

# 土壤中のラドンの拡散係数測定 手法に関する研究（VI）

(核燃料サイクル開発機構 委託研究成果報告書)

平成16年3月

名古屋大学大学院工学研究科

2004年 3月

## 土壤中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究 (VI)

飯 田 孝 夫\*

### 要 旨

ウラン鉱山の捨石の上に覆土がなされているような場所で、土壤中ラドンの挙動を明らかにすることを目的に研究を行った。土壤温度を制御できる土壤中ラドン拡散係数測定装置を開発した。試料には名古屋大学構内の土壤を用いた。土壤温度が0°Cを境に拡散係数は急激に変化した。土壤を乾燥させた状態では、実効拡散係数の温度依存性は小さく、Rogers & Nielsonの式から求められる拡散係数に近い値を得た。ベントナイト覆土のラドン散逸抑制効果を確認するために、覆土実験と大気-土壤1次元モデルを使用した数値計算を行った。名古屋大学構内で行った覆土実験の結果から、5 cmのベントナイト覆土によって $2.9 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ のラドン散逸が抑制された。積雪中のラドン挙動および積雪によるラドン散逸の抑制効果を調べる目的で、夜次露天採掘場跡地で積雪中ラドン濃度および積雪表面ラドン散逸率の観測と数値モデルを用いた解析を行った。積雪内のラドン濃度は500から3,000  $\text{Bq m}^{-3}$ 程度であった。積雪表面からのラドン散逸率は $9 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ であった。積雪によりラドンフラックスが1~数%に減少する主な原因是融雪水による土壤の湿潤化である。

\* 名古屋大学大学院工学研究科

# Study on the measurement method of diffusion coefficient for radon in the soil (VI)

Takao IIDA\*

## Abstract

The aim of this study is to clarify the radon behavior in the soil at the waste rock yards of uranium mine. We have developed an apparatus for measuring radon diffusion coefficient in soil under the control of soil temperature. The radon diffusion coefficients changed suddenly around the soil temperature of 0°C. The radon diffusion coefficients in dry soil have little temperature dependency, and were comparable coefficients obtained by empirical formula of Rogers & Nielson. To study the restraint effect of radon exhalation by covering with bentonite on soil, we carried out the measurements and the calculations by using one-dimensional transport model of atmosphere and soil. The decrease of radon exhalation rate was  $2.9 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  when soil covered with the bentonite of 5 cm thick. The radon concentrations in snow cover and the radon flux from the snow surface were measured at the waste rock yard in Ningyo-toge Environmental Engineering Center. The simulation of the radon transport in snow was also carried out using measured snow parameters. The radon concentrations in snow cover ranged from 500 to 3,000  $\text{Bq m}^{-3}$ , and the radon flux from the snow surface was about  $9 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ . The small radon flux results mainly from the wet condition of soil surface caused by melting of the snow.

\* Graduate School of Engineering, Nagoya University

# 目 次

第1章 序論	1
1. 1 本研究の目的と意義	1
1. 2 本報告の内容	2
参考文献	2
第2章 土壤中のラドン拡散係数の測定	3
2. 1 はじめに	3
2. 2 凍結土壤中のラドンの拡散係数の測定	3
2.2.1 土壤中のラドンの拡散	3
2.2.2 凍結土壤中ラドン拡散係数測定装置の製作	4
2.2.3 測定結果および考察	8
2. 3 拡散係数の導出	12
2.3.1 土壤中一次元ラドン拡散数値モデル	12
2.3.2 ラドン濃度測定装置の応答	15
2.3.3 実測値と計算値のフィッティング	20
2.3.4 結果および考察	21
2. 4 まとめ	24
参考文献	25
第3章 覆土材によるラドン散逸抑制効果の評価	27
3. 1 はじめに	27
3. 2 ベントナイト覆土実験	27
3.2.1 実験の概要	27
3.2.2 土壤中ラドン濃度測定	28
3.2.3 地表面からのラドン散逸率の測定	31
3.2.4 測定結果と考察	32
3.2.5 ラドン散逸抑制効果の評価	35
3. 3 土壤中ラドン輸送のモデル計算	39
3.3.1 モデル計算	39
3.3.2 大気－土壤1次元モデルの概要	39
3.3.3 計算内容	39
3.3.4 土壤パラメータの測定	40

3.3.5 気象パラメータ	42
3.3.6 計算結果と実測値の比較	43
3.3.7 考察	44
3. 4 ラドン散逸率抑制効果の評価	45
3.4.1 実測値による評価	45
3.4.2 モデル計算からの評価	45
3.4.3 捨石堆積場へのモデル計算の適用	45
3.4.4 考察	47
3. 5 まとめ	47
参考文献	48
 第4章 積雪中のラドンの挙動	49
4. 1 はじめに	49
4. 2 夜次露天採掘場跡地での観測	49
4.2.1 方法	49
4.2.2 測定結果	51
4. 3 数値モデルによるシミュレーション計算	56
4.3.1 モデル	56
4.3.2 ラドンフラックスの推定	58
4.3.3 積雪のラドン散逸抑制効果の評価	61
4. 4 まとめ	63
参考文献	64
 第5章 まとめと今後の課題	65
5. 1 まとめ	65
5. 2 今後の課題	65

## 表 目 次

表2.1 土壌パラメータ	8
表2.2 ラドン濃度測定装置CH2の補正係数	16
表2.3 ラドン濃度測定装置CH3の補正係数	16
表2.4 土壌①の実効拡散係数	21
表2.5 土壌②の実効拡散係数	21
表2.6 土壌②'の実効拡散係数	22
表2.7 各土壤における実効拡散係数の経験式の値	23
表3.1 ベントナイトと土壤の物理パラメータ	42
表3.2 各種パラメータ	42
表3.3 堆積堆積場土壤とベントナイトのパラメータ	46
表4.1 積雪面からのラドン散逸率測定結果	51

## 図 目 次

図2.1 凍結土壤中ラドン拡散係数測定装置	5
図2.2(a) 土壌①、設定温度 - 8 °C	9
図2.2(b) 土壌①、設定温度 - 0.1°C	9
図2.2(c) 土壌①、設定温度 1.8 °C	9
図2.2(d) 土壌②、設定温度 - 7.2°C	10
図2.2(e) 土壌②、設定温度 - 3°C	10
図2.2(f) 土壌②、設定温度 - 0.5°C	10
図2.2(g) 土壌②、設定温度 0.2°C	11
図2.2(h) 土壌②、設定温度 4°C	11
図2.3 解析モデル空間の模式図	13
図2.4 数値計算によるラドン濃度の相対値(土壤①)	14
図2.5 数値計算によるラドン濃度の相対値(土壤②)	14
図2.6 測定装置応答特性の模式図	15
図2.7 補正前のCH 2 のラドン濃度(相対値)	17
図2.8 補正後のCH 2 のラドン濃度(相対値)	17
図2.9 補正前のCH3のラドン濃度(相対値)	18
図2.10 補正後のCH3のラドン濃度(相対値)	18
図2.11 土壌①のラドン濃度変化	19

図2.12 土壌②のラドン濃度変化	19
図2.13 実測値と計算値のラドン濃度変化 土壌①-8°C)	20
図2.14 残差の二乗和によるフィッティング (土壌①-8°C)	21
図2.15 各土壌における実効拡散係数(実測値)の温度依存性	22
図2.16 実効拡散係数の実測値と経験式の値の比較	23
図3.1 UGRMS装置構成	29
図3.2 UGRMS検出器先端のシンチレーションセル	29
図3.3 土壌中ラドン濃度測定概略図	30
図3.4 散逸率測定概略図	32
図3.5 測定結果と気象データ	33,34,35
図3.6 土壌の降雨からの乾燥過程	36
図3.7 降水量と含水指数	37
図3.8 含水指数とラドン散逸率の相関図	37
図3.9 経験式によるラドン散逸率の予測値	38
図3.10 経験式によるラドン散逸率の予測値	39
図3.11 ラドン散逸に関するパラメータ	40
図3.12 大気-土壌1次元モデルによる土壌中ラドン濃度の計算結果 (名古屋大学構内観測場所の土壌)	43
図3.13 大気-土壌1次元モデルによるラドン散逸率の計算結果 (名古屋大学構内観測場所の土壌)	44
図3.14 ラドン散逸率の計算値	45
図3.16 覆土厚さとラドン散逸抑制率の関係	46
図4.1 測定器設置時の積雪の構造と雪の密度分布	52
図4.2(a) 積雪中ラドン濃度(5時間移動平均)	53
図4.2(b) 積雪中ラドン濃度観測地点の風向風速	53
図4.2(c) 積雪量および降水量	54
図4.2(d) 気温および日射量	54
図4.3 地面からの高さ0.15および0.40 mで測定された濃度の相互相関係数	55
図4.4 モデル格子模式図. 積雪の格子は積雪深 $d=1\text{m}$ の場合	58
図4.5 積雪中のラドン濃度分布の計算値. 積雪深1.2 mの場合. 濃度値は 土壌-積雪界面でのラドンフラックスで規格化した. 矢印の値の濃 度値は土壌-積雪界面でのラドンフラックスを1とした場合の積雪 表面でのフラックス.	60
図4.6 無積雪時の地表面ラドンフラックスのモデル計算結果	61
図4.7 土壌湿潤時の地表面ラドンフラックスのモデル計算結果. 図4-5の	

最後の部分を拡大したもの	61
図4.8 積雪のラドンフラックス透過率のモデル計算結果	63

## 写 真 目 次

写真3.1 観測場所にUGRMSを設置した様子	31
写真4.1 ラドン濃度連続測定装置のラドン検出器の設置状況	50
写真4.2 雪面に設置したラドン散逸率測定のための密閉容	50

# 第1章 序論

## 1. 1 本研究の目的と意義

ラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) はラジウム ( $^{226}\text{Ra}$ ) の  $\alpha$  壊変で生成される不活性な気体状の放射性核種である。国連科学委員会報告(UNSCEAR, 2000)によれば、自然放射線源からの年間被曝線量の世界平均値は 2.4mSv である。そのうち、ラドンおよびその壊変生成物からの寄与は 1.3mSv を占める。ラドンによる被曝の主な要因は、建物床下の土壤から家屋内に侵入してくるラドンである。土壤中に含まれるラドンはさまざまな人間環境で問題となる。人間の活動が地下空間に広がると、結果的に土壤中の高濃度ラドンが地下空間に侵入し、人間活動に悪影響を与える可能性が増す。土壤中のラドンの挙動を知るには、土壤中のラドン拡散係数および透気係数(Tanner, 1980, Rogers, 1994)、土壤表面からのラドン散逸率(Stranden et al., 1984, Folkerts et al., 1984, Wilkenig, 1990)等の物理パラメータを求める必要がある。

近年の原子力利用の拡大と環境問題への関心の高まりによって、廃棄物処理・処分の自然環境への影響に対して注目が集まっている。ウラン尾鉱（鉱さい）から発生するラドンも大きな関心事となっている(Morris, 1989)。ウラン鉱さいとはウラン抽出後の残滓のことであり、ウランと放射平衡にあったラジウムが残留している。ウラン鉱さいからのラドンの散逸量を押さえるために、透気性の低い粘土質の土壤で覆土する対策等がウラン鉱山を有する多くの国でとられている。同じような問題はウラン鉱石を採掘したときに発生する捨石でも生じている。捨石は一般の土壤や岩石よりは高い濃度のラジウムを含んでいることから、場合によっては管理基準を満たすための対策が必要である。ウラン鉱さいや捨石が環境や人間に影響を与えないような対策として、覆土を施した後に整地をし、植栽する等の復旧措置がとられる。実際に、海外のウラン鉱山では閉山後に復旧を行い、跡地を有効に利用する取り組みが行われている。市街地の近くに鉱山があるフランスやドイツでは、閉山後に跡地の安全性を確保し、景観を整えた上で公園や道路として利用されている。

本研究では、覆土がなされているような場所での土壤中ラドンの挙動を明らかにすることを目的として、ベントナイトを用いて覆土を施した場合のラドン散逸抑制効果について実験とモデル計算を行うとともに、土壤中のラドンの拡散係数の温度依存性、特に土壤が凍結した場合の拡散係数の評価を行った。さらに、積雪中でのラドン挙動および積雪によるラドン散逸の抑制効果についても研究を行った。

## 1. 2 本報告の内容

本報告では、この第1章で土壤中でのラドン挙動の研究の重要性について述べる。第2章では、土壤中のラドンの拡散係数の温度依存性、特に土壤が凍結した場合の拡散係数の評価結果について述べる。土壤温度と土壤パラメータを制御して土壤中のラドンの拡散挙動を測定できる装置の開発と、得られたラドン濃度の時間変化から数値計算で拡散係数を求める方法について述べる。第3章では、ベントナイトを用いて覆土を施した場合のラドン散逸抑制効果について述べる。名古屋大学構内で、地中ラドン濃度連続測定システムを用いて、約2ヶ月間にわたる土壤中ラドン濃度の連続測定と、地表面ラドン散逸率の測定を行った。測定結果と数値モデル結果を比較して、土壤中ラドン濃度と地表面ラドン散逸の変動要因について述べる。第4章では、積雪中でのラドン挙動および積雪によるラドン散逸の抑制効果について述べる。夜次露天採掘場跡地で積雪中ラドン濃度および積雪表面ラドンフラックスの観測と数値モデルを用いた解析の比較を行う。第5章ではまとめと今後の課題について述べる。

## 参考文献

- Folkerts, K. H., Keller, G. and Muth, H.: "An experimental study on diffusion and exhalation on  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{220}\text{Rn}$  from building materials", Rad. Prot. Dosim., Vol.9, p.27-34 (1984).
- Morris, R. C. and Fraley, Jr. L.: "Effects of vegetation, a clay cap and environmental variables on  $^{222}\text{Rn}$  fluence rate from reclaimed U mill tailing", Health Phys., Vol.56, P.431-440 (1989).
- Rogers, V. C. et al.: "Radon diffusion coefficients for residential concretes", Health Phys., Vol.67, P.261-265 (1994).
- Stranden, E. et al.: "The influence of moisture and temperature on radon exhalation", Rad. Prot. Dosim., Vol.7, p55-58 (1984).
- Tanner, A. B.: "Radon migration in the ground: A supplementary review", Natural Radiation Environment III, pp.5-56 (1984).
- UNSCEAR: Source and effects of ionizing radiation, New York; UN, pp.84-156 (2000).
- Wilkenig, M.: Radon in the Environment, Elsevier, Amsterdam, pp.43-58 (1990).

## 第2章 土壤中のラドン拡散係数の測定

### 2. 1 はじめに

ラドン ( $^{222}\text{Rn}$ ) およびそれらの壊変生成物による被曝を評価するためには、生活空間内での挙動を知ることが重要である。屋内の高いラドン濃度は建物床下の土壤から発生するラドンが屋内に浸入していくことが主な原因として挙げられる。それ故、土壤からのラドン散逸率 (Stranden et al., 1984, Folkerts et al., 1984, Wilkening, 1990) や土壤中のラドン拡散係数 (Rogers & Nielson, 1991, 1994) は重要なファクタである。

土壤表面からのラドン散逸は、気温や気圧等の気象条件に大きく影響される。これまで、冬期の土壤からのラドン散逸率は十分に評価されてこなかった。多くの数値計算モデルでは、冬期、特に積雪期のラドン散逸はゼロと仮定されてきた。積雪や冬期の土壤の状態によってラドン散逸が完全に妨げられると考えられてきた。青島(2003)はシベリアでの冬期の大気中ラドン濃度の測定結果から、ラドン散逸率は積雪の有無に関わらず  $10\text{mBqm}^{-2}\text{s}^{-1}$  程度であると評価した。この事実から、冬期の土壤からのラドン散逸率はゼロとの仮定は再考の余地がある。

一般的に、乾いた砂中のラドンの拡散係数は約  $7 \times 10^{-6}\text{m}^2\cdot\text{s}^{-1}$  である (Nelson et al., 1980)。冬期の凍結した土壤中では水分が凝固し、土壤中の固体割合が増加するのでラドンの拡散が妨げられ、拡散係数は小さくなると予想される。本研究では、冬期に特有な凍結土壤を実験室系で再現し、拡散係数を導出するとともに、拡散係数の温度依存性を調べ、凍結土壤からのラドン散逸に対する正しい評価を行うことを目的とした。

### 2. 2 凍結土壤中のラドンの拡散係数の測定

前節で述べたように、実際の土壤中のラドンの挙動は気象条件や土壤パラメータに支配されており、解析することは困難である。本研究では凍結した土壤がラドンの拡散挙動に及ぼす影響を調べるため、土壤温度を制御して拡散係数を測定できる測定装置を開発した。この装置は自然界では常に変動する外気温、土壤温度および含水率などを制御でき、性質の異なる土壤についても比較可能となるので、土壤中のラドンの拡散挙動を正確に把握できる。

#### 2.2.1 土壤中のラドンの拡散

ウラン ( $^{238}\text{U}$ ) やラジウム ( $^{226}\text{Ra}$ ) は土壤中に約  $40\text{kBq}\cdot\text{kg}^{-1}$  存在している。土壤の間隙率や密度等を考慮すると、土壤表面からのラドンの散逸がない状態では、土壤空気中のラドン濃度は常温で約  $40,000\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$  と高い値が予想される。

凍結した土壤からのラドンの散逸が抑えられる理由として、土壤水分が大きく関与している。冬期に土壤温度が零下になった場合、土壤中の水分が固体へ変化し、凍結土壤となる。凍結土壤は、常温での土壤に比べ、固体容積の割合が増える。このため常温下では土壤中の間隙を拡散で移動できたラドンも間隙の減少よって拡散移動が抑えられる。積雪時に雪表面からのラドン散逸があまり変化しないのは、雪中の間隙率が高く、数 10 cm 程度の積雪量ではラドン散逸を顕著に低下させないことによる。

以上の考察から、凍結土壤でのラドンの拡散に影響を与える土壤パラメータとしては(1)土壤密度、(2)体積含水率、(3)間隙率、(4)土壤温度である。製作したラドン拡散係数測定装置を用いて、拡散係数の温度依存性の評価に必要な土壤パラメータと、土壤中を拡散するラドンの濃度を測定した。

### 2.2.2 凍結土壤中ラドン拡散係数測定装置の製作

#### (1) ラドン拡散係数測定装置の原理

凍結土壤中ラドン拡散係数測定装置の概略図を図 2.1 に示す。本体は上下に 3 つのフランジ付きアクリル製容器(それぞれ直径 140mm、高さ 200mm)から成り立つ。装置中央容器に測定対象となる土壤を設置する。中央容器にチューブを巻きつけ、冷却水循環装置からの冷却水をそのチューブに流すことで冷却する。この方法で土壤の温度を制御した。実験装置全体を厚さ 6 cm の発泡スチロール容器で囲み、冷却効率と保冷性を高めた。ラドンは装置下部容器と連結された 20L ラドンガスリザーバに封入する。リザーバ内のラドンの濃度は約  $30000\text{Bq m}^{-3}$  であった。測定中に土壤から発生する約  $300\text{Bm}^{-3}$  のラドンの影響は無視した。

ポンプによって 20L ラドンガスリザーバと装置下部容器を循環させる。装置下部に流入したラドンは装置中央容器内の土壤部分を拡散で上部へと移動する。この結果、装置の上部容器内と下部容器内のラドン濃度に差が生じる。装置下部容器内と上部容器内のラドン濃度変動をラドン濃度測定装置で連続測定する。下部と中央の接合部、すなわち土壤の下部は土壤粒子が下部に落ちないように金属メッシュにより支えられており、ラドンの拡散に支障がないような構造になっている。土壤中でのラドンの拡散係数を正確に算出するには、この装置全体からの気体の漏れを無くすことが最も重要である。本体とラドン濃度測定装置の接合部はエポキシ樹脂接着剤により密封した。

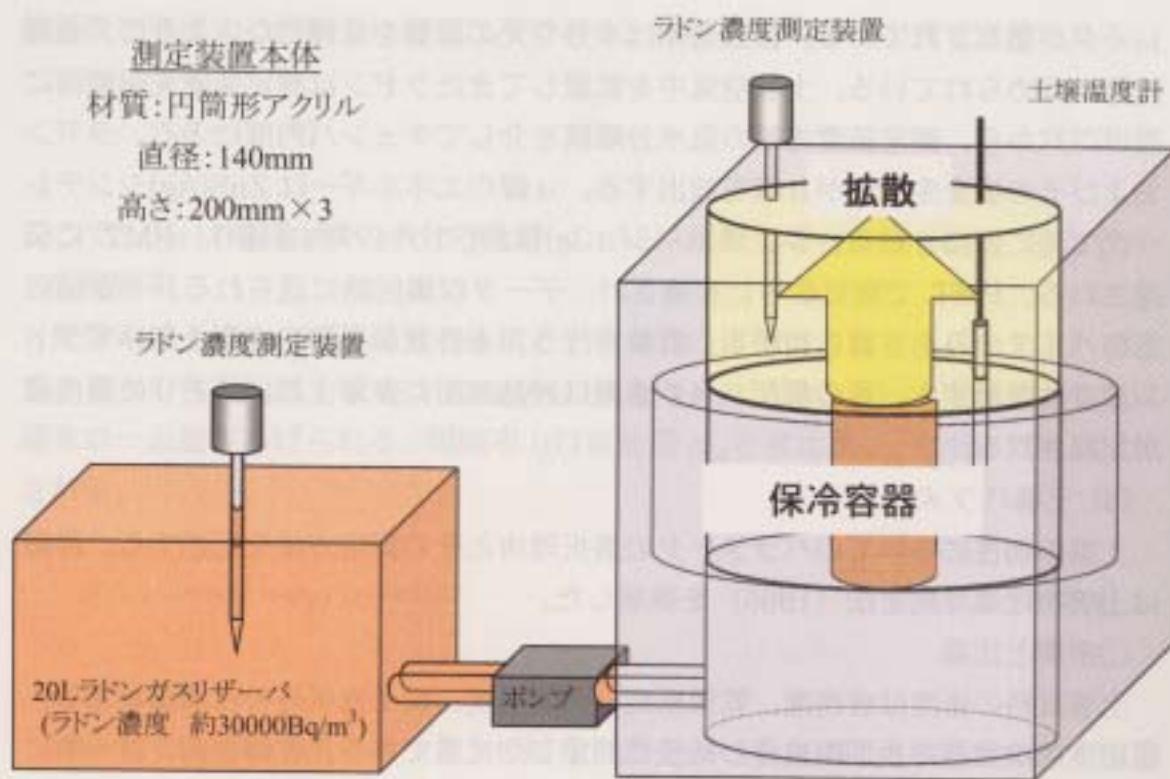


図 2.1 凍結土壤中ラドン拡散係数測定装置

凍結土壤中ラドン拡散係数測定装置には、ラドン濃度測定装置と土壤温度測定装置、土壤の温度を制御するための冷却水循環装置が付属している。ラドン濃度測定には、光ファイバを用いた土壤中ラドン濃度測定装置(Yamamoto, 2003)を使用した。土壤温度測定は、白金抵抗測温体で囲い、測温部を土壤に突き刺した。冷却水循環装置は、ヤマト科学株式会社のクールライン BL-71 を使用した。30% エタノール水溶液を冷却水として、装置からチューブで循環させる構造になっている。測定装置本体の中央容器、すなわち土壤の部分にチューブを巻きつけて、冷却水を循環させることで土壤の温度を下げ、凍結土壤を再現した。冷却水の温度は $-20^{\circ}\text{C}$ ~ $45^{\circ}\text{C}$ の範囲に設定可能である。例えば $-20^{\circ}\text{C}$ の冷却水を循環させた場合には土壤の定常温度は約 $-11^{\circ}\text{C}$ になった。

## (2) ラドン濃度測定装置

ラドン濃度測定装置として、Yamamoto(2003)が開発した光ファイバを用いた土壤中ラドン濃度測定装置を使用した。この測定装置は本来土壤に突き刺して、連続的に土壤中ラドン濃度を測定するために開発された。

ラドン濃度測定装置は、先端部の小さなチエンバ(シンチレーションセル)、光ファイバおよびPMT(光電子増倍管)より構成されている。チエンバの端には空気のみを透過する気水分離膜が配置されている。チエンバ内面には ZnS(Ag)シンチ

レータが塗布されている。装置全体は水分や光の影響を受けないように、金属円筒に収められている。土壤空气中を拡散してきたラドンは測定装置先端側面に設けた穴から、測定装置先端の気水分離膜を介してチエンバ内部に入る。ラドンおよびその壊変生成物が $\alpha$ 線を放出する。 $\alpha$ 線のエネルギーはZnS(Ag)シンチレータで光に変換される。シンチレーション光は光ファイバ内を通り、PMTに伝達される。PMTで電気信号に変換され、データ収集回路に送られる。一定値以上のパルスのみを $\alpha$ 線と判断し、計数を行う。 $\alpha$ 計数から較正定数を用いてラドン濃度に変換する。得られたラドン濃度は液晶画面に表示され、メモリに濃度値が記録される。

### (3) 土壤パラメータ

土壤の物性についてのパラメータの選択理由とその測定方法を記述する。詳細は土壤物理環境測定法(1995)を参照した。

#### ○密度と比重

土壤試料の密度は容密度、乾燥密度、湿潤密度、粒子密度等の表現法がある。容密度とは室温で長期間放置した後に測定した比重である。乾燥密度とは一般に110°Cで24時間以上炉乾燥させた後に測定した比重、湿潤密度とは間隙に水または海水を満たした状態で測定した見かけの密度、自然密度とも言う。粒子密度とは岩石の間隙を除いた粒子部分だけの比重である。これらのうち間隙率との関係で、乾燥密度 $\rho_d$ と、真比重として土粒子密度 $\rho_s$ を測定した。

日本の表層土壤の仮比重は0.5~1.3 g·cm<sup>-3</sup>程度で、真比重は2.3~2.8 g·cm<sup>-3</sup>である。仮比重 $\rho_d$ は、乾燥後の質量 $W_s$ と試料体積(容器の体積) $V$ を用いて、

$$\rho_d = W_s / V \quad (2-1)$$

と表される。真比重 $\rho_s$ の測定は、JIS A1202による測定手順で行う。温度 $t$ °Cの水に対する土粒子の真比重 $G_{s,t}$ は

$$G_{s,t} = W_s / (W_s + (W_a - W_b)) \quad (2-2)$$

で表される。ここで、 $W_s$ は炉乾燥した試料の質量( $W - W_1$ ) (g)、 $W_a$ は温度 $t$ °Cの水を満たしたピクノメータの質量(測定値から換算した値) (g)、 $W_b$ は温度 $t$ °Cの水と土を満たしたピクノメータの質量(g)、 $t$ は $W_b$ を計ったときのピクノメータ内容物の温度(°C)である。

#### ○体積含水率

体積含水率とは、土壤の全体積に対する液層の百分率である。体積含水率は拡

散係数を導出する経験式に必要な項である。体積含水率  $\theta$  は次式で定義される。

$$\theta = V_w / V_0 \quad (2-3)$$

ここで、 $V_w$  は湿潤土壤の水分の質量(g)、 $V_0$  は湿潤土壤の体積 ( $\text{cm}^3$ ) である。

#### ○間隙率

間隙率は土壤中の間隙部分の体積と土壤全体の体積との比で、パーセントで表す。日本の代表的な土壤では 40~80% の値を取る。間隙の多い土壤の例としては関東ローム層があげられる。間隙率  $n$  は仮比重  $\rho_d$  と真比重  $\rho_s$  を用いて次式で表される。

$$n = (1 - \rho_d / \rho_s) \times 100 \quad (2-4)$$

#### ○土壤温度

本研究では凍結土壤中のラドンの拡散挙動を調べるために、土壤温度の測定は重要である。土壤温度と拡散係数の関係を調べるためにあたり、土壤の温度状態を確認するために、リアルタイム測定のできる温度測定装置が必要である。温度測定には英弘精機社製のデータロガー・ソラック 3 (MP-090)を使用した。これは、JIS 規格の 7 種類の熱電対、白金測温抵抗体による、温度、DC 電圧などのアナログ信号、パルスやステータスなどのデジタル信号を混在して計測できる。プリントの印字インターバルを 1 時間としてモニタ計測を行った。

#### (4) ラドン濃度測定

本研究では、土壤パラメータと装置上下部容器内のラドン濃度の立ち上がりから、数値計算によって拡散係数を算出する。特に重要なのは装置上部容器内のラドン濃度である。土壤の温度によって上部容器内のラドン濃度とラドン拡散係数がどのように変化するかを調べるのが本研究の目的である。

測定時間は装置上部と下部の濃度差がはっきりわかる 10 時間前後とした。ラドン濃度測定の間隔は 10 分間隔とした。立ち上がり濃度をより厳密に評価するためと、ラドン濃度測定装置の時間遅れを考慮するために、検出開始から約 2 時間半の間はより多くのラドン濃度情報を必要である。

土壤中ラドン拡散係数測定装置では下部容器内のラドン濃度は一定という前提で設定されている。しかしラドン壊変の影響とラドンガスリザーバの容積が有限であるため、装置下部容器内の濃度を一定に保つことは困難である。ラドンの壊変による濃度変化を抑えるため、リザーバにラドン濃度測定装置を設置し、ラドンを封入後定常状態になるまで 2~3 時間待った。ラドン濃度測定装置はラドン

濃度を正しく検出するまで約2時間半かかるため、定常と見なせる時点から約2時間半経って測られるラドン濃度を定常濃度と定義した。ラドン濃度測定装置が定常濃度を検出し始めた時点で、リザーバを装置本体と連結し、ポンプで循環させる。この時点が実験開始となる。装置下部容器内の濃度は試料土壤からの約 $300\text{Bqm}^{-3}$ の自然発生ラドン濃度を無視できる約 $30,000\text{Bq}\cdot\text{m}^{-3}$ 以上を目安にした。測定終了時には、ポンプの循環を止め、ラドン濃度測定装置はリザーバから抜く。上部容器内も次に行う測定に影響が残らないようにポンプで排気する。土壤温度はデータロガーからの出力を読み取り、ラドン濃度データは測定装置本体からパソコンに取り出す。土壤温度は外気温等の影響を受けるため正確に温度を設定するのは困難であった。そのため目安とする土壤温度は土壤中水分の状態変化があると予想される $0^\circ\text{C}$ 付近と、その上下に設定した。

### 2.2.3 測定結果および考察

各試料土壤のパラメータを表2.1に、凍結土壤ラドン拡散係数測定装置を用いて $0^\circ\text{C}$ 付近とその上下の温度で行ったラドン濃度測定結果を図2.2に示す。実験は、名古屋大学農学部用地内の土壤①では $-8^\circ\text{C}$ 、 $-0.1^\circ\text{C}$ 、 $1.8^\circ\text{C}$ で、名古屋大学工学部6号館横の土壤②では $-7.2^\circ\text{C}$ 、 $-3^\circ\text{C}$ 、 $-0.5^\circ\text{C}$ 、 $0.2^\circ\text{C}$ 、 $4^\circ\text{C}$ で行った。

表2.1 土壤パラメータ

	土壤①	土壤②
採取場所	名古屋大学農学部用地内	名古屋大学工学部6号館横
色	茶褐色	黒褐色
土壤粒子の特徴	粒子は細かく一様	小石や砂礫が混在
採取体積( $\text{cm}^3$ )	$200 \times 10^3$	$1.85 \times 10^3$
湿密度( $\text{g cm}^{-3}$ )	1.42	1.23
乾密度( $\text{g cm}^{-3}$ )	1.15	1.03
体積含水率( $\text{vol vol}^{-1}$ )	0.20	0.26
間隙率( $\text{vol vol}^{-1}$ )	0.60	0.56

土壤①は粒子が細かく、間隙率は土壤②より大きかった。土壤を採取する際に、一度掘り返したため、土壤粒子が小さいと粒子間に空気が入る割合が増え、採取前よりも間隙が増えた可能性がある。土壤②は土壤①と比べ間隙率が低く、含水率も高いことから、土壤中に存在する水分の量が多い。ラドン濃度の測定結果に関して、装置上部容器内のラドン濃度変化は検出器の特性上、検出の立ち上がり濃度を補正する必要がある。補正については2.3節で述べる。

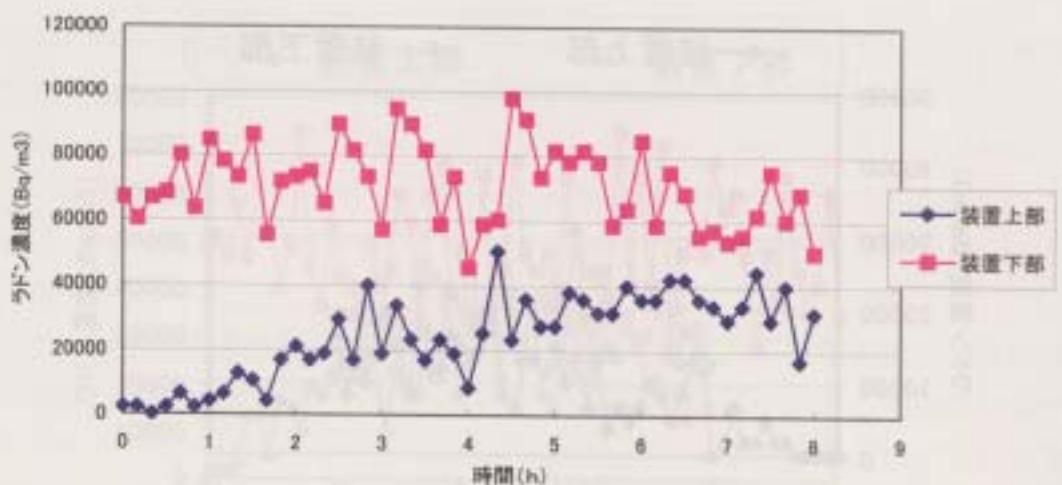


図 2.2(a) 土壌①、設定温度 - 8 ℃

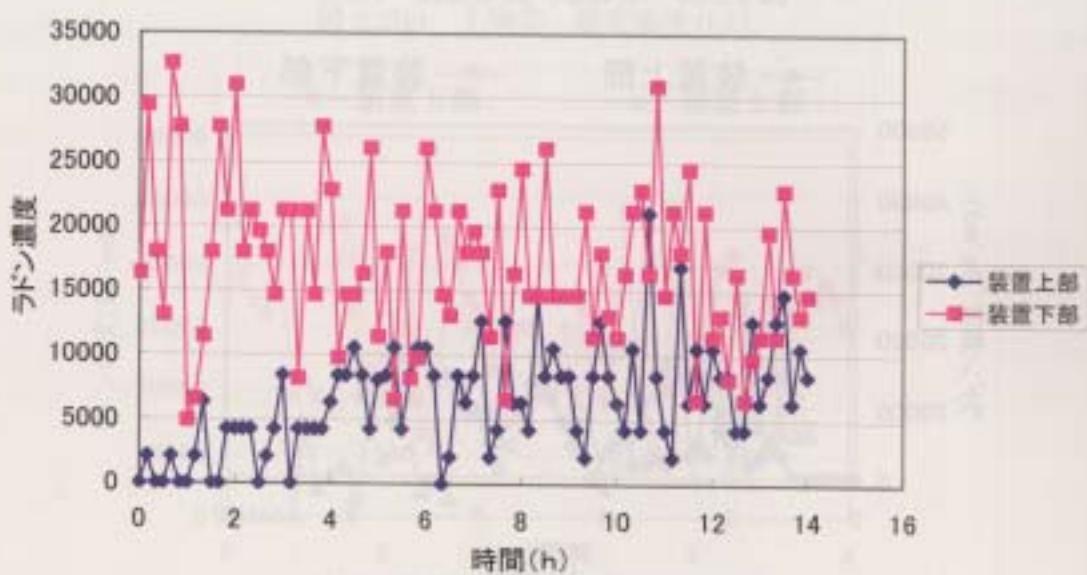


図 2.2(b) 土壌①、設定温度 - 0.1 ℃

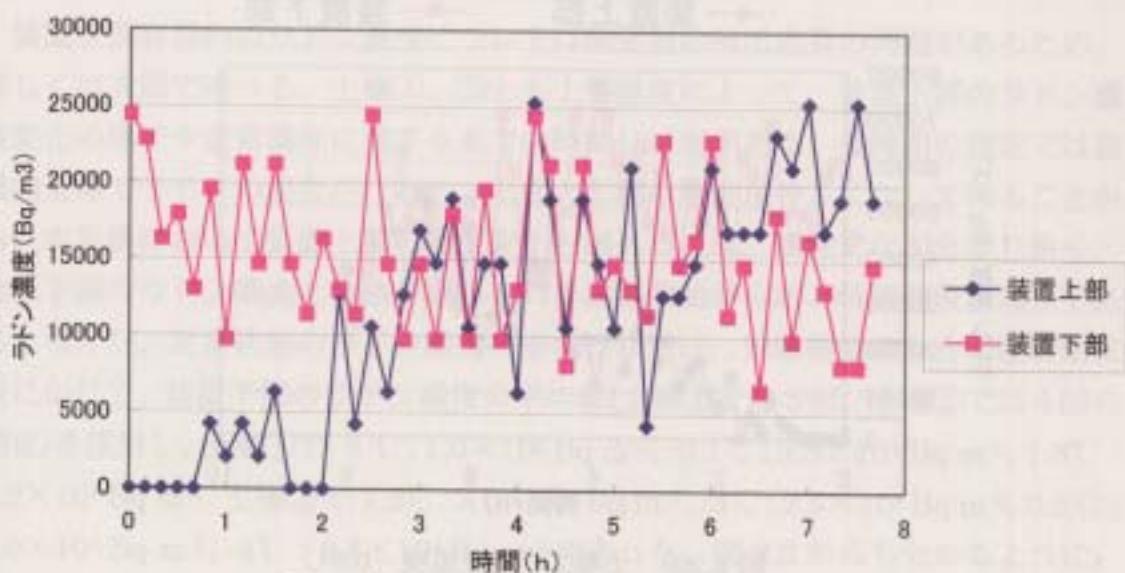


図 2.2(c) 土壌①、設定温度 1.8 ℃

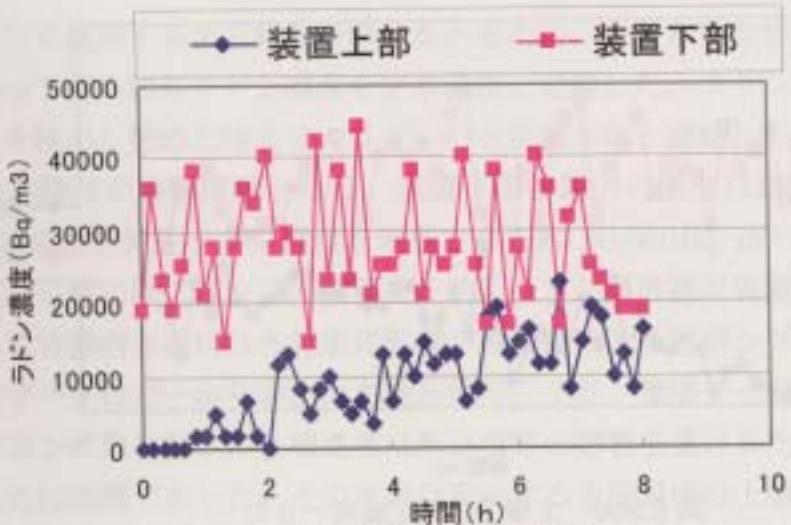


図 2.2(d) 土壌②、設定温度-7.2℃

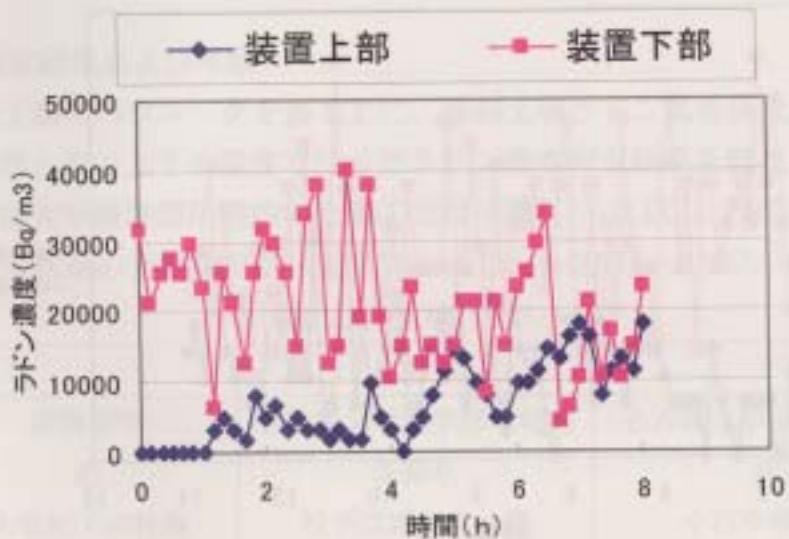


図 2.2(e) 土壌②、設定温度-3℃

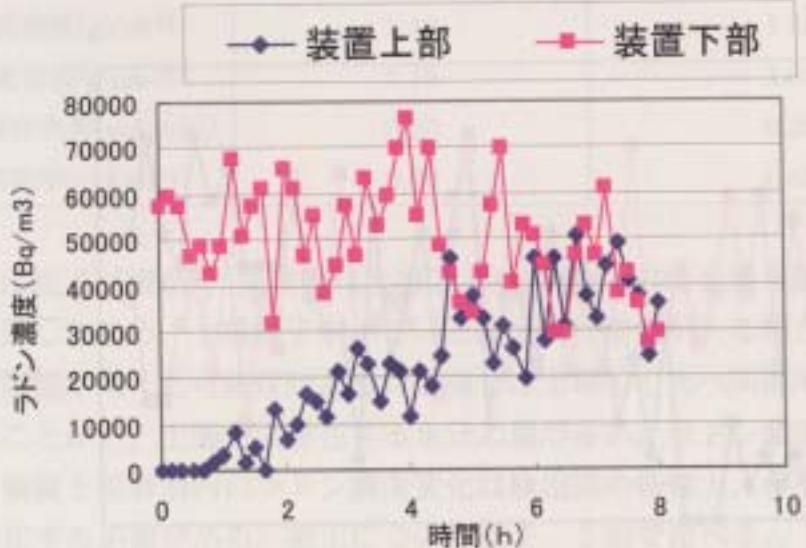


図 2.2(f) 土壌②、設定温度-0.5℃

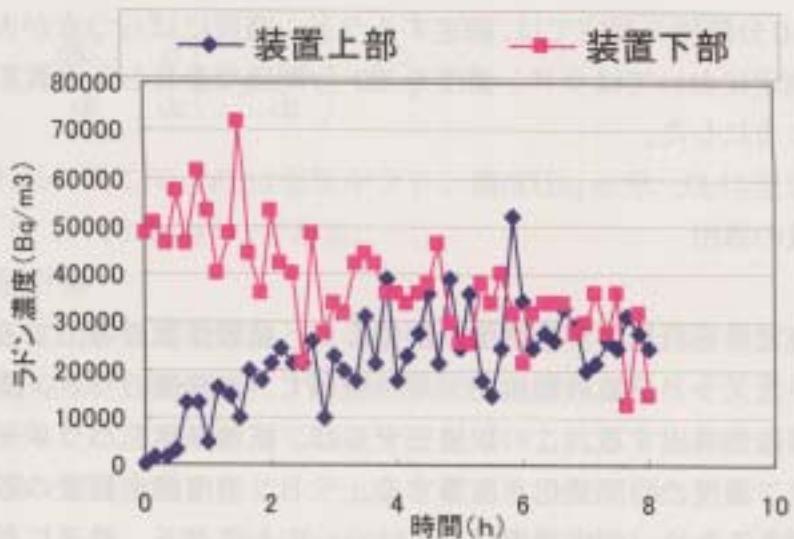


図 2.2(g) 土壌②、設定温度 0.2°C

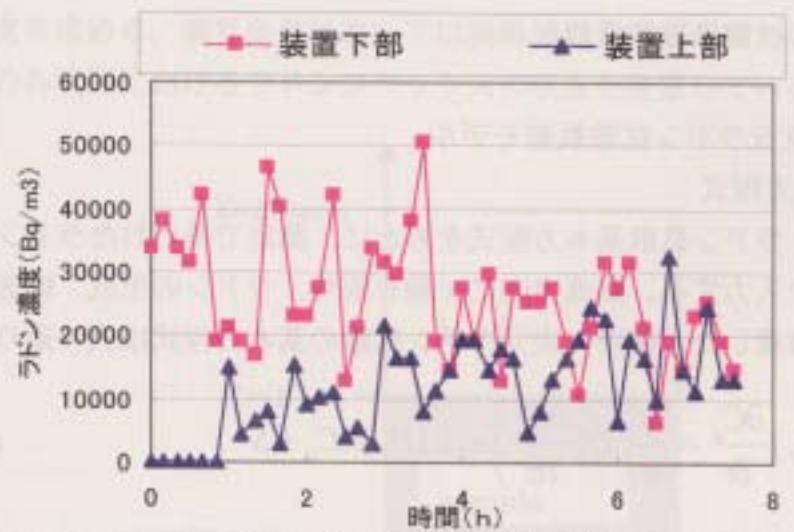


図 2.2(h) 土壌②、設定温度 4°C

装置上部容器内のラドン濃度については測定器の検出応答の問題があるため、詳しくは次節で述べる。土壌①、②とも土壤温度によって、装置上部のラドン濃度変化の様子や定常濃度に達するまでの時間には差がある。長時間の測定では装置内全体でラドンの混合が行われ、上部と下部の濃度が等しくなっていることから、本実験において装置上部の濃度変化を調べるには、濃度変化が分かり易く、装置下部のラドン濃度とも差が認められる測定開始から約 5 時間前後が適当であると考えた。定常状態のラドン濃度の定義としては、実験開始前から実験開始直後にかけて、装置下部のラドン濃度の平均値(土壌①では 3 回、土壌②では 4 回の測定)を採用し、土壌①で -8 °C :  $1.0 \times 10^6$  Bq m<sup>-3</sup>、-0.1°C :  $3.8 \times 10^4$  Bq m<sup>-3</sup>、1.8°C :  $3.2 \times 10^4$  Bq m<sup>-3</sup>、土壌②で -7.2°C :  $3.0 \times 10^4$  Bq m<sup>-3</sup>、-3°C :  $2.5 \times 10^4$  Bq m<sup>-3</sup>、0.2°C :  $6.0 \times 10^4$  Bq m<sup>-3</sup>、4°C :  $2.8 \times 10^4$  Bq m<sup>-3</sup> であった。図 2.2 からも分かるように、

検出器の特性上 10 分間隔の測定では、測定するラドン濃度にはばらつきが大きい。このため以後の測定においてはラドン濃度を 20 分間隔で計算し、計数誤差が少ない曲線になるようにした。

## 2. 3 拡散係数の導出

この節では測定で得られたラドン濃度の変化より、拡散係数を導出する方法を述べる。土壤中一次元ラドン拡散数値モデルを用いて、実測値のラドン濃度変化と比較して拡散係数を導出する。この数値モデルは、拡散係数をパラメータとして装置上部のラドン濃度の時間変化を計算する。ラドン濃度測定装置の応答特性を考慮する必要があるため、測定濃度の補正についても述べる。補正したラドン濃度の実測値を数値モデルで算出した濃度でフィッティングして、各測定における土壤中ラドンの拡散係数を求めた。

### 2.3.1 土壤中一次元ラドン拡散数値モデル

#### (1) ラドン輸送方程式

数値計算では、ラドン拡散基本方程式をもとに、測定で得られたラドン濃度と土壤パラメータを入力する。鉛直方向に  $z$  軸を取り、ラドンの生成、輸送を各相間の相互作用を考慮した土壤中一次元ラドン拡散の基本方程式は次の通りである。

$$(aL\eta_w)\frac{\partial C_a}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z}\left(D_b \frac{\partial C_a}{\partial z}\right) - (aL\eta_w)\lambda C_a + S \quad (2-5)$$

ここで、 $C_a$  は土壤空气中ラドン濃度( $\text{Bqm}^{-3}$ )、 $a$  は土壤の間隙率( $\text{vol vol}^{-1}$ )、 $\eta_w$  は土壤の体積含水率( $\text{vol/vol}^{-1}$ )、 $L$  はラドンの無次元平衡溶解度(Henry's Law constant in dimensionless form)、 $D_b$  はバルク拡散定数( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ )、 $\lambda$  はラドンの壊変定数( $\text{s}^{-1}$ )、 $S$  はラドン生成強度( $\text{Bq m}^{-3}$ )である。

ラドン輸送方程式(2-5)の右辺第1項はバルク土壤における拡散、第2項は土壤空気による移流を表している。第3項と第4項はそれぞれ土壤中のラドンの放射性壊変と生成を表している。この実験において、土壤そのものからのラドンの生成は無視したため、 $S=0$ とした。土壤空气中ラドン濃度  $C_a$ 、土壤の間隙率  $a$  および土壤の体積含水率  $\eta_w$  については実験から求める。ラドンの無次元平衡溶解度  $L$  とラドンの壊変定数  $\lambda$  はそれぞれ  $L=0.3$  と  $\lambda=2.1 \times 10^{-6} \text{s}^{-1}$  である。

この実験装置は土壤部分と空間部分で構成されているので、空气中でのラドン輸送も考えなければならない。空气中でのラドン輸送方程式は

$$\frac{\partial C_a}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left( D_0 \frac{\partial C_a}{\partial z} \right) - \lambda C_a \quad (2-6)$$

で表される。ここで、 $C_a$ は空气中ラドン濃度( $\text{Bq m}^{-3}$ )、 $D_0$ は空气中のラドンの拡散係数 ( $1.1 \times 10^{-5} \text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ) である。

## (2) 数値計算

図 2.3 は、本測定で対象となる数値モデル空間の模式図である。この数値計算は青島(2003)が土壤中ラドン散逸の評価時に用い式をベースとして、境界条件を変えて使用した。本モデルでは差分法を用いて計算する。鉛直方向については、装置上部の土壤表面を 0 とし、上向きを正とした。したがって、土壤中の格子点番号は負である。上部 (head space) と下部 (sample space) のグリッド数は 20 で、間隙率と体積含水率から土壤中の気体の体積を計算し、各格子におけるラドンの收支を求める。境界条件においては実験装置を模した図から分かるように、装置内の各境界におけるラドンフラックスの收支を考慮している。

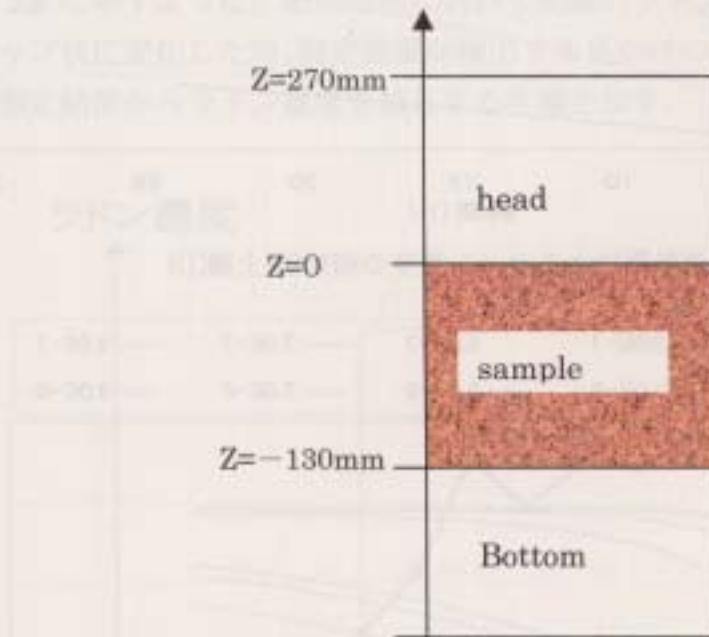


図 2.3 解析モデル空間の模式図

境界条件として、

$$\text{Head space 上端: } \frac{\partial C_a}{\partial z} = 0 \quad (2-7)$$

$$\text{Head space-sample space 境界: } D_0 \frac{\partial C_a}{\partial z} = D_b \frac{\partial C_a}{\partial z} \quad (2-8)$$

$$\text{Sample space 下端: } C_a = C_u \quad (2-9)$$

とした。計算におけるタイムステップは 12 秒とした。出力形式としては拡散係数を決め、Sample space 下端にラドン濃度を入力すると Sample space 上端までのラドン濃度の分布が計算される。その結果  $D_b$  をパラメータとして、装置上部のラドン濃度の時間変化を求めることができる。拡散係数をパラメータとした土壤①と土壤②のラドン濃度の時間変化を図 2.4、図 2.5 に示す。

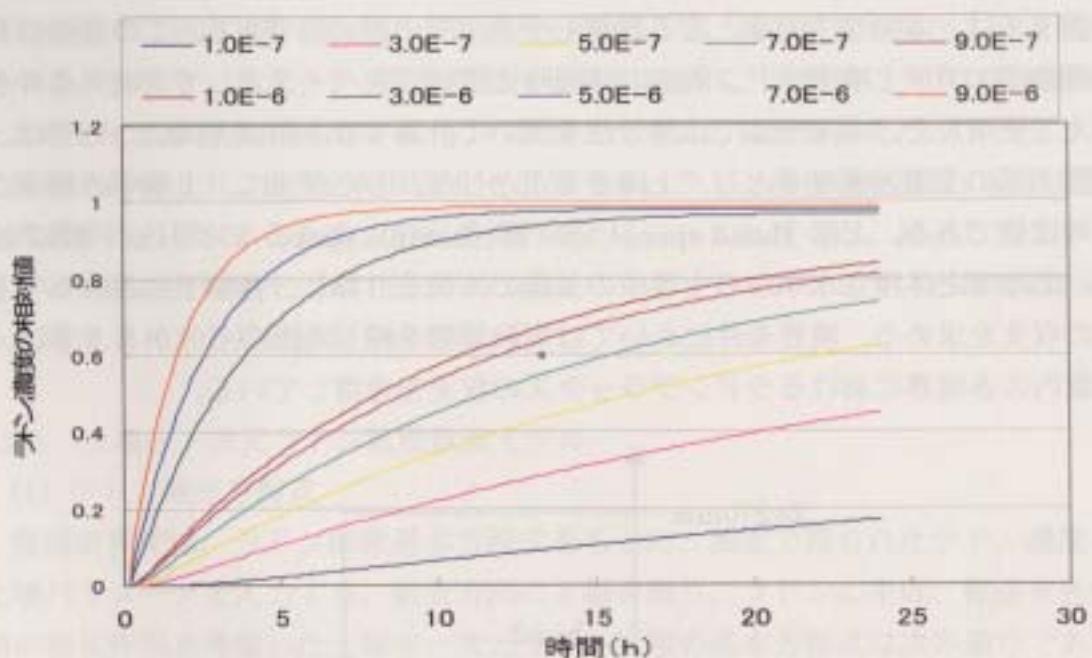


図 2.4 数値計算によるラドン濃度の相対値(土壤①)

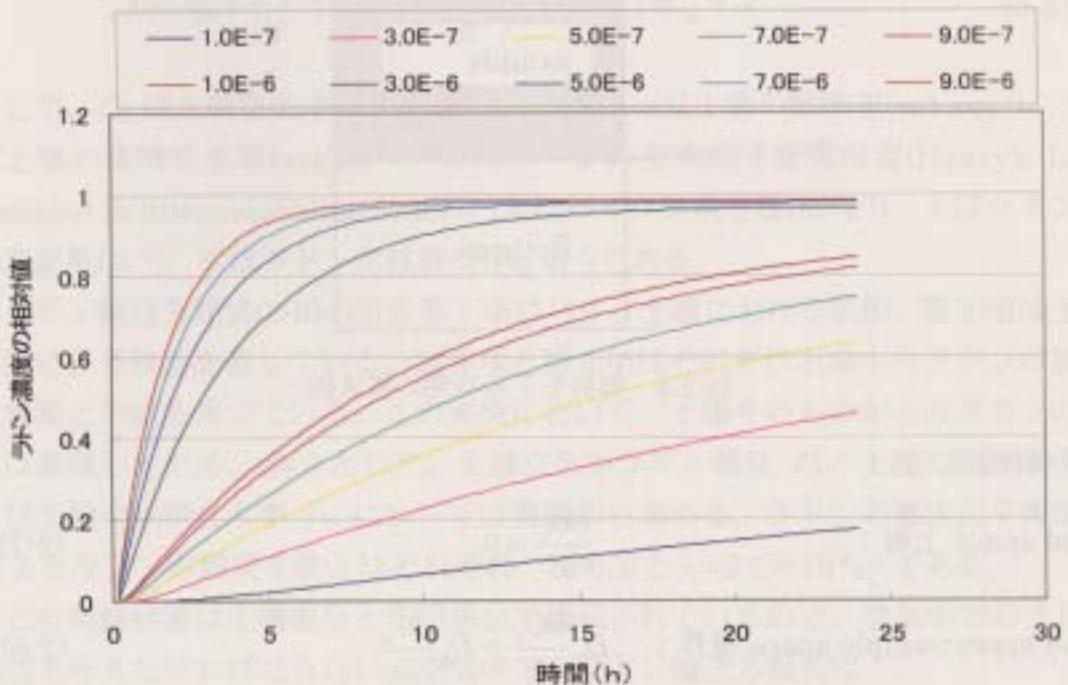


図 2.5 数値計算によるラドン濃度の相対値(土壤②)

### 2.3.2 ラドン濃度測定装置の応答

#### (1) 検出時間の遅れ

土壤中のラドンの拡散係数を求めるのに重要な測定値はラドン濃度の変化である。実験で使用したラドン濃度測定装置は定常状態での土壤中のラドン濃度変化を連続的に測定することを想定して製作されている。土壤中でのラドン( $^{222}\text{Rn}$ :半減期 3.8day)測定時にトリウム系列のトロン( $^{220}\text{Rn}$ :半減期 55.6 s)の影響を排除するため、検出器先端のチャンバの換気率を低くしてある。本実験のように急激なラドンの濃度変化がある場合は、その検出時間の遅れを考慮しなければならない。さらに、ラドン濃度の増加時にはラドンとその壊変生成物は放射平衡になっていない。検出器はすべての $\alpha$ 線を検出するため、非定常状態、特にラドン濃度 0 Bq  $\text{m}^{-3}$ からの立ち上がりの時点においては、検出時間の遅れとラドン壊変生成物のビルダップが重なり、ラドン濃度を求めるのは簡単ではない。そこで検出時間の遅れを考慮したラドン濃度の補正を行う必要がある。

#### (2) 補正の原理と手順

図 2.6 に示すように、ある時刻において実際のラドン濃度が赤い点線のようにステップ状に変化した時、測定装置が検出する見かけのラドン濃度は実線となる。この測定結果からラドン濃度を補正する手順を示す。



図 2.6 測定装置応答特性の模式図

測定装置のある一定ラドン濃度の空間に入れた時、実際のラドン濃度、すなわち定常状態の濃度、を計測するまでに、図 2.6 に示すように測定開始から約 2 時

間半を要する。濃度測定の立ち上がり 2 時間半において、測定開始から 20 分ごとの（定常濃度／実測濃度）の平均値を補正係数として算出した。補正係数は 2 時間半でほぼ 1 になっている。補正後のラドン濃度の導出には、各測定でのその時間のラドン濃度に補正係数をかけることで得られる。

### (3) 補正結果

測定にはラドン濃度測定装置のチャンネル 2 とチャンネル 3(以後 CH2、CH3)を使用した。表 2.2 と表 2.3 に、ラドン濃度測定装置の CH2 と CH3 における濃度の立ち上がりでの補正係数を示す。図 2.7 と図 2.8 には CH2 の補正前と補正後の結果を示す。同様に、図 2.9 と図 2.10 には CH3 の補正前と補正後の結果を示す。CH2 は 4 回、CH3 は 3 回の測定の平均より補正係数を求めている。それぞれの実験において、封入した初期ラドン濃度は同じではない。比較のために、全ての実験において定常状態になった時のラドンの濃度を 1 と規格化してラドン濃度の相対値を（測定装置上部の濃度／定常濃度）と定義した。

表 2.2 ラドン濃度測定装置 CH2 の補正係数

時間(h)	CH2 の補正係数
0	---
	3.05
	3.30
	2.16
	1.86
	1.45
1.0	1.19
	1.08
2.0	

表 2.3 ラドン濃度測定装置 CH3 の補正係数

時間(h)	CH3 の補正係数
0	---
	1.84
	1.68
	1.53
	1.28
	1.07

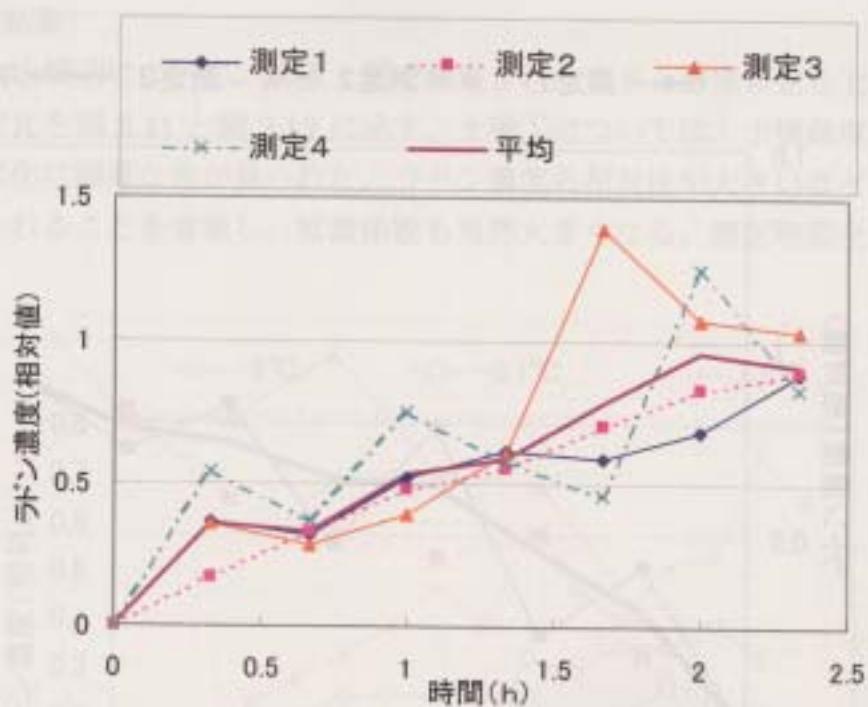


図 2.7 補正前の CH 2 のラドン濃度(相対値)

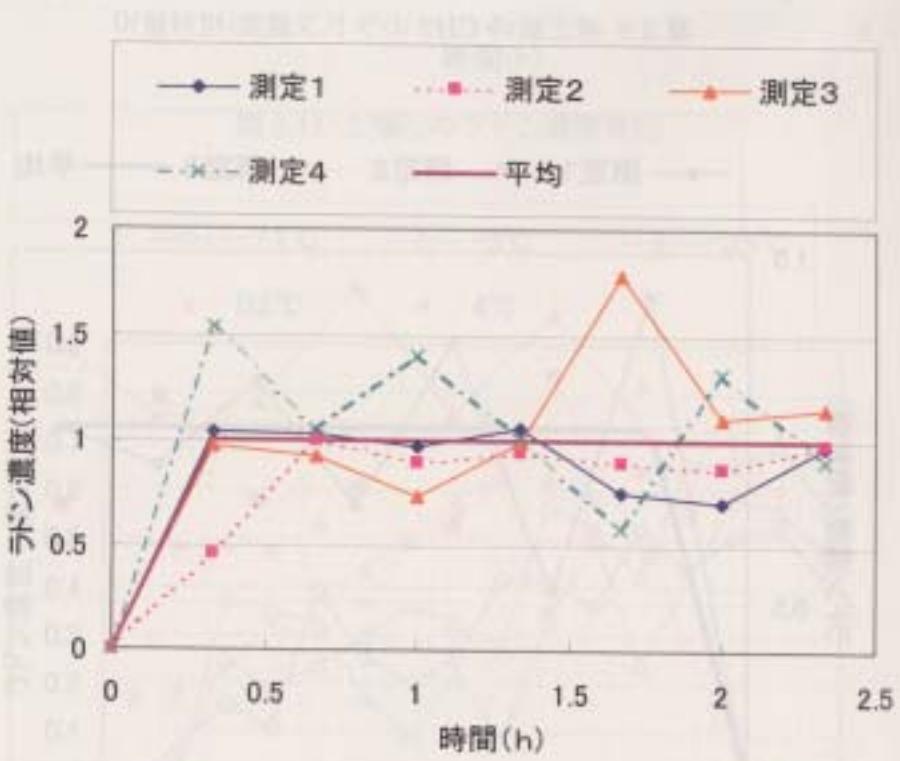


図 2.8 補正後の CH 2 のラドン濃度(相対値)

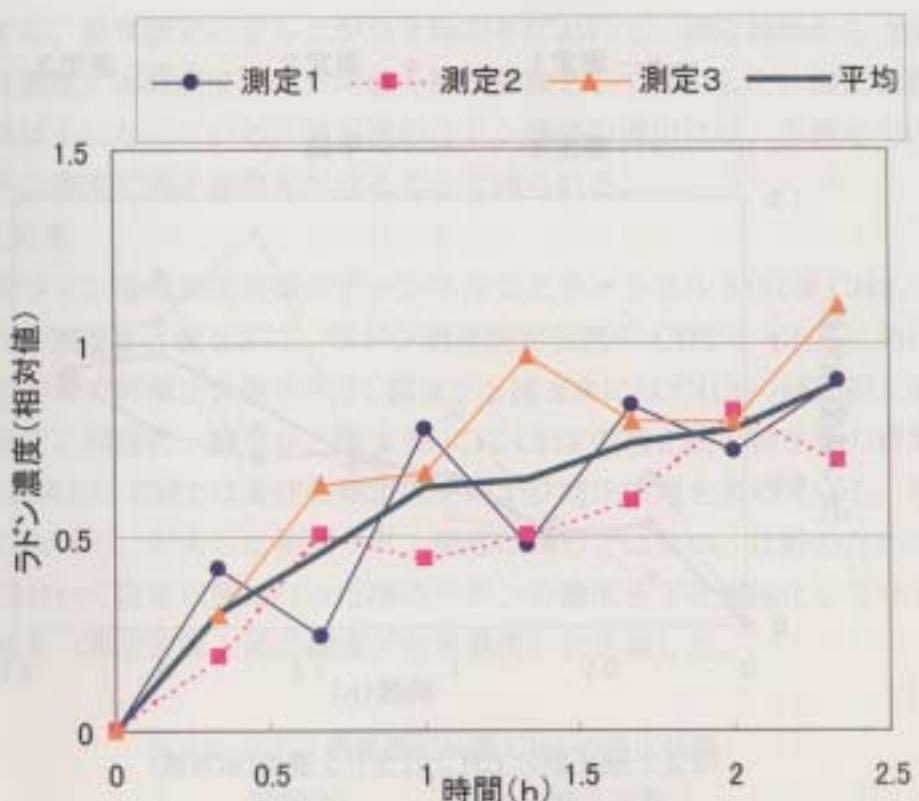


図 2.9 補正前の CH3 のラドン濃度(相対値)

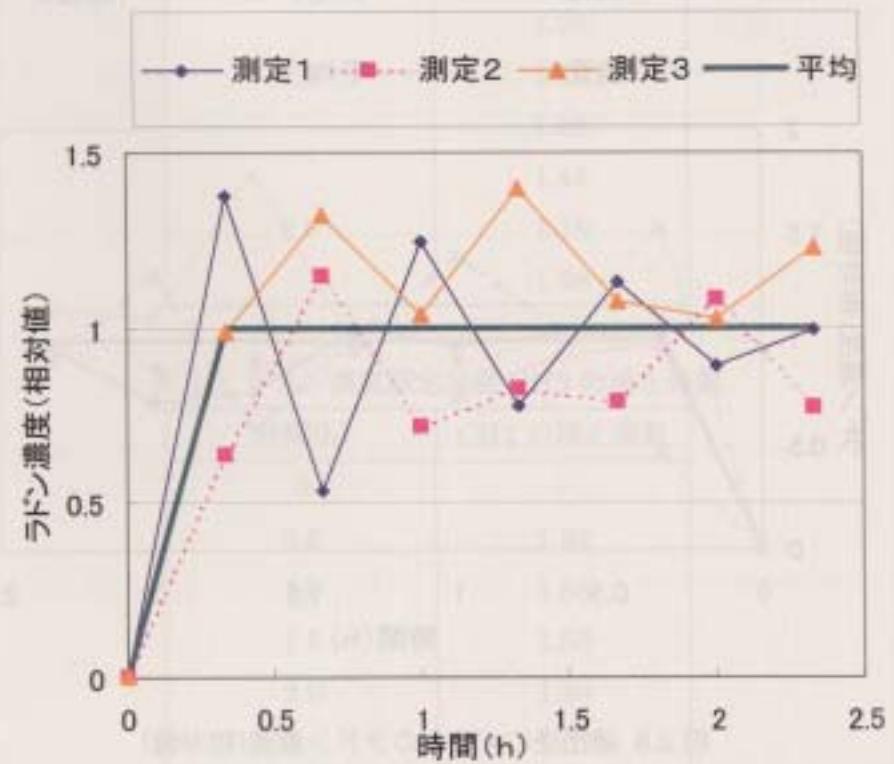


図 2.10 補正後の CH3 のラドン濃度(相対値)

#### (4) 測定結果

土壤①と土壤②について、装置上部で測定されたラドン濃度の立ち上がりを補正した相対比を図2.11と図2.12に示す。土壤①については、土壤温度によるラドン濃度変化に顕著な差が見られた。ラドン濃度の相対比が大きいほど拡散移動が早く行われることを意味し、拡散係数も当然大きくなる。測定時間全体にわた

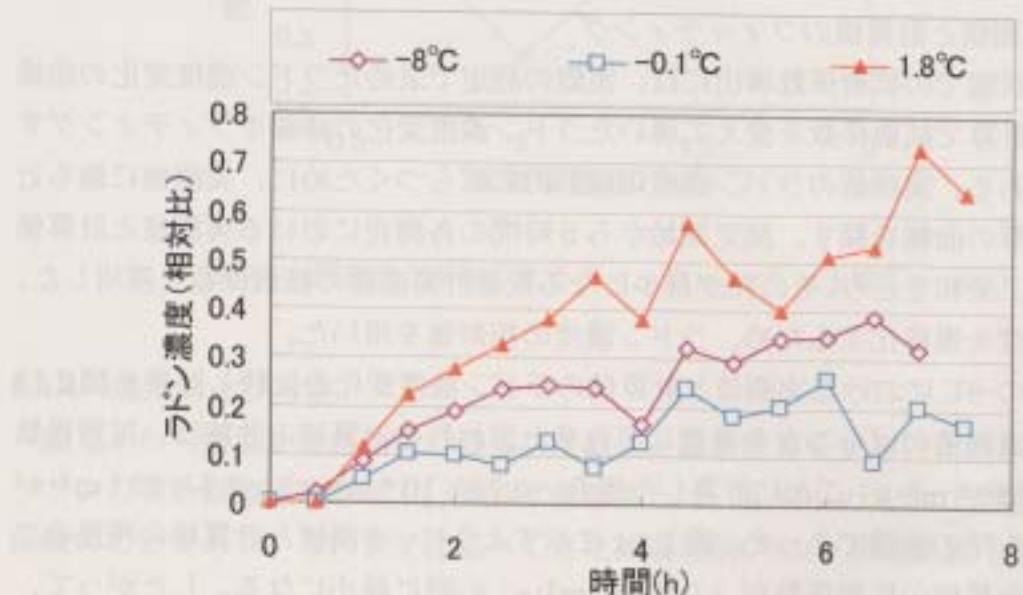


図2.11 土壌①のラドン濃度変化

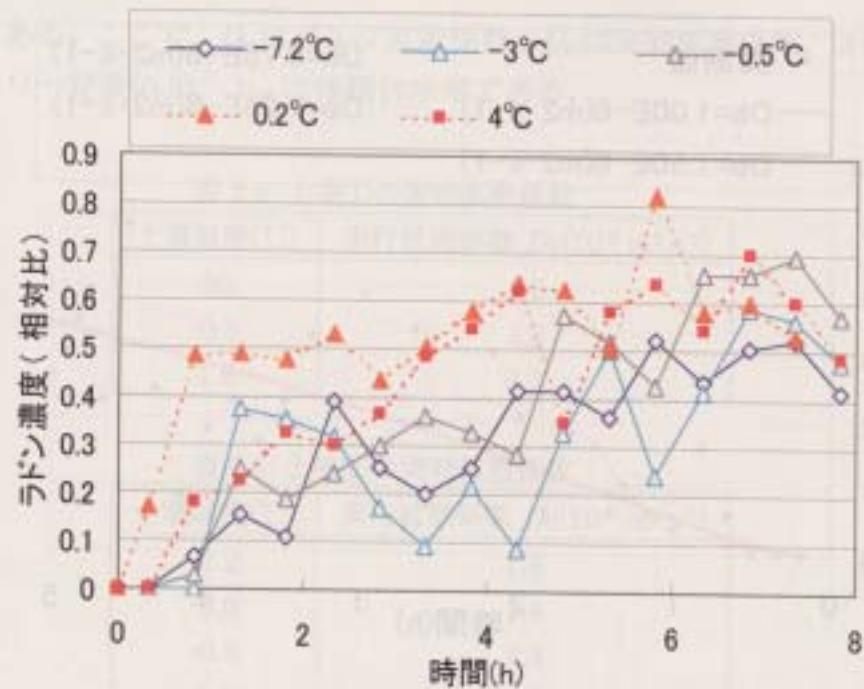


図2.12 土壌②のラドン濃度変化

って、 $1.8^{\circ}\text{C}$ 、 $-8^{\circ}\text{C}$ 、 $-0.1^{\circ}\text{C}$ の順でラドン濃度の相対比が大きく、拡散係数の大きさもこの順になる。それに比べて土壌②では、土壌①ほど明確な差は現れていない。それでも、各土壤温度に対してラドン濃度の変化は見られた。ラドン濃度の変化の大きさ  $0.2^{\circ}\text{C}$ 、 $4^{\circ}\text{C}$ 、 $-0.5^{\circ}\text{C}$ 、 $-7.2^{\circ}\text{C}$ 、 $-3^{\circ}\text{C}$ の順であった。どちらの土壤についても、 $0^{\circ}\text{C}$ 以上では、 $0^{\circ}\text{C}$ 以下の場合より拡散が大きい結果となった。

### 2.3.3 実測値と計算値のフィッティング

各土壤状態での拡散係数導出には、実際の測定で求めたラドン濃度変化の曲線に、数値計算で拡散係数を変えて導いたラドン濃度変化の曲線をフィッティングする必要がある。実測値のラドン濃度は統計的にはらつくために、実測値に最も近い数値計算の曲線を探す。測定開始から5時間の各測定における実測値と計算値の残差の二乗和をとり、その和が最小になる数値計算曲線の拡散係数を採用した。ラドン濃度を規格化するため、ラドン濃度の相対値を用いた。

土壤①の $-8^{\circ}\text{C}$ における実測値と計算値のラドン濃度変化を比較し結果を図2.13に示す。実測値のばらつきを考慮して有意と思われる計算値の曲線は、拡散係数を  $0.25 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  ごとに計算した場合、 $0.75 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1} \sim 1.5 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  を代入した時の曲線であった。図2.14に示すように、実測値と計算値の残差の二乗和は、計算値の拡散係数が  $1.0 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  の時に最小になる。したがって、土壤①で $-8^{\circ}\text{C}$ における測定において、拡散係数は  $1.0 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  と決定した。

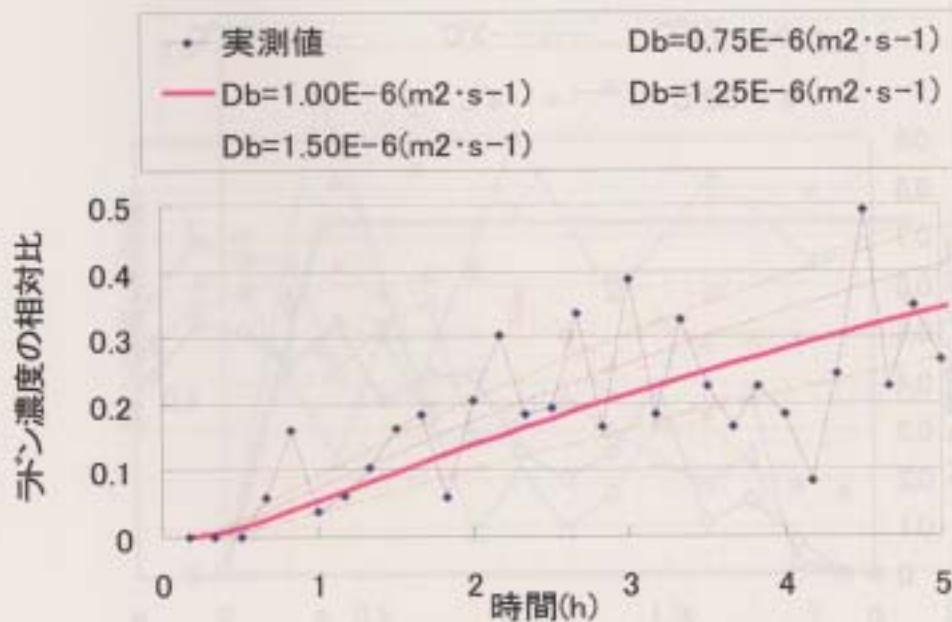


図2.13 実測値と計算値のラドン濃度変化 土壌①  $-8^{\circ}\text{C}$ )

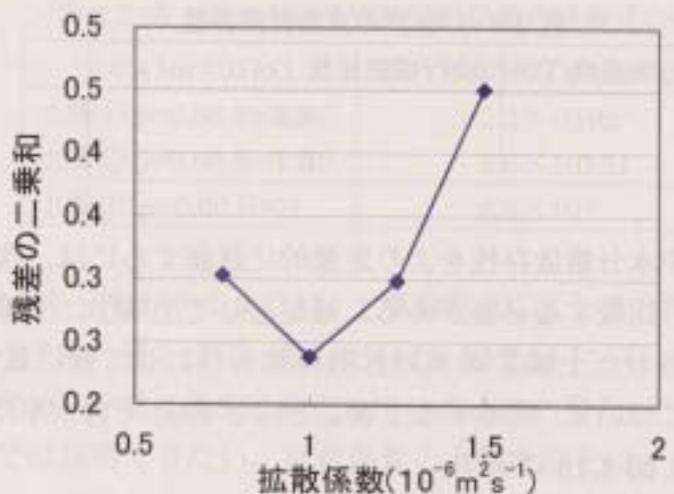


図 2.14 残差の二乗和によるフィッティング (土壌① -8°C)

#### 2.3.4 結果および考察

表 2.4 から表 2.6 に各測定で得られた結果と数値計算モデルの比較から導いたラドンの実効拡散係数を示す。実効拡散係数とは、土壌中の気体の空間内の拡散係数のことであり、これまでに述べてきた拡散係数(バルク拡散係数)とは

$$D_b = (a + L\eta_w)D_e \quad (2 \cdot 10)$$

の関係にある。ここで、 $D_b$  はバルク拡散係数、 $D_e$  は実効拡散係数、 $a$  は空隙率、 $L$  はヘンリイ一定数(0.3)、 $\eta_w$  は体積含水率である。

表 2.4 土壌①の実効拡散係数

土壌温度(°C)	実行拡散係数 $D_e(10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1})$
-8.0	1.6
-0.1	1.2
1.8	3.1

表 2.5 土壌②の実効拡散係数

土壌温度(°C)	実行拡散係数 $D_e(10^{-6} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1})$
-7.2	1.5
-3.0	1.4
-0.5	2.3
0.2	4.6
4.0	3.8

表 2.6 土壌②の実効拡散係数

土壌温度(°C)	実効拡散係数 $D_e(10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1})$
-20.	8.3
15.0	6.7

拡散係数の土壤中水分量依存性をより定量的に評価するには、含水率が異なる土壤を多く採取し、比較する必要がある。補足として土壤①、土壤②のほかに土壤②を完全に乾燥させた土壤②'の実効拡散係数も合わせて表に載せる。土壤②'の土壤パラメータについて、間隙率は土壤②と同じ 0.60 で含水率は 0 である。表 2.4~2.6 をまとめて図 2.15 に示す。

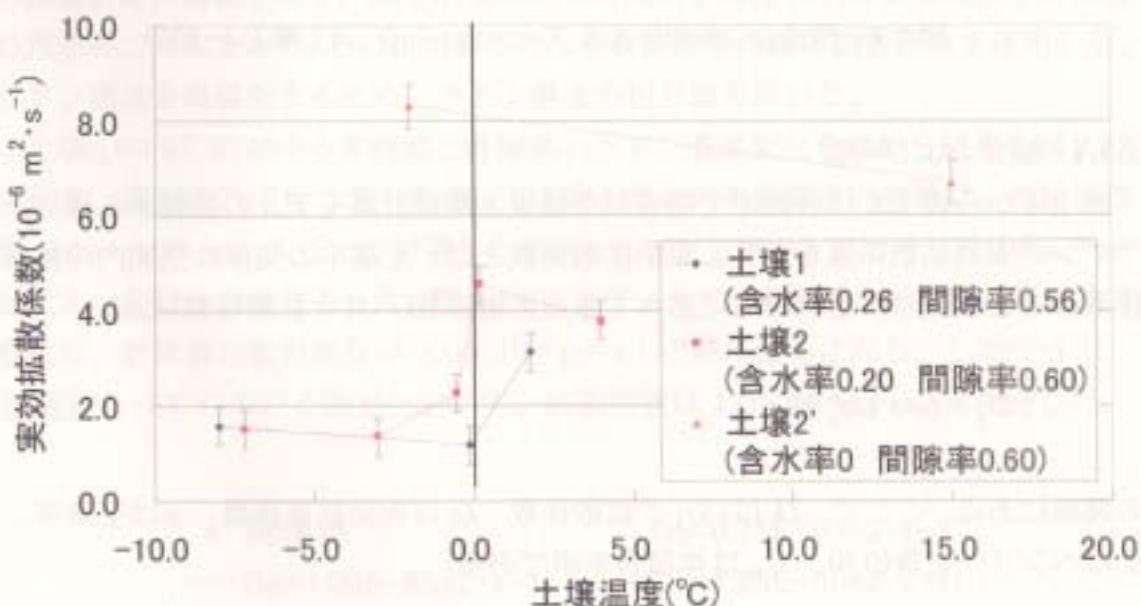


図 2.15 各土壤における実効拡散係数（実測値）の温度依存性

土壤中のラドンの実効拡散係数を、Rogers ら(1991)は常温で次の経験式で表現した。

$$D_e = D_0 p \exp(-6Sp - 6S^{14}p) \quad (2-11)$$

ここで、 $D_0$  は空気中のラドンの拡散係数( $1.1 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ )、 $p$  は間隙率、 $S$  は飽和含水率である。式 (2-11) に各土壤の  $p$  と  $S$  の値(土壤①では  $p=0.56$  と  $S=0.26$ 、土壤②では  $p=0.60$  と  $S=0.20$ 、土壤②'では  $p=0.60$  と  $S=0$ )を代入して求めた実効拡散係数の経験式の値を表 2.7 に示す。

表 2.7 各土壤における実効拡散係数の経験式の値

	実行拡散係数 $D_e(m^2 \cdot s^{-1})$
土壤①( $p=0.56, S=0.26$ )	$3.2 \times 10^{-6}$
土壤②( $p=0.60, S=0.20$ )	$2.6 \times 10^{-6}$
土壤②'( $p=0.60, S=0$ )	$6.6 \times 10^{-6}$

表 2.4～表 2.6 からも分かるように、土壤温度 0°C 以上での各土壤の実効拡散係数は経験式から求めた値とほぼ一致している。図 2.15 に示したように、実効拡散係数は土壤温度 0°C を境に急激に変化している。この変化はフィッティングの際に生じる誤差では説明できない。拡散係数の大幅な変化は、0°C 付近で水の状態が変化することと関係があるかもしれない。0°C 以下で土壤中の水分が凝固し、体積が 1.1 倍程度増える。この結果、土壤中の間隙が減り、土壤間隙中のラドン拡散が妨げられると予想される。含水率 0 の土壤②' では、土壤温度に関わらず拡散係数はほぼ一定であることからも裏付けられる。

水分の凝固により土壤の間隙が減少することだけを考えると、実効拡散係数は式(2-11)によって、次のように表される。凍結土壤中の間隙率は、固相の割合として水分が固相に変わって増加した分を足して  $p'=1 - [(1-p) + p \times 1.1]$  と定義できる。式(2-11)に  $p'$  と  $S$  を代入すると、土壤中水分の凝固による間隙体積減少のみを考慮した実効拡散係数が求まる。この結果、土壤①では  $1.9 \times 10^{-6} m^2 \cdot s^{-1}$ 、土壤②では  $2.6 \times 10^{-6} m^2 \cdot s^{-1}$  となった。0°C 以上と 0°C 以下で、それぞれの土壤における経験式の値と実測値を比較した結果を図 2.16 に示す。

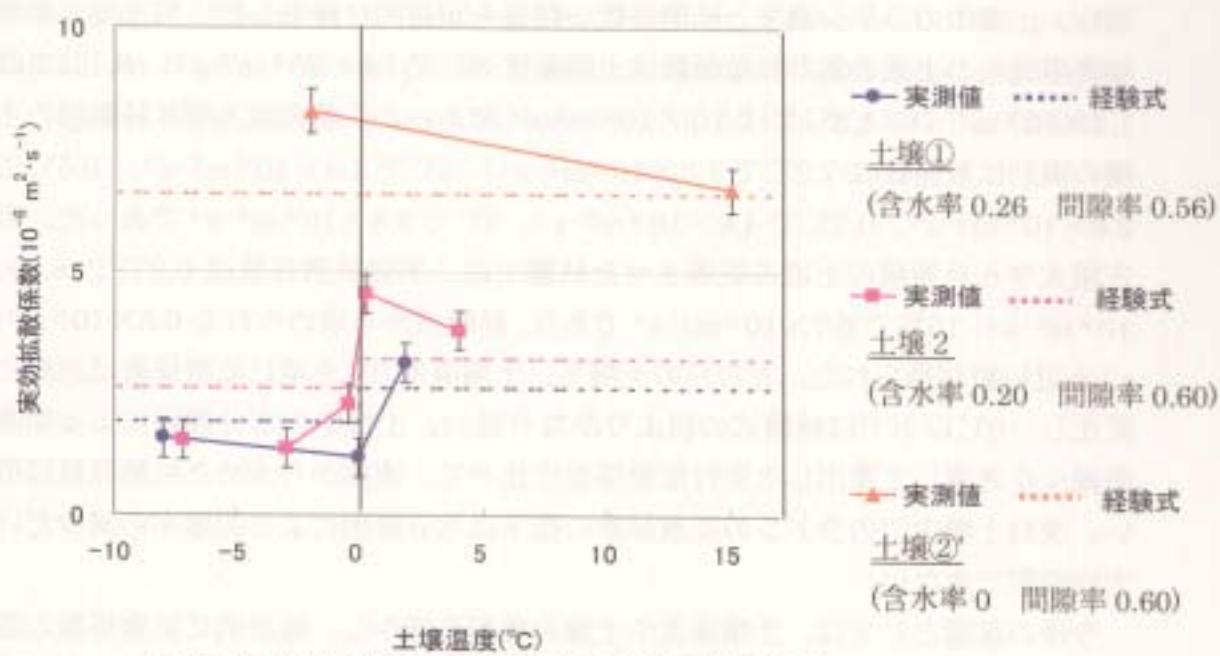


図 2.16 実効拡散係数の実測値と経験式の値の比較

土壤温度 0°C 以下に式(2-11)を適応させた場合、実効拡散係数の経験式の値は図 2.16 の破線のようになった。式(2-11)は間隙率だけで実効拡散係数を決めているため、0 °C 以下と以上で一定の値となり、0 °C を境としたステップ状に変化する。実測値はそのように変化していない。例えば、土壤②や土壤②'の結果に見られるように、温度が 0 °C 以上では実効拡散係数が 0 °C 付近の値より下がる傾向を示している。土壤②では測定値は誤差範囲内にあるため、実際に実効拡散係数が下がっているかどうかの判別は難しい。下がる原因の一つに、0 °C 付近では土壤中に固相と液相が混在し、固相のみあるいは液相のみの場合より間隙率を大きくする可能性が推測される。土壤中水分の状態と間隙率の関係を今後詳しく調べる必要がある。一方、土壤②'でも実効拡散係数が下がる傾向を示した。土壤②'は含水率が 0 であるため、土壤中の水分状態と間隙率の関係で説明できない。気体の分子拡散を考えても、気体の拡散速度は(絶対温度)<sup>1/2</sup> に比例するため、理論的には拡散係数は温度上昇と共に増大する。土壤②'の結果の実効拡散係数が下がる理由は現在のところ説明できない。土壤①と土壤②に関して、0 °C 以下で実測値と経験式の値を比較すると、実測値はどちらとも経験式の値より低い。実際の凍結土壤中では凝固した土壤水分以外にもラドンの拡散を妨げる要素が考えられる。

## 2. 4 まとめと今後の課題

土壤温度や土壤パラメータを制御しながら凍結土壤中を拡散するラドン濃度を定量的に評価できる装置を開発した。数値計算を用いて土壤中のラドン輸送を再現し、土壤中のラドン濃度と拡散係数の関係を定量的に評価した。名古屋大学農学部用地内の土壤の実効拡散係数は土壤温度 -8°C で  $1.6 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、-0.1°C では  $1.2 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、1.8°C では  $3.1 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  であった。名古屋大学 6 号館横の土壤の実効拡散係数は -7.2°C で  $1.5 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、-3°C で  $1.4 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、-0.5°C で  $2.8 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、0.2°C で  $4.6 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、4°C で  $3.8 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  であった。名古屋大学 6 号館横の土壤を乾燥させた状態では、実効拡散係数は -0.2°C で  $8.3 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、15°C で  $6.7 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  であり、経験式から求められる  $6.6 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  と近い値が得られた。どちらの土壤も、土壤温度 0°C を境に拡散係数は急激に変化し、0°C 以下では経験式の値よりかなり低い。土壤中の水分凝固による間隙率減少を考慮して算出した実行拡散係数に比べて、実測から求めた拡散係数は低い。凍結土壤中でのラドンの拡散係数の低下は水分凝固による間隙率の減少だけでは説明できない。

今後の課題としては、土壤温度や土壤の種類を増やし、統計的に拡散係数の温度依存性を扱う必要がある。土壤凍結時や凍結前後の水の状態を把握するととも

に、拡散係数に与える影響を定量的に評価する必要がある。土壤温度が常温の場合と、凝固が完全に終ってそれ以下の温度ではとともに拡散係数に変化がないため、土壤凍結時の空間構造についても把握する必要がある。

## 参考文献

- 青島弘幸：名古屋大学工学研究科原子核工学専攻修士論文、(2003).
- Folkerts, K. H. et al.: "An experimental study on diffusion and exhalation on  $^{222}\text{Rn}$  and  $^{220}\text{Rn}$  from building materials", Rad. Prot. Dosim., Vol.9, p.27-34 (1984).
- 中野政詩、他：土壤環境物理測定法：東京大学出版会 (1995).
- Nelson, R. W. et al.: "Radon control by multiplayer earth barriers", U mill Tailing Management, pp.79-88 (1980).
- Rogers, V. C. and Nielson, K. K.: "Correlations for predicting air permeabilities and  $^{222}\text{Rn}$  diffusion coefficients of soils", Health Phys., Vol.61, p.225-230 (1991).
- Rogers, V. C. et al.: "Radon diffusion coefficient for residential concretes", Health Phys., Vol.67, p.261-265 (1994).
- Stranden, E. et al.: "The influence of moisture and temperature on radon exhalation", Rad. Prot .Dosim., Vol.7, p55-58 (1984).
- Wilkening,M.: Radon in the Environment. Elsevier, Amsterdam, 1990, p43-58
- Yamamoto, S. et al.: "Development of an underground radon detector using an optical fiber", IEEE Trans. On Nucl. Sci., Vol.50, No.4, p.987-990 (2003).



## 第3章 覆土材によるラドン散逸抑制効果の評価

### 3. 1 はじめに

覆土によるラドン( $^{222}\text{Rn}$ )散逸の抑制を行う場合、覆土材の性質によるラドン散逸率の違いに加えて、地滑りや生態系への影響などの環境保全面、社会・経済面など多角的な視野で総括的な検討が必要である。現在、膨潤性が高く、強い水分ポテンシャルを持つベントナイトが覆土に適していると考えられている。ベントナイトは気体の透過を低く抑え、環境に悪影響を及ぼさない。しかし、ラドン散逸の抑制に、ベントナイトによる覆土をどの程度の厚さで施せば良いかについては、十分な知見は得られていない。

この章では、土壤中のラドンの挙動を明らかにすること、およびベントナイトを用いて覆土を施した場合のラドン散逸抑制効果を評価し、鉱山の捨石堆積場に覆土を施す際の適切な条件についての必要な知見を得ることを目的とする。名古屋大学構内で、地中ラドン濃度連続測定システムを用いて約2ヶ月間にわたる土壤中ラドン濃度の連続測定と、地表面ラドン散逸率の測定を行った。モデル計算を行い、土壤中ラドン濃度と地表面ラドン散逸の変動要因を明らかにした。

### 3. 2 ベントナイト覆土実験

#### 3.2.1 実験の概要

地表面からのラドンの散逸現象にはさまざまな要素が影響を及ぼす。それらは大きく、(1) 土壤のラドン生成率、(2) 土壤中のラドン拡散係数、の2つに分けられる。これらの要素は、さらに細かい要因の影響を受けて変化する。土壤中ラドン濃度は、その土壤が含有するラジウム( $^{226}\text{Ra}$ )量や土壤間隙へのラドン放出量のエマネーションパワー等に大きく影響される。ラドン拡散係数は、土壤の粒径や間隙率の他に、含水率により大きく変化する(Rogers et al., 1991)。地表面からのラドン散逸率を評価するためには、実際の散逸率の測定以外に土壤の物理パラメータや気象パラメータを把握する必要がある。

本研究では観測場所を名古屋大学構内6号館周辺の土壤として、地表面からのラドン散逸率の測定と土壤中ラドン濃度の連続測定を行う。ベントナイト覆土によるラドン散逸率の変化および土壤中ラドン濃度の変化を調べるために、

- (1) 覆土前の土壤中ラドン濃度とラドン散逸率の測定(約1カ月)
- (2) ベントナイト覆土

### (3) 覆土後の土壤中ラドン濃度とラドン散逸率の測定（約 1 カ月）

という手順で約 2 カ月間継続して観測を行った。ベントナイトを観測場所に 3m × 3m の範囲で、厚さ 5cm 覆土した。ベントナイトはクニゲル V1（クニミネ工業(株)）を用いた。クニゲル V1 は Na 型ベントナイトに分類され、水との親和性の高い特徴を持つ。覆土を行う際には、あらかじめベントナイトに水を含ませて、含水率 0.6~0.7 程度にしてから土壤の表面に覆土した。

#### 3.2.2 土壤中ラドン濃度測定

##### (1) 測定法について

ラドン検出器は測定法の違いによりアクティブ法とパッシブ法に区分される。アクティブ法では、ポンプなどの動力を用いて空気を採取した後にラドン濃度を測定する。パッシブ法は長時間の積分測定に使用される。Tanner(1991)は、パッシブ法によるラドン濃度測定では、土壤の性質によって測定値に誤差を生じる危険性があることを報告している。Ruckerbauer 等 (2001) は種々の測定法を用いて粒子質土壤と粘土質土壤でラドン濃度を測定し、粘土質土壤ではアクティブ法とパッシブ法で得られるラドン濃度に約 2 倍の違いがあると報告している。

土壤空気中のラドン濃度を測定する際の必要事項を以下に列挙する。

- (1) 検出器の湿度依存性をできる限り抑える。
- (2) 土壤空気中のラドンの挙動が連続的に観測可能である。
- (3) 設置の時に土壤環境を著しく擾乱しない。
- (4) 深さごとに同時測定が可能である。

上記の要求を満足する地中ラドン濃度連続測定システム (Under Ground Radon Monitoring System、以下 UGRMS) (Yamamoto et al., 2001) を使用して、土壤空气中ラドン濃度測定を行う。UGRMS による測定値を別の測定法でも確認するために、サンプリング管から直接土壤空気を小型ポンプで採取し、シンチレーションセル (AB-5; Pylon) を用いて土壤中ラドン濃度の測定も行う。

##### (2) UGRMS の原理

UGRMS は地中ラドン検出器、SCA & Latch 回路、デジタル入出力カードを取り付けたノート型パソコンコンピュータにより構成されている。装置の構成を図 3.1 に示す。検出器は直径 20mm のロッド型で全長 1.1m である。検出器先端には容量約 4mL のシンチレーションセルが内蔵されている。光電子増倍管 (PMT) と ZnS(Ag)シンチレータを組み合わせることでラドンとラドン壊変生成物 ( $^{218}\text{Po}$ ,  $^{214}\text{Po}$ ) からの  $\alpha$  粒子を検出する。検出器の先端部を図 3.2 に示す。先端部は PMT (H3164-10; 浜松ホトニクス製)、ZnS(Ag)シンチレータ、気水分離膜

(Celgard®2400; Hoechist Celanese 製)で構成される。ZnS(Ag)シンチレータは先端部内壁に薄く塗布してある。PMT を保護するパイプは高電圧による放電を避けるためにベークライトを用いている。土壤中の水や微細な土粒子のシンチレーションセル内部への侵入を防ぐため、土壤空気の取り込み孔に気水分離膜を設置している。土壤中に検出器を差し込む際に気水分離膜を傷つけないように、検出器先端部を金属網と丸めたテフロン繊維で保護している。

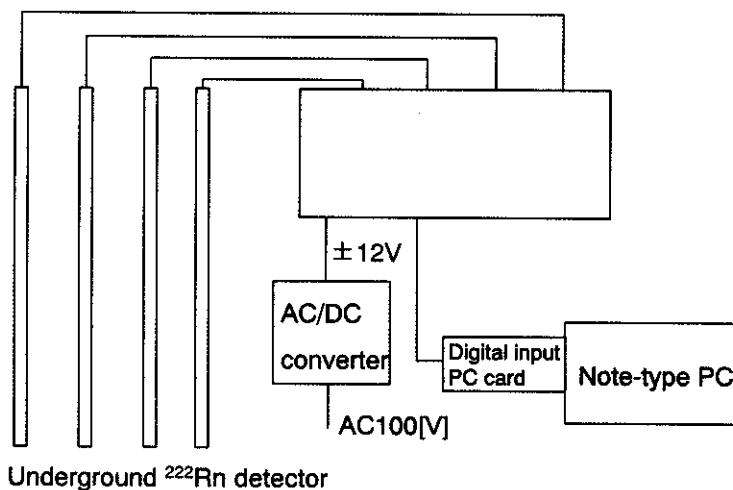


図 3.1 UGRMS 装置構成

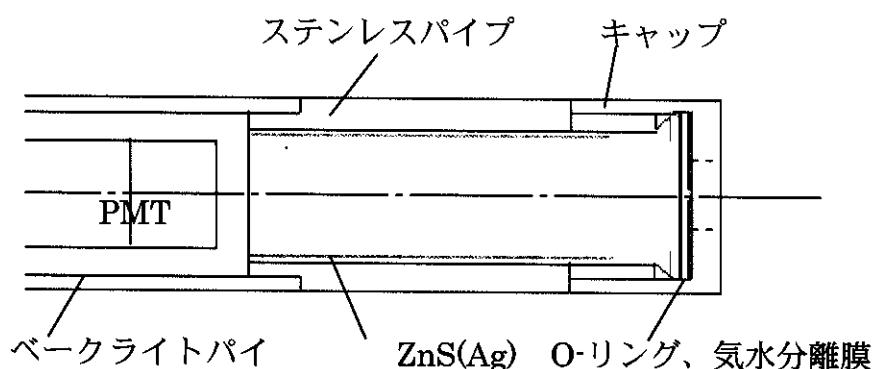


図 3.2 UGRMS 検出器先端のシンチレーションセル

### (3) 較正方法

較正は以下の手順で行った。247.8L の大型チェンバに UGRMS の検出器部分を挿入する。チェンバ内に高濃度ラドンを封入する。チェンバと電離箱をつなぎ、空気をポンプで循環させる。系内のラドン濃度を電離箱によって測定する。UGRMS のアルファ・カウント数からラドン濃度へは次の式で変換する。

$$Q = C \times C_f \quad (3-1)$$

ここで、 $Q$ はラドン濃度 ( $\text{Bq m}^{-3}$ )、 $C$ は計数率 (cph)、 $C_f$ は較正定数である。電離箱で得られるラドン濃度と UGRMS の計数率から、較正定数を決定する。UGRMS の測定では、検出器セル内のラドンは壊変生成物と平衡状態であると仮定して、ラドン濃度を算出する。

今回の測定では、UGRMS と同じ深さ 60cm の土壤空気をサンプリング管を用いて採取し、シンチレーションセルで計測した。ラドン濃度と UGRMS の計数率の比較から、較正定数を求めた。UGRMS の計数率とサンプリング空気のラドン濃度が良い相関を見せたため、サンプリング空気による較正定数を採用した。

#### (4) 検出器の設置

測定場所の土壤にドリルで直径 2cm、深さ 60cm の穴を開ける。このとき、できるだけ測定環境を乱さないようにする。その穴に検出器を挿入する。サンプリング管も同様に 60cm の深さに埋めた。測定の概略図を図 3.3 に、装置を設置した様子を写真 3.1 にそれぞれ示す。写真 3.1 はベントナイトを覆土した後の様子を示す。観測サイトの中央に検出器を埋めた。ノートパソコンを納めた箱は、観測サイトの地表面に影響が出ないように、約 2m 離れた場所に設置した。

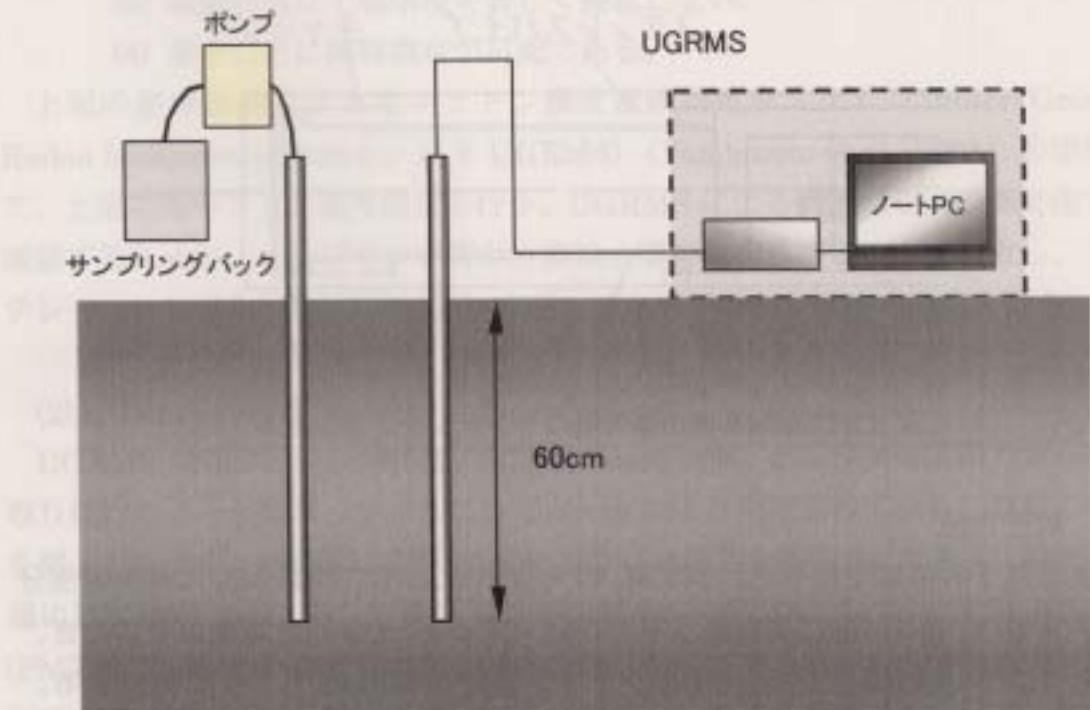


図 3.3 土壤中ラドン濃度測定概略図



写真 3.1 観測場所に UGRMS を設置した様子

### 3.2.3 地表面からのラドン散逸率の測定

#### (1) 測定法について

土壤表面からのラドン散逸率を測定する方法としては、蓄積法、静電捕集法、通気法、吸着法、垂直勾配法、土壤中濃度勾配法(Radon Transport, 1981)などがある。野外実験では比較的簡便に測定できる蓄積法が良く用いられる。蓄積法は、チャンバの設置、ラドンの蓄積、チャンバ内の空気の採取、ラドン濃度の測定、と一連の作業を行う必要がある。連続して散逸率を観測するには難しい。本研究では、通気法によりチャンバ内空気のラドン濃度をパルス電離箱方式のラドンモニタ(AlphaGUARD PQ2000, Genitron Instruments, Germany)で測定した。

#### (2) AlphaGUARD を使用した地表面ラドン散逸率測定法

図 3.4 に本実験におけるラドン散逸率測定の概略図を示す。実験で使用したチャンバは金属製の円筒型で、底面の直径 28cm、高さ 8cm である。側面には 2 つのサンプリング口がある。サンプリング口からポンプにより空気を吸引し、チャンバ内の空気を AlphaGUARD へ流入させる。もう一方のサンプリング口を開口しておく。そこから周辺空気が流入する。測定の際にはトロン( $^{220}\text{Rn}$ )の影響を除去する必要がある。トロンは半減期が 55.6 秒のラドンの放射性同位体である。

Lehmann 等 (2004) は、チャンバ内の空気をポンプで吸引し、経路内に 1 台目の AlphaGUARD、 $^{220}\text{Rn}$  壊変用タンク、2 台目の AlphaGUARD と設置し、ラドンおよびトロンの散逸率を測定している。本実験では、トロンの影響を除去するため、チャンバと AlphaGUARD を直径 18mm、長さ 15m のホースで繋い

だ。AlphaGUARD の内臓ポンプを用いて流量  $500 \text{ mL min}^{-1}$  で空気を吸引すると、約 9 分間の遅れとなる。このとき、トロンの影響は 1% 以下になる。

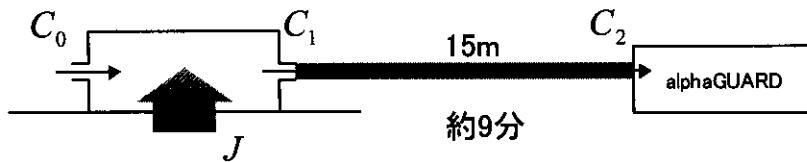


図 3.4 散逸率測定概略図

### (3) ラドン散逸率の算出法

蓄積法によるラドン散逸率は次式で表すことができる。

$$J = \frac{\Delta C \cdot V}{t \cdot S} \quad (3-2)$$

ここで、 $J$  はラドン散逸率 ( $\text{Bq m}^{-2} \text{s}^{-1}$ )、 $\Delta C$  は増加したラドン濃度 ( $\text{Bq m}^{-3}$ )、 $V$  と  $S$  はチャンバの体積 ( $\text{m}^3$ ) と底面積 ( $\text{m}^2$ )、 $t$  はチャンバ設置時間 (s) である。

AlphaGUARD を用いた通気法でも、チャンバ内のラドン濃度がどれだけ上昇したかを測定することで、ラドン散逸率を評価する。図 3.4 に示す  $C_1$  と  $C_2$  の濃度はそれぞれ次式で表すことができる。

$$\frac{dC_1}{dt} = \frac{JS}{V} + C_0 L - C_1 L - \lambda C_1 \quad (3-3)$$

$$\begin{aligned} C_1 &= \frac{1}{\lambda + L} \left\{ \frac{JS}{V} + C_0 L - \left( \frac{JS}{V} - \lambda C_0 \right) \exp\{-(\lambda + L)t\} \right\} \\ C_2 &= C_1 \exp(-\lambda t_s) \\ &= \frac{\exp(-\lambda t_s)}{\lambda + L} \left\{ \frac{JS}{V} + C_0 L - \left( \frac{JS}{V} - \lambda C_0 \right) \exp\{-(\lambda + L)t\} \right\} \end{aligned} \quad (3-4)$$

AlphaGUARD では 10 分間隔で測定値が蓄積されていくため、10 分の平均値としてラドン濃度が求まる。この平均値を  $C_2$  の積分値とし、散逸率  $J$  を求める。

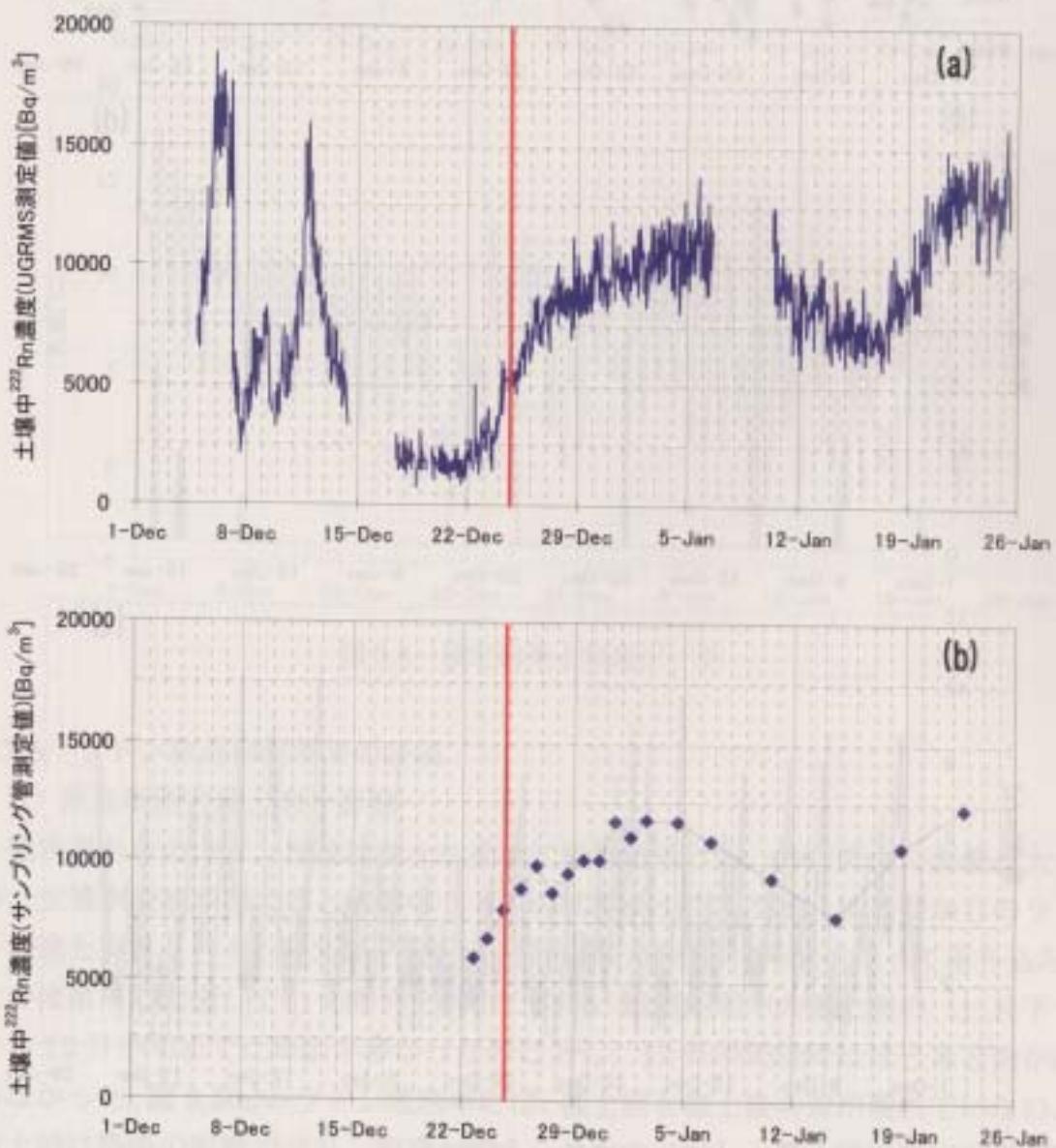
#### 3.2.4 測定結果と考察

##### (1) 測定結果

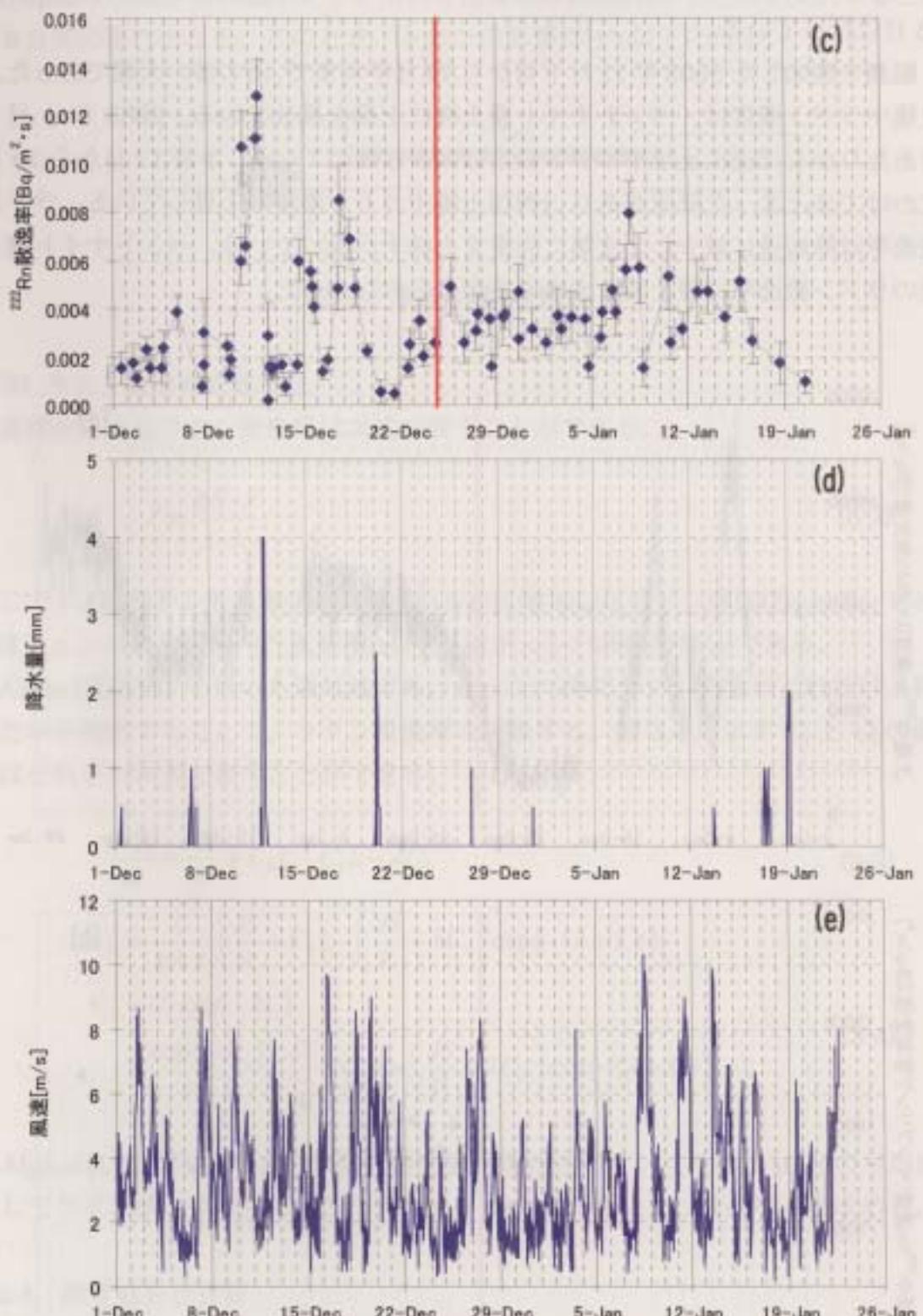
図 3.5 に測定期間中の(a) 土壌中ラドン濃度 (UGRMS による測定値)、(b) 土壌中ラドン濃度 (サンプリングによる測定値)、(b) 地表面ラドン散逸率、(d) 降水量、(e) 風速、(f) 気圧および(g) 気温の変動を示す。観測期間中の気象データは名古屋地

方気象台の1時間毎の測定値である。ペントナイトによる覆土は2003年12月25日に行っている。

観測を開始した2003年11月下旬から12月中旬まで、雨の多い天候であった。土壤中ラドン濃度は、ペントナイト覆土後に上昇を見せている。2003年1月5日あたりからは逆に土壤中ラドン濃度は減少し始めている。1月17日から19日にかけてまとまった降雨があり、再び土壤中ラドン濃度は上昇している。ラドン散逸率は降雨後に減少し、次第に回復する様子が現れている。ペントナイト覆土後のラドン散逸率は覆土前と大きく差が見られなかった。



(図3.5 つづく)



(図 3.5 つづく)

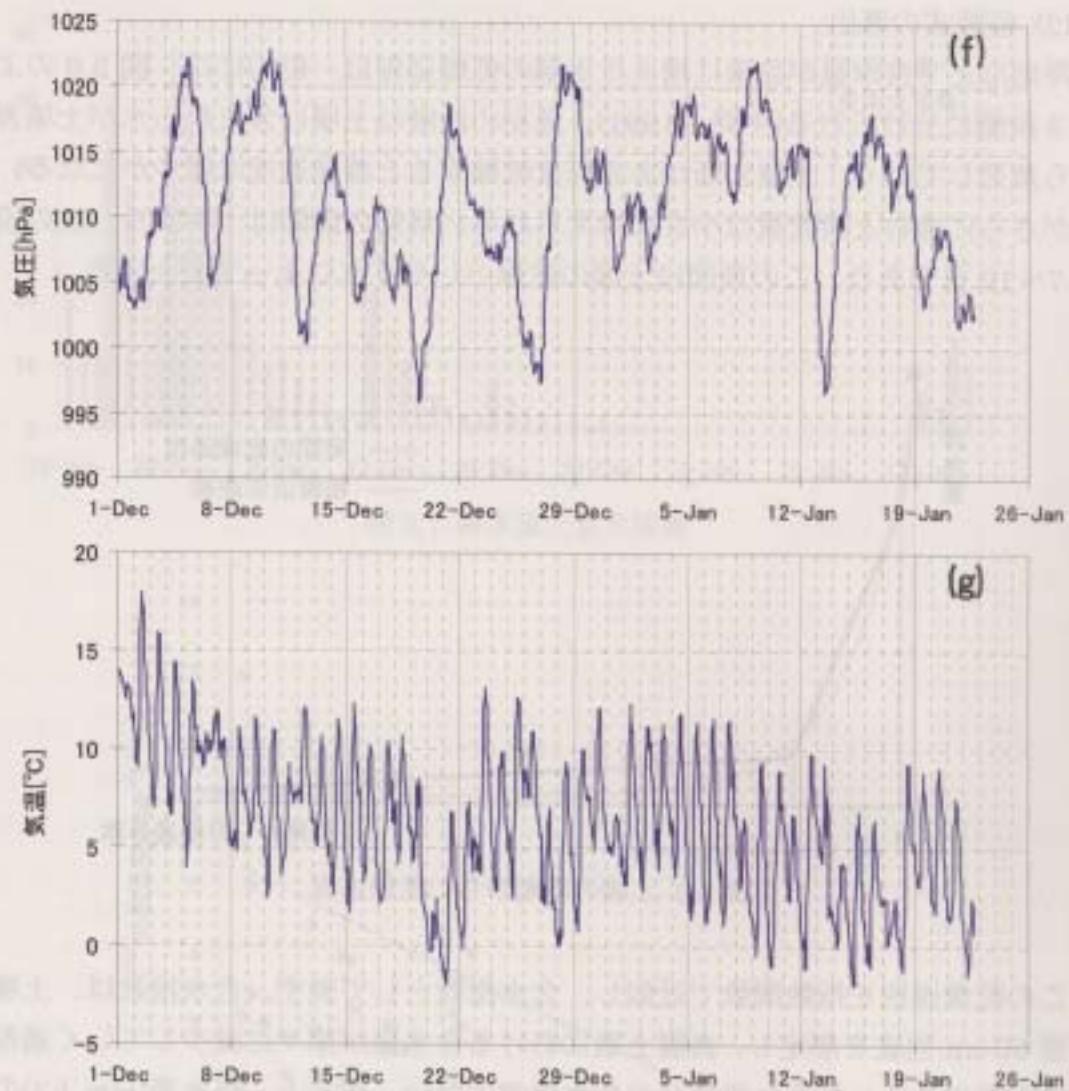


図 3.5 測定結果と気象データ

### 3.2.5 ラドン散逸抑制効果の評価

#### (1) 散逸率測定値と雨の影響

地表面からのラドン散逸は様々な要素に影響を受ける。特に降雨の影響は大きい。土壤水分量が増えると土壤中ラドンの拡散が小さくなり、地表面からのラドン散逸も抑えられる。図 3.5(c)のラドン散逸率の測定値は降雨によって落ち込み、その後徐々に回復していく様子を示している。観測期間中の覆土前の 11 月下旬から 12 月中旬までに降雨が多かったのに対し、12 月中旬以降はほとんど雨が降らなかった。図 3.5(c)のラドン散逸率には、覆土前と覆土後の差が現れていない。覆土前は降雨の影響でラドン散逸が抑えられたのに対し、覆土後は降雨の影響を受けていなかった。今回行ったペントナイト覆土による散逸率の抑制効果を評価するために、降雨の影響を考慮に入れたラドン散逸率の経験式を導入する。

## (2) 経験式の導出

降雨などで含水量が急激に増えた土壤の乾燥過程は一般的には、図 3.6 のように 3 段階に分けられる(中野、1991)。最初の段階は土壤に含まれる水が土壤表面から蒸発していく。土壤表面がある程度乾燥すると蒸発速度は緩やかになる。乾燥がさらに進むと蒸発量は小さく抑えられる。最初の段階は 1~2 日、次の段階は 7~10 日であり、この期間は土壤の乾燥のしやすさによって変化する。

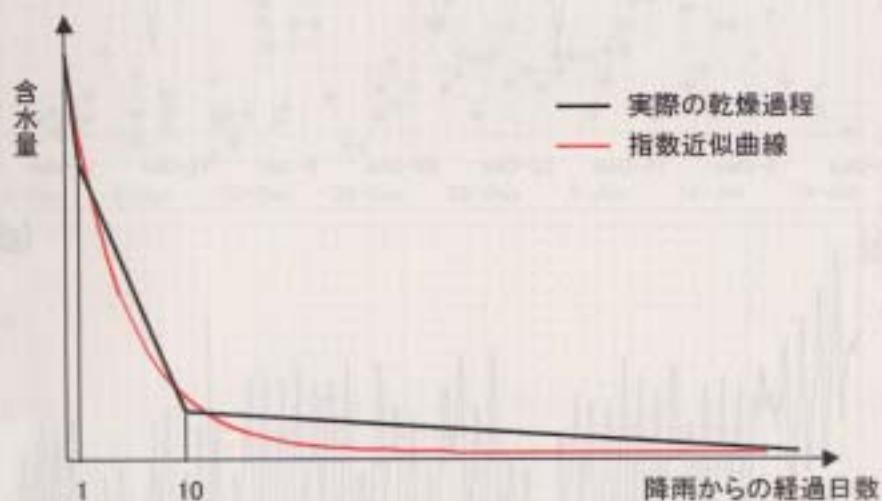


図 3.6 土壤の降雨からの乾燥過程

この乾燥過程を指数関数で近似し、含水指数として表す。含水指数は、土壤の表層 50 cm 程度を想定し、表層土壤における含水量が徐々に減少していく過程を表す指数である。厳密な意味での含水量ではない。便宜上、降水量( $\text{mm h}^{-1}$ )の数値をそのまま用いて含水指数を表す。含水指数は以下の式で表される。

$$\frac{dW}{dt} = P - \lambda W \quad (3-5)$$

ここで、 $W$ は含水指数、 $P$ は降水量、 $\lambda$ は乾燥の速さを表す時定数である。時定数 $\lambda$ は一般に気象条件や土壤の種類によって変化する。導入した含水指数  $W$ は、降雨によって減少したラドン散逸率の回復する早さから決定する。図 3.5(c)を見ると、ラドン散逸率は 2 日程度で降雨前の 50%まで回復している。この結果より、含水指数  $W$ が半減する時間を 2 日とし、

$$\lambda = \frac{\ln(2)}{2} \quad [\text{d}^{-1}] \quad (3-6)$$

とする。観測期間中の日別降水量から含水指数を計算した結果を図 3.7 に示す。

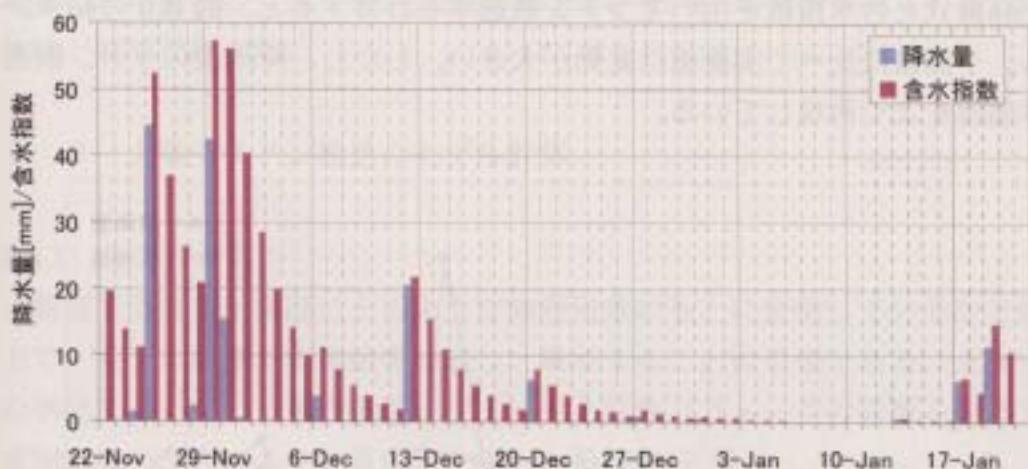


図 3.7 降水量と含水指数

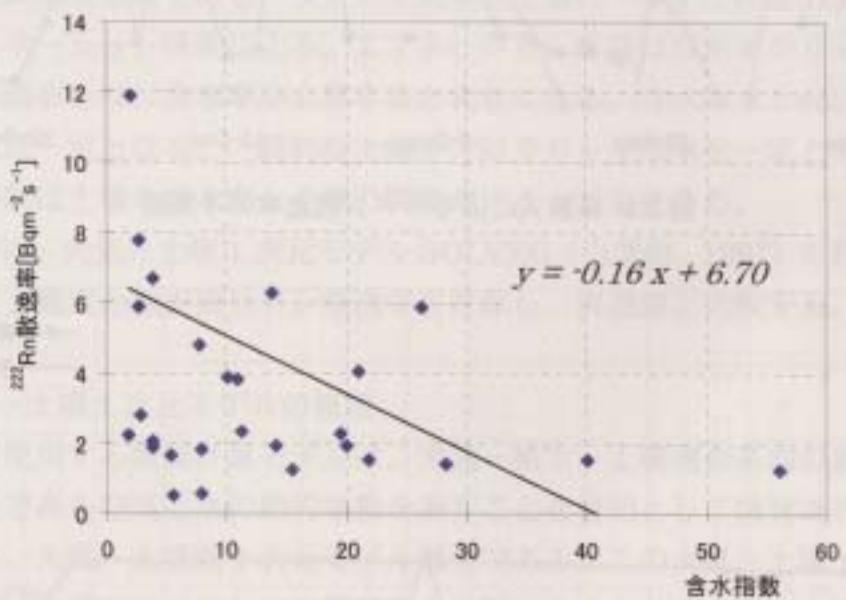


図 3.8 含水指数とラドン散逸率の相関図

含水指数  $W$  とラドン散逸率  $J$  ( $\text{mBq m}^{-2} \text{s}^{-1}$ ) が線形の関係にあると仮定して、散逸率  $J$  を次のように表す。

$$J = aW + b \quad (3.7)$$

ここで、定数  $a$  と  $b$  は、含水指数とラドン散逸率の実測値の相関から決定できる。図 3.8 より  $a = -0.16 \pm 0.05$ 、 $b = 6.7 \pm 0.9$  と定まり、以下の経験式が導かれる。

$$J = -0.16W + 6.7 \quad (3.8)$$

導出した経験式と含水指数を用いてラドン散逸率を計算すると、図 3.9 の結果が得られる。予測値に比べて実測値は変動が大きい。しかし、降雨後のラドン散逸率の上昇過程をよく再現している。

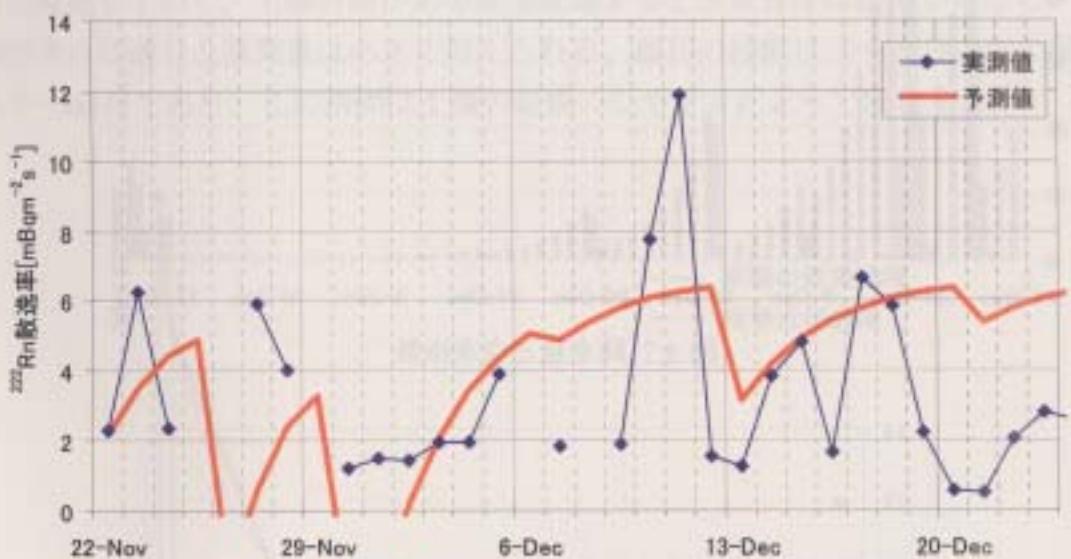


図 3.9 経験式によるラドン散逸率の予測値

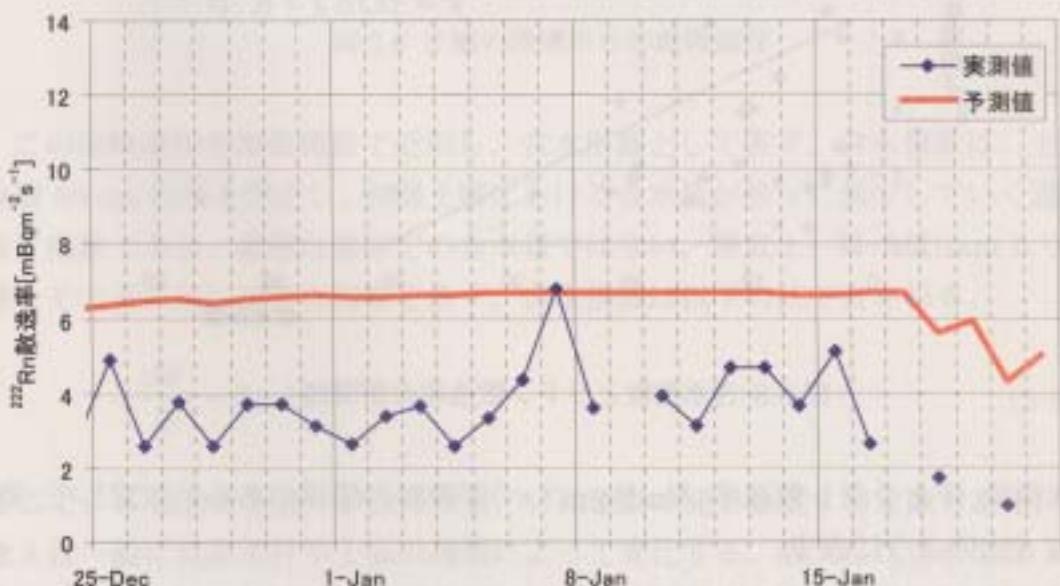


図 3.10 経験式によるラドン散逸率の予測値

### (3) 実測値による抑制効果の評価

導出した経験式により、ベントナイト覆土を行わなかった場合の散逸率を求め、ベントナイト 5cm 覆土後の実測値との比較を行うことで、ラドン散逸率の減少を評価する。図 3.10 に予測値と実測値を示す。2003 年 12 月 25 日から 1 月 20 日

までの平均値として表すと、 $(2.9 \pm 1.0) \text{ mBq}^{-2}\text{m}^{-2}\text{s}^{-1}$  の減少が見られる。減少の割合は、45%であった。

### 3. 3 土壌中ラドン輸送のモデル計算

#### 3.3.1 モデル計算

観測する対象が実際にどのような物理現象のもとに変動しているかを確認する上で、モデル計算と実測値を比較し、検証することは重要である。土壌中ラドンの挙動について、土壌の物理パラメータと気象パラメータの影響を受けている。実測値をモデルによる計算値と比較し、検証を行う。

土壌中ラドンの挙動へ影響を及ぼす要素のうち、ラドン生成率と土壌中のラドン拡散係数が特に重要である。ラドン生成率は土壌の  $^{226}\text{Ra}$  含有量( $\text{Bq kg}^{-1}$ )とラドンのエマネーション係数による。エマネーション係数は含水率が  $0 \text{ vol vol}^{-1}$  のときに最小値をとり、含水率が上昇すると大きくなる。含水率  $0.1 \text{ vol vol}^{-1}$  以上になるとほぼ一定となる。一般的な土壌中ではラドン生成率を一定と考える。ラドン拡散係数は土壌の含水率と土壌の間隙率によって変化する。

本研究では、大気－土壌 1 次元モデル SOLVEG (山澤他、1997) を利用して、土壌中ラドン濃度と地表面ラドン散逸率を計算し、実測値と比較する。

#### 3.3.2 大気－土壌 1 次元モデルの概要

本研究で使用する数値計算モデルは、大気－植生－土壌複合系内の放射性核種輸送の媒体である空気と水の動的挙動を表すことを目的として開発された数値モデルのうち、大気－土壌間 1 次元モデル部分である。この大気－土壌 1 次元モデルによって、土壌中のラドンの拡散挙動を計算することができる。土壌中と大気中の熱、水、空気の変動を複合的に連動させ、大気－土壌間の物質輸送を計算する。計算中で考慮されるパラメータを図 3.11 に示す。日射量(W)、湿度(%)、気温(°C)、降水量( $\text{mm h}^{-1}$ )、風速( $\text{m s}^{-1}$ )はそれぞれ 1 時間毎の値であり、ラドン生成率( $\text{Bq m}^{-3} \text{ s}^{-1}$ )と間隙率( $\text{vol vol}^{-1}$ )は一定である。

#### 3.3.3 計算内容

不飽和土壌における土壌中ラドン輸送方程式は、鉛直下向きを正として、 $z$  方向を 1 次元で次のように表わされる。

$$\frac{\partial}{\partial t}((a+L\theta)C_a) = \frac{\partial}{\partial z}(aD_a \frac{\partial C_a}{\partial z}) - (a+L\theta)\lambda C_a + \lambda f\rho A_{ra} \quad (3.9)$$

ここで、気相率  $a(\text{vol vol}^{-1})$  と含水率  $\theta(\text{vol vol}^{-1})$  はそれぞれ時間的かつ空間的な関

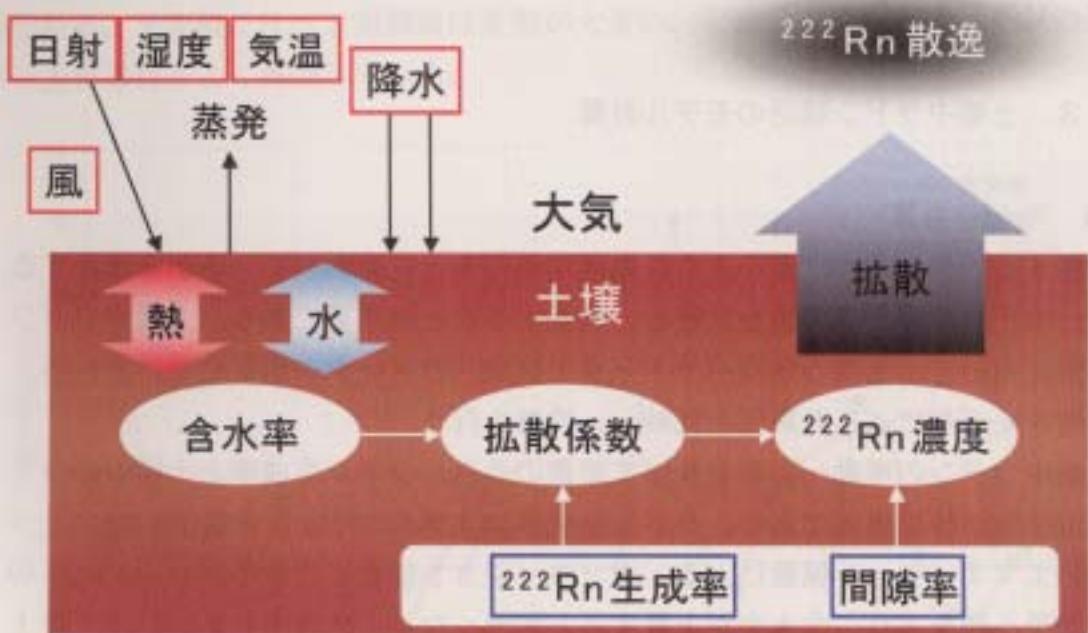


図 3.11 ラドン散逸に関するパラメータ

数である。 $L$ はヘンリー一定数であり、温度依存性がある。 $C_a$ は土壤中ラドン濃度( $\text{Bq m}^{-3}$ )、 $\tau$ は屈曲率、 $D_a$ は土壤中ラドン実効拡散係数( $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ )、 $\lambda$ はラドンの壊変定数( $\text{s}^{-1}$ )、 $\rho$ は間隙率( $\text{vol vol}^{-1}$ )、 $f$ はエマネーション係数、 $A_{\text{ra}}$ は $^{226}\text{Ra}$ 含有量( $\text{Bq kg}^{-1}$ )である。土壤中ラドン実効拡散係数 $D_a$ は、Rogers ら(1991)の経験式により、間隙率 $\rho$ ( $\text{vol vol}^{-1}$ )と含水率 $\theta$ から求められる。

土壤中の熱伝導、水分輸送の計算を行い、ラドンの輸送を評価する。モデル中では土壤深さ 5m に地下水面があると仮定し、5m までを 100 層に区切る。各層のラドン濃度の勾配の差を抑えるため、大気との境界近くの勾配が大きくなる 5cm までを 5 mm 間隔に設定する。それ以深は 5cm 間隔に設定する。境界条件として、気象パラメータの大気温度・湿度を与え、大気中のラドン濃度は土壤中に比べて低いため、0  $\text{Bq m}^{-3}$ とした。計算のタイムステップは 1s である。

### 3.3.4 土壤パラメータの測定

#### (1) 測定法

実環境と同じ条件で計算を行うために、土壤パラメータの測定は重要である。本研究で使用する大気-土壤 1 次元モデルでは、土壤の間隙率、ラドン生成率の設定を行う。土壤の間隙率はラドンの拡散係数を求める際にも用いられるため、正確に求める必要がある。ラドン生成率は、ラドン濃度の土壤中分布と大気への拡散移動を評価するうえで、もっとも大きなパラメータとなる。

物理定数の測定のための土壤の採取は2003年12月に行った。採取点は地表面から15~20 cmの深さである。土壤の物理定数としてバルク密度、真密度、間隙率、および含水率の測定を行った。土壤中のラドン生成率の測定も行った。バルク密度、真密度、間隙率および含水率の測定は中野ら(1995)の手順に準じて行った。以下に測定方法を簡略に述べる。

### ○バルク密度

土壤の採取は、直径5 cm、高さ5 cmの円筒型ステンレススチールパイプを用いて土の構成を壊さないよう慎重に行う。採取した土を湿潤試料のまま質量を測り $W_1(g)$ とする。電気炉で110°C、24 hの乾燥を行う。乾燥後の質量 $W_2(g)$ を測る。その結果、バルク密度 $\rho_d$ が次式で求められる。

$$\rho_d = \frac{W_2 - W_0}{V} \quad (3-10)$$

ここで、 $V$ はサンプルの容積(cm<sup>3</sup>)、 $W_0$ はサンプルの重量(g)である。

体積含水率 $\theta$ は以下の式で得られる。

$$\theta = \frac{\rho_t - \rho_d}{\rho_w} \quad (3-11)$$

ここで、 $\rho_t$ は湿潤密度であり式(3-12)で表せる。 $\rho_w$ は水の密度で1 g cm<sup>-3</sup>とした。

$$\rho_t = \frac{W_1 - W_0}{V} \quad (3-12)$$

### ○真密度

ピクノメータの検定を行う。ピクノメータに蒸留水を満たし、その質量 $W_a'(g)$ を測る。その時の蒸留水温度を $t'(°C)$ とする。 $W_f(g)$ はピクノメータの質量である。

$$W_a = \frac{\rho_t}{\rho_{t'}} \times (W_a' - W_f) + W_f \quad (3-13)$$

ここで、 $\rho_t$ と $\rho_{t'}$ は $t(°C)$ と $t'(°C)$ における水の比重である。100 mLのピクノメータに風乾土を容積の1/3まで入れ、電気炉で乾燥後、炉乾燥した試料の質量 $W_s(g)$ を測る。蒸留水をピクノメータ容積の1/2まで満たし、ロータリーポンプにより20 mmHg以下の圧力で土壤から気泡が出なくなるまで排気する。ロータリーポンプを止め、10 h以上放置した後、再び排気する。排気後、ピクノメータに蒸留水を満たし、質量 $W_b(g)$ を測る。測定時の水温 $t(°C)$ を測っておく。温度 $t(°C)$ の水に対する土粒子の真比重 $\rho_s$ は次式で求まる。

$$\rho_s = \frac{W_s}{W_s + (W_a - W_b)} \quad (3-14)$$

### ○間隙率

間隙率はバルク密度と真密度から次式で求まる。

$$P = \left(1 - \frac{\rho_d}{\rho_s}\right) \quad (3-15)$$

### ○ラドン生成率

対象とする土壌を7Lの容器に入れて密閉し、容器内のラドン濃度の増加量からラドン生成率を測定する。7Lの容器内でのラドン濃度は約1カ月で平衡に達する。今回の計測では、密閉後3~4日放置し、計測を行った。容器内の空気をポンプによりサンプリングバッグに採取し、その空气中ラドン濃度をシンチレーションセルにより測定して、土壌のラドン生成率を求めた。

#### (2) 測定結果

測定結果を以下の表3.1に表す。モデル計算で使用するベントナイトと土壌のパラメータを表3.2に示す。

表3.1 ベントナイトと土壌の物理パラメータ

	ベントナイト	土 壤			
		250 μm	250 μ~1mm	1~2mm	2mm
間隙率	0.77	0.62	0.53	0.52	
真比重(g cm <sup>-3</sup> )	2.65	2.48	2.61	2.64	
バルク密度(g cm <sup>-3</sup> )	0.67	0.95	1.23	1.26	
ラドン放出率(mBq kg <sup>-1</sup> s <sup>-1</sup> )	1.1×10 <sup>-5</sup>	7.97×10 <sup>-6</sup>	3.95×10 <sup>-6</sup>	3.24×10 <sup>-6</sup>	1.39×10 <sup>-6</sup>

表3.2 各種パラメータ

	ベントナイト	土壌
間隙率	0.77	0.50
ラドン生成率(mBq m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> )	9.13	16.2

#### 3.3.5 気象パラメータ

モデル計算に入力する気象パラメータは気温、湿度、風速、日射量、降水量の

1時間毎の値である。名古屋地方気象台の観測値を使用した。日射量については、名古屋地方気象台の日照時間を使用し、アメダスのデータから日射量を予測する二宮ら(1997)の推定式を使用して算出した。

### 3.3.6 計算結果と実測値の比較

大気-土壤一次元モデルに、2003年11月から2004年1月までの気象データと観測地の土壤パラメータを入力して、計算した結果を図3.12に示す。UGRMSによる実測値も示している。土壤中ラドン濃度の計算結果からは、ペントナイト覆土後、15cmの深さの濃度は上昇している。一方、60cmの深さになると濃度の上昇は見られず、深さにより変動傾向が異なっている。モデル計算は降雨後の土壤中ラドン濃度の上昇をよく表している。15cmの深さでは降雨の影響がすぐに現れ、その後降水が土壤深く浸透していくにつれてラドン濃度が上昇している。図3.13に示すようにラドン散逸率についても、降雨の影響が大きく現れている。降水後、ラドン散逸率は0Bq m<sup>-2</sup> s<sup>-1</sup>付近まで低下し、土壤が乾燥するにつれて徐々に回復している。ペントナイト覆土後も、最初に低下した後はペントナイトが乾燥するに連れて上昇している。散逸率の変動に見られる日変動は、土壤の含水率の変化による。昼間の気温の上昇と日射により水分の蒸発が活発になり、土壤の拡散係数が上昇する。夜間は気温が下がり日射もなくなると、空気中の水蒸気が土壤表面を湿らせ、拡散係数が昼間よりも低下する。

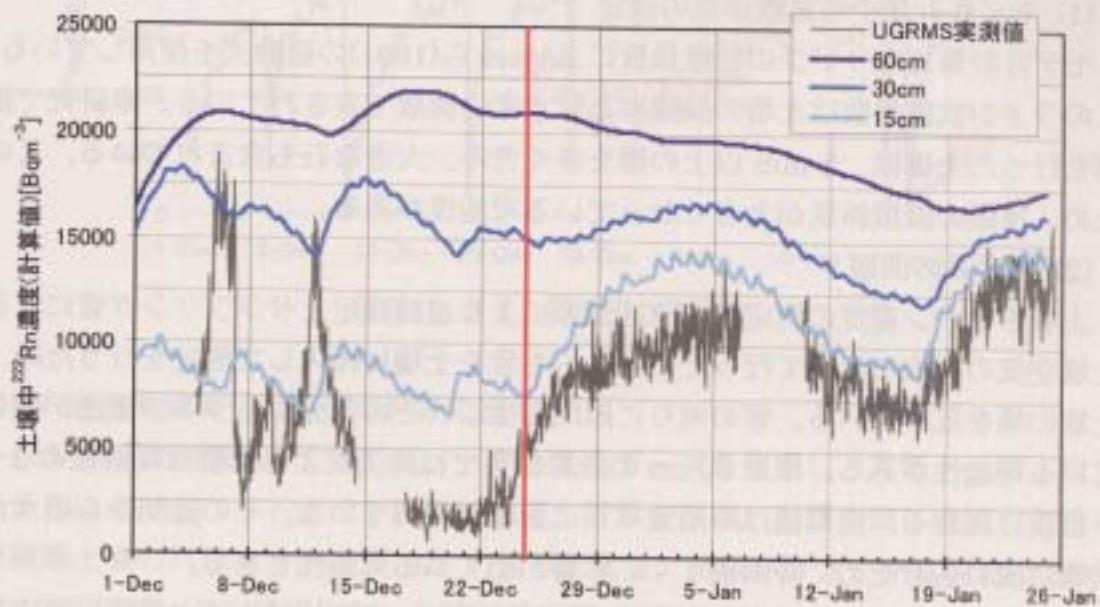


図3.12 大気-土壤1次元モデルによる土壤中ラドン濃度の計算結果  
(名古屋大学構内観測場所の土壤)

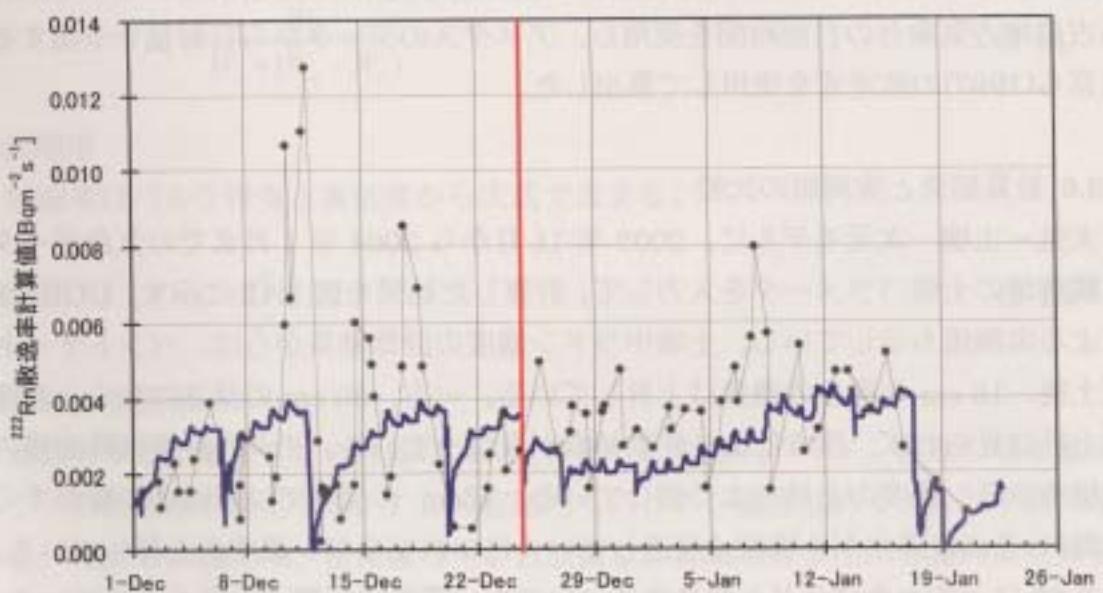


図 3.13 大気－土壌 1 次元モデルによるラドン散逸率の計算結果  
(名古屋大学構内観測場所の土壌)

### 3.3.7 考察

土壤中ラドン濃度については、計算値と実測値に大きな差が見られた。図 3.13 を見ると、深さ 60 cm での実測値は深さ 15 cm での計算結果に近い変動を見せて いる。この違いの原因として次の 2 つが考えられる。

#### (1) モデル計算中の拡散係数の設定

モデル計算ではラドンの拡散係数に Rogers ら(1991)の経験式を使用している。このラドン拡散係数は土壤の間隙率と含水率の関数で表されている。本研究で観測を行った土壤は、2 mm 以上の礫を多く含み、大きな石も含まれている。このため、実際の拡散係数が大きくなっている可能性がある。

#### (2) 測定系の問題

土壤中ラドン濃度の測定は、UGRMS による連続測定とサンプリング管による土壤空気の採取によって行った。どちらも管を土壤に挿入して測定を行うため、土壤の構造を乱している。管の周りに隙間が生じ、その部分からラドン散逸が生じている可能性がある。深さ 60 cm の計算結果では降雨による影響は降雨後の 2~3 日後に現れる。実測値は降雨後すぐに影響が現れている。その隙間から雨水が土壤に流れ込むため、降雨後すぐに影響が出ている可能性もある。

ラドン散逸率の計算結果と実測値を比較すると、実測値は土壤の乾燥以外の要因でも変動している。モデル計算では気圧の変動を考慮していない。

### 3.4 ラドン散逸率抑制効果の評価

#### 3.4.1 実測値による評価

実測値からのラドン散逸抑制効果は、3.2節で述べたように経験式による予測値との比較により評価した。その結果、観測期間中の平均で  $2.9 \text{ mBq m}^{-2}\text{s}^{-1}$  の抑制が見られた。抑制率は 45% となった。

#### 3.4.2 モデル計算からの評価

観測を行った名古屋大学構内の土壤の物理パラメータと観測期間の気象データを使用し、大気-土壤 1 次元モデルによる計算結果から評価を行った。ペントナイト 5 cm を覆土した場合と、覆土をしなかった場合の計算結果の比較から評価を行った。ペントナイトからのラドン放出がないという条件で計算することにより、覆土の下の土壤から発生したラドンの散逸率も評価した。計算結果を図 3.14 に示す。計算結果から、覆土 5 cm により平均で  $1.5 \text{ mBqm}^{-2}\text{s}^{-1}$  のラドン散逸抑制が見られる。抑制率は 36% である。

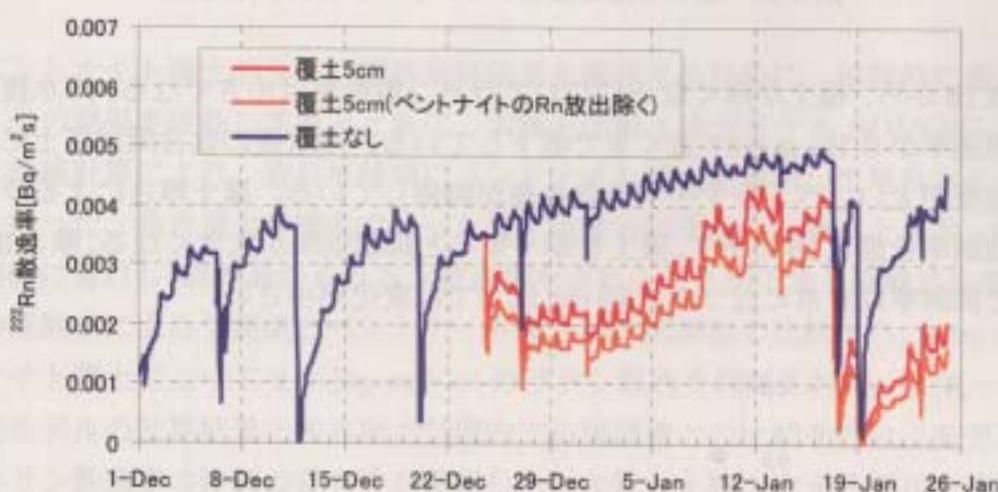


図 3.14 ラドン散逸率の計算値

#### 3.4.3 捨石堆積場へのモデル計算の適用

人形峠捨石堆積場の土壤パラメータと気象データを使用し、大気-土壤 1 次元モデルによってペントナイト覆土のモデル計算を行う。計算の際に使用した捨石堆積場土壤のパラメータは表 3.3 の通りである。気象パラメータは現地の 2002 年 10 月のデータを使用した。計算結果を図 3.15 に示す。

表 3.3 堆積堆積場土壤とペントナイトのパラメータ

	捨石堆積場土壤	ペントナイト
間隙率(vol vol <sup>-1</sup> )	0.56	0.77
ラドン生成率(mBq m <sup>-3</sup> s <sup>-1</sup> )	219	1.62

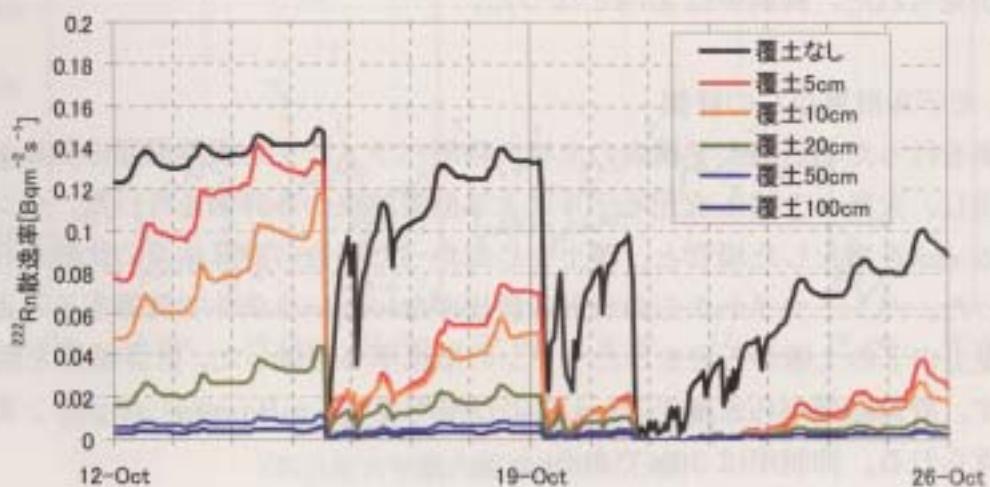


図 3.15 捨石堆積場覆土シミュレーション計算結果

図 3.15 から、覆土が厚くなるにつれてラドン散逸率は小さくなる。降水後にラドン散逸率が  $0 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  近くまで低下している。降水後の数日間は覆土による抑制効果が大きい。ペントナイトの含水率が関係している。覆土厚さによるラドン散逸抑制率を図 3.16 に示す。覆土を厚くすると抑制効果が大きくなる。厚さ 50cm 程度で抑制率は定常に近づき、50 cm 以上では変化が小さい。

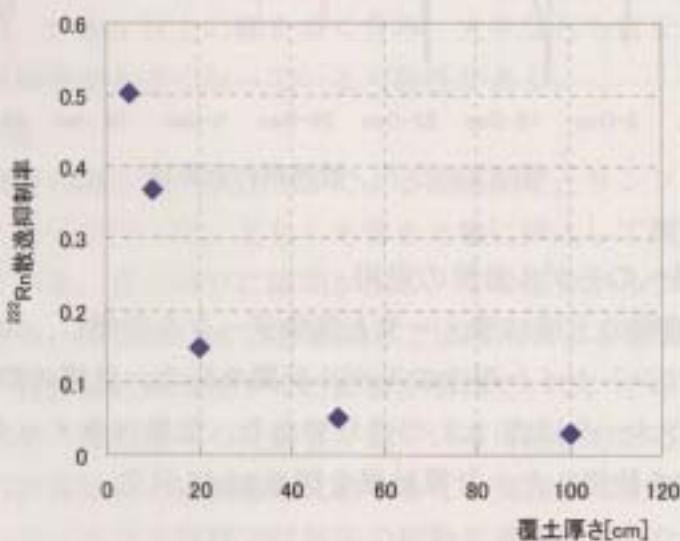


図 3.16 覆土厚さとラドン散逸抑制率の関係

### 3.4.4 考察

名古屋大学構内での実測値と大気－土壤 1 次元モデルによる計算結果から、5 cm の覆土によって  $2.9 \text{ mBqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ (38%) と  $1.5 \text{ mBqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ (45%) のラドン散逸抑制がそれぞれ導かれた。計算値が全体的に散逸率を過小評価しているために、実測値のほうが少し大きい。3. 3 節で述べたようにモデル計算中のラドン拡散係数の過小評価にある。計算で使用した土壤中のラドン生成率も正確に評価できていない可能性がある。しかし、抑制率はほぼ一致している。このことから、モデル計算によるラドン散逸率のモデル計算は現象を再現していると言える。

人形峠捨石堆積場でのモデル計算結果から、ベントナイトの覆土厚さ 50 cm で名古屋大学構内の土壤と同程度までにラドン散逸率を抑えることができる。ベントナイトの含水率が低下するにつれて、ラドン散逸の抑制は悪くなる。含水率が 0.65 を下回ると急激に散逸率が上昇する。ベントナイト覆土の効果を持続させるためには、ベントナイトの含水率を高く保つ必要がある。ベントナイトの上にさらに土を被せることで、水分を保持する方法も考えられる。

## 3. 5 まとめと今後の課題

ベントナイト覆土のラドン散逸抑制効果を確認するために、試験的に覆土を行い、その効果を評価しするとともに、大気－土壤 1 次元モデル SOLVEG を使用した数値計算により、捨石堆積場にベントナイト覆土を適用した場合のモデル計算を行った。名古屋大学構内で行った覆土実験の結果から、降雨とラドン散逸率の関係に着目し、降水量からラドン散逸率を求めることができる経験式を導いた。この経験式による予測値とベントナイト覆土後の実測値の比較から、5 cm のベントナイト覆土によって  $2.9 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  のラドン散逸を抑制された。大気－土壤 1 次元モデルの計算結果と名古屋大学構内での実測値との比較を行い、モデルによるラドン散逸率の評価の妥当性を確認した。大気－土壤 1 次元モデルを使用して夜次露天採掘場跡地にベントナイト覆土を適用した場合のモデル計算を行った。その結果、覆土厚さを 50 cm 程度にすると良い抑制効果が得られた。

大気－土壤 1 次元モデルの計算値と実測値に差が生じた原因として、測定系の問題とモデルで用いた拡散係数の過小評価の可能性がある。測定系の問題を解決するためには、UGRMS の検出器を土壤に挿入する際に、検出器と土壤の隙間を埋めるような凝固材を流し込むことで、場の乱れを押さえる。拡散係数の過小評価の可能性については、礫や大きな石を含む土壤のラドン拡散係数を測定で評価する。

## 参考文献

- Lehmann, B. E. et al.: "An automatic static chamber for continuous  $^{220}\text{Rn}$  and  $^{222}\text{Rn}$  flux measurements from soil", Radiation Measurements, Vol.38, No.1, p.43-50, (2004).
- 中野政詩：土の物質移動学，東京大学出版会，(1991)。
- 中野政詩，宮崎毅，塩沢昌，西村拓：土壤物理環境測定法，東京大学出版会，(1995)。
- 二宮秀与，赤坂裕，松尾陽，曾我和弘：AMeDAS のデータを用いた時刻別日射量の推定法 第2報，空気調和・衛生工学会論文集, Vol.65 , p.53-56, (1997).
- Radon Transport Through and Exhalation from Building Material : A Review and Assessment,(U.S.)National Bureau of Standards, Washington,DC, (1981).
- Rogers, V. C., and Nielson, K. K.: "Correlations for predicting air permeabilities and  $^{222}\text{Rn}$  diffusion coefficients of soils", Health Physics, Vol.61, p.225-230, (1991).
- Ruckerbauer, F. and Winkler, R.: "Radon concentration in soil gas: a comparison of methods", Applied radiation and isotopes, Vol.55, p.273-280, (2001).
- Tanner, A. B.: "Error in measuring radon in soil gas by means of passive detectors", Nucl. Geophys, Vol.5, p.25-30, (1991).
- Yamamoto, S. et al.: "Development of a continuous radon concentration monitoring system in underground soil", IEEE Trans. on Nucl. Sci., Vol.48, p.391-394, (2001).
- 山澤弘実，永井晴康：大気—裸地土壤 1 次元モデルの開発, JAERI-Data/Code 97-041, (1997).

## 第4章 積雪中のラドンの挙動

### 4. 1 はじめに

土壤表面が積雪に覆われている時には、積雪の被覆効果により地表面からのラドン散逸の抑制が期待される。しかし、これまで積雪によるラドン散逸抑制効果の定量的評価を行った例はない。青島(2003)はシベリアの冬季の空気中ラドン濃度測定により、冬季積雪時においても無積雪時と同程度の  $10\text{mBqm}^{-2}\text{s}^{-1}$  のラドン散逸率があることを示した。積雪の間隙率は通常の場合古い雪で 0.5 程度、新雪では 0.9 と土壤に比べて高いため、粘土による覆土に比べれば单位厚さ当たりの散逸抑制効果は低いものの、(1)対象とした夜次露天採掘場跡地では 1m 程度の積雪があること、(2)積雪が根雪として長期間存在する場合には密度が増加（間隙率が減少）すること、(3)降雨、融雪に伴う積雪の湿潤化により間隙率が減少すること、および(4)土壤面との境界での融雪のために土壤表面が常に湿潤状態に保たれることにより、相当の抑制効果が期待できる。

そこで、本研究では積雪面からのラドン散逸挙動を明らかにするために、積雪中ラドン濃度の連続観測、積雪表面ラドンフラックスの測定、積雪の物理パラメータの把握および数値計算によるラドン散逸の評価を行った。

### 4. 2 夜次露天採掘場跡地での観測

#### 4.2.1 方法

雪の密度は、ラドン検出器を設置する際に掘り下げた垂直面の複数の深さから、容積 100ml のステンレス製採土器を用いて積雪を圧密しないように採取し、電子天秤を用いて重量を計測することにより測定した。測定は 2004 年 2 月 2 日の正午前後である。ほとんどの深さのサンプル数は 1 であるが、同一深度での複数サンプルの密度のばらつきは  $\pm 0.03 \text{ g cm}^{-3}$  の範囲内であった。

積雪面からのフラックスは、密閉容器を用いた蓄積法により測定した。測定は 2004 年 2 月 2 日 11 時から 12 時の間に 3 回行った。用いた密閉容器は透明アクリル製で、底面積  $0.123 \text{ m}^2$ 、設置時の容器内空間の厚さ  $0.15 \text{ m}$ 、容器の内容積  $0.0184 \text{ m}^3$  である。現地では容器設置前の周辺空気および容器を設置して一定時間（蓄積時間）経過した後の容器内の空気を採取し、名古屋大学でシンチレーションセルを用いてラドン濃度を計測した。ラドン散逸率は設置前後のラドン濃度差から計算した。蓄積時間は 3 回の測定とも 10 分とし、積雪中ラドン濃度測定

地点から南に約 15 m 離れた地点で測定した。

積雪中のラドン濃度は、ラドン濃度連続測定装置を用いて 2004 年 2 月 2 日 13:00 前から 1 時間間隔で約 1 か月間行った。同装置はラドン検出器を 3 本有しており、約 1 m の積雪に対してそれを地面上 0.15, 0.40 および 0.73 m に積雪を掘り下げた垂直面から水平に挿入して設置した（図 4.1 および写真 4.1）。ラドン検出器はできる限り障害物から離れた位置に積雪を乱さないように設置するのが望ましいが、ケーブル長が 2・3 m と限られていたため、装置本体（回路系）を置いた小屋の直ぐ北側に設置した。ラドン検出器の空気孔位置は小屋壁面から約 90 cm、垂直の挿入面から約 60 cm である。垂直の挿入面は挿入後一部雪を戻し、面を押し固めることにより、水平方向の拡散による外気の影響を軽減するようとしたが、時間経過に伴って雪の変形および融雪により挿入口付近に開口部ができることがあった。開口部は約 1 週間に一度のデータ回収時に雪により密閉するようにした（人形峠事業所担当者による）。

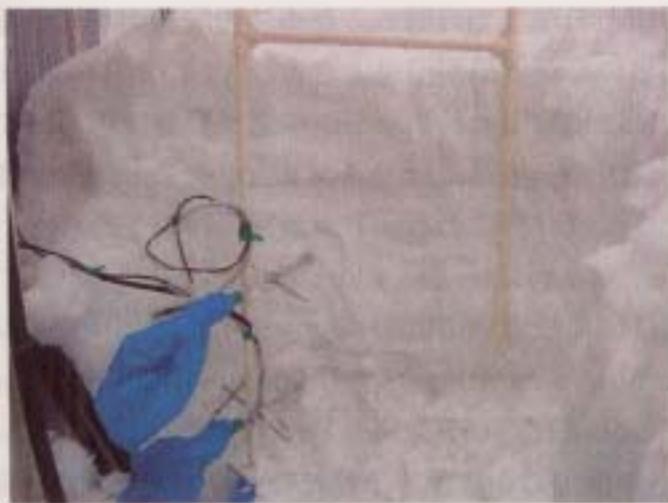


写真 4.1 ラドン濃度連続測定装置のラドン検出器の設置状況

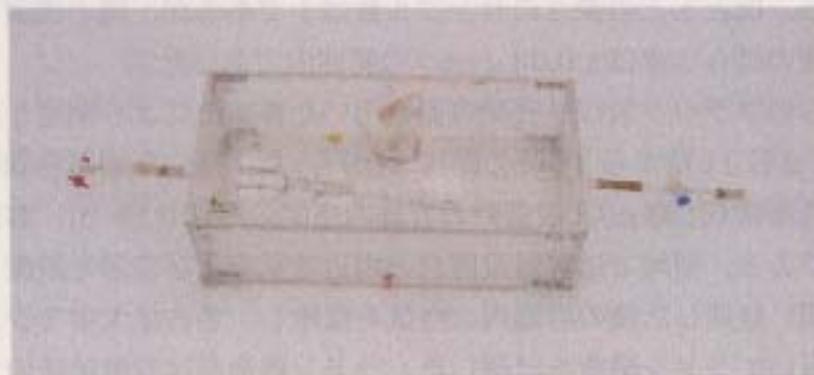


写真 4.2 雪面に設置したラドン散逸率測定のための密閉容器

#### 4.2.2 測定結果

##### (1) 雪の密度

積雪の密度分布を図4.1に示す。2004年2月2日のラドン検出器設置地点での積雪深は1.22mであった。測定当日は前夜からの降雨により積雪表面から17cm(地表面から1.05-1.20m)の深さまでが濡れた状態で、雪質は粗目であった。その下に58cm(地表面から0.47-1.05m)のしまり雪の層があり、1月の大雪の際につもったものと思われる。その下には粗目もしくは粗目としまりの混合の層があり、最下層の約3cmは液体水が目立つ湿った状態であった。

雪の密度は、最も表層では降雨の影響により $0.33\text{ g cm}^{-3}$ と比較的高く、中層のしまり雪では上部が $0.25\text{ g cm}^{-3}$ で下層ほど高く、下の粗目との境界付近では $0.36\text{ g cm}^{-3}$ であった。その下の粗目雪の層では0.4から $0.5\text{ g cm}^{-3}$ 程度であった。

##### (2) 積雪表面からのラドン散逸量

2月2日の11時から12時の間で連続して行った3回の蓄積法による測定結果は表4.1のとおりである。平均で $9.1\text{ mBq m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ の散逸量であり、1999年9月に測定した $300\sim700\text{ mBq m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ に比べて極めて小さい値であり、名古屋平均的な土壌の散逸率と同程度である。この散逸率の低下は、4.1節で述べた雪による被覆効果と雪からの連続的な水分補給による土壌の潤滑化の二つの原因が考えられる。一般的には雪は間隙率が大きく被覆効果は大きくないため、後者が支配的であると考えられる。雪の遮蔽効果については数値モデルを用いて評価する。

表4.1 積雪面からのラドン散逸率測定結果

測定	2004年2月2日	散逸率 ( $\text{mBq m}^{-2}\text{ s}^{-1}$ )
1回目		$7.2 \pm 0.8$
2回目		$12.3 \pm 0.9$
3回目		$7.7 \pm 0.9$
平均		9.1

##### (3) 積雪内のラドン濃度

ラドン濃度連続測定装置により得られた積雪内のラドン濃度を図4.2(a)に、関連する現地の気象データを図4.2(b)から(d)に示す。1時間毎の $\alpha$ 線カウント数が10~100程度であり濃度の1時間値はばらつくため、図には5時間の移動平均の値をプロットした。最も浅い位置に設置したラドン検出器は、設置後数時間は正常な値を示していたが、その後はカウントが0であるかあるいは不合理に大きな値であることが連続した。ラドン検出器部分の異常か測定器本体の異常を考えら

れる。このラドン検出器については、不合理に高い値は除外し、低い値についてはそのまま図にプロットした。値の小さい部分の信頼性は低いが、2月24・25日については他のラドン検出器と変動傾向の揃った尤もらしい値が得られている。

積雪中のラドン濃度は概ね  $0.5 \sim 3 \text{ kBq m}^{-3}$  の値を示しており、以前同地点で測定された土壌中のラドン濃度である数十～数百  $\text{kBq m}^{-3}$  と、大気中の濃度  $10 \sim \text{数} 10 \text{ kBq m}^{-3}$  の中間的な値である。地面からの高さ  $0.15 \text{ m}$  と  $0.40 \text{ m}$  のラドン検出器はほぼ同様の変化を示しており、積雪中の濃度は積雪状態および外気の気象状態に応じて数時間以内で追随することを示している。

図4.2(a)に示した積雪中の濃度は時間的に大きく変動している。図4.2(b)の風向との対応を見ると、風向が南西から北西の場合は濃度は高い値で安定しているが、風向が北から東になると急激に濃度が減少する。ラドン検出器を挿入した垂直の雪の面は東に向いており、その面に直接風が当たる場合に濃度の低下が見られる。このことから、図4.2(a)のに見られる濃度の低下は、側面からの空気の流入に伴う移流によるものと考えられる。これは未攪乱の積雪では起こらない現象である。逆の風向の場合は、挿入面からの吸い出しになるが、風上側に十分な吹走距離があるため水平方向の移流の影響は小さいと考えられる。従って、未攪乱積雪では図の濃度ピークの包絡線に近い変動をしているものと考えられる。後述するように、包絡線が現実の濃度に近いとするとフラックスの測定結果およびモデルの計算結果が合理的に説明できる。

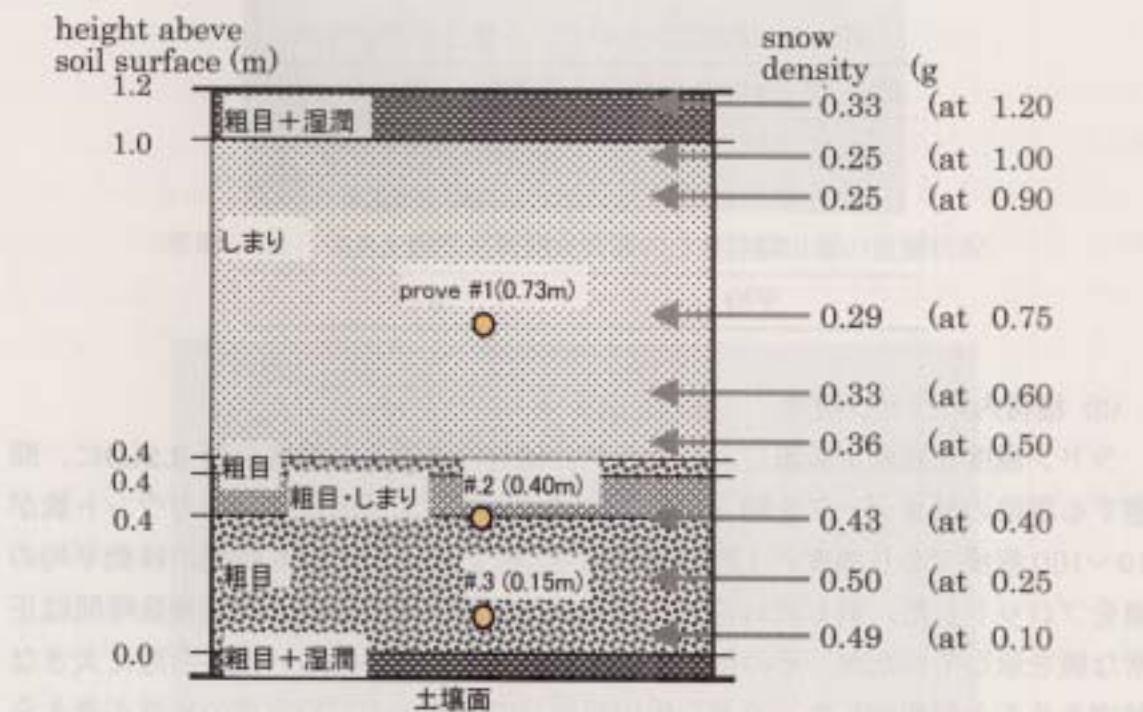


図4.1 測定器設置時の積雪の構造と雪の密度分布

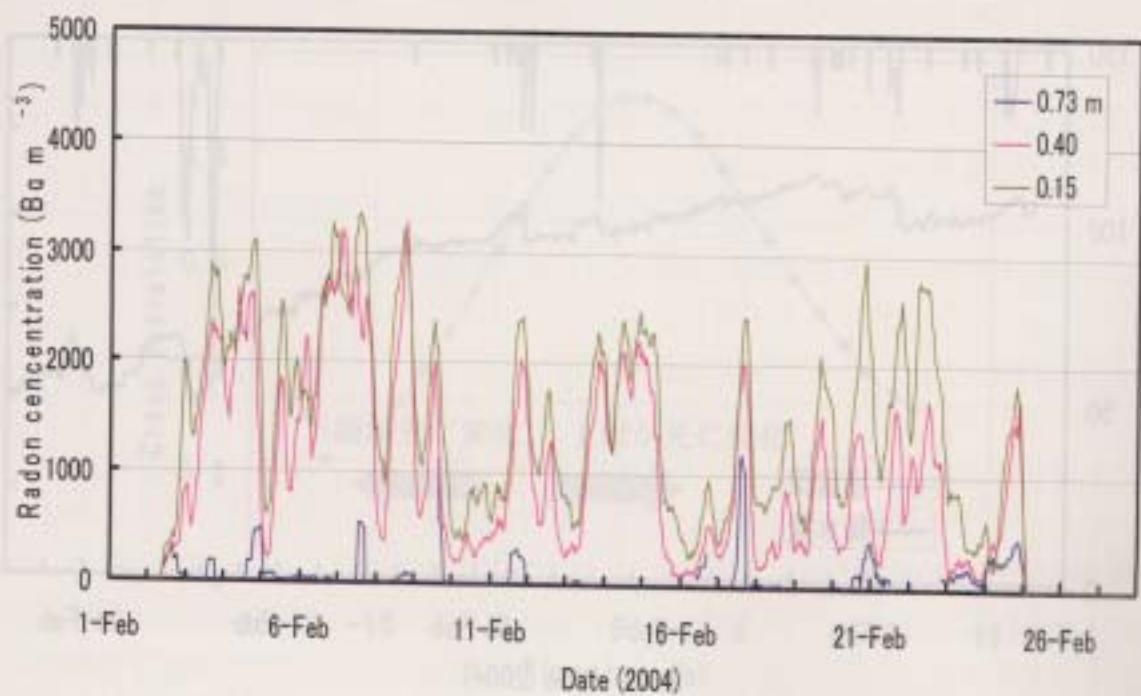


図 4.2(a) 積雪中ラドン濃度（5時間移動平均）

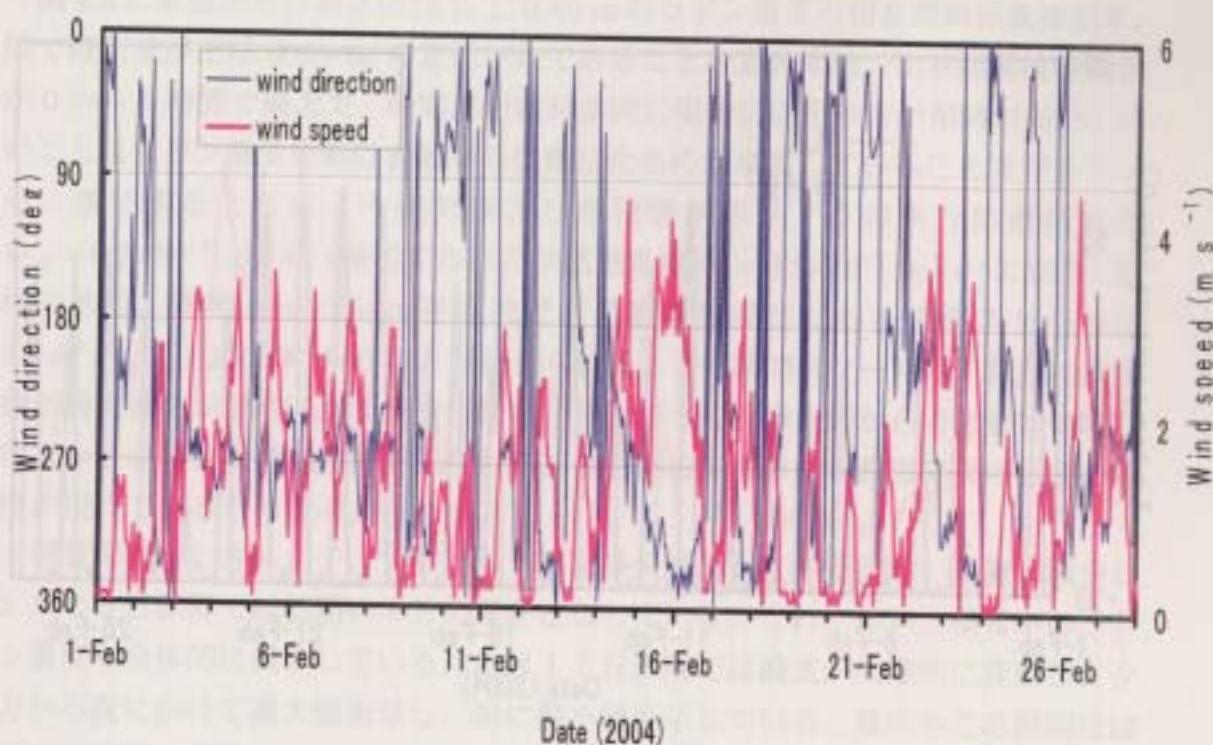


図 4.2(b) 積雪中ラドン濃度観測地点の風向風速

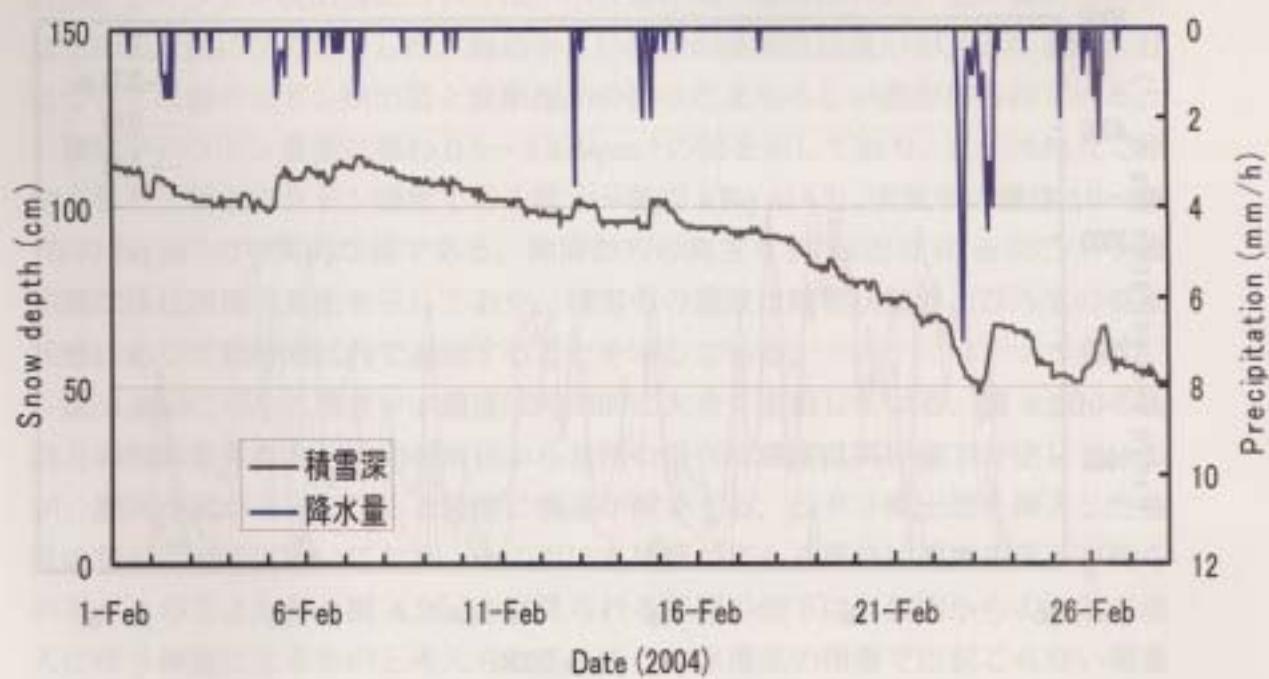


図 4.2(c) 積雪量および降水量

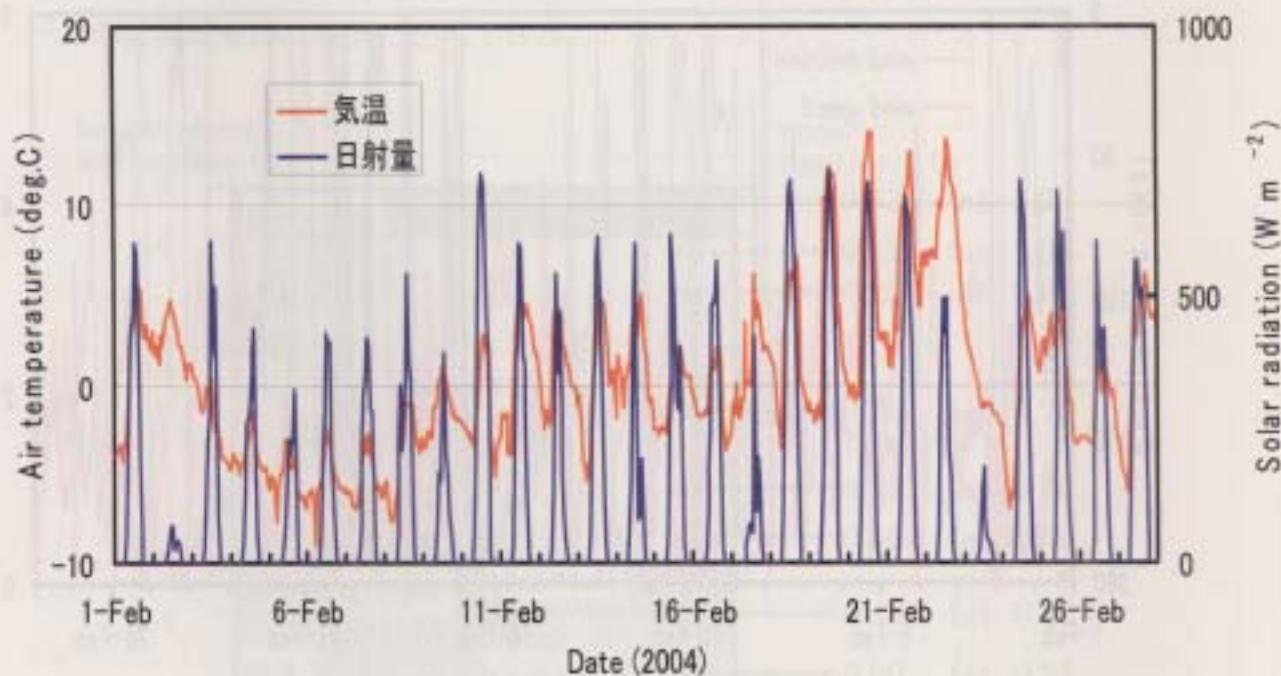


図 4.2(d) 気温および日射量

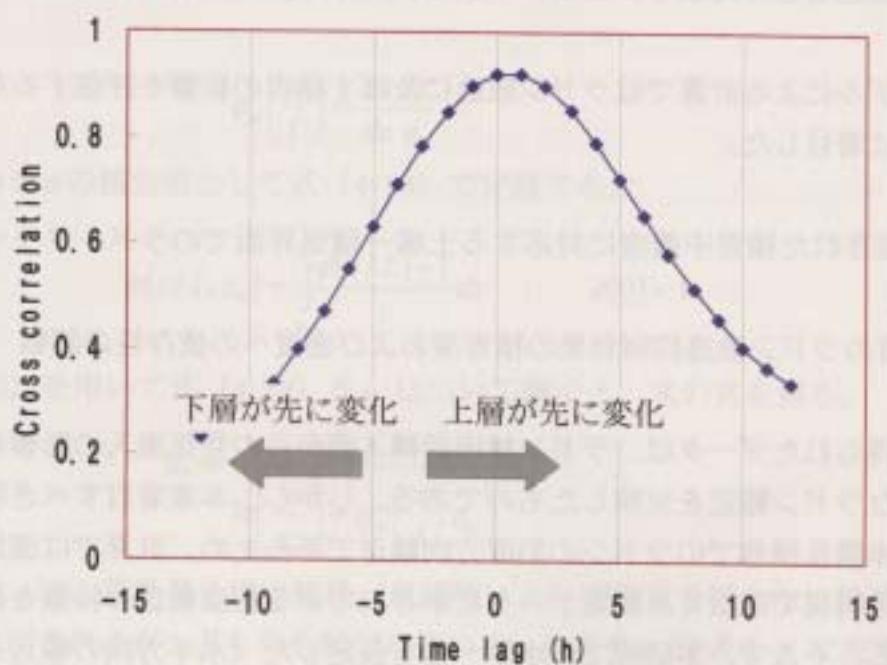


図 4.3 地面からの高さ 0.15 および 0.40 m で測定された濃度の相互相関係数

図 4.3 に地面からの高さ 0.15 m と 0.40 m のラドン濃度の相互相関係数を示す。図で時間差が正は 0.40 m の変化が先であることを意味する。相互相関は時間差が 0 から 1 時間で最大で、時間差の絶対値同じ場合には正の方が相関が高い。このことはラドン濃度変動は表層から伝播したものが卓越していることを表している。後述するように、今回対象とした積雪中のラドンの実行拡散係数は  $D_{eff} \approx 0.7 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{s}^{-1}$  (後述するバルク拡散係数  $D_b \approx 0.5 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{s}^{-1}$  に相当) 程度であり、距離  $\delta = 0.25 \text{ m}$  を拡散により濃度変動が伝わる時間スケールは  $t = \delta^2 / (2D_{eff})$  より約 4500 秒と見積もられる。この時間スケールは、相互相関係数が最大値を示す時間差と矛盾しない。したがって、挿入面からの影響は無視しえないものの、未搅乱積雪で見られる拡散による上下方向の濃度変動の伝播の特徴が現れているものと考えられる。

積雪深は、2月6, 7, 13, 15日に多少増加している他は、単調に減少し2月25日以降では初期の半分の厚さとなっている。これに伴い、積雪中のラドン濃度も全体的に減少している。2月17日以降では濃度が周期的に変動し、夕方から夜にかけて最大値を示し、朝に最小値を示している。風向もこの期間はほぼ1日周期で変動しており、濃度に見られる日変動は主に風による影響と考えられるが、日中の融雪に伴う積雪の表面部分の湿潤化により積雪上面からのラドン散逸が妨げられ、その結果として濃度が上昇したとも考えられる。

#### 4. 3 数値モデルによるシミュレーション計算

数値モデルによる計算ではラドン散逸に及ぼす積雪の影響を評価するため、以下の2点に着目した。

- (1) 観測された積雪中濃度に対応する土壤一積雪界面でのラドンフラックスの推定
- (2) 積雪のラドン散逸抑制効果の積雪深および密度への依存性の評価

観測で得られたデータは、ラドン検出器挿入面からの空気流入の影響を受けた3次元的なラドン輸送を反映したものである。しかし、本来着目すべき現象は水平一様な未搅乱積雪でのラドンの鉛直方向輸送であるため、計算では測定データそのものの再現ではなく、測定データに示されている鉛直輸送の特徴を再現する必要がある。そこで、本研究では水平一様を仮定した（水平方向の輸送を無視した）鉛直1次元数値モデルを用いた。

##### 4.3.1 モデル

使用した数値モデルは、山澤・永井（1997）の地表面モデル SOLVEG にラドン輸送計算部分を付加したものであり、基本方程式系は昨年度用いたモデルとほぼ同じ内容である。ただし、本年度の積雪を含むラドン拡散計算では、積雪の物理的状態および積雪一土壤界面から積雪へのラドンフラックスは一定として計算を行った。また、積雪中濃度は土壤中濃度より顕著に低くなり昨年用いた濃度0の大気側境界条件が積雪表面からのフラックスに誤差を生じるため、大気側の濃度計算も行うようにした。本年度の計算では土壤中の水分量の動的な計算は行わなかったため、対応する部分のモデル説明は省略する。

大気中の1次元ラドン拡散方程式は次の式で与えられる。

$$\frac{dc}{dt} = \frac{\partial}{\partial z} K_z \frac{\partial c}{\partial z} - \lambda c \quad (4-1)$$

接地層内において、拡散係数  $K_z$  は大気の構造（風速等）に依存し、次の式で与えられる。

$$K_z = \frac{\kappa u_* z}{\phi_h \left( \frac{z}{L} \right)} \quad (4-2)$$

ここで  $\kappa$  はカルマン定数、 $L$  は大気安定度の指標であるモニン・オブコフ長である。普遍関数  $\phi$  は無次元シアーカーブで、 $(z/L)$  の関数である。また  $u_*$  は摩擦速度

である。定常で水平方向に一様な接地層内において、普遍関数 $\phi$ は次の式で定義される。

$$\phi_m\left(\frac{z}{L}\right) = \frac{du}{dz} \frac{\kappa z}{u_*} \quad (4-3)$$

ここで $\phi$ を $\phi$ の積分形として式(4-13)で定義する。

$$\phi(z/L, z_0) = \int_{z_0}^z \frac{\phi(z/L) - 1}{z} dz \quad , \quad \phi(0) = 1 \quad (4-4)$$

式(4-13)を用いて式(4-12)を $u_*$ について解くと、次の式を得る。

$$u_* = \frac{u(z) \cdot \kappa}{\ln\left(\frac{z}{z_0}\right) + \phi_m\left(\frac{z}{L}, z_0\right)} \quad (4-5)$$

普遍関数 $\phi$ は、運動量を持つ輸送（風速等）と、運動量を持たない輸送（熱輸送等）に区別されるが、どちらも類似している。前者を $\phi_m$ 後者を $\phi_h$ で表す。ラドンの輸送は後者である。ラドン輸送に関する式(4-3) (4-4) (4-5)での議論が成り立つ。よって、式(4-2) (4-3) (4-5)を用いて式(4-1)を解くことで、ラドンの鉛直分布が得られる。

また雪中の拡散方程式は次の式で表される。

$$\varepsilon_s \frac{dc}{dt} = \frac{\partial}{\partial z} D_b \frac{\partial c}{\partial z} - \lambda \varepsilon_s c \quad (4-6)$$

$$\varepsilon_s = \left(1 - \frac{\rho}{\rho_i}\right)$$

ここで $\lambda$ はラドンの崩壊定数、 $\rho$ は現地測定に対応する雪のバルク密度、 $\rho_i$ は氷の密度である。バカル拡散係数 $D_b$ は次式で表される。

$$D_b = \varepsilon_s D_{eff} \quad (4-7)$$

ここで、 $K_{eff}$ は積雪中の実効拡散係数で、Rogers and Nielson (1991)により次式で表される。

$$D_{eff} = \varepsilon_s K_{Rn} \exp\left[-6\theta - 6\left(\frac{\theta}{\varepsilon_s}\right)^{14\varepsilon_s}\right] \quad (4-8)$$

$K_{Rn} = 1.1 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{s}^{-1}$ はラドンの空气中分子拡散係数である。この式は、土壤中のラドン拡散について得られた経験式であるが、土壤と同様に多孔質媒体である積雪でも成り立つとして用いた。積雪に対して用いる場合は、体積含水率 $\theta$ を0とした。

式(4-1)～(4-6)より、雪一大気間のラドン濃度鉛直分布を得る。数値解法には、鉛直格子点番号  $k$  に対して、空間的には中央差分、時間的には Crank-Nicolson 法を用いた。実際の計算では、大気側のメッシュを  $1\text{m} \sim 200\text{m}$  まで  $1\text{m}$  毎に区切り、積雪は  $d\text{ m}$  として 100 等分に区切った（図 4.4）。地表面からラドンフラックスを一定値の既知量として与え、雪側と大気側の境界でラドンフラックスが連続するように境界条件をおいた。

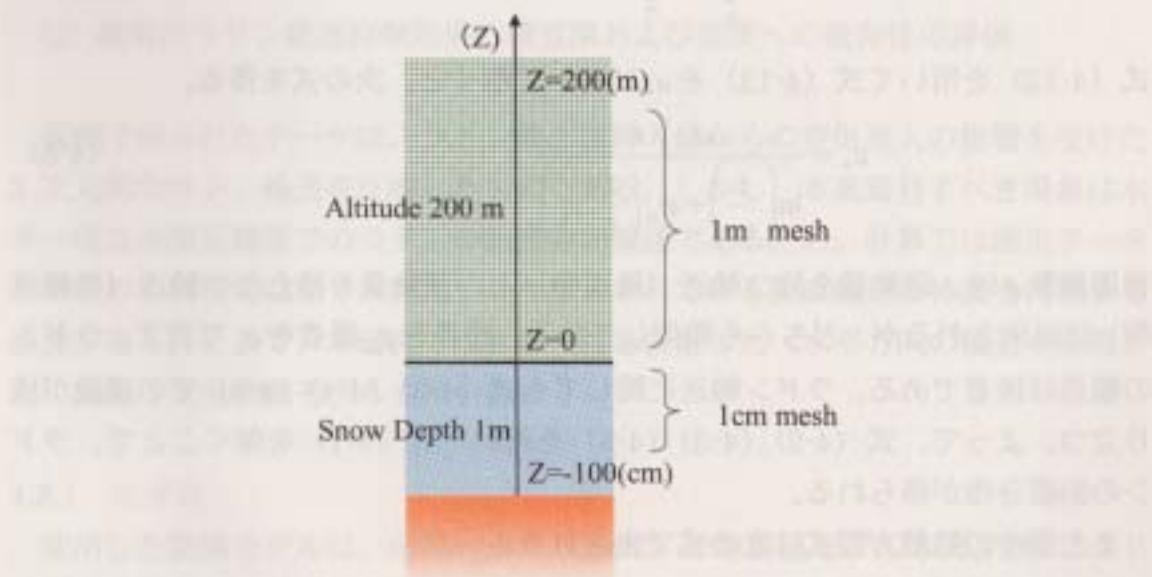


図 4.4 モデル格子模式図

積雪の格子は積雪深  $d=1\text{m}$  の場合

#### 4.3.2 ラドンフラックスの推定

計算は一定の境界条件の下で 10 日分行い、定常状態の濃度分布を得た。計算条件は以下のとおりである。

積雪深	$1.2\text{ m}$
雪のバルク密度	図 4.1 の鉛直分布
氷の密度	$0.917\text{ g cm}^{-3}$
風速	$3\text{ ms}^{-1}$ (地上 $40\text{m}$ に換算した風速)
安定度	$L = 500\text{ m}$
粗度	$z_0 = 0.2\text{ mm}, z_T = 0.01\text{ mm}$
時間増分	$12\text{ s}$

積雪中のラドン濃度計算結果を図 4.5 に示す。積雪中の濃度分布は土壤-積雪界

面でのラドンフラックスに比例するので、図の濃度はフラックスで規格化した値である。濃度分布には雪の密度分布に対応した濃度勾配が見られる。地表面から 15 cm と 40 cm の濃度比  $c_{40}/c_{15}$  は 0.62 である。観測で得られた濃度比は、計算条件として設定した密度分布が大きく変化していないと考えられる 2 月 2 日の夜から 24 時間にについて 0.67 であり、計算は実測に近い値となっている。従って、Rogers and Nielson の式は積雪に対しても適切な値を与えるものと考えられる。計算で用いた Rogers and Nielson の式により計算された積雪中のバルク拡散係数の概略値は  $D_b \approx 0.5 \times 10^{-5} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$  であるが、雪のバルク密度依存性を持つため場所により異なる。

計算結果の規格化濃度( $\text{m}^{-1}\text{s}$ )と実測濃度( $\text{Bq m}^{-3}$ )の比は土壌－積雪界面のフラックスに相当する。地表面から 15 cm と 40 cm の濃度からフラックスを評価すると、2 月 2 日の夜から 24 時間にについてそれぞれ 9.9 および  $10.7 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  と評価される。計算によると、積雪の被覆効果によるフラックスの減少は図 4・5 に示したように 0.78 倍になる。従って、上記の土壌－積雪界面のフラックスは積雪表面でのフラックス約  $8 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  に相当し、この値は 2 月 2 日日中に測定した  $9.1 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  とほぼ近い値となっている。同様に、2 月 2 日の夜から 7 日までの 15 cm と 40 cm の実測濃度の平均を用いて評価すると、土壌－積雪界面のフラックスは 10.8 および  $14.5 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$ 、積雪表面フラックスで 8.4 および  $11.3 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  と評価される。

これらのフラックスの値は無積雪時に測定された値の 1～数% に相当する。モデル計算によると 1.2 m の積雪による被覆効果はフラックスが 0.78 倍になる程度と小さいため、積雪時の大幅なフラックス減少は融雪水による土壌面の湿潤化が主要因と考えられる。そこで、昨年度の積雪のない場合の計算結果を再検討する。

計算条件は以下のとおりである。計算の対象とした土壌は 3 層構造とし、地表面から 1.5 m まではまさ土の覆土、1.5 から 4.5 m までが周辺土壌による覆土、4.5 から 7.5 m に捨石層が存在するとした。昨年度までの測定結果によると覆土（まさ土）のラジウム含有率は 200～1700  $\text{Bq kg}^{-1}$  程度であるためサンプルの平均値  $500 \text{ Bq kg}^{-1}$  程度に相当するラドン生成率  $2.3 \text{ Bq m}^{-3} \text{ s}^{-1}$  を用いた。地表面の境界条件は、水分については降水の観測値を入力として与え、風速、気温、湿度、日射量および大気放射量（放射収支量）の観測値に基づき計算される地表面からの蒸発量が失われるとした。ラドンについては、大気中の濃度が 0 と仮定した。モデル底面での境界条件は、水分は飽和、ラドンはフラックスが 0 であると仮定した。土壌水分量の初期条件は水分ポテンシャルと釣り合う状態（平衡状態）とし、ラドン濃度については、水分が平衡状態のままで 20 日間の助走計算を行い、

その結果を初期条件とした。2002年10月1日0時に計算を開始し、20日分の計算を時間増分は5秒で行った。格子は、地表面から2.5 cmまで0.5 cm間隔、5 cmから750 cmまでを5 cm間隔とした。

計算結果を図4.6に示す。フラックスの急激な減少は降水による土壤の湿润化に対応し、降水の多寡によりフラックスの低下の程度が異なる。計算期間の最後(10月20日頃)にまとまった降水があり、その直前の期間にも断続的に降水があったため土壤の湿润化が進み、フラックスは降雨のない期間の数百から1,000 mBq  $m^{-2} s^{-1}$ 程度に比べて極めて小さい値を示している。図の丸印の期間を拡大したものを図4.7に示す。この土壤が湿润な期間のフラックスは7~30 mBq  $m^{-2} s^{-1}$ であり、本年度の観測により評価された土壤-積雪界面のフラックスはこの範囲に含まれる。

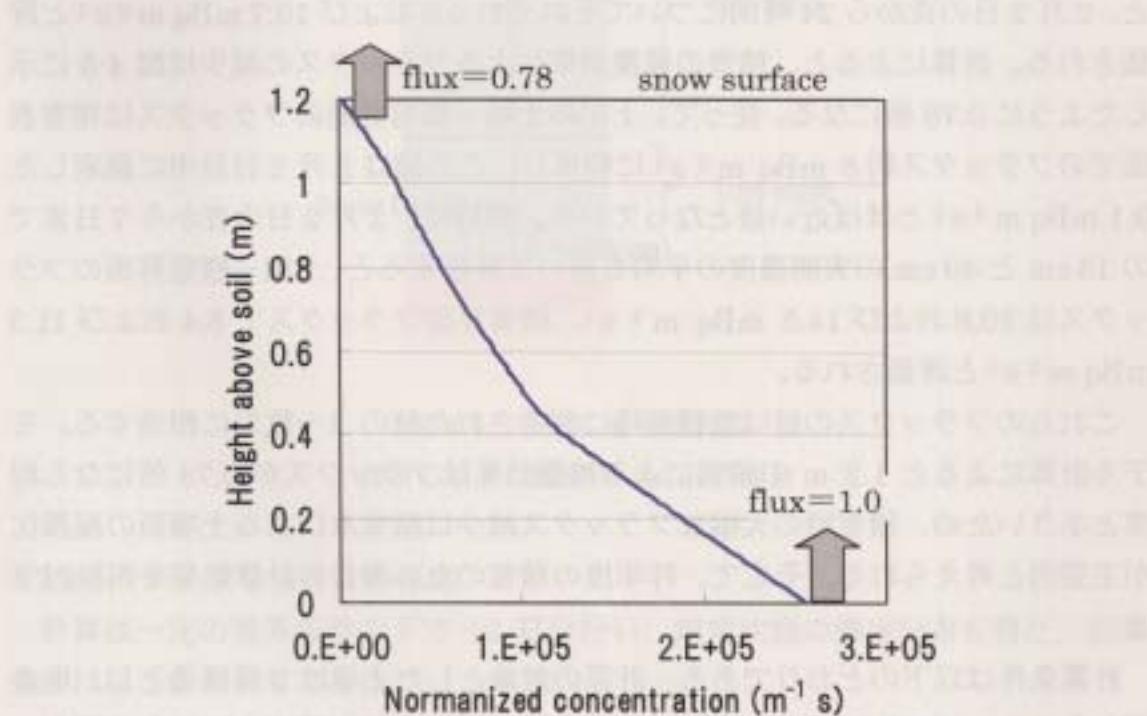


図4.5 積雪中のラドン濃度分布の計算値。積雪深1.2 mの場合。濃度値は土壤-積雪界面でのラドンフラックスで規格化した。矢印の値の濃度値は土壤-積雪界面でのラドンフラックスを1とした場合の積雪表面でのフラックス。

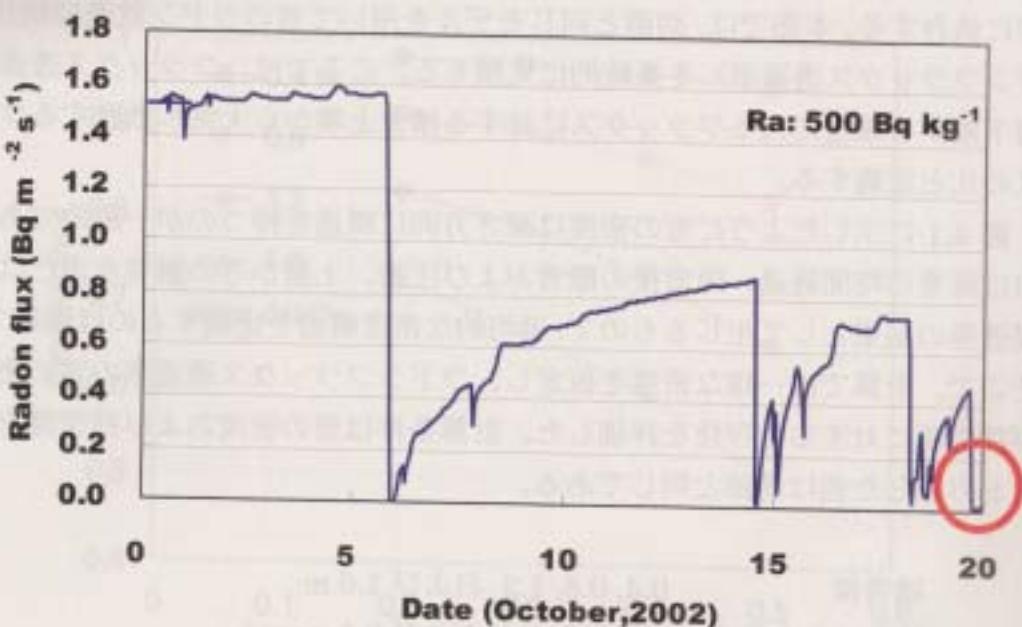


図 4.6 無積雪時の地表面ラドンフラックスのモデル計算結果

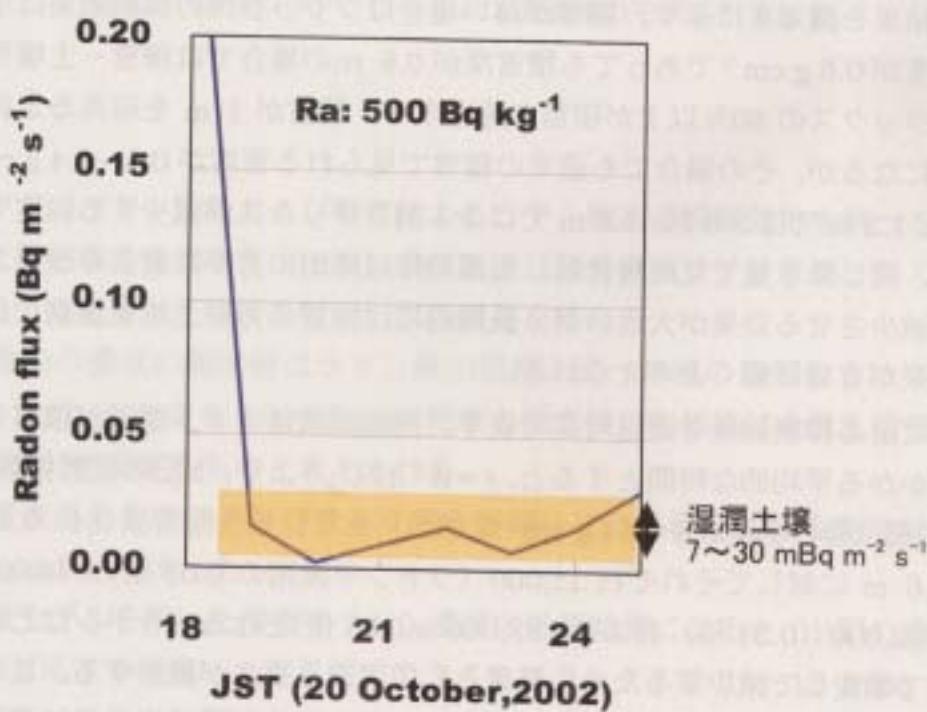


図 4.7 土壤湿润時の地表面ラドンフラックスのモデル計算結果. 図 4.5 の最後の部分を拡大したもの

#### 4.3.3 積雪のラドン散逸抑制効果の評価

前節の計算では実際に測定された雪の密度分布を用いて深さ 1.2 m の積雪のラドンフラックス透過率を 0.78 と見積もった。この値は、雪の密度分布および積雪

深に依存する。本節では、前節と同じモデルを用いて雪のラドン散逸抑制効果（ラドンフラックス透過率）を系統的に見積もる。ここでは、フラックス透過率は積雪下端から積雪に入るフラックスに対する積雪上端から大気へ散逸するフラックスの比と定義する。

図 4.1 に示したように雪の密度は深さ方向に構造を持つのが一般的である。それは降雪の時間経過、降雪後の融雪および圧密、上層からの融雪水または雨水の浸透等の結果として生じるもので、平均的な密度構造を定義するのは困難である。そこで、計算では一様な密度を仮定し、ラドンフラックス透過率の雪の密度および積雪深に対する依存性を評価した。計算条件は雪の密度および積雪深を以下のとおりとした他は前節と同じである。

積雪深	0.4, 0.8, 1.2 および 1.6 m
雪のバルク密度	0.2, 0.3, 0.4 および $0.5 \text{ g cm}^{-3}$

計算結果を図 4.8 に示す。積雪が薄い場合はフラックスの抑制効果は小さく、雪の密度が  $0.5 \text{ g cm}^{-3}$  であっても積雪深が 0.8 m の場合では積雪－土壤界面のラドンフラックスの 80% 以上が積雪を透過する。積雪が 1 m を超えると抑制効果が顕著になるが、その場合でも通常の積雪で見られる密度が  $0.3 \sim 0.4 \text{ g cm}^{-3}$  程度の場合、1.2 m では 2・3 割、1.6 m では 3・4 割フラックスが減少する程度である。従って、同じ降水量で見た場合は、短期的には降雨の方が降雪よりラドンフラックスを減少させる効果が大きいが、長期的には降雪の方が土壤を湿潤に保つ間接的な効果が有効に働くと考えられる。

積雪による抑制効果を遅延時間で表す。遅延置換はラドン原子が積雪を通過するのにかかる平均的な時間とすると、 $t = \alpha^2 / (2D_{eff})$  より、上記の拡散係数  $7 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \text{s}^{-1}$  の値（雪の密度  $0.3 \sim 0.4 \text{ g cm}^{-3}$  に相当）を用いると積雪深 0.4, 0.8, 1.2 および 1.6 m に対してそれぞれ 11,000 (ラドン半減期の 0.03 倍)、46,000 (0.14 倍)、102,000 (0.31 倍) および 183,000 s (0.55 倍) となる。ラドンはこの遅延時間の間で壊変して減少するため、結果としてフラックスが減少する。この遅延時間と図 4.8 のフラックス透過率は対応しており、深さが薄い場合には透過率は深さの 2 次関数（2 次の係数が負、1 からの減少分が深さの 2 乗に比例）となる。

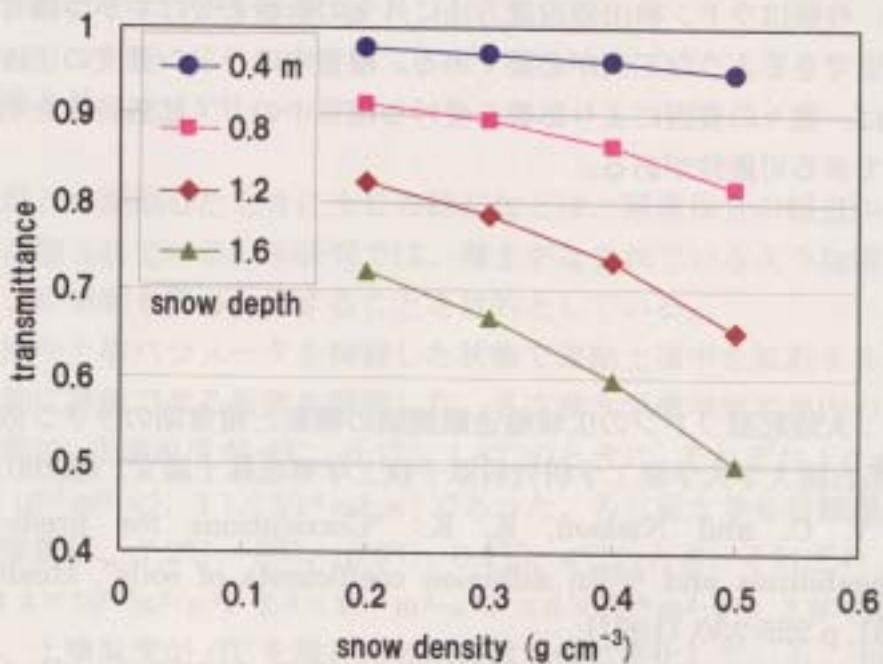


図 4.8 積雪のラドンフラックス透過率のモデル計算結果

#### 4. 4 まとめ

積雪中のラドン挙動および積雪によるラドン散逸の抑制効果を調べる目的で、夜次露天採掘場跡地で積雪中ラドン濃度および積雪表面ラドンフラックスの観測と数値モデルを用いた解析を行い、次の結果を得た。

- (1) 積雪内の濃度の測定値はラドン検出器挿入面への風の影響をうけ大きく変動したが、500 から 3,000  $\text{Bq m}^{-3}$  程度の極大値の包絡線は未攪乱積雪中の濃度変化に対応するものと考えられる。
- (2) 積雪表面からのラドンフラックスの蓄積法による測定による測定結果は 9  $\text{mBq m}^{-2} \text{s}^{-1}$  であった。
- (3) 数値モデルを用いた積雪中ラドン濃度の計算結果によると、上記の濃度観測値に対応する積雪-土壤界面でのラドンフラックスは  $10 \sim 15 \text{ mBq m}^{-2} \text{s}^{-1}$  である。モデル計算による 1.2 m の積雪のラドンフラックス透過率は 0.7 ~ 0.8 であり、この積雪-土壤界面フラックスと積雪表面のラドンフラックス実測値は矛盾の無いものである。また、Rogers and Nielson の式により計算されるラドン拡散係数が積雪中でも合理的な値であることが示された。
- (4) 積雪がある場合にはラドンフラックスは 1~数% に減少する。この原因是、積雪の直接的な被覆効果ではなく、主に融雪水による土壤の潤湿化である。積雪中ラドン濃度の測定ではラドン検出器挿入面の影響を強く受ける結果とな

ったため、今後はラドン検出器設置方法に外気の影響を受けずかつ積雪中で設置位置が固定できるような工夫が必要である。積雪中のラドン濃度の正確な測定が得られれば、種々の要因により影響を受ける積雪中のガス拡散特性を明らかにすることができる可能性がある。

## 参考文献

- 青島弘幸：大陸起源ラドンの広域輸送観測網の構築と積雪期のラドン散逸率の評価，名古屋大学大学院工学研究科原子核工学専攻修士論文、(2003).
- Rogers, V. C. and Nielson, K. K.: "Correlations for predicting air permeabilities and  $^{222}\text{Rn}$  diffusion coefficients of soils", Health Phys., Vol.61, p.225-230, (1991).
- 山澤弘実、永井晴康：大気－裸地1次元モデルの開発、JAERI-Data/Code 97-041、(1997).

## 第5章 まとめと今後の課題

### 5. 1 まとめ

ウラン鉱石を採掘したときに生じる捨石などは、環境保全の観点から覆土などの対策が取られている。本研究では、覆土がなされているような場所での土壤中ラドンの挙動を明らかにすること目的としている。

土壤温度や土壤パラメータを制御した状態で凍結土壤中を拡散するラドン濃度を定量的に評価できる装置を開発した。名古屋大学農学部用地内の土壤の実効拡散係数は、土壤温度が-8°C、-0.1°C、1.8°Cのときに、それぞれ  $1.6 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $1.2 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $3.1 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  であった。名古屋大学6号館横の土壤の実効拡散係数は、-7.2°C、-3°C、-0.5°C、0.2°C、4°Cのとき、それぞれ  $1.5 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $1.4 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $2.8 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $4.6 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$ 、 $3.8 \times 10^{-6} \text{ m}^2 \cdot \text{s}^{-1}$  であった。土壤温度が 0°C を境に拡散係数は急激に変化している。土壤を乾燥させた状態では、実効拡散係数の温度依存性は小さく、経験式から求められる拡散係数に近い値が得られた。

ベントナイト覆土のラドン散逸抑制効果を確認するために、覆土実験と大気-土壤 1 次元モデルを使用した数値計算を行った。名古屋大学構内で行った覆土実験の結果から、5 cm のベントナイト覆土によって  $2.9 \text{ Bq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  のラドン散逸が抑制された。モデル計算の結果と名古屋大学構内での実測値との比較から、モデル計算によるラドン散逸率の評価の妥当性を確認した。夜次露天採掘場跡地にベントナイト覆土を適用した場合のモデル計算を行った。その結果、覆土厚さを 50 cm 程度にすると良い抑制効果が得られた。

積雪中のラドン挙動および積雪によるラドン散逸の抑制効果を調べる目的で、夜次露天採掘場跡地で積雪中ラドン濃度および積雪表面ラドン散逸率の観測と数値モデルを用いた解析を行った。積雪内のラドン濃度は 500 から 3,000  $\text{Bq m}^{-3}$  程度であった。積雪表面からのラドン散逸率は  $9 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  であった。数値モデルを用いた積雪中ラドン濃度の計算結果によると、上記の散逸率に対応する積雪-土壤界面でのラドンフラックスは  $10 \sim 15 \text{ mBq m}^{-2} \text{ s}^{-1}$  であった。積雪がある場合にはラドンフラックスは 1~数% に減少する原因是、積雪の直接的な被覆効果ではなく、主に融雪水による土壤の湿潤化である。

### 5. 2 今後の課題

土壤中のラドンの拡散係数の測定については、今後土壤温度や土壤の種類を増やす必要がある。土壤凍結が拡散係数に与える影響を定量的に評価する必要がある。大気-土壤 1 次元モデルの計算値と実測値に差が生じた原因として、

測定系の問題とモデルで用いた拡散係数の過小評価の可能性がある。検出器を土壤に挿入する際に、検出器と土壤の隙間を埋めるような凝固材を流し込み、場の乱れを少なくする必要がある。実際の土壤と同じ礫や大きな石を含む土壤のラドン拡散係数を評価する必要がある。積雪中ラドン濃度の測定ではセンサ挿入面の影響を強く受けるので、センサの設置方法に工夫が必要である。積雪中のラドン濃度の正確な測定が得られれば、積雪中のガス拡散特性を明らかにすることが可能である。