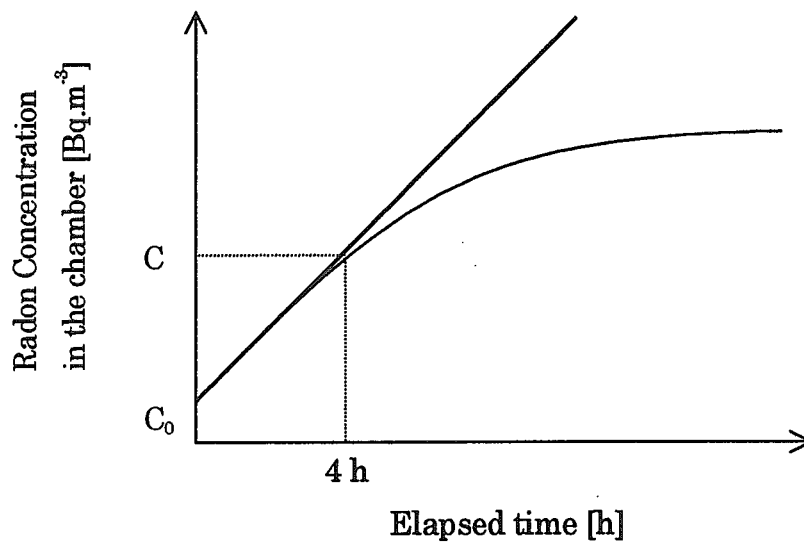


Figure 3. Relation between accumulation of ²²²Rn in the chamber and elapsed time.

3. 結果と考察

3.1 実験結果

ラドン散逸率及び環境因子の変動に関する一連の実験は 2 つの期間に行われた。実験期間①としては、1998 年 6 月 26 日から 7 月 12 日の期間でラドン散逸率の測定回数は合計 26 回である。実験期間②としては、1998 年 8 月 5 日から 15 日の期間で測定回数は 14 回である。Table 1、2 に、それぞれの期間に行われた実験日時と測定開始時間、天候、観測されたラドン散逸率の値を示す。

実験期間①に関しては、主に 6 月 29 日と 7 月 9 日に降雨があり、降雨後は明らかにラドン散逸率が減少した。Table 1 に示されるデータのうち No.6 のデータは、降雨がはじまった後しばらくしてからチェンバーの蓋を被せた。この場合、最初は着目する地表面が降雨によって少し湿るが、チェンバーの蓋を被せた後は着目する地表面はチェンバーによって降雨の影響を受けない。しかし、雨が降り続けているので、チェンバーを設置した地表面以外は降雨によって湿り続ける。他の降雨後の測定はラドン散逸率が減少しているのに対し、No.6 の結果では、ラドン散逸率が増加している。これは、おそらくチェンバーが降雨から地表面を保護したためである。チェンバーを被せた地表面は周辺土壌に比べて乾燥しているために、湿った周辺土壌表面から散逸しにくくなったラドンがチェンバーを被せた地表面から散逸してきた影響であると考えられる。同様に No.14 のデータに関しても、実験中に降雨があり、何らかの影響を与えている可能性があるため、今後の議論、解析において No.6 と No.14 のデータは除外することにする。

実験期間②に関しては、8 月 5 日の実験開始前、8 月 6 日、8 月 13 日に降雨があった。この期間のすべての実験について測定中の降雨がなく、すべてのデータに対して検討することができる。また、実験期間②における土壌の体積含水率はチェンバーの下深さ 20 cm で 0.15～0.22 程度であるのに対し、実験期間①では 0.06～0.2 程度であった。このように実験期間②は実験期間①に比べて、期間全体を通して土壌が湿った状態であった。

Figure 4、5 にそれぞれの実験期間に観測されたラドン散逸率、大気圧、大気圧の変化量、土壌の体積含水率、大気温度、土壌温度、大気湿度の変動を示す。Figure 4 において、6 月 29 日の降雨前の含水率変化が少ない状況で、大気圧の低下に伴うラドン散逸率の増加が見られる。これは、長期的な気圧変動のラドン散逸率への影響を表わしている。低気圧の通過に伴うラドン散逸率の上昇についてはいくつかの報告がある⁽⁸⁻¹⁰⁾。今回の実験結果において、ラドン散逸率と気圧の変化量（チェンバーの蓋を閉じて、4 時間のラドン濃度測定期間における 1 時間あたりの気圧変化）との関係がより顕著に現れ、気圧の短期的な上昇（低下）に伴いラドン散逸率は減少（増加）している。また、2 度の降雨後にそれぞれラドン散逸率が減少しているが、その後すぐに回復し、気圧の変化量と負の関係で変動している。

Figure 5 に示される実験期間②では、実験期間①のようなラドン散逸率と短期的な気圧変化量の間には明確な関連性は見られない。降雨後の土壌含水率の増加に伴うラドン散逸率の減少は実験期間①と同様に認められるが、その後土壌の乾燥に伴うラドン散逸率の回復は緩やかである。これは、実験期間①に比べて②の土壌が含水率の比較的高い値を維持していたことに起因すると考えられる。以上より、土壌が湿っている場合は降雨によるラドン散逸率低下後の回復が遅く、さらに気圧の変化量のラドン散逸率への影響が少ないと考えられる。

Table 1. The ^{222}Rn exhalation rate and weather condition for experimental period ①.

No	Date & measurement start time	Weather condition	^{222}Rn exhalation rate [mBq.m ⁻² .s ⁻¹]
1	26-Jun-1998 11:00	曇り後晴れ	13.15
2	26-Jun-1998 18:00	曇り時々晴れ	8.58
3	27-Jun-1998 18:00	曇り	9.97
4	28-Jun-1998 12:00	曇り時々晴れ	10.63
5	28-Jun-1998 20:00	微雨から曇り	11.08
6	29-Jun-1998 17:30	雨の途中	11.74
7	30-Jun-1998 11:00	降雨後の晴れ	8.82
8	30-Jun-1998 19:00	晴れ	8.37
9	1-Jul-1998 12:00	晴れ	8.82
10	1-Jul-1998 20:00	晴れ	10.69
11	2-Jul-1998 10:00	晴れ	10.45
12	2-Jul-1998 18:00	晴れ	7.64
13	3-Jul-1998 11:00	晴れ	11.60
14	3-Jul-1998 19:00	晴れ実験中にわか雨	8.85
15	4-Jul-1998 18:00	晴れ	9.27
16	5-Jul-1998 9:00	曇り時々晴れ	10.03
17	5-Jul-1998 17:00	晴れ	8.89
18	6-Jul-1998 11:00	晴れ	9.97
19	7-Jul-1998 7:00	曇り	8.68
20	7-Jul-1998 16:00	曇り	8.96
21	8-Jul-1998 11:00	晴れ	9.90
22	9-Jul-1998 10:00	晴れ後曇り	9.38
23	10-Jul-1998 7:30	降雨の後の曇り	8.96
24	10-Jul-1998 16:00	曇り	8.40
25	12-Jul-1998 7:00	曇り	7.81
26	12-Jul-1998 16:30	曇り	8.13

Table 2. The ^{222}Rn exhalation rate and weather condition for experimental period ②.

No	Date & measurement start time	Weather condition	^{222}Rn exhalation rate [mBq.m ⁻² .s ⁻¹]
1	5-Aug-1998 9:30	降雨の後の曇り	8.23
2	5-Aug-1998 17:30	曇り	6.04
3	6-Aug-1998 11:00	曇り	7.43
4	7-Aug-1998 10:30	降雨の後の晴れ	9.58
5	8-Aug-1998 13:00	降雨の後の曇り	6.91
6	9-Aug-1998 9:00	曇り	6.28
7	9-Aug-1998 16:30	曇り	8.02
8	10-Aug-1998 11:00	曇り時々晴れ	7.12
9	11-Aug-1998 9:00	晴れ	8.26
10	11-Aug-1998 17:00	曇り	8.72
11	12-Aug-1998 17:00	曇り	9.90
12	14-Aug-1998 9:30	降雨の後の晴れ	2.53
13	14-Aug-1998 18:00	曇り	5.49
14	15-Aug-1998 9:30	曇り	7.01

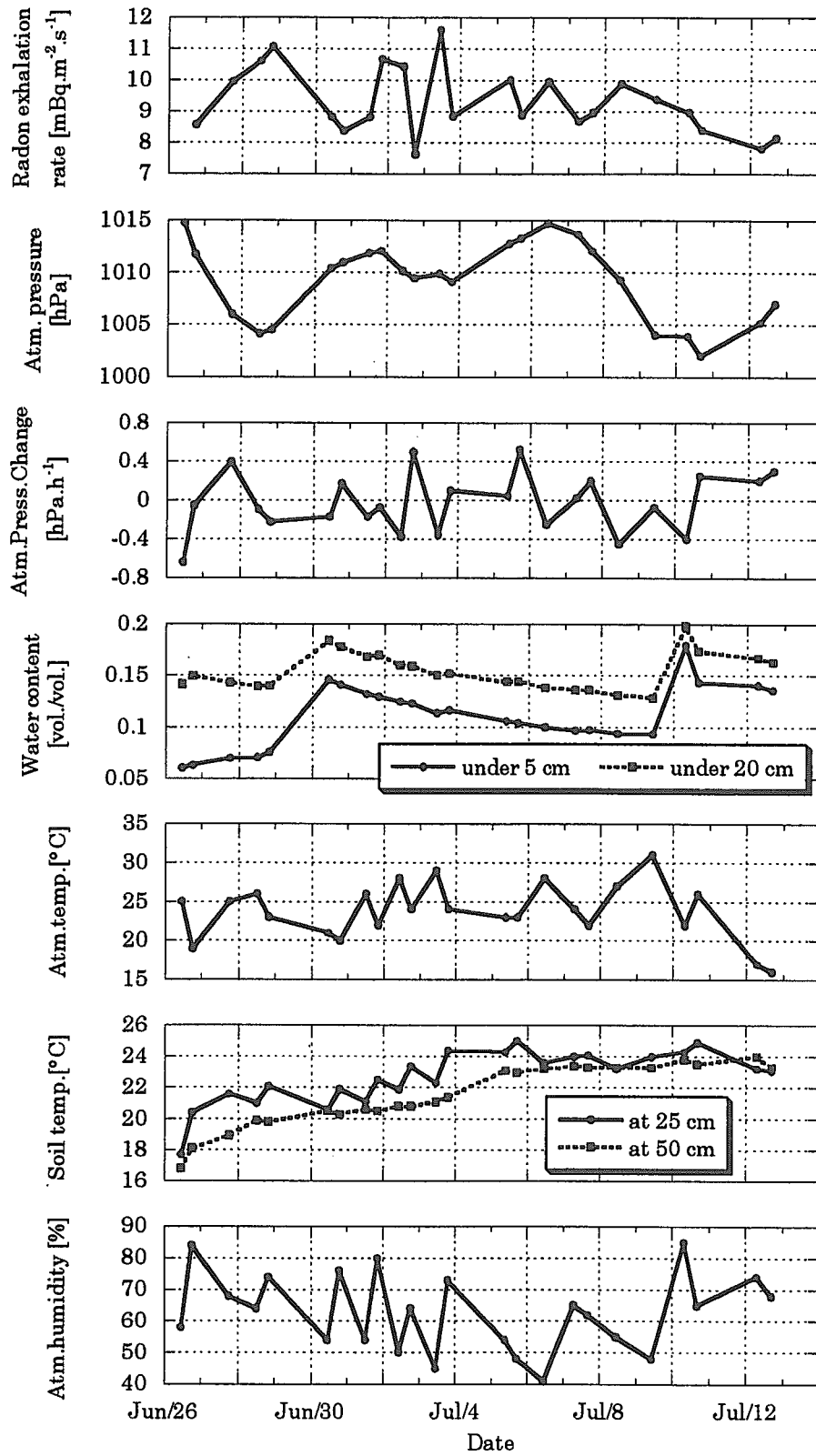


Figure 4. The variations in ²²²Rn exhalation rate and environmental factors for experimental period ①.

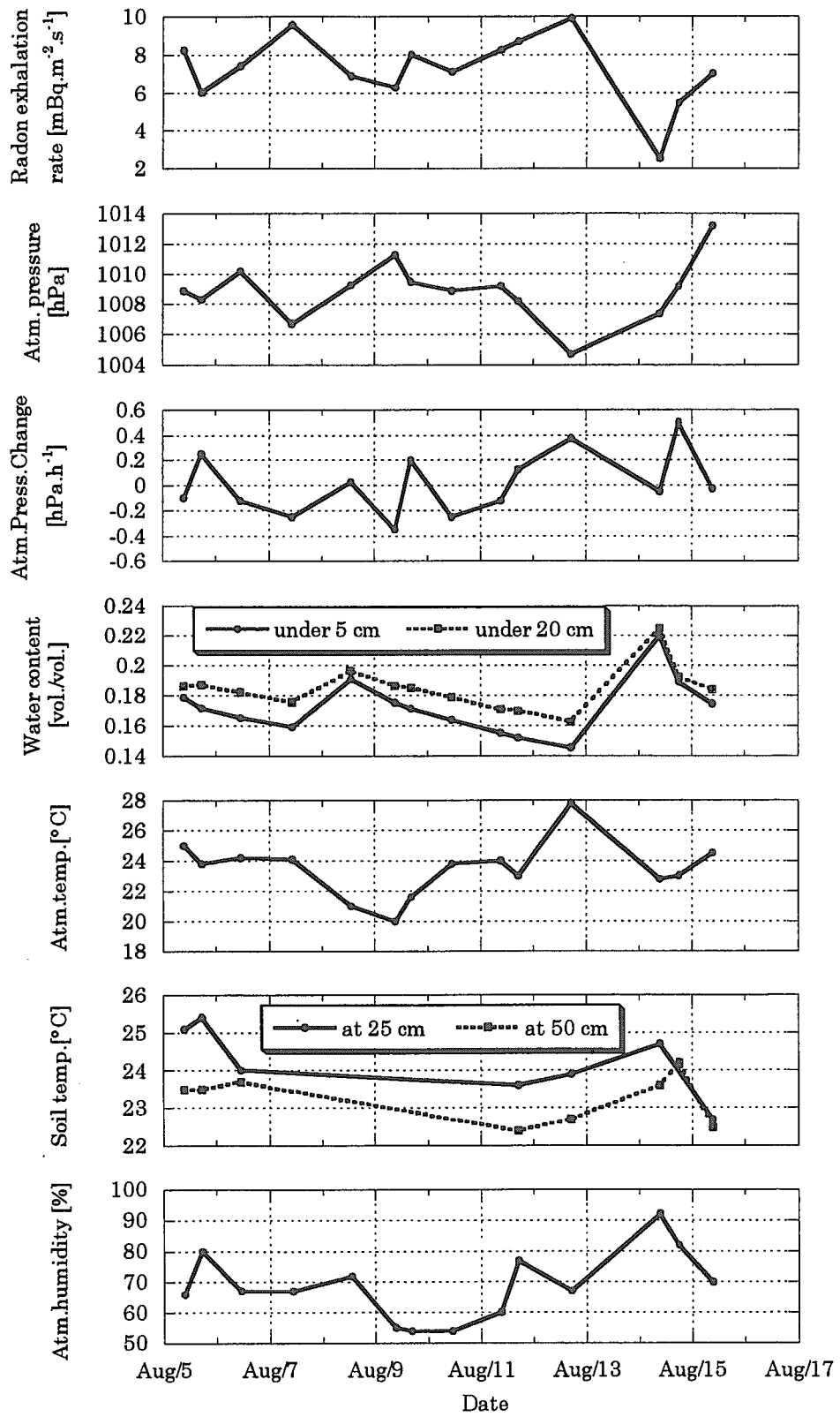


Figure 5. The variations in ²²²Rn exhalation rate and environmental factors for experimental period ②.

3.2 ラドン散逸率と環境因子の相関解析

それぞれの実験期間に対する様々な環境因子とラドン散逸率の相関図を Figure 6、7 に示す。

Figure 6 (a)-(c)に示す比較的土壌が乾燥している実験期間①の結果でもっとも注目したのは、ラドン散逸率と気圧の変化量との関係である。ラドン散逸率は大気圧の絶対値との相関はないものの、気圧変化量との間に明確な負の相関関係が見出せる。これには次の現象が考えられる。大気圧が上昇した場合は、大気から土壌への空気の流れが生じると同時に、土壌中に比べてラドン濃度の低い空気が土壌中に流れ込み、土壌表面におけるラドン濃度は低下する。その結果、気圧の上昇によってラドンの散逸率が減少する。一方、大気圧が低下した場合は、土壌中のラドンの豊富な空気が地表面付近に引き上げられて、チェンバー内に流入する。ラドン散逸率と気圧変化量の相関関係より、大気圧が $0.1 \text{ hPa}\cdot\text{h}^{-1}$ 上昇（低下）すると土壌からのラドン散逸率が約 $0.29 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ だけ減少（増加）していることがわかる。

ラドン散逸率と土壌の体積含水率との間には全体的に負の相関関係が見られた。これは、土壌の含水率が高くなれば土壌間隙中の空隙が減少し、ラドンの拡散係数が小さくなることに起因する。一方、チェンバーの下 5 cm においては体積含水率が約 0.11、チェンバーの下 20 cm では、約 0.15、さらに、チェンバーのそばの土壌中深さ 20 cm、40 cm、60 cm ではそれぞれ含水率が約 0.1、0.14、0.09 のあたりにラドン散逸率の最大値があるように見える。土粒子から土壌間隙中へのラドンのエマネーションは、土壌間隙中水分による土粒子からのラドン反跳エネルギーの吸収によって、間隙にある程度水分が含まれている状態で最大になるという報告があり^(17,18)、今回得られた結果は、おそらくこの現象に起因するものと考えられる。

大気の温度が高いほどラドン散逸率が大きくなる傾向が見られた。日中は大気の混合が活発になり、地表面近傍大気中のラドン濃度が低下し、地表面からのラドン散逸が盛んになることが考えられる。

土壌中の温度が高いほどラドン散逸率は低くなる傾向が見られた。大気と土壌の温度差、土壌 25 cm と 50 cm の温度差については、ともに上部の温度が高いほどラドン散逸率が大きくなる傾向があった。今回の測定では、土壌温度は日射の影響が受け難い 25 cm、50 cm という深さで測定された。そのため、温度差は直接大気温度の変化を反映しているものと考えられる。

大気中の湿度とラドン散逸率の間に相関関係は見られなかった。測定開始時刻とラドン散逸率の間には、昼に高く、朝夕に低い傾向もわずかに見られる。これは大気温度とラドン散逸率の正の相関関係と同様の結果を表わしている。

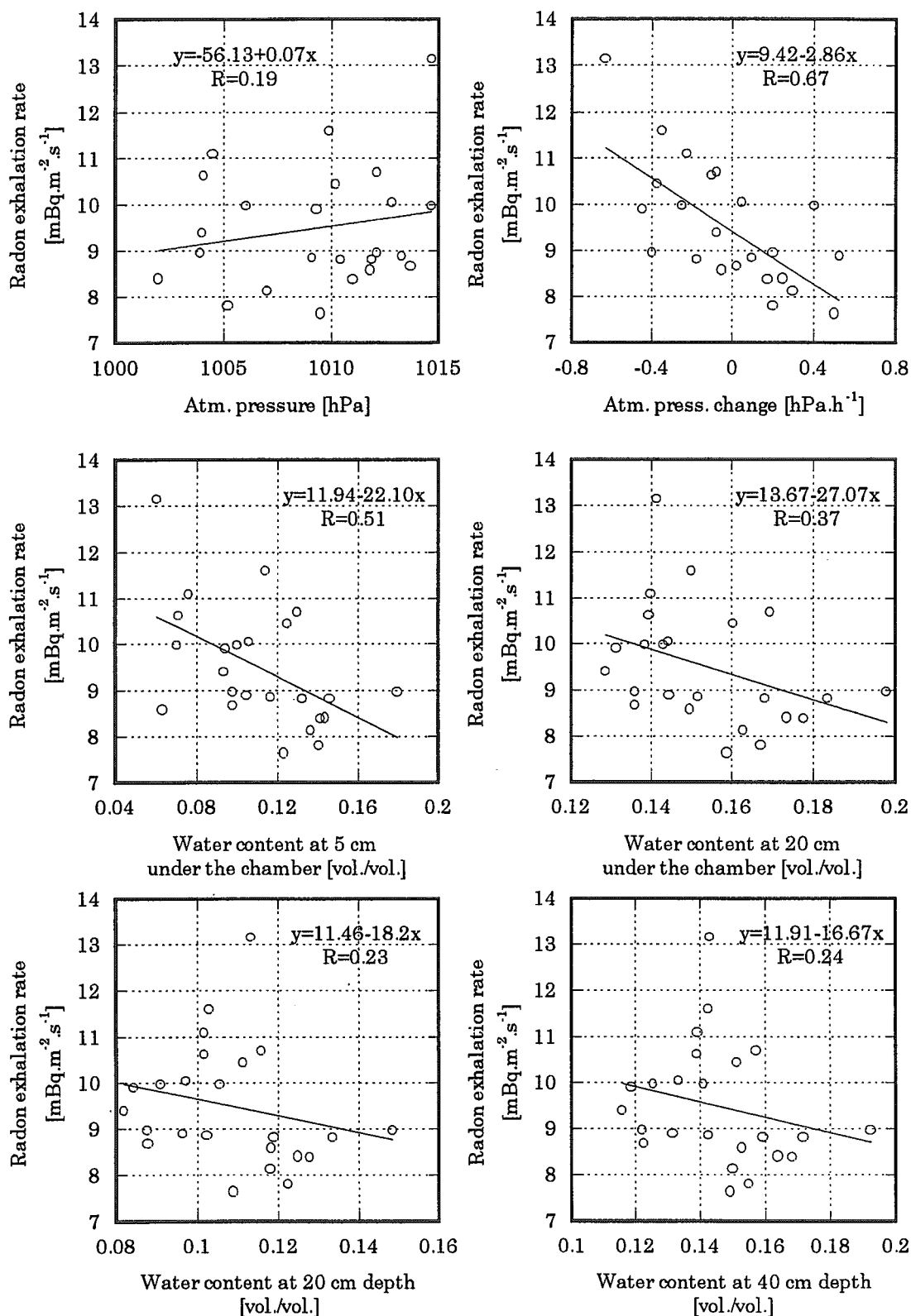


Figure 6 (a). The correlation of ^{222}Rn exhalation rate with various environmental factors for the experimental period①.

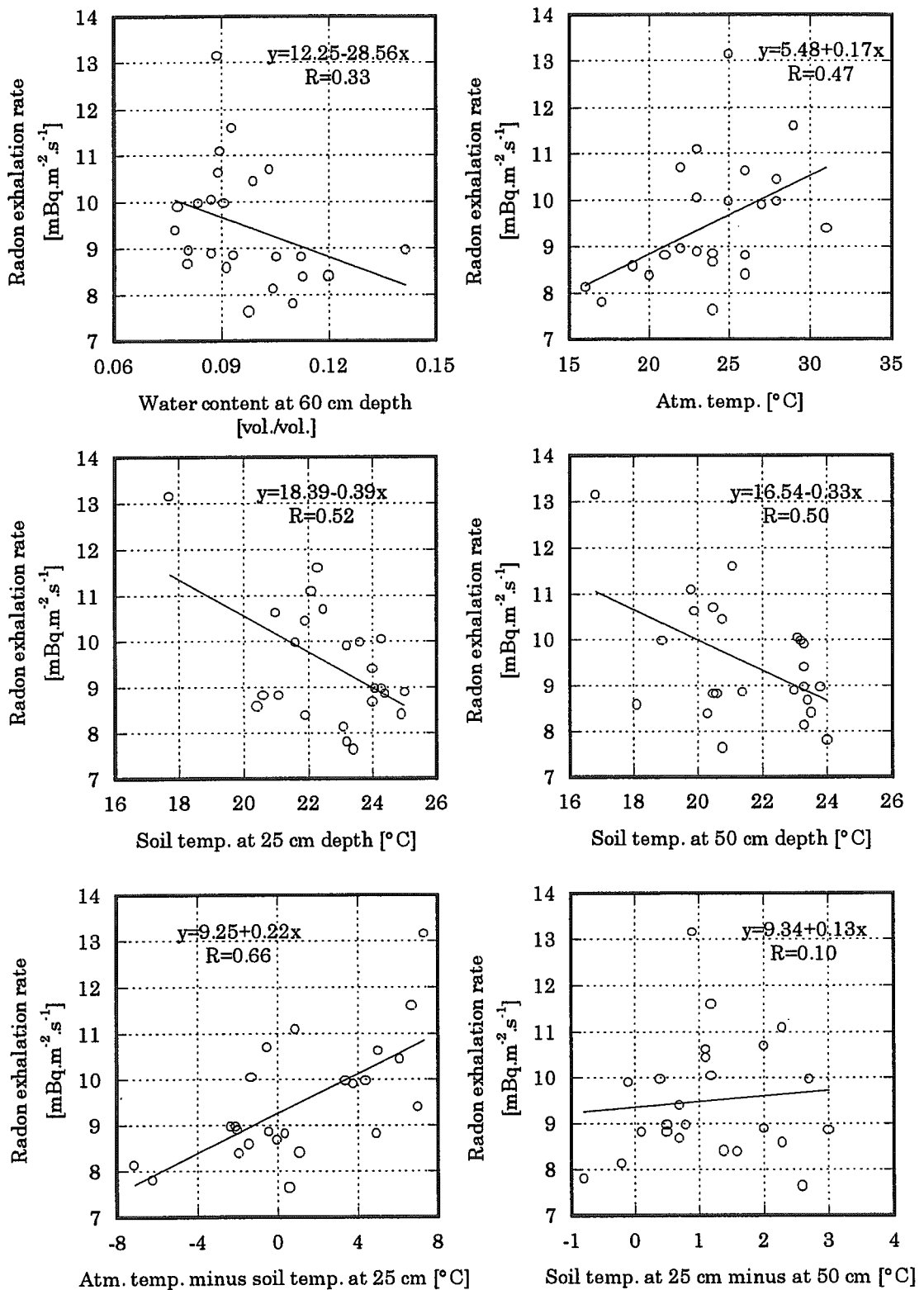


Figure 6 (b). The correlation of ²²²Rn exhalation rate with various environmental factors for the experimental period①.

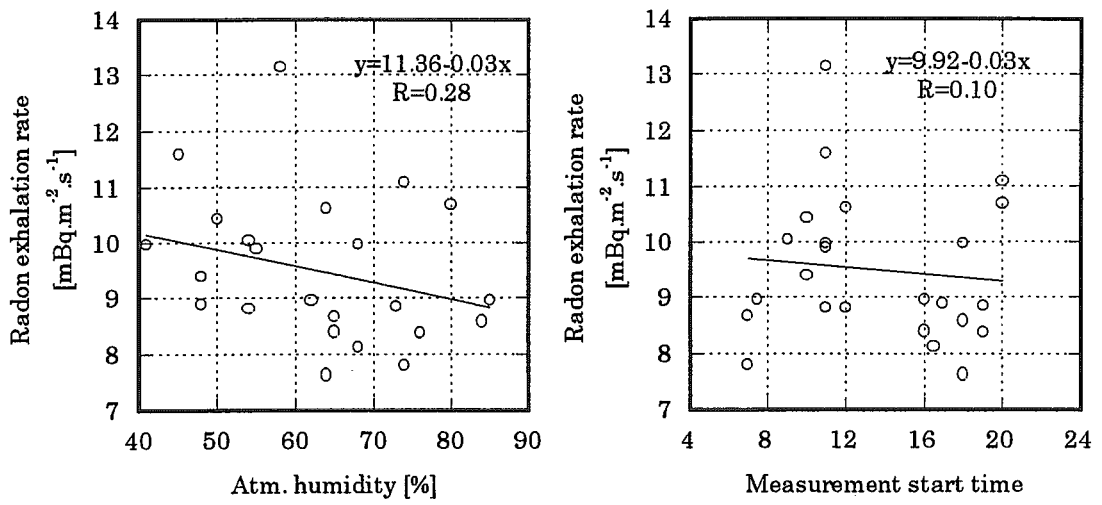


Figure 6 (c). The correlation of ²²²Rn exhalation rate with various environmental factors for the experimental period①.

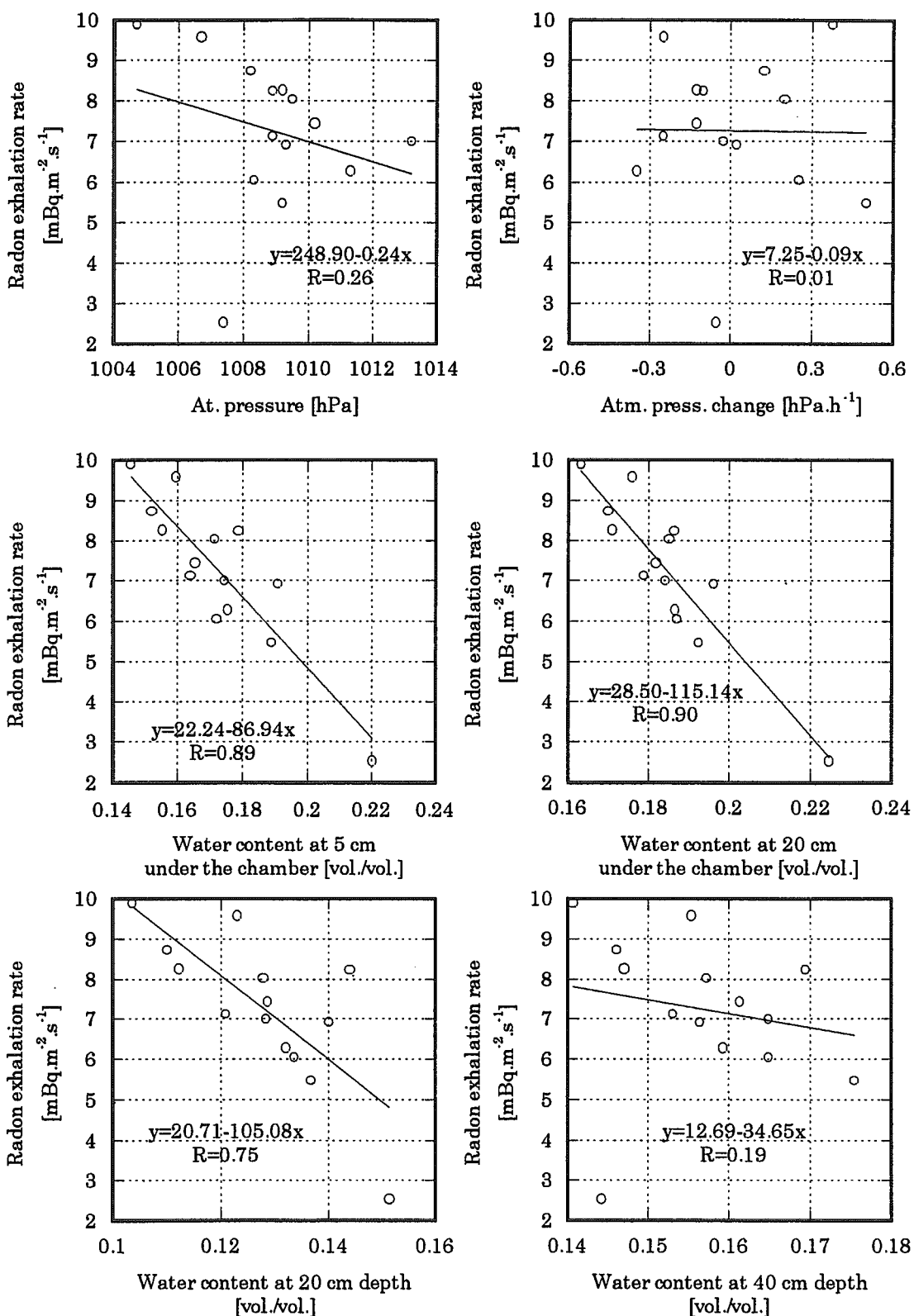


Figure 7 (a). The correlation of ²²²Rn exhalation rate with various environmental factors for the experimental period②.

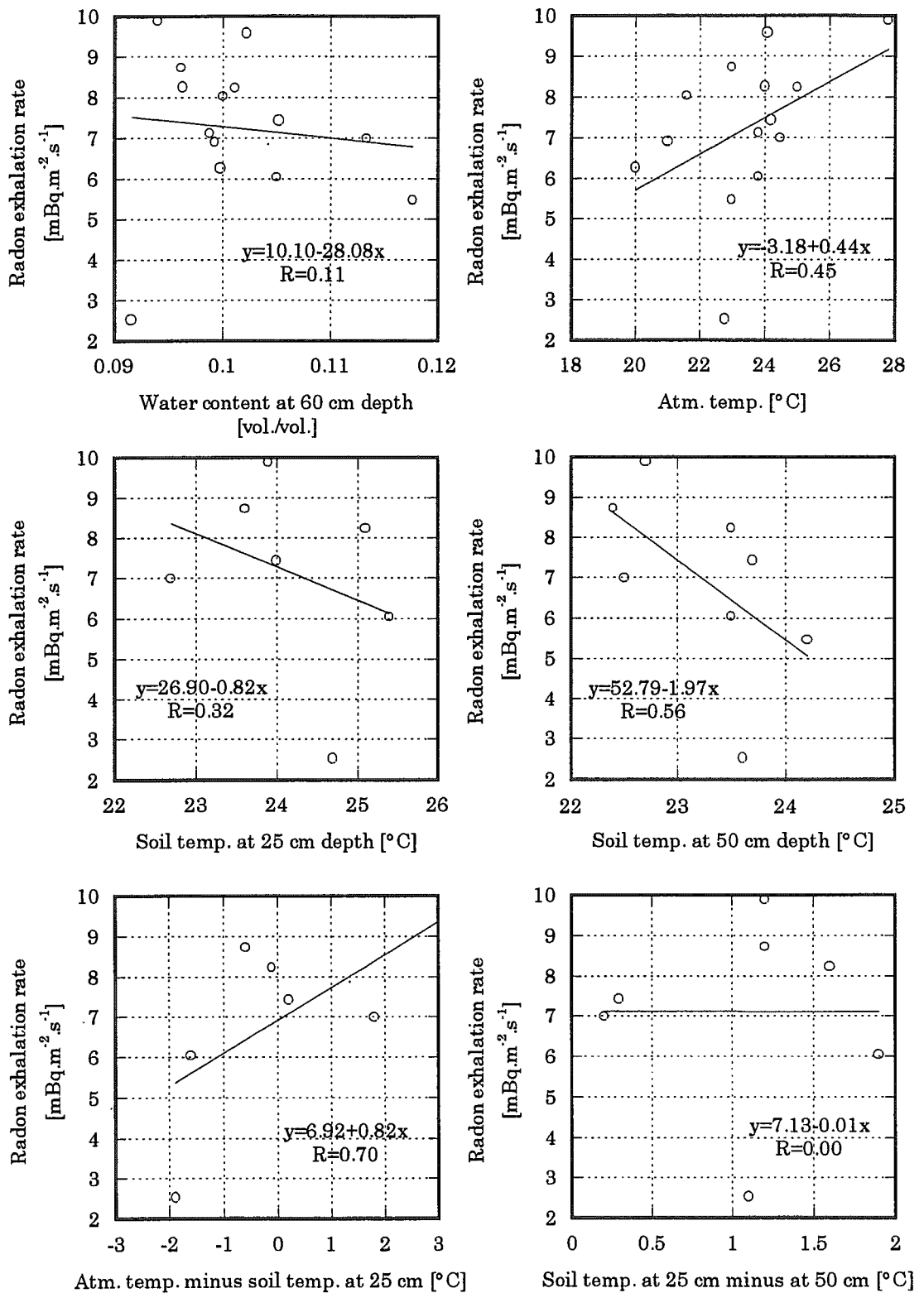


Figure 7 (b). The correlation of ^{222}Rn exhalation rate with various environmental factors for the experimental period②.

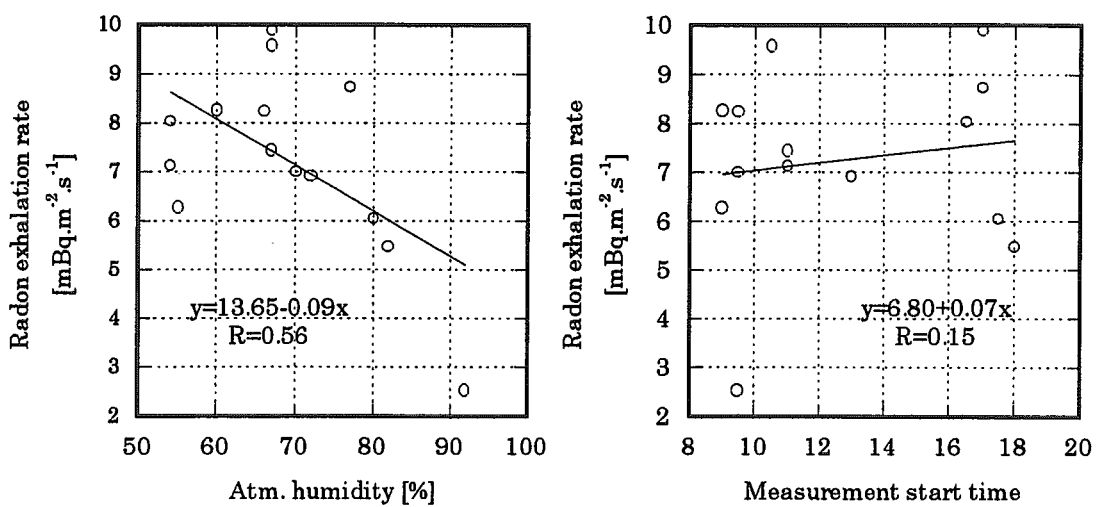


Figure 7 (c). The correlation of ²²²Rn exhalation rate with various environmental factors for the experimental period②.

Figure 7 (a)-(c)に土壤が比較的湿っている実験期間②の相関解析の結果を示す。比較的土壤が乾燥している実験期間①においては、ラドン散逸率と気圧変化量の間には明確な負の相関関係が認められた。これに対して、土壤が湿っている実験期間②においてはその関係が見られなかった。これはおそらく、地表面の水分による閉鎖のために大気への輸送が制限されたから、また、土壤間隙中の空隙が水分で塞がっているために乾燥時に比べて土壤表層の土壤中空気が気圧変化による移流の影響をあまり受けなかったからである。

一方、実験期間①に比べて、チェンバー下の土壤体積含水率のラドン散逸率への影響が顕著に現れている。ラドン散逸率と含水率の間に明確な負の相関関係が見られる。実際に散逸が起こる地表面の下の含水率を表わすチェンバーの下の含水率は、5 cm、20 cmともに極めて強い負の相関関係が認められた。また、土壤深さ20 cm、40 cm、60 cmとラドン散逸率の間にも負の相関関係が見られた。これは、土壤が湿った状態で水分による土壤間隙のさらなる閉鎖が生じた場合、土壤中のラドンの拡散を大きく妨げることを示している。深さ20 cmに比べて、40 cm、60 cmと深くなるに従って、その関係が弱くなっていることから、ラドン散逸にもっとも強く影響を及ぼすのは、見かけ上、0-20 cm程度の表層における土壤の含水率であるということが言える。ここで見かけ上としたのは、本来土壤深層からもラドンは常に拡散や移流によって表層土壤や大気へ運ばれるために、そこまで到達する過程においても環境因子の影響を受けると考えられるが、それらの過程を考慮せずに土壤表面からのラドン散逸と環境因子との関連性のみ着目したためである。土壤の体積含水率が比較的高い期間において、土壤表層の深さ5 cmでの土壤の含水率が0.15から0.22まで約50%増加すると、ラドン散逸率が9.2から2.5 $\text{mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 程度まで約70%減少していた。

大気中温度とラドン散逸率との関係は実験期間①の場合と同様に正の相関関係が認められた。大気と土壤の温度差については、実験期間①と同様に上部の温度が高いほどラドン散逸率が大きくなる傾向が見られた。

大気湿度とラドン散逸率の間には、負の相関関係があった。

以上の相関解析より、土壤からのラドン散逸率に最も強く影響を及ぼしているのは、土壤の含水率であると結論づけられる。土壤が比較的湿った状態ではその影響がより顕著であり、浅い土壤の含水率の影響が強く現れていた。また、土壤が比較的乾燥した状態では、大気圧の変化量も影響していた。さらに、大気と土壤温度の差とラドン散逸率にも相関関係が認められ、温度勾配によるラドン輸送に関する考慮の必要性が示された。

3.3 重回帰分析によるラドン散逸率の予測

土壤からのラドン散逸量の絶対値を規定する要因は土壤中に含まれるラジウムの含有量であるが、上述のラドン散逸率と環境因子の相関解析の結果、土壤からのラドン散逸率の変動に支配的に影響を及ぼす環境因子として、気圧の変化量と土壤の体積含水率が挙げられる。これら2つの因子をパラメーターとして、重回帰分析によってラドン散逸率を予

測するための式を導く。

土壌からのラドン散逸率の変動を、大気圧の変化量と土壌の体積含水率の 2 つの原因で説明できると仮定して、実測データに対して重回帰分析を行った。土壌からのラドン散逸率を、気圧の変化量と土壌の体積含水率を用いて次に示す線形の式によって表わす。

$$F = a \cdot \Delta P + b \cdot W + c \quad (2)$$

ここで、 F [$\text{mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$] はラドン散逸率、 ΔP [$\text{hPa}\cdot\text{h}^{-1}$] は 1 時間あたりの大気圧の変化量、 W [$\text{vol.}/\text{vol.}$] は土壌の体積含水率である。相関解析の結果、土壌の深い層に比べて浅い層の含水率がラドン散逸により大きな影響を与えていることが分かったので、ここでの含水率はチェンバーを被せた面の深さ 5 cm の体積含水率を用いる。式(2)における a, b, c はそれぞれ定数である。

実験期間①に対して、重回帰分析を行った結果、次のような重回帰式を得た。

$$F = -2.65\Delta P - 19.12W + 11.54 \quad (3)$$

この式において、右辺第 1 項は、気圧変化によるラドン散逸率へ及ぼす影響、第 2 項は、土壌表層体積含水率のラドン散逸率への影響をそれぞれ表わしている。また、重相関係数は、 $R = 0.80$ であった。

同様に、実験期間②に対して次のような重回帰式を得た。

$$F = -0.09\Delta P - 86.94W + 22.24 \quad (4)$$

ここでの重相関係数は、 $R = 0.89$ であった。それぞれの実験期間に対する、ラドン散逸率の実験データと重回帰式による計算値を Figure 8、9 に示す。

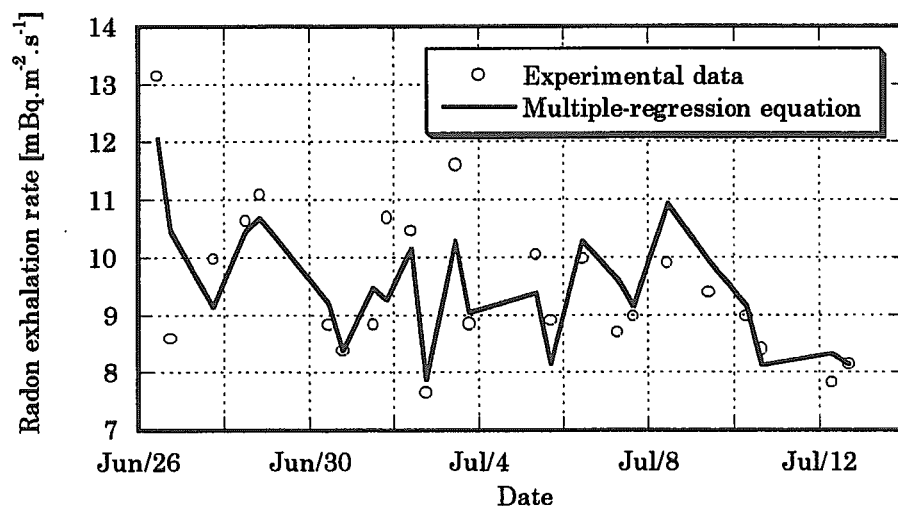


Figure 8. The ^{222}Rn exhalation rate obtained from experiment and multiple-regression equation for the experimental period①.

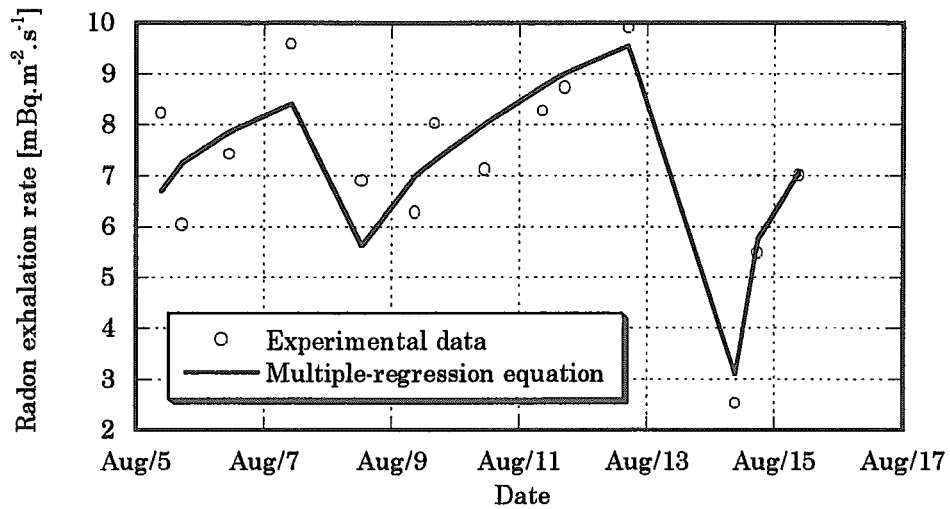


Figure 9. The ^{222}Rn exhalation rate obtained from experiment and multiple-regression equation for the experimental period②.

それぞれの実験期間における重回帰式 (3)、(4)から、土壌が比較的湿っている場合は、乾燥している場合に比べて、ラドン散逸率へ影響を及ぼす要因のうち、気圧の変化量の割合が小さいことがいえる。一方、土壌が湿っている場合は、気圧変化量の影響力が小さくなり、ラドン散逸率に及ぼす影響のうち土壌の体積含水率の占める割合がほとんどであると言ってよい。これは、土壌が乾燥している場合でも、土壌の含水率の増加はある程度の割合でラドン散逸率の減少を導くけれども、土壌が比較的湿っている場合における含水率の増加の方が、同じ含水量の増加でもより大きなラドン散逸率の減少を導くことを表わしている。

実験期間①では、土壌の深さ 5 cm の体積含水率は、降雨期間を除いて 0.06 から 0.14 程度である。実験期間②では、0.14 から 0.19 である。これより、土壌の体積含水率が 0.06 から 0.14 の範囲では、式(3)を、含水率が 0.14 から 0.19 の範囲では式(4)によってラドンの散逸率を予測することができる。ここで得られた予測式のパラメーター値はこの場所特有のものであるが、異なった環境条件でラドン散逸率測定及び同様の解析を行うことによって、様々な場所でラドン散逸率を予測するためのパラメーター値を得ることができる。

4. まとめ

土壌からのラドン散逸への土壌因子や気象因子の影響を調査するために、密閉チェンバー法によって連続的にラドン散逸率及び散逸に影響を及ぼすと思われる環境因子を測定し、それぞれの因子について相関解析を行った。測定期間は実験期間①として1998年6月26日～7月12日、実験期間②として8月5日～15日に行われた。

土壌の体積含水率が0.06～0.14の比較的乾燥している範囲では、気圧の変化量とラドン散逸率の間に負の相関関係が認められた。大気圧の $0.1 \text{ hPa}\cdot\text{h}^{-1}$ 上昇（低下）に伴い、土壌からのラドン散逸率が約 $0.29 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ だけ減少（増加）した。また、土壌の体積含水率とも負の相関関係が見られた。

一方、土壌の体積含水率が0.14～0.19の範囲では、土壌が乾燥している状態で見られたような気圧変化量とラドン散逸率との関係は見出せなかった。これは、地表面の水分による閉鎖のために大気への輸送が制限されたため、また、土壌水分による土壌間隙の封鎖によって土壌空気が気圧変化による移流の影響を受けなかったためであると思われる。それに対して、土壌からのラドン散逸率は土壌の体積含水率の影響が顕著に現れ、明らかに土壌水分量に依存していた。土壌の含水率とラドン散逸率には強い負の相関関係が認められたが、より深い土壌の含水率との相関性は弱まる傾向があった。このことから、ラドン散逸率に見かけ上もっとも強く影響を及ぼしているのは、0～20 cm程度の表層における土壌含水率であることが分かった。土壌表面5 cmの土壌含水率が0.15から0.22まで約50%増加すると、ラドン散逸率が9.2から $2.5 \text{ mBq}\cdot\text{m}^{-2}\cdot\text{s}^{-1}$ 程度まで約70%減少していた。

放射性希ガスであるラドンを対象とした本研究によって、土壌からのラドン散逸率に最も強く影響を及ぼしているのは、土壌の含水率であると結論できる。土壌が比較的湿った状態ではその影響がより顕著であり、浅い土壌の含水率の影響が強く現れていた。また、土壌が比較的乾燥した状態では、大気圧の変化量の影響が現れていた。さらに、大気と土壌温度の差とラドン散逸率にも相関関係が認められ、温度勾配によるラドン輸送の新たな考慮の必要性が示された。

土壌からのラドン湧出挙動の解析で得られた知見によって、地表面表層土壌中のガス輸送や地表面におけるガス湧出・沈着挙動に関する基礎的な情報が提供された。今後は、これらの知見に基づき、原子力施設起因のH-3、C-14ガスの地表面近傍環境における挙動の研究を行う予定である。

謝 辞

本研究の機会を与えて頂いた名古屋大学大学院工学研究科 飯田孝夫教授に深く感謝致します。

参考文献

- (1) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation: Ionizing Radiation: Sources and Effects of Ionizing Radiation, 1993 report to the General Assembly with Annexes, New York (1993).
- (2) W. W. Nazaroff, *Radon Transport from Soil to Air*, Reviews of Geophysics. 30(2), 137-160 (1980).
- (3) S. D. Schery, D. H. Gaeddert and M. H. Wilkening, *Transport of Radon From Fractured Rock*, J. Geophys. Res., 87(B4), 2969-2976 (1982).
- (4) C. E. Andersen, J. Sogaard-Hansen and B. Majborn, *Radon Entry into A Simple Test Structure*, Radiat. Prot. Dosim., 45(1-4), 407-410 (1992).
- (5) A. Damklaer and U. Korsbech, *A small-Diameter Probe for In Situ Measurements of Gas Permeability of Soils*, Radiat. Prot. Dosim., 45(1-4), 85-89 (1992).
- (6) H. Dorr and K. O. Munnich, *²²²Rn Flux and Soil Air Concentration Profiles in West-Germany. Soil ²²²Rn as Tracer for Gas Transport in the Unsaturated Soil Zone*, Tellus, 42B, 20-28 (1990).
- (7) E. Strandén, A. K. Kolstad and B. Lind, *The Influence of Moisture and Temperature on Radon Exhalation*, Radiat. Prot. Dosim., 7(1-4), 55-58 (1984).
- (8) W. E. Clements and M. H. Willening, *Atmospheric Pressure Effects on ²²²Rn Transport Across the Earth-Air Interface*, J. Geophys. Res., 79(33), 5025-5029 (1974).
- (9) S. D. Schery and D. H. Gaeddert, *Measurements of the Effect of Cycle Atmospheric Pressure Variation on the Flux of ²²²Rn from the Soil*, Geophys. Res. Letters, 9(8), 835-838 (1982).
- (10) P. C. Owczarski, D. J. Holford, H. D. Freeman and G. W. Gee, *Effects of Changing Water Content and Atmospheric Pressure on Radon Flux from Surfaces of Five Soil Types*, Geophys. Res. Letters, 17(6), 817-820 (1990).
- (11) J. Koarashi, H. Amano, M. Andoh and T. Iida, *Estimation of ²²²Rn Flux from Ground Surface Based on the Variation Analysis of ²²²Rn Concentration in A Closed Chamber*, Radiat. Prot. Dosim., 87(2), 121-131 (2000).
- (12) R. Colle, R. J. Rubin, L. I. Knab and J. M. R. Hutchinson, *Radon Transport Through and Exhalation from Building Material: A Review and Assessment*, (U. S.) National Bureau of Standards, Washington, DC (1981).
- (13) 野口 宏, 私信.
- (14) 中野 政詩, 土の物質移動学, 東京大学出版会 (1991).
- (15) D. Hillent, 土壤物理学概論—土と水の科学—, 養賢堂 (1984).

- (16) Merrill Eisenbud, Environmental Radioactivity, Academic Press, New York and London (1973).
- (17) International Atomic Energy Agency, *Measurement and Calculation of Radon Releases from Uranium Mill Tailings*, Technical Reports Series No.333, Vienna (1992).
- (18) 片岡 敏夫、池辺 幸正, *土壤の²²²Rn Escape-to-Production Ratio*, 保健物理, 15, 47-53 (1980).
- (19) 佐伯 誠道、環境放射能—挙動・生物濃縮・人体被曝線量評価—、ソフトサイエンス社 (1984).

国際単位系 (SI) と換算表

表1 SI基本単位および補助単位

量	名称	記号
長さ	メートル	m
質量	キログラム	kg
時間	秒	s
電流	アンペア	A
熱力学温度	ケルビン	K
物質量	モル	mol
光度	カンデラ	cd
平面角	ラジアン	rad
立体角	ステラジアン	sr

表3 固有の名称をもつSI組立単位

量	名称	記号	他のSI単位による表現
周波数	ヘルツ	Hz	s ⁻¹
力	ニュートン	N	m·kg/s ²
圧力, 応力	パスカル	Pa	N/m ²
エネルギー, 仕事, 熱量	ジュール	J	N·m
工率, 放射束	ワット	W	J/s
電気量, 電荷	クーロン	C	A·s
電位, 電圧, 起電力	ボルト	V	W/A
静電容量	ファラド	F	C/V
電気抵抗	オーム	Ω	V/A
コンダクタンス	ジーメンズ	S	A/V
磁束	ウェーバ	Wb	V·s
磁束密度	テスラ	T	Wb/m ²
インダクタンス	ヘンリー	H	Wb/A
セルシウス温度	セルシウス度	°C	
光照射度	ルーメン	lm	cd·sr
放射線量	ルクス	lx	lm/m ²
放射線量当量	ベクレル	Bq	s ⁻¹
吸収線量	グレイ	Gy	J/kg
線量当量	シーベルト	Sv	J/kg

表2 SIと併用される単位

名称	記号
分, 時, 日	min, h, d
度, 分, 秒	°, ', "
リットル	l, L
トン	t
電子ボルト	eV
原子質量単位	u

1 eV = 1.60218 × 10⁻¹⁹ J
1 u = 1.66054 × 10⁻²⁷ kg

表4 SIと共に暫定的に維持される単位

名称	記号
オングストローム	Å
バ	b
バール	bar
ガリ	Gal
キュリー	Ci
レントゲン	R
ラド	rad
レム	rem

1 Å = 0.1 nm = 10⁻¹⁰ m
1 b = 100 fm² = 10⁻²⁸ m²
1 bar = 0.1 MPa = 10⁵ Pa
1 Gal = 1 cm/s² = 10⁻² m/s²
1 Ci = 3.7 × 10¹⁰ Bq
1 R = 2.58 × 10⁻⁴ C/kg
1 rad = 1 cGy = 10⁻² Gy
1 rem = 1 cSv = 10⁻² Sv

表5 SI接頭語

倍数	接頭語	記号
10 ¹⁸	エクサ	E
10 ¹⁵	ペタ	P
10 ¹²	テラ	T
10 ⁹	ギガ	G
10 ⁶	メガ	M
10 ³	キロ	k
10 ²	ヘクト	h
10 ¹	デカ	da
10 ⁻¹	デシ	d
10 ⁻²	センチ	c
10 ⁻³	ミリ	m
10 ⁻⁶	マイクロ	μ
10 ⁻⁹	ナノ	n
10 ⁻¹²	ピコ	p
10 ⁻¹⁵	フェムト	f
10 ⁻¹⁸	アト	a

(注)

- 表1-5は「国際単位系」第5版, 国際度量衡局 1985年刊行による。ただし, 1 eV および 1 uの値は CODATA の1986年推奨値によった。
- 表4には海里, ノット, アール, ヘクトールも含まれているが日常の単位なのでここでは省略した。
- barは, JISでは流体の圧力を表わす場合に限り表2のカテゴリーに分類されている。
- EC閣僚理事会指令では bar, barn および「血圧の単位」mmHgを表2のカテゴリーに入れている。

換算表

力	N (=10 ⁵ dyn)	kgf	lbf
	1	0.101972	0.224809
	9.80665	1	2.20462
	4.44822	0.453592	1

粘度 1 Pa·s(N·s/m²) = 10 P(ポアズ)(g/(cm·s))

動粘度 1 m²/s = 10⁴ St(ストークス)(cm²/s)

圧	MPa (=10 bar)	kgf/cm ²	atm	mmHg(Torr)	lbf/in ² (psi)
	1	10.1972	9.86923	7.50062 × 10 ³	145.038
力	0.0980665	1	0.967841	735.559	14.2233
	0.101325	1.03323	1	760	14.6959
	1.33322 × 10 ⁻⁴	1.35951 × 10 ⁻³	1.31579 × 10 ⁻³	1	1.93368 × 10 ⁻²
	6.89476 × 10 ⁻³	7.03070 × 10 ⁻²	6.80460 × 10 ⁻²	51.7149	1

エネルギー・仕事・熱量	J (=10 ⁷ erg)	kgf·m	kW·h	cal(計量法)	Btu	ft·lbf	eV
	1	0.101972	2.77778 × 10 ⁻⁷	0.238889	9.47813 × 10 ⁻⁴	0.737562	6.24150 × 10 ¹⁸
	9.80665	1	2.72407 × 10 ⁻⁶	2.34270	9.29487 × 10 ⁻³	7.23301	6.12082 × 10 ¹⁹
	3.6 × 10 ⁶	3.67098 × 10 ⁵	1	8.59999 × 10 ⁵	3412.13	2.65522 × 10 ⁶	2.24694 × 10 ²⁵
	4.18605	0.426858	1.16279 × 10 ⁻⁶	1	3.96759 × 10 ⁻³	3.08747	2.61272 × 10 ¹⁹
	1055.06	107.586	2.93072 × 10 ⁻⁴	252.042	1	778.172	6.58515 × 10 ²¹
	1.35582	0.138255	3.76616 × 10 ⁻⁷	0.323890	1.28506 × 10 ⁻³	1	8.46233 × 10 ¹⁸
	1.60218 × 10 ⁻¹⁹	1.63377 × 10 ⁻²⁰	4.45050 × 10 ⁻²⁶	3.82743 × 10 ⁻²⁰	1.51857 × 10 ⁻²²	1.18171 × 10 ⁻¹⁹	1

1 cal = 4.18605 J(計量法)
= 4.184 J(熱化学)
= 4.1855 J(15 °C)
= 4.1868 J(国際蒸気表)
仕事率 1 PS(仏馬力)
= 75 kgf·m/s
= 735.499 W

放射能	Bq	Ci
	1	2.70270 × 10 ⁻¹¹
	3.7 × 10 ¹⁰	1

吸収線量	Gy	rad
	1	100
	0.01	1

照射線量	C/kg	R
	1	3876
	2.58 × 10 ⁻⁴	1

線量当量	Sv	rem
	1	100
	0.01	1

