

土壤中のラドンの拡散係数測定

手法に関する研究 (VII)

(核燃料サイクル開発機構 委託研究成果報告書)

平成17年1月

名古屋大学大学院工学研究科

土壤中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究（VII）

飯田 孝夫*

要　旨

覆土の措置がなされた捨石堆積場の土壤表面から大気へのラドン散逸の評価を目的に、夜次露天採掘場跡地において 1)土壤中ラドン濃度、地表面からの散逸率、土壤含水率等の測定、2)ペントナイト混合土を用いた覆土実験による散逸抑制効果の評価、および 3)これら項目に関して数値計算による比較検討を行った。

測定結果によると、例年ない多雨のため土壤表面が湿潤となり、裸地面でのラドン散逸率は $0.004\sim0.351 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の値を示し、平均値は $0.010 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であった。これらの値は、これまでの測定値より大幅に小さい。覆土を行った地表面からのラドン散逸は大きな変動はなく、 $0.0015\sim0.0030 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の範囲で、平均値は $0.0020 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であり、裸地面より顕著に小さい。土壤中のラドン濃度は $200\sim400 \text{ Bqm}^{-3}$ 程度の値であり、地表面からのラドン散逸と対応する変化を示した。これらより、覆土によりラドンの散逸が顕著に抑制されていると結論される。数値計算では、観測と概ね矛盾しない結果が得られたが、小さい変動の再現が十分ではなかった。

これまでの一連の研究（I～VII）の成果と問題点を、ウラン鉱山跡措置にかかるラドン評価の観点で総括した結果、表層土壤中のラドン挙動が概ね把握され、覆土による散逸抑制が有効であるとの結論が得られた。今後の課題として、水分に影響されない土壤中ラドン濃度測定装置の開発（あるいは、現装置の改良）、実サイトおよび覆土材の土壤特性の把握、覆土材の健全性の確保に関する研究が特に重要であると指摘された。

* 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 (VII)

Takao Iida*

Abstract

To evaluate radon exhalation from the ground surface of a soil-covered landfill for waste rock from a uranium mine, the followings were carried out: 1) continuous measurement of radon concentration in soil air, radon exhalation from ground surface and soil moisture content, 2) experimental evaluation of the effect of bentonite-mixed cover soil to radon exhalation, and 3) numerical simulations on these items.

According to the measurement results, the radon exhalation rate varied in the range from 0.004 to 0.351 $\text{Bq m}^{-2}\text{s}^{-1}$ with an average value of $0.010 \text{ m}^{-2}\text{s}^{-1}$. These values are considerably smaller than those obtained in the measurements in previous years. This can be attributed to wetting of the ground surface due to precipitation much greater than that in the previous years. The radon exhalation from the cover soil surface, on the other hand, was measured to be as small as 0.0015 to 0.0030 $\text{Bq m}^{-2}\text{s}^{-1}$ for the variation range and 0.0020 $\text{Bq m}^{-2}\text{s}^{-1}$ for the average. The radon concentration in soil air was 200 to 400 kBq m^{-3} and varied in accordance with the exhalation. Therefore, it can be concluded that the soil cover effectively and sufficiently reduce the radon exhalation. The numerical simulations showed results pertinent to the observational results except for some short-term variations.

By summarizing the results obtained in the series of studies (I to VII), it was concluded that main parts of radon transfer in the surface soil were understood and the reduction of radon exhalation by cover soil was effective. The remaining issues are development of soil radon monitor which is applicable to nearly saturated soils, measurement of physical properties of cover soils, and study on maintenance of soil cover soundness.

*Graduate School of Engineering, Nagoya University

目 次

第1章 序論	1
1-1 本研究の背景	1
1-2 本研究の目的と内容	2
参考文献	2
第2章 ベントナイト覆土実験	3
2-1 はじめに	3
2-2 実験の概要	4
2-3 土壌物理定数の測定	5
2-3-1 土壌パラメータ測定	5
2-3-2 ラドン放出率の測定	7
2-3-3 土壌水分量の測定	9
2-4 地表面からのラドン散逸率の測定	11
2-4-1 測定方法	11
2-4-2 トロンの影響	13
2-4-3 測定条件	14
2-5 土壤中ラドン濃度の測定	15
2-5-1 測定原理	15
2-5-2 装置の較正	16
2-5-3 土壤中ラドン濃度測定装置の設置	17
2-6 測定結果と考察	18
2-6-1 土壌含水率と降水量	18
2-6-2 ラドン散逸率	20
2-6-3 土壤中ラドン濃度	22
2-7 まとめ	23
参考文献	24
第3章 数値計算によるラドン散逸の評価	25
3-1 はじめに	25
3-2 モデル	25
3-2-1 SOLVEG の概要	25
3-2-2 基本方程式	26
3-2-3 計算条件	27
3-3 計算結果と考察	29

3・3・1 裸地面の土壤水分量	29
3・3・2 裸地面の土壤中ラドン濃度および地表面散逸率	30
3・3・3 ベントナイト混合覆土の効果	34
3-4 まとめ	38
参考文献	39
 第4章 鉱山跡措置にかかるラドン評価の観点での研究のまとめ	41
4-1 はじめに	41
4-2 鉱山跡措置にかかるラドン評価の観点の整理	41
4-3 輸送過程の知見	43
4-4 散逸抑制技術	45
4-5 散逸評価技術	46
4-6 まとめと今後の課題	48
参考文献	49

表目次

表 2.1 露天採掘場跡地での測定内容	5
表 2.2 土壌パラメータの測定結果	7
表 2.3 ラドン散逸率測定の諸条件	15
表 2.4 UGRMS の較正定数 (単位 : $\text{Bqm}^{-3}(\text{count h}^{-1})^{-1}$)	17
表 2.5 AMeDAS 恩原の 2004 年降水量と平年値の比較	19
表 3.1 計算で用いた土壌パラメータ	28
表 4.1 鉱山跡措置にかかるラドン評価の観点	42

図目次

図 2.1 土壌中でのラドン放出の模式図	4
図 2.2 露天採掘場跡地での実験の概要 (粘土面)	5
図 2.3 容器中ラドン濃度の時間変化の計算結果	8
図 2.4 裸地土壌のラドン放出率の測定結果	9
図 2.5 Echo プローブの較正直線	11
図 2.6 地表面ラドンフラックス測定装置の概要	11
図 2.7 ラドンおよびトロンの濃度の遅延時間による変化	14
図 2.8 チャンバの平面図	14
図 2.9 UGRMS 検出器先端部分の構造	16
図 2.10 UGRMS 較正実験の概要	16
図 2.11 人形峠夜次採掘場跡地の表層土壌体積含水率の測定結果	19
図 2.12 人形峠環境技術センターの降水量の観測値	20
図 2.13 人形峠夜次採掘場跡地の地表面ラドン散逸率の測定結果	21
図 2.14 人形峠夜次採掘場跡地の地表面ラドン散逸率の測定結果 (図 2.13 の拡大図)	21
図 2.15 UGRMS による深度 20cm のラドン濃度時間変化の測定値	23
図 2.16 UGRMS による深度 40cm のラドン濃度時間変化の測定値	23
図 3.1 ラドン散逸に関与する過程と環境因子	26
図 3.2 SOLVEG の格子構造	28
図 3.3 モデルで仮定した夜次露天採掘場跡地の 3 層構造	29
図 3.4 裸地土壌の体積含水率時間変化の計算結果	30
図 3.5 裸地面からのラドン散逸率時間変化の計算結果	31
図 3.6 裸地土壌中ラドン濃度の時間変化の計算結果 (深さ : 20cm)	32
図 3.7 裸地土壌中ラドン濃度の時間変化の計算結果 (深さ : 40cm)	32
図 3.8 強い降水の前および降水中の体積含水率鉛直分布の計算結果 (裸地面、全層)	32

図 3-9 強い降水の前および降水中の体積含水率鉛直分布の計算結果（裸地面、表層部分）	33
図 3-10 強い降水の前および降水中のラドン濃度鉛直分布（裸地面、表層）	34
図 3-11 粘土面土壤の体積含水率時間変化の計算結果	35
図 3-12 粘土面からのラドン散逸率時間変化の計算結果	36
図 3-13 粘土面土壤中のラドン濃度時間変化の計算結果（深さ：20cm）	37
図 3-14 粘土面土壤中のラドン濃度時間変化の計算結果（深さ：40cm）	37
図 3-15 強い降水の前および降水中の体積含水率鉛直分布の計算結果（粘土面、表層部分）	38
図 3-16 強い降水の前および降水中のラドン濃度鉛直分布（粘土面、表層）	38

写真目次

写真 2-1 チャンバおよびUGRMS の設置状況（粘土面）	18
--------------------------------	----

第1章 序論

1-1 本研究の背景

^{222}Rn （以下ラドン）は ^{226}Ra （以下ラジウム）の α 壊変で生成される不活性気体である。ラドンは半減期 3.82d で α 壊変して壊変生成物を生成する。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は 2.4mSv であり、そのうちラドン及びその壊変生成物からの被曝は 1.3mSv を占めておりラドンからの被曝は人体の被曝で最も考慮すべきものである。ラドンは主に土壤中のラジウムから発生し地表面から大気中に散逸し、建物床下を通り室内空間へと侵入しラドンの壊変生成物が人体に呼吸によって取り込まれる。壊変生成物は肺に沈着し、体内被曝を引き起こす。地表面からの大気中または屋内へのラドンの散逸の大きさは、土壤中のラジウム濃度、エマネーションパワーといったラドン源の強さに加えて、土壤隙率、土壤含水率等のラドンの土壤中挙動に影響を及ぼす因子に依存する（Wilkening, 1990; Rogers, 1994）。従って、ラドン散逸の評価のためには、これら土壤の特性および環境因子の把握が必要となる。

近年国内のウラン鉱山の閉山に際して、閉山後の環境に対する安全管理が重要となっている。一般に鉱山を閉じる場合には掘削された鉱物やその残留物などによって生じる環境汚染（鉱害）を防ぐために様々な対策が取られる。特にウラン鉱山を安全に復旧するためにはウラン採取の際に発生する鉱さいや捨石の堆積場及び露天採掘場跡地から発生する放射性核種を安全に管理する必要がある。これまでに海外のウラン鉱山での覆土による復旧は報告されている（Cecile 等、2001）。アメリカやオーストラリアではウラン鉱山が人の居住地域から遠く離れているので入念な復旧はされていない。一方、フランスやドイツではウラン鉱山が市街地や幹線道路に近いことがあり、慎重な復旧がなされている。鉱山跡地から発生する放射性核種の大気中への散逸を抑えるために透気性の低い粘土質の土壤で覆土し、更に合成マットで被覆している。この様に厚く被覆すると鉱さいや捨石内の放射性核種が外部に漏出することは殆ど無く、ラドンのような気体の放射性各種も内部に閉じ込められる。この様に安全に復旧されたウラン鉱山はラドン温泉を設けた保養施設や運動公園となって有効に活用されている。国土の狭い日本では両国の経験を参考にし、入念な復旧が求められる。環境安全に关心が高まっている近年、国内のウラン鉱山の復旧方法を確立する必要性がより一層高まっている。

昨年度の委託研究においては、表層土壤でのラドン挙動を明らかにすることを目的に、1)凍結および非凍結表層土壤中のラドン拡散係数の実験室内測定、2)積雪のラドン散逸に及ぼす影響の観測および数値実験による評価、3)ペントナイト覆土によるラドン散逸抑制について的一般土壤を用いた予備的実験および数値解析を行った。その結果、拡散係数測定では、土壤中のラドンの実効拡散係数は Rogers and Nielson(1991)の経験式により良好に再現さ

れ、凍結により拡散係数が急激に減少することが見いだされた(Yamazawa et al., 2004)。積雪時においては、積雪自体がラドン散逸を抑制する効果は小さいが、積雪・土壤界面での湿潤化によりラドン散逸が抑制されることが示された。また、ベントナイト覆土による散逸抑制効果の評価においては、5cm の覆土によりラドン散逸が約半分に抑制されることが分かり、ラドン散逸抑制の目的でベントナイト覆土を用いることの有効性が示された。

1-2 本研究の目的と内容

以上の結果を受け、本年度は覆土によるラジウム濃度が比較的高い土壤からのラドン散逸抑制効果の確認と数値実験による評価を目的として、核燃料サイクル開発機構人形峠環境技術センター内の夜次露天採掘場跡地においてベントナイト・マサ土混合土の覆土によるラドン散逸率の違いに関する屋外測定および関連する数値実験を行った。

屋外測定では、粘土を覆土した土壤面と覆土をしていない土壤面からのラドン散逸率と土壤空气中ラドン濃度、土壤含水率を約80日間に渡り連続測定した。また、現地から持ち帰った土壤について、基本的な土壤物理特性およびラドン散逸率の測定を名古屋大学内の実験室において行った。さらに、ラドン輸送の重要な媒体である空気と水の動的挙動を考慮した数値計算モデルによって地表面からのラドン散逸率と土壤中ラドン濃度分布の計算を行い、実測値と比較とともに、ラドン散逸抑制を定量的に評価した。

参考文献

- Cecile, F., Patrick, R., Alain, B., Marie, C.R., "Evaluation of the effect of a cover layer on radon exhalation from uranium mill tailings: transient radon flux analysis", Journal of Environmental Radioactivity, Vol.63,49-64,2002.
- Rogers,V.C. and Nielson,K.K., "Correlations for predicting air permeabilities and ^{222}Rn diffusion coefficients of soils", Health Phys.,Vol.61,225-230,1991.
- Rogers, V.C., et al., "Radon diffusion coefficients for residential concretes", Health Physics, Vol.67, 261-265, 1994
- UNSCEAR, "Sources and effects of ionizing radiation", 2000.
- Yamazawaa H., T. Miyazakia, J. Moriizumia, T. Iida,S. Takeda, S. Nagara, K. Sato, T. Tokizawa, "Radon exhalation from a ground surface during a cold snow season", International Congress Series, 2004 (in press).
- Wilkening, M., "Radon in the environment", Elsevier, Amsterdam, 1990.

第2章 ベントナイト覆土実験

2-1 はじめに

本節では表層土壤でのラドン散逸挙動を概観する。土壤はその構成として固相、気相、液相から成る。固相は土壤粒子で占められている部分で、気相は土壤中の間隙、液層は液体水が占めている部分である。乾燥土壤に液体水が浸潤すると、土壤はその特性として土壤団粒の周りに静電引力によって水分子を引き付ける。その結果団粒の周りに層を形成するような形で水分子が吸着する(Tindall and Kunkel, 1999)。

ラドンは固相中のラジウム岩石から発生する。図2.1に土壤中でのラドン放出の模式図を示す。ラジウム（半減期 1.6×10^3 y）の α 壊変によって生成されたラドンは α 粒子との反跳作用によって放出され、ラドン原子が周囲の空間に飛び出す。土壤粒子内で停止したラドン原子はそのまま岩石中に留まる。間隙に放出され停止したラドン原子は間隙中を移流・拡散によって移動し、大気中へ散逸し得る。土壤水中で停止したラドンは比較的土壤空気中に移行しやすいため、大気中へ達する可能性がある(Wilkenig, 1990)。

この様にラジウムの壊変によって放出されたラドンはその周りの環境によって放出後の挙動が異なる。放出されたラドン原子が土壤間隙中に留まる確率をエマネーションパワーといい、0から1までの値をとりうる。エマネーションパワーは土壤の含水率と密接な関係を持っている。土壤が乾燥状態では土壤粒子から放出されたラドン原子は近傍の土壤粒子に拘束される確率が高くなり、エマネーションパワーは小さい。一方、土壤含水率が増加すると放出されたラドン原子は土壤中水分によって減速され、間隙中で停止する確率が高くなり、その結果エマネーションパワーは増加する。Bossew(2003)は土壤の体積含水率が0.1以上ではエマネーションパワーは飽和し、乾燥土壤での値の約2倍の値をとると報告している。また、Dadong et al.(2004)はエマネーションパワーの土壤温度への依存性を測定し、-20°Cから40°Cの範囲でエマネーションパワーは温度とともに増加すると報告している。このように土壤中の間隙率、含水率、粒子密度等のパラメータはラドンの放出に対して重要な要素となることが分かる。

土壤内で発生したラドンの大気中への散逸を抑制するためには、土壤中の間隙を少なくし、土壤内から地表面へのラドンの移動を遅延させることが有効である。鉱物粘土の一種であるベントナイトはその主成分であるモンモリロナイトが水を吸うと膨張し、かつ水分を容易に離さないという特性を持つ。ベントナイトは我々の身近な部分では化粧品やペット用トイレの吸収剤などに使用されており環境への悪影響が少ないとされている。この様な特性からベントナイトはラドンバリア材として期待される。水を吸って膨潤した間隙率の小さいベントナイトをラドンバリア層として用いることで、ラドンの土壤中の拡散速度を減少させ、その結果大気中への散逸を抑えることが出来ると予想される。

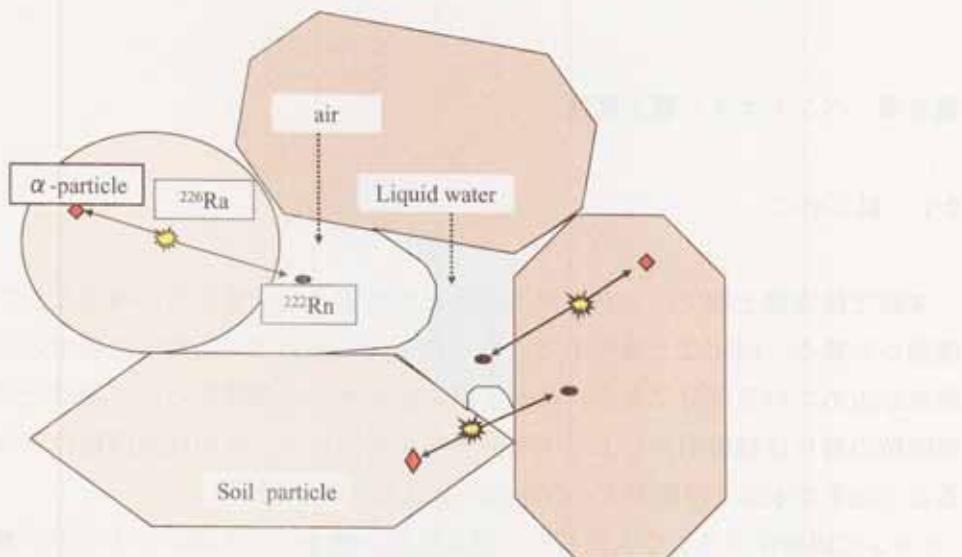


図 2.1 土壤中でのラドン放出の模式図

2・2 実験の概要

ペントナイト混合土の覆土によるラドン散逸抑制効果の実験を岡山県苫田郡上斎原村の核燃料サイクル開発機構人形峠環境技術センター内の夜次露天採掘場跡地（No.19 孔コンテナハウス付近）にて行った。夜次露天採掘場跡地は 1957 年から 1987 年までウラン鉱石の採掘が行われ、その後捨石が埋め戻され、全体を 3~5m の厚さの表土で覆土し、更に厚さ約 1.5m のマサ土による覆土が施されている。

対象地点にラドンバリア材としてのペントナイト混合土が覆土された土壤面（以下粘土面とする）と覆土のされていない裸地土壤面（以下裸地面とする）を設定した。ペントナイト混合土は母材である倉吉市円谷産のマサ土に添加剤として米国産ボルクレイ原鉱石（ペントナイト）をツイスター混合機により破碎・混合したものを用いた。ペントナイト添加率は乾燥質量比 12.5%とした。ペントナイト混合土の覆土は 2m × 2m の正方形状の土地に地表面の植生根層を掘削した後、厚さ 12cm で覆土し、4t 振動ローラーによって転圧した。同様に 2m × 2m の裸地面は植生根層を掘削し基盤を覆土面と同じ高さに整形した。実験場所の模式図を図 2.2 に示す。

実験では露天採掘場跡地の粘土面および裸地面に土壤空气中ラドン濃度連続測定装置のセンサーを各々 2 深度、地表面ラドン散逸率連続測定用のチャンバ各々 1 台、土壤水分計センサーを各々 2 深度に設置した。測定項目を表 2.1 に示す。測定原理および方法は後述する。

観測期間は 2004 年 9 月 14 日から 12 月 3 日までである。

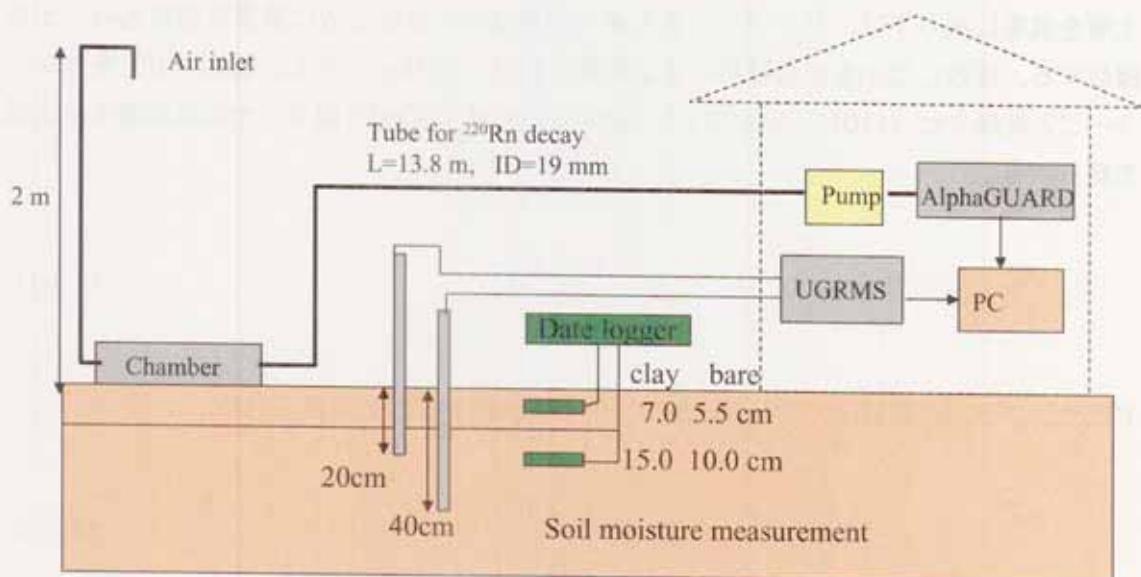


図 2.2 露天採掘場跡地での実験の概要（粘土面）

表 2.1 露天採掘場跡地での測定内容

測定項目	測定方法	測定内容
地表面ラドンフラックス	通気式チャンバ	測定深度： 20, 40cm
	+AlphaGUARD	データ間隔： 1 時間
土壤中ラドン濃度	UGRMS	データ間隔： 1 時間
体積含水率	Echo Probe	測定深度 粘土面： 7.0, 15.0 cm 裸地面： 5.5, 10.0 cm データ間隔： 10 分

2・3 土壌物理定数の測定

2・3・1 土壌パラメータ測定

測定サイトの土壤物理特性は土壤中のラドンの挙動に大きく影響を及ぼす。本節では土壤パラメータとして土壤の乾燥密度、真密度、間隙率の測定方法と測定結果を述べる。

(1) 乾燥密度

サンプリング法は直径 5cm、高さ 5cm の円筒形ステンレススチールパイプであるコアサンプラーを用いた。サンプラーの質量をはかり、 $W_0[\text{kg}]$ とする。採取時は目的の深度まで

土壤を慎重に掘り下げ、サンプラーを木槌で叩きながら垂直下方に慎重に埋め込み、土を採取する。採取した土を湿润試料のまま質量を測り、 $W_1[\text{kg}]$ とする。電気炉で土をサンプラーごと乾燥させ（110℃、24h以上）、乾燥後の質量 $W_2[\text{kg}]$ を測る。土の湿润密度は次式で得られる。

$$\rho_t = \frac{W_1 - W_0}{V} \quad (2 \cdot 3 \cdot 1)$$

V はサンプラーの容積[m³]である。また、土の乾燥密度は次式で得られる。

$$\rho_d = \frac{W_2 - W_0}{V} \quad (2 \cdot 3 \cdot 2)$$

体積含水率は(2-3-3)式で表せる。ただし ρ_w は水の比重[kgm⁻³]である。

$$\theta = \frac{\rho_t - \rho_d}{\rho_w} \quad (2 \cdot 3 \cdot 3)$$

(2) 真密度

ピクノメーターを良く洗って乾かした後、その質量 W_f を測る。ピクノメーターに蒸留水を満たし、その質量 W_a を測る。100mlのピクノメーターに風乾土を容積の約1/3まで入れ、電気炉でそのまま乾燥（110℃、24h）させ、その質量 W_s を測る。次に、ピクノメーターの容積の1/2まで蒸留水を注ぎ、ストッパーをつけて排気用デシケーターに入れる。真空ポンプでデシケーターを排気して試料中の気泡を除く。初めは内容物が沸き立つたら排気を止めて常圧に戻し、再び排気を始める。これを2~3回繰り返すと沸き立つことなく気泡が出るようになるので20mmHg以下の圧力で排気を続け、気泡がほとんど出なくなったら排気を止めてそのまま10時間以上放置する。その後再び排気して気泡が出なくなったときピクノメーターを取り出す。その後、ピクノメーターに蒸留水を満たし、その質量 W_b を測る。土壤の真密度は次式で求められる。

$$\rho_s = \frac{W_s - W_f}{W_s + W'_a - W_f - W_b} \quad (2 \cdot 3 \cdot 4)$$

(3) 間隙率

間隙率 P は乾燥密度と真密度から(2-3-6)式で求まる。

$$P = 1 - \frac{\rho_d}{\rho_s} \quad (2-3-5)$$

表 2-2 に実験サイトである夜次露天採掘場跡地のチャンバ内土壌面の表層 0・5cm から観測終了時にコア採取した土壌 ($H=50\text{mm}$, $\phi=50\text{mm}$) の物理パラメータの測定結果を示す。乾燥密度および粒子密度は覆土施工者の「覆土材の製造および施工作業報告書」に示された施工時の値 $1.62 \times 10^3 \text{ kgm}^{-3}$ および 2.66 kgm^{-3} とほぼ同じ値であり、膨潤による密度低下は見られない。

表 2-2 土壌パラメータの測定結果

	裸地面	粘土面
湿潤密度 ρ_t [kgm^{-3}]	1.90×10^3	1.94×10^3
乾燥密度 ρ_d [kgm^{-3}]	1.54×10^3	1.60×10^3
真密度 ρ_s [kgm^{-3}]	2.53×10^3	2.67×10^3
間隙率 P [m^3m^{-3}]	0.39	0.40
体積含水率 θ [m^3m^{-3}]	0.36	0.33

2-3-2 ラドン放出率の測定

本節では単位重量土壌のラドン放出率の測定原理、測定方法、測定結果を述べる。

(1) 原理

測定対象土壌を容器内に密閉し、容器内のラドン濃度から放出率を求める。体積 $V[\text{m}^3]$ の密閉容器に目的とする土壌を質量 $w[\text{kg}]$ 入れて密閉し、放置する。土壌のラドン放出率を $S[\text{Bqkg}^{-1}\text{s}^{-1}]$ とすると時間 $\Delta t[\text{s}]$ だけ経過したときの容器内の濃度変化 $\Delta C[\text{Bqm}^{-3}]$ は次式で表される。

$$\Delta C = \frac{Sw\Delta t}{V} - \lambda C\Delta t \quad (2-3-6)$$

ここで、 λ はラドンの壊変定数である。これより、容器内の濃度の変化を表す次の微分方程式を得る。

$$\frac{dC}{dt} = \frac{Sw}{V} - \lambda C \quad (2-3-7)$$

これより、容器内のラドン濃度は次の式で与えられる。

$$C(t) = \left(C_0 - \frac{Sw}{\lambda V} \right) \exp(-\lambda t) + \frac{Sw}{\lambda V} \quad (2-3-8)$$

ここで、 C_0 は容器内の初期ラドン濃度である。

(2-3-8)式では容器内のラドン濃度は長時間経過すると右辺第2項に収束することが分かる。この様にラドンが平衡状態になるとラドンの生成と崩壊が等しくなるので $\lambda CV = wS$ となり、ラドンの放出率 S は次式で表される。

$$S = \frac{\lambda CV}{w} \quad (2-3-9)$$

以上より、非平衡時の濃度の時間変化に式(2-3-8)をあてはめるか、平衡時のラドン濃度 C を求めればラドン放出率 S が求まることが分かる。

本研究では後者の方法によりラドン放出率を求めた。平衡に要する時間を見積もるため、式(2-3-8)に上述の裸地面の土壤パラメータを代入してラドン濃度の時間変化を計算した結果を図2-3に示す。ラドン放出率 S は過去の測定値から $1.34 \times 10^{-3} [\text{Bq m}^{-3} \text{s}^{-1}]$ と仮定した。計算結果によるとラドン濃度が平衡状態に達するまで 30 日程度要することが分かる。

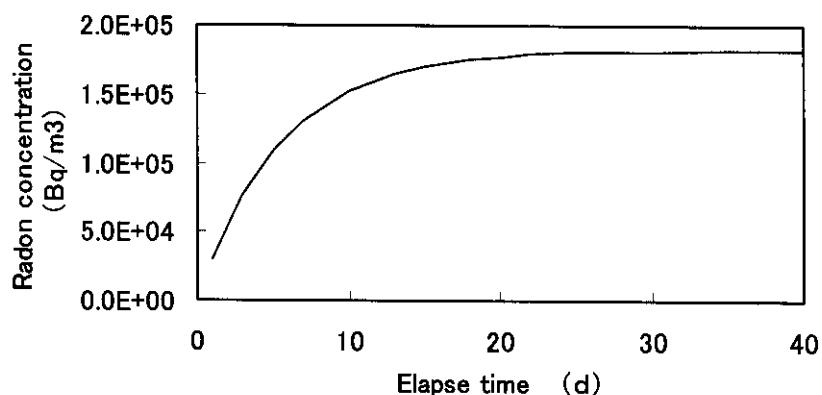


図 2-3 容器中ラドン濃度の時間変化の計算結果

(2) 方法

測定は容積 7.0L のステンレス製密閉容器に体積含水率の異なる人形咲の周辺土壤を湿潤重量で 2kg 程度入れ、平衡になるまで 30 日間放置した。30 日経過後の容器内の空気をサ

ンプリングバッグに採取し、シンチレーションカウンタ（AB-5、Pylon）を用いてその空気のラドン濃度 $C[\text{Bqm}^{-3}]$ を測定した。式(2-3-9)を用いてラドン放出率を計算した。

体積含水率とラドン放出率の測定結果を図 2-4 に示す。単位土壤重量当たりのラドン放出率は、体積含水率が 0 から 0.15 程度の範囲で増加し、体積含水率がこの範囲より大きい領域では減少している。ラドンのエマネーションが体積含水率とともに増加するという Bossew(2003)の結果と同様の結果となった。今回の結果で、体積含水率が大きな領域でエマネーションが減少したのは、容器内に土壤を数 cm 層状に入れたため、高含水率の場合に土壤からその上の容器内空間への拡散が阻害されたためと考えられる。また、土壤を容器内に封入する際に、現地のバルク密度と同等になるように土壤表面を押し固めた。そのため表面がより強く圧密されたことにより、容器内へのラドンの散逸が減少した可能性がある。従って、モデル計算で用いる値としては図 2-4 の値は過小である可能性がある。

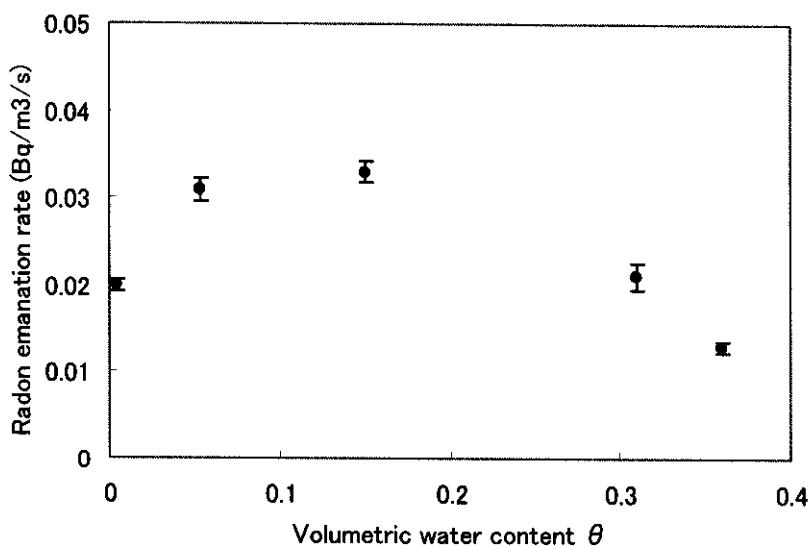


図 2-4 裸地土壤のラドン放出率の測定結果

2-3-3 土壌水分量の測定

本測定では土壤中の水分量を連続的に測定するために誘電性土壤水分計である Echo 土壤水分計（Decagon Devices, Inc.）を用いた。土壤の誘電率は含水率に依存するので、Echo センサーは土壤誘電率を測定することにより土壤の含水率を求める。Echo センサーは設置が容易な上電源は乾電池で長期間連続測定できるというメリットがある。センサー部は板状で $3\text{cm} \times 15\text{cm}$ である。センサーを測定したい土壤に埋め込み、電源をかねたデータロガーに接続する。出力としては電圧が出力される。

観測サイトでの設置場所は粘土面の深度 7.0cm、15.0cm 及び裸地面の深度 5.5cm、10.0cm

とした（表 2-1）。粘土面の深度 7.0cm は覆土内であり、その他は本来の土壤内である。データの取り込みは PC で行い、出力電圧を較正曲線より土壤の体積含水率に変換した。データの取得間隔は 10 分とした。

Echo 土壤中水分計は一般的な土壤での含水率を求めることが出来るが、より正確な値を得るために測定サイトの土壤を用いてプローブからの出力電圧を土壤の体積含水率に較正する必要がある。本実験では夜次露天採掘場跡地から土壤を採取し、実験室にて以下の手順で較正実験を行った。

- (1) プラスチック製容器に土壤の厚さが 5cm 以上になるように土壤を入れ、水分分布が一様になるように十分に土壤を攪拌した。
- (2) Echo プローブを土壤中に設置し土壤を慎重に圧密した。
- (3) 直径 5cm、高さ 5cm のコアサンプラーにて土壤を採取した。
- (4) サンプラーで採取した土壤を 2-3-1 に記した方法で体積含水率を測定した。
- (5) Echo プローブの出力電圧とサンプラーで測定した体積含水率を比較した。

Echo プローブの特性として測定土壤を圧密する際に体積含水率の大小により出力電圧に差が生じる。水分量が飽和状態に近い土壤では圧密によりプローブ周辺の水分が逃げ、土壤粒子が周辺に集まるのでプローブ周辺では含水率が実際より低い状態になり出力電圧は下がる。水分量が低い土壤では圧密により土壤粒子がプローブ周辺に集積すると粒子表面に保持された水分がプローブに接触するので水分量が周りより高い状態が作られ、その結果出力電圧が上昇する。

本較正実験では乾燥した土壤での測定結果と夜次露天採掘場跡地にプローブを設置した後の測定データのうち体積含水率が飽和状態と思われる点の出力電圧の 2 点を用いて較正直線を作成した。較正直線を図 2-5 に示す。

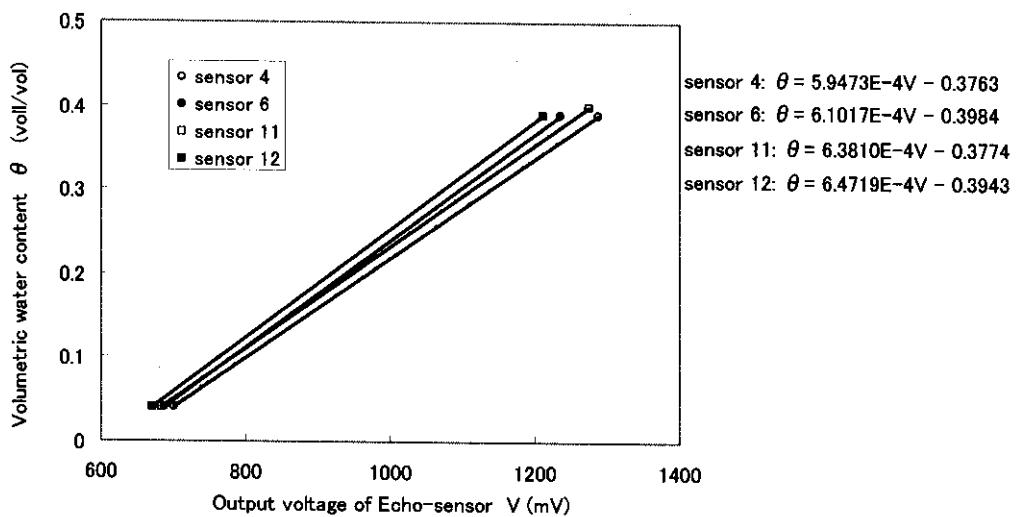


図 2-5 Echo プローブの較正直線

2-4 地表面からのラドン散逸率の測定

2-4-1 測定方法

地表面からのラドン散逸率は通気チャンバ法により測定した。地表面に底面の開いたチャンバを設置し、チャンバ内の空気のラドン濃度から散逸率を求める。

通気チャンバ法の測定装置の概要を図 2-6 に示す。トロンの効果を減衰させるためにチャンバから AlphaGUARD まで 13.8m のホースを接続し、底流量ポンプによりチャンバ内の空気を壊変生成物除去用のフィルターを通して Alpha GUARD に導く。トロンの減衰については次節で述べる。

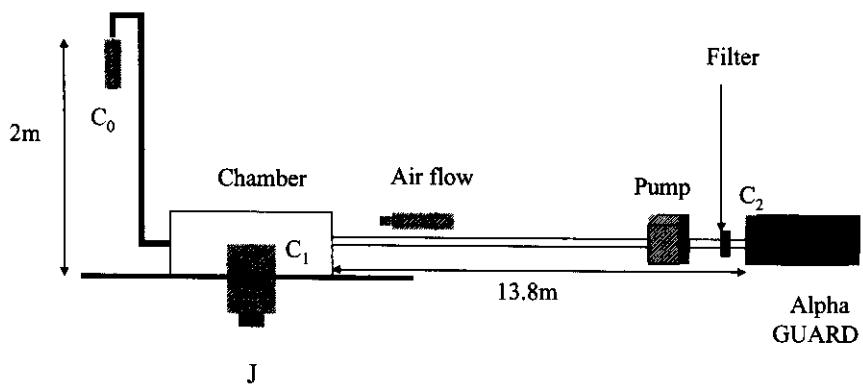


図 2-6 地表面ラドンフラックス測定装置の概要

通気チャンバ内のラドン濃度を C_1 とすると、ラドンの収支は以下の式で表される。

$$\Delta C_1 = \frac{JS\Delta t}{V} + \frac{C_0v\Delta t}{V} - \frac{C_1v\Delta t}{V} - \lambda C_1 \Delta t \quad (2-4-2)$$

上式の右辺第 1 項は地表からのラドンフラックスによる増加を表す項、第 2 項はチャンバへの外部空気吸入を表す項、第 3 項はチャンバ内空気の流出を表す項、第 4 項はラドンの壊変項である。但し、 C_0 は外部濃度[Bqm⁻³]、 v はポンプ流量[m³s⁻¹]、 λ はラドンの崩壊定数[s⁻¹]、 Δt は経過時間[s]である。式(2-4-2)より C_1 に対する以下の微分方程式が得られる。

$$\frac{dC_1}{dt} = \frac{JS}{V} + \frac{C_0v}{V} - \frac{C_1v}{V} - \lambda C_1 \quad (2-4-3)$$

ここで、チャンバ内の空気の交換率 $L=v/V[s^{-1}]$ を用いると、上式の解は次式となる。

$$C_1 = \frac{1}{\lambda+L} \left\{ \frac{JS}{V} + C_0 L - \left(\frac{JS}{V} - \lambda C_0 \right) \exp\{-(\lambda+L)t\} \right\} \quad (2-4-7)$$

Alpha GUARD にて測定される濃度 C_2 はチャンバ内の空気が AlphaGUARD まで到達するのに要する時間(遅延時間) t_s [s]でのラドンの崩壊のみで評価できるので次式となる。

$$C_2 = C_1 \exp(-\lambda t_s) \quad (2-4-8)$$

従って、

$$C_2 = \frac{\exp(-\lambda t_s)}{\lambda+V} \left[\frac{JS}{V} + C_0 L - \left(\frac{JS}{V} - \lambda C_0 \right) \exp\{-(\lambda+L)t\} \right] \quad (2-4-9)$$

この式より散逸率 $J[Bqm^{-2}s^{-1}]$ は次の式で表される。

$$J = \frac{V \left[\frac{C_2(\lambda+L)}{\exp(-\lambda t_s)} - C_0 L - \lambda C_0 \exp\{-(\lambda+L)t\} \right]}{S[1 - \exp\{-(\lambda+L)t\}]} \quad (2-4-10)$$

2-4-2 トロンの影響

地表面から発生するラドン濃度を正確に測定するにはその壊変生成物である ^{218}Po 、 ^{214}Pb 、 ^{214}Bi 、 ^{214}Po の放射能からの寄与と、ラドンの同位体であるトロン (^{220}Rn) からの放射能を除去する必要がある。子孫核種はエアロゾルに付着した性状または非付着のままとなっている。今回の測定では図 2-6 に示したように AlphaGUARD の吸入口の直前に設けたメンブレンフィルター（ポアサイズ $0.8\mu\text{m}$ ）に捕まえてその効果を除去した。

トロンは半減期 55.7s と比較的短いので発生源から測定器まで十分な遅延時間を作ることにより壊変によって壊変生成物となるのでフィルターによって除去できる。本実験ではチャンバから AlphaGUARD まで長さ 13.8m 、内径 19mm のホースを接続し、ポンプ流量 0.20Lmin^{-1} で空気を引くことにより約 20min の遅延時間を設けた。

通常の表層土壤中にはラドンとトロンの親核種が放射能量としてほぼ同量含まれているため、それぞれから土壤中で単位体積・単位時間に生成するラドンとトロンの原子数はほぼ同じである。従って、放射能量ではトロンはラドンの壊変定数（ラドン $\lambda=2.08\times10^{-6}\text{s}^{-1}$ 、トロン $\lambda_T=0.0124\text{s}^{-1}$ ）の比 λ_T/λ の割合だけ多い。一方、土壤中を拡散し地表面に達するとのできるラドンおよびトロンは、地表面からの深さがその核種の寿命の間に拡散できる距離（拡散距離 L_D ）以内で発生したものに限られる。平均寿命 τ は壊変定数に反比例する。

また、拡散距離は実効拡散係数 D_{eff} を用いて

$$L_D = \sqrt{2D_{eff}\tau}$$

と表され、地表面からのラックスはこれに比例する。従って、ラドンとトロンのフラックスの比は $(\lambda_T/\lambda)^{1/2}$ となり、トロンが約 77 倍大きい。人形峠における過去の測定結果から散逸率 J としてラドンは $0.20\text{Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 、トロンはその 77 倍である $14.4\text{Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ を代入した時の遅延時間による濃度変化の計算結果を図 2-7 に示す。この図より、遅延時間 20 分で十分にトロンは減衰することが分かる。更に露天採掘場跡地ではウランが豊富なのでトロンよりもラドンが多く存在するのでトロンの散逸率は $14.4\text{Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ よりも小さいことが予想される。これらより本実験では遅延時間を 20min とした。

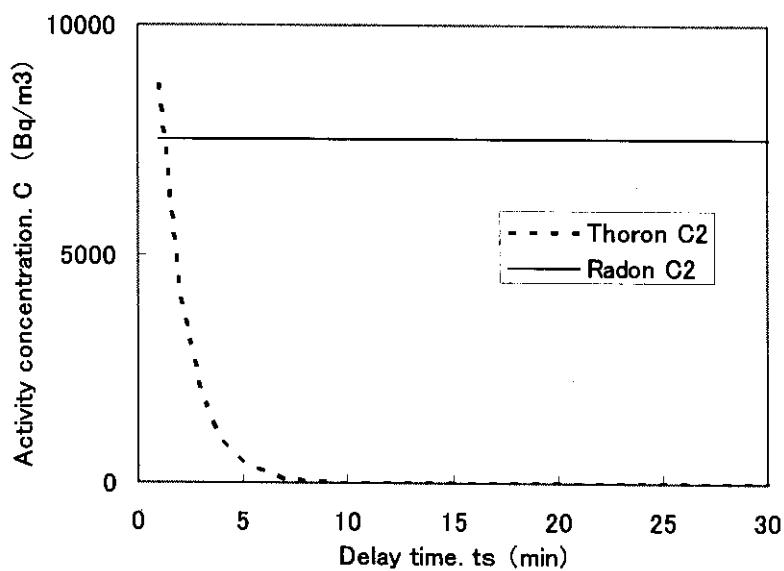


図 2-7 ラドンおよびトロンの濃度の遅延時間による変化

2-4-3 測定条件

表 2-3 にラドン散逸率の測定に用いた諸条件を示す。

本実験で使用したチャンバは $40\text{cm} \times 50\text{cm} \times 8\text{cm}$ のステンレス製直方体で、内部は仕切り板によって「コ」の字状に仕切られている。図 2-8 に使用したチャンバの平面図を示す。側面に 2箇所のサンプリング口があり片方の口からポンプによって空気を吸引し、AlphaGUARD へ流入させた。他方の口は外部空気の吸入口となっている。吸入する空気はラドン濃度を低くするために吸入口を地上高 2m まで延長させた。チャンバは観測サイトに 2cm 埋め込んで設置した。

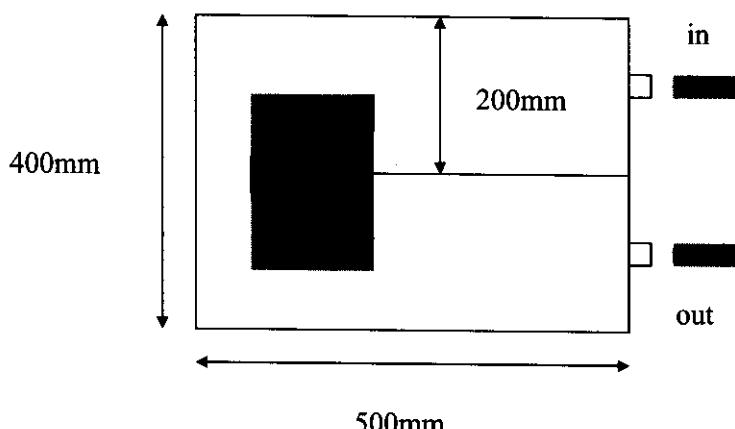


図 2-8 チャンバの平面図

空気流量の変動はフラックス測定値の誤差要因となるため、ポンプはダイヤフラム式で、自動的に設定流量となるようにモータ速度を自動的に調整できるものを用いた。流量は 0.2Lmin^{-1} とした。

ラドン濃度は AlphaGUARD PQ2000 (Genitron Instruments, Germany) を用いて 1 時間平均値を連続測定した。AlphaGUARD は小型軽量で扱いが容易な上、温度変化や湿度変化に対して安定した測定を行うことができるので野外環境下でのラドン測定に非常に適している。

表 2-3 ラドン散逸率測定の諸条件

条件	値
チャンバ表面積 S [m^2]	0.20
チャンバ体積 V [m^3]	1.2×10^{-3}
ポンプ流量 v [Lmin^{-1}]	0.20
交換率 L [s^{-1}]	2.8×10^{-4}
遅延時間 t_s [s]	1.2×10^3
測定時間 t [s]	3.6×10^3
ラドンの崩壊定数 λ [s^{-1}]	2.08×10^{-6}

2-5 土壤中ラドン濃度の測定

2-5-1 測定原理

本測定では土壤中のラドン濃度を連続測定するために、土壤中ラドン濃度連続測定システム (Under Ground Radon Monitoring System、以下 UGRMS) を使用した (Yamamoto et al., 2001)。検出器は棒状であり、土壤に突き刺して使用する。検出器先端部の構造を図 2-9 に示す。先端は容量 4mL の ZnS(Ag) のシンチレーションセルが内蔵されている。土壤中空気は自然換気により気水分離膜 (Celgard2400 ; Hoechist Celanese 製) を介してセル内に導かれる。セル内でラドンとその壊変生成物 (^{218}Po , ^{214}Po) から放出される α 線 (5.5MeV, 6.0MeV, 7.7MeV) はセル内のシンチレーターで光に変換される。セルの後部に設置された光電子増倍管 (H3164-10 ; 浜松ホトニクス製) によって光は電気信号に変換され、ケーブルを介して接続されたデータロガーに収集される。

本研究では光ファイバーの使用の有無による 2 種類の UGRMS を使用した。光ファイバーを用いた検出器 (以下光ファイバータイプ) は直径 12mm、全長約 1m であり、胴

体部はステンレス製である。検出器先端のセルで発生した光は光ファイバーを介し、検出器上端に設置された PMT に送られる。光ファイバーを使用していない検出器（以下高感度タイプ）は直径 20mm、全長約 1m であり、胴体部はアルミニウム製である。先端部のセルの直後に PMT が設置してある。両検出器とも専用のデータロガーに接続して測定を行い、 α 線計数値を 1 時間毎に蓄積する。データは一定期間後に PC で取り込んだ。

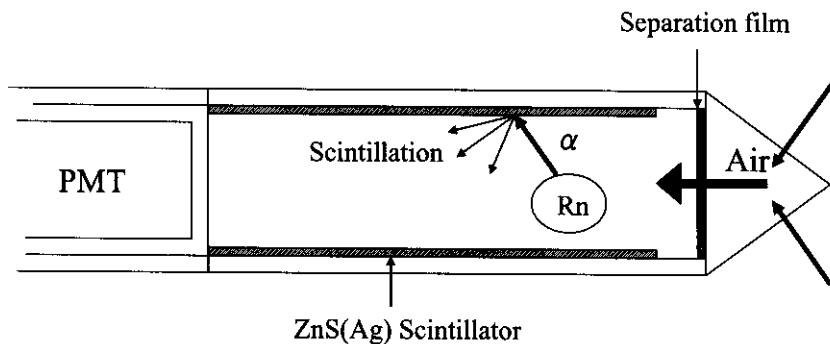


図 2-9 UGRMS 検出器先端部分の構造

2-5-2 装置の較正

検出器はラドンのみではなくその壊変生成物である ^{218}Po 、 ^{214}Po からの α 線（6.0MeV、7.7MeV）も検出する。また、光ファイバー式の検出器では光ファイバーによる光損失のための計数損失がある。この様な特性から検出器の計数値をラドン濃度に較正する必要がある。以下の手順で較正を行った。較正実験の概要を図 2-10 に示す。

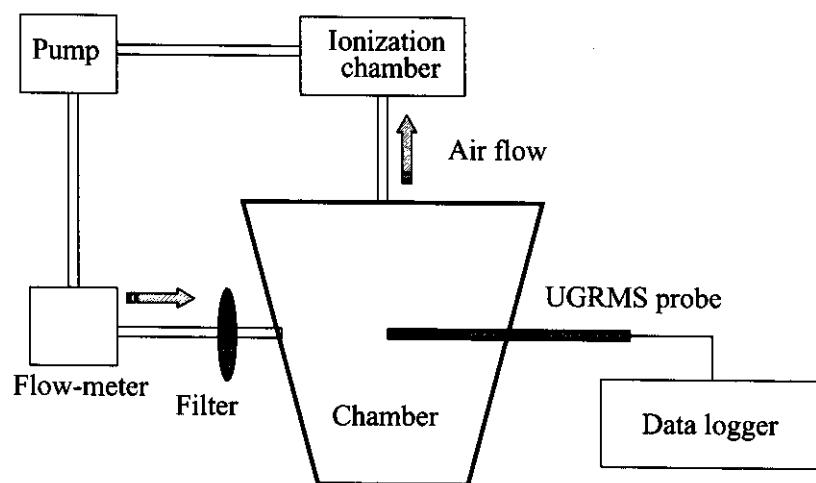


図 2-10 UGRMS 較正実験の概要

- (1) 電離箱に接続してある 247.8L の大型密閉容器に UGRMS のプローブ先端を設

置し、容器に高ラドン濃度空気を封入した。容器内の空気を約 3Lmin^{-1} のポンプで循環しラドン濃度が均一になるまで4時間程度待った。

- (2) 容器内のラドン濃度は電離箱により測定した。電離箱の出力電圧はラドン濃度に比例し、ラドン濃度 $C_R[\text{Bqm}^{-3}]$ は以下の式で求めることができる。ただし、 i 、 Q 、 V 、 t 、 F は電流[A]、電荷[C]、電圧[V]、時間[s]、キャパシタンス[F]である。

$$i = \frac{dQ}{dt} = F \frac{dV}{dt} = 1088 \times 10^{-12} \times \frac{V_1 - V_0}{t_1 - t_0}$$

$$C_R = (i \cdot 10^{15} - 7.26) \times 17.8$$

- (3) UGRMS でのカウント数と電離箱によるラドン濃度の比較から較正定数を決定した。

本研究で用いた光ファイバータイプの検出器と高感度タイプの検出器各 2 本の較正結果を表 2-4 に示す。

表 2-4 UGRMS の較正定数 (単位 : $\text{Bqm}^{-3}(\text{count h}^{-1})^{-1}$)

検出器種類	高感度タイプ		光ファイバータイプ	
検出器番号	No.1	No.2	No.1	No.2
較正定数	23.3	21.8	220	159
標準偏差	1.5	1.2	32	18

2-5-3 土壌中ラドン濃度測定装置の設置

測定場所の土壌に検出器の径に合ったドリルで目的の深度まで孔を開けた。この際できるだけ土壌環境を乱さないように注意した。粘土面に高感度タイプの検出器を、裸地面に光ファイバータイプの検出器をそれぞれ慎重に挿入した。検出器挿入後、雨水等の検出器内への浸入を防ぐためにビニール製の袋で検出器全体を覆った。設置した様子を写真 2-1 に示す。UGRMS のデータロガーは観測サイトから 5m 程度離れた観測小屋内に設置した。



写真 2-1 チャンバおよび UGRMS の設置状況（粘土面）

2-6 測定結果と考察

Echo プローブを用いた土壤含水量の測定結果を図 2-11 に、降水量の測定結果（人形峰環境技術センター測定）を図 2-12 に、裸地面および粘土面のラドン散逸率の測定結果を図 2-13 および 2-14（低散逸部分の拡大図）に、深度 20cm および 40cm の土壤空气中ラドン濃度の測定結果をそれぞれ図 2-15 および 2-16 に示す。

2-6-1 土壤含水率と降水量

裸地面上土壤の体積含水率は 0.37 から 0.39 の値で推移し、飽和含水率である 0.39 に近い。また、粘土面の深度 7.0cm の体積含水率は時間の経過とともに徐々に増加し、11 月以降は飽和に近い 0.39～0.40 であった。深度 15.0cm では観測開始時の 0.32 程度から 9 月 16 日頃の降水に伴い急激に増加し、その後は緩慢な増加を経て、10 月中旬以降は裸地面と同程度の飽和に近い値となっている。粘土面深度 7.0cm での測定値が観測期間前半でほぼ単調に増加したのは、圧密された粘土覆土に土壤水分計センサーを挿入する際に明けた横孔によりセンサー周りに間隙ができ水分計の指示値が小さくなり、その後土圧により自然に周囲との圧密状態に戻ったことによるものと考えられる。従って、10 月中旬以前の粘土面深度 7.0cm での体積含水率の測定値は正しくないものと考えられる。

本年度の観測期間は降水量が極めて多く、観測期間全般にわたって降水が続いた。特に、降水強度が 20mmh^{-1} を超える降雨が観測期間中の 9 月 17、29 日および 10 月 20 日の 3 回観測され、観測期間の総降水量は 906mm であった。観測地点に最も近い AMeDAS 観測点

の恩原での降水量で見ると（表2-5）、9月～11月の平年降水量は595mmであるのに対して、2004年は1475mmで平年の約2.5倍の降水量であった。

このような異常に多い降水量に伴い、測定対象土壌面は観測期間を通して飽和に近い状態が続き、土壌面が飽和に近い状態以外での測定データを得ることができなかった。

表2-5 AMeDAS 恩原の2004年降水量と平年値の比較

	平年	2004年
1月	196.7	172
2月	228.2	102
3月	188.1	144
4月	149.7	133
5月	165	295
6月	227.6	146
7月	280.9	89
8月	181	547
9月	277.5	505
10月	162.5	423
11月	154.7	58
12月	157.4	278
全年	2383.6	2892

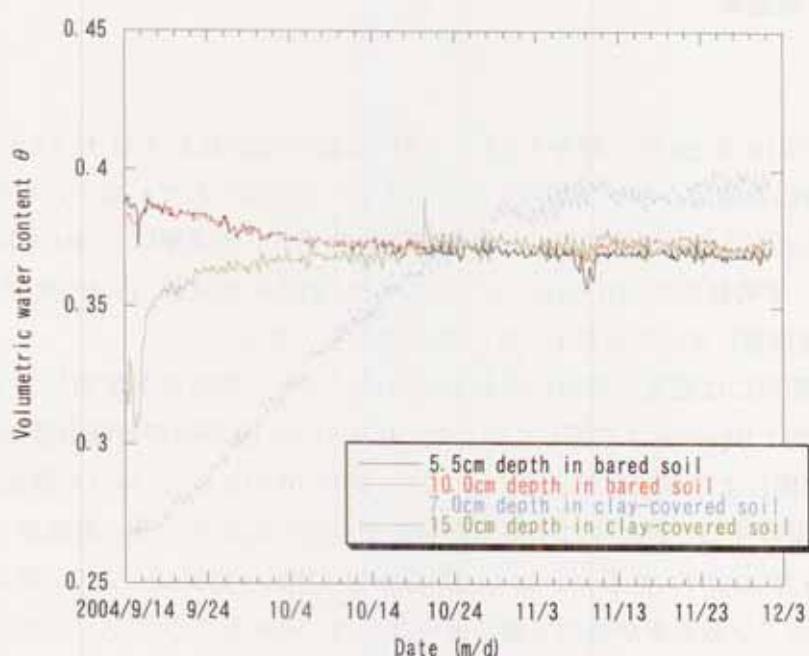


図2-11 人形峠夜次採掘場跡地の表層土壤体積含水率の測定結果

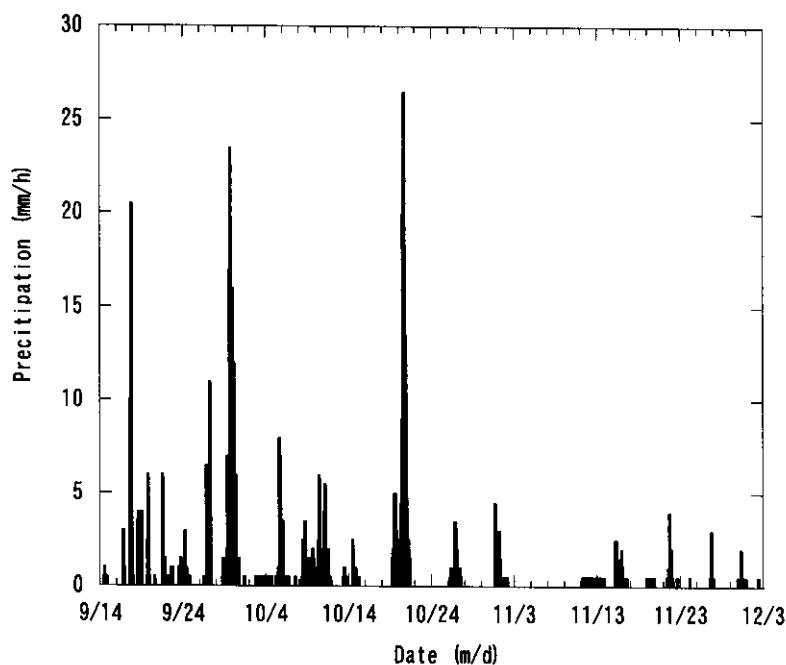


図 2-12 人形峠環境技術センターの降水量の観測値

2-6-2 ラドン散逸率

(1)裸地面

観測期間中の 10 月 28 日 7 時から 11 月 4 日 23 時の期間および 11 月 17 日 2 時から 11 月 24 日 18 時の期間は、ポンプが停止したためデータが得られていない。本年度の測定では、図 2-13 に示すように裸地面において測定されたラドン散逸率は $0.004\sim0.351 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の値を示し、平均値は $0.010 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であった。過去の測定値 ($0.05\sim0.43 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$: 平成 14 年度報告書) よりも全般的にかなり小さな値である。

観測期間の初期には顕著な降雨がなかったため、ラドン散逸率が増加し、今回の観測期間の最大値 $0.351 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ に達しているが、9 月 16 日 19 時頃の時間雨量 3mm、積算雨量 8.5mm の降雨により散逸率が急激に減少し、 $0.010\sim0.015 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の散逸率となった。その後は晴が継続することは少なく降水の頻度が高かったため、低い散逸率で推移したと考えられる。9 月 29 から 30 日にかけての総降水量 210mm の降雨により、地表面が一段と湿潤となり、ラドン散逸率が極めて低い値となった。その後のラドンフラックスの増減も降水の有無によく対応している。今回の観測期間では無降水期間が長く続くことがなかつたので、フラックスが従来測定された値程度に回復することは観測のごく初期を除きなかった。

今回のラドンフラックスの測定は $400\text{mm}\times500\text{mm}$ の底面積を持つチャンバをかぶせて行ったため、チャンバ内の地表面は横方向の浸透により周辺土壤の湿潤度にある程度追随

していたものと考えられるが、降水による湿潤および蒸発による乾燥の変動の大きさは周辺土壤に比べて小さかったと考えられる。そのため、表層水が生じラドン散逸がほぼなくなるような強降水時（たとえば9月末の降水）でもフラックスは減少はするものの、 $0.002 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 程度の値を示したと考えられる。

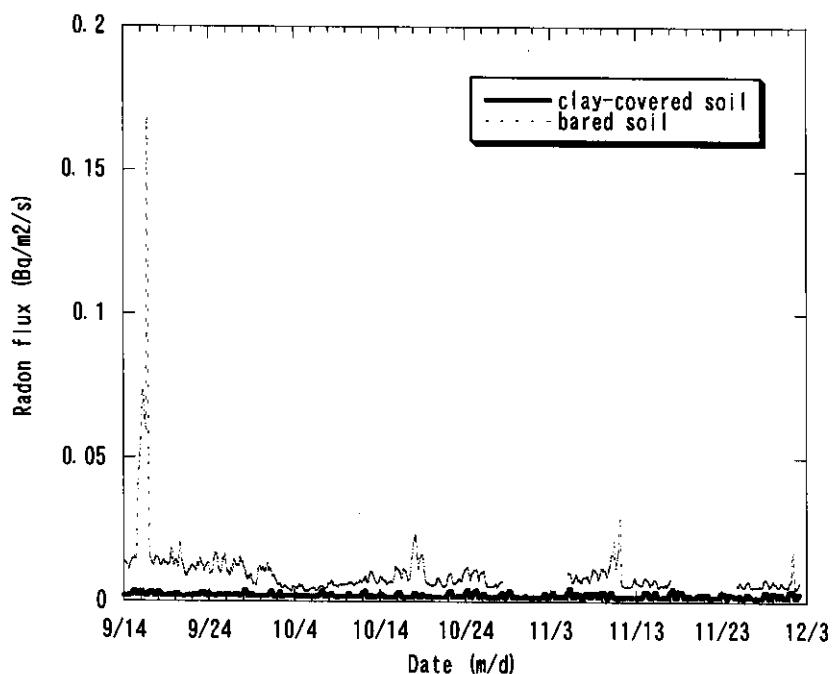


図 2-13 人形峠夜次採掘場跡地の地表面ラドン散逸率の測定結果

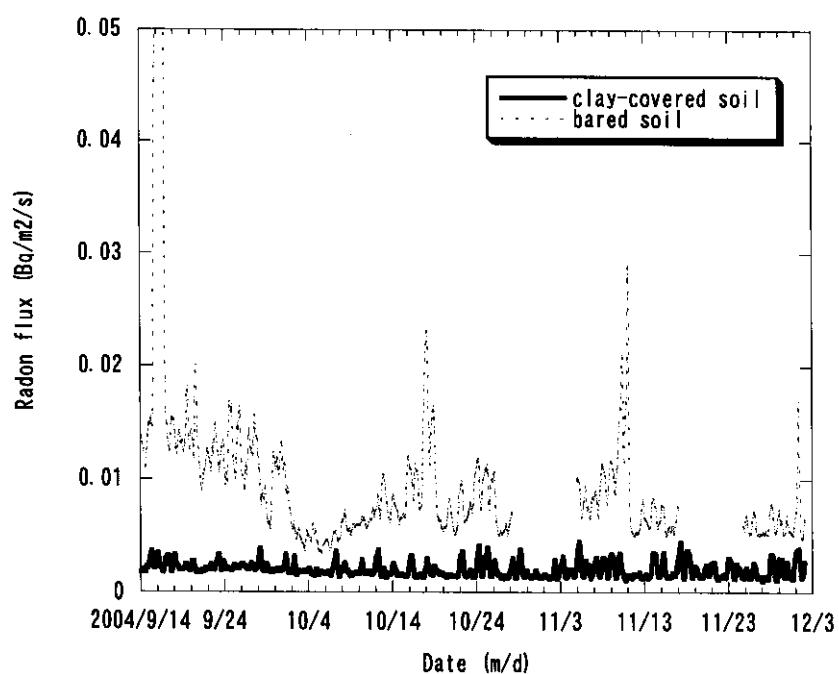


図 2-14 人形峠夜次採掘場跡地の地表面ラドン散逸率の測定結果（図 2-13 の拡大図）

(2)粘土面

粘土面からのラドン散逸は全観測期間を通して大きな変動はなく、ほとんどの期間は 0.0015 から $0.003 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の範囲であり（図 2-13、14）、平均値は $0.002 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であった。この値は本年度の裸地面の散逸率の 1 割から数割である。また、以前測定された 0.05 ~ $0.43 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の散逸率と比べると最大で二桁程度散逸率が小さい。粘土面散逸率と裸地面散逸率の比の平均は全期間について 0.26 であり、降水から 6 日以上経過した 11 月 9,10 日では 0.12 であった。裸地面で散逸率が増加している期間についても粘土面では増加することはなかった。

比較対象とした裸地面が例年になく湿潤でラドン散逸が小さかったにもかかわらず粘土面での散逸率はさらに小さかったこと、および粘土面では大きな散逸率変動がないことから、ペントナイト混合土覆土による散逸抑制が極めて有効であると結論される。

ただし、ペントナイト混合土は乾燥により亀裂が生じることも考えられるが、本年度の湿潤な気象条件ではその様な現象は見られなかった。

2-6-3 土壌中ラドン濃度

UGRMS による土壌中ラドン濃度の測定では土壌がほぼ飽和状態となったため、土壌中に間隙がないことおよび測定器への浸水により有効なデータの得られた期間は少ない。図 2-15 および 2-16 でデータが示されていない期間は欠測であり、データが示された期間でも深度 40cm については、粘土面の観測期間の始め以外は有効なデータではない。

図 2-15 に示した深度 20cm の濃度は、およそ 200 k Bqm^{-3} 程度であり以前の測定値 (138 kBqm^{-3} : 平成 14 年度報告書) と比べてやや大きい値であった。裸地面での濃度変動はフラックスと逆の変化を示しており、土壌の乾燥に伴う濃度の減少および湿潤化に伴う濃度の増加が見られる。これらの変動は比較的短時間で起こっている。一方、粘土面では、振幅の小さい短時間の変動があるものの、緩やかで振幅の大きな変動が卓越している。特に明瞭なのは、10 月 15 日頃から 20 日頃にかけての濃度の大幅な減少とそれに引き続く濃度の増加である。10 月 14 日に 7mm 程度の降水があった後、10 月 19 日から 21 日にかけての 275mm の豪雨まで顕著な降水はなく、土壌の乾燥に伴う裸地面フラックスの増加と湿潤化に伴うフラックスの減少に対応した濃度変化となっている。しかし、粘土面でのフラックス変化は見られず、土壌中での水平方向のラドン拡散が関与していた可能性がある。

図 2-16 に示した深さ 40cm での観測開始直後のラドン濃度は 400 k Bqm^{-3} 程度である。以前の同じ深度での測定値 (612 kBqm^{-3} : 平成 14 年度報告書) に比べて幾分小さいがほぼ同程度の値である。

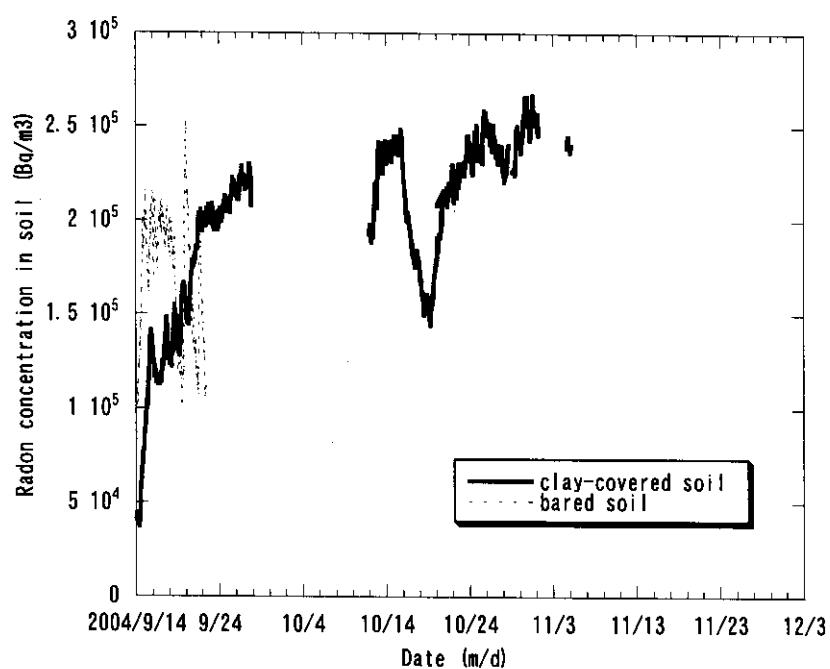


図 2-15 UGRMS による深度 20cm のラドン濃度時間変化の測定値

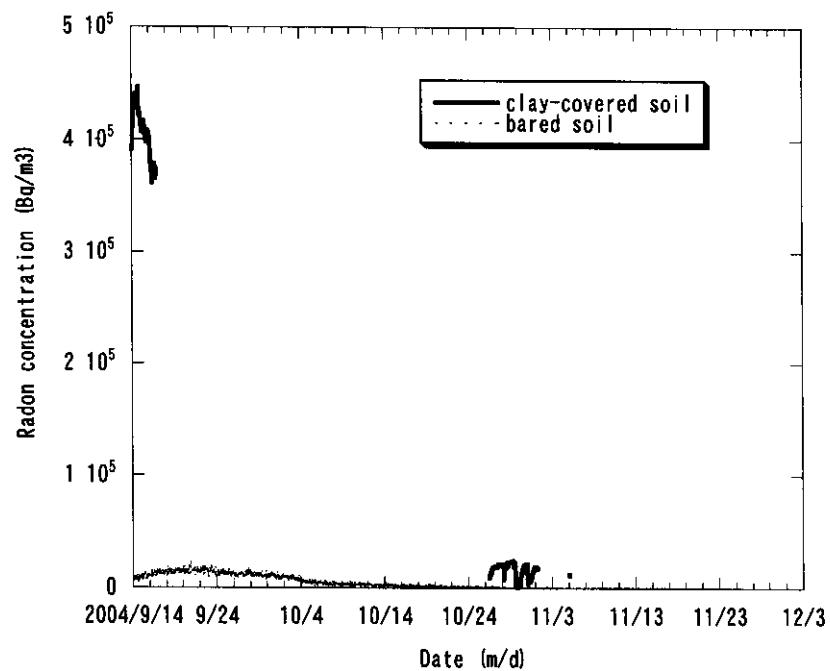


図 2-16 UGRMS による深度 40cm のラドン濃度時間変化の測定値

2-7 まとめ

ベントナイト混合土の覆土によるラドン散逸抑制効果を実地の観測により評価する目的

で、人形峠環境技術センター夜次露天採掘場跡地にペントナイト混合土により 12cm 厚で覆土した地表面および対照のための現地土壤の植被面を剥いだ裸地面を設定し、それぞれの地表面からのラドン散逸率、土壤中ラドン濃度および土壤含水率を測定した。観測期間中に平年の 2.5 倍の降雨があり、土壤面が常に飽和に近い湿潤な状態となつたことにより、湿潤と乾燥が繰り返す通常の状態でのデータは得ることができなかつたが、覆土の有効性を示す以下の結果が得られた。

- 1)裸地面でのラドン散逸率は $0.004\sim0.351 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の値を示し、平均値は $0.010 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であり、以前の測定値より大幅に小さい。
- 2)裸地面でのフラックス変動は降水と対応するものであった。
- 3)粘土面からのラドン散逸は大きな変動はなく、 0.0015 から $0.0030 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の範囲で、平均値は $0.0020 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であり、裸地面より顕著に小さい。
- 4)土壤中ラドン濃度は 200 から 400k Bqm^{-3} 程度の値であり、地表面からのラドン散逸と対応する変化を示した。

以上より、ペントナイト混合土を用いた覆土により、地表面からのラドン散逸を効果的に抑制することができると結論される。

参考文献

- Bossew,P., "The radon emanation power of building materials", soil and rocks, Applied Radiation and Isotopes, Vol.59,389-392,2003.
- Dadong, I., Hiromi, Y., Takao, I., "Quantification of the dependency of radon emanation power on soil temperature", Applied Radiation and Isotopes ,Vol.60,971-973, 2004.
- Tindall, J.A. and J.R. Kunkel, "Unsaturated zone hydrology", Prentice Hall Inc., New Jersey, 1999.
- Wilkening, M., "Radon in the environment", Elsevier, Amsterdam, 1990
- Yamamoto S., et al., "Development of an underground radon detector using an optical fiber", IEEE Trans. on Nuclear Sci., Vol.50, 987-990, 2003

第3章 数値計算によるラドン散逸の評価

3-1 はじめに

本章ではラドン輸送に関する1次元数値モデルによって測定サイトの地表面ラドン散逸率と土壤空气中ラドン濃度を計算し、実測値と比較する。数値計算では、観測で得られたラドン散逸率および土壤空气中ラドン濃度に見られる降水有無およびその結果として生じる土壤含水率の変動に起因する変化の数値モデルによる再現性を確認し、本年度の降水が特異であったことから、平年程度の降水量の場合にベントナイト混合土によりどの程度の散逸抑制効果が期待されるかを評価することを目的とする。

3-2 モデル

3-2-1 SOLVEG の概要

土壤中のラドンの輸送を評価するにはラドン輸送の媒体である空気と水の動的挙動を把握する必要がある。特に土壤の含水率はラドン輸送の主要な媒体である土壤中空気の割合の指標となり、土壤中のラドンの拡散速度に大きく影響する。降雨等によって土壤中に大量の水分が浸入した場合、土壤中の水分分布が変化しラドン輸送に大きく影響する。以上の要因より不飽和土壤中のラドン輸送については土壤中の水分状態の変化を考慮したモデルを用いる必要がある。

大気・土壤系内の水の動きはきわめて複雑であり様々な要因によって変化する。既存の研究では土壤中のラドン輸送モデルとして TRACI が開発された (Ferry 等、1996)。本研究では大気・土壤複合系内の放射性核種の媒体である空気及び水の動的挙動を計算するモデルとして SOLVEG (山澤・永井、1997) を用いた。SOLVEG は土壤中と大気中の熱、水、空気の変動を連動させ物質輸送を計算する。計算で考慮されている物理過程と環境因子の関係の概要を図 3-1 に示す。

モデルでは、ラドン輸送の主過程である気相中の土壤中拡散、土壤水中の拡散および土壤水の移動にともなう土壤水中溶存ラドンの移流を考慮する。土壤水分量はラドン輸送へ大きな影響を与えるため、モデルでは土壤水中の体積含水率を評価するための Richards の式に基づく水分移動の方程式、水蒸気輸送の方程式および水の蒸発を計算するために必要な土壤温度に関する方程式（熱伝導方程式）から構成される。

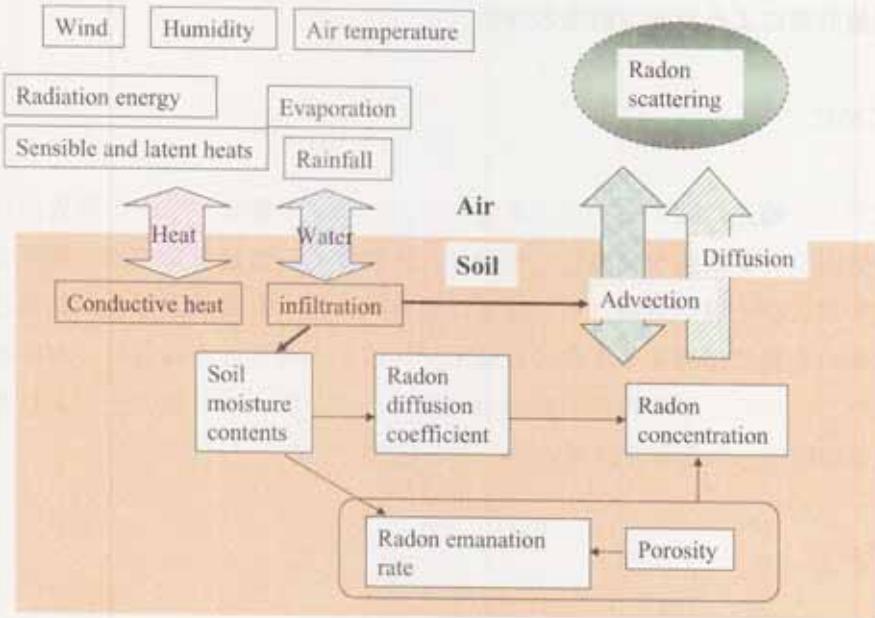


図 3-1 ラドン散逸に関する過程と環境因子

3-2-2 基本方程式

SOLVEG で用いられる土壤物理条件の基本方程式を以下に示す。

土壤中の熱伝導の基本方程式は(3-2-1)式で表される。

$$\frac{\partial T_s}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} K_s \frac{\partial T_s}{\partial z} + \frac{\hat{H}_b}{C_s \rho_s} - \frac{C_w E_w}{C_s \rho_s} \frac{\partial T_s}{\partial z} \quad (3-2-1)$$

T_s は土壤温度、 t は時間、 z は土壤の鉛直方向成分であり、右辺第 1 項は拡散項、第 2 項は土壤中水分の相変化に伴って開放される潜熱項、第 3 項は液体水の移動に伴う熱の移動項である。

土壤中液体水輸送の基本方程式は(3-2-2)式である。

$$\frac{\partial \eta_w}{\partial t} = -\frac{1}{\rho_w} \frac{\partial E_w}{\partial z} - \frac{1}{\rho_w} \hat{E}_b \quad (3-2-2)$$

η_w は土壤の体積含水率、 E_w は土壤水フラックス、 E_b は土壤中液体水の蒸発である。

土壤中水蒸気に関する基本方程式は 1 次元拡散方程式で表され(3-2-3)式である。

$$\frac{\partial \{(\theta_s - \theta)q_s\}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} D_w f(\theta) \frac{\partial q_s}{\partial z} + \frac{\hat{E}_b}{\rho} \quad (3-2-3)$$

左辺の括弧内の差は土壤中の空隙率を表す。右辺第1項は拡散項であり、係数 $f(\theta)$ は土壤空隙の捩れ度を表している。右辺第2項は液体水の蒸発項である。以上の基本方程式は昨年度までの数値計算に用いたものと同じであるため、より詳細な記述は省略する。

本年度計算では、ラドン輸送に関する基本式として不飽和土壤における気相中ラドン輸送方程式および液相中ラドン輸送方程式を用いる。

$$p \frac{\partial C_a}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(D_b \frac{\partial C_a}{\partial z} \right) - p \lambda C_a + S \quad (3-2-4)$$

$$\theta \frac{\partial C_w}{\partial t} = \frac{E_w}{\rho_w} \frac{\partial C_w}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial z} \left(D_{bw} \frac{\partial C_w}{\partial z} \right) - \theta \lambda C_w \quad (3-2-5)$$

ここで、添え字の a および w は気相および液相を表し、 C は土壤空气中ラドン濃度 [Bqm⁻³]、 p は土壤の間隙率 [vol/vol]、 L はラドンの無次元平衡溶解度、 θ は土壤の体積含水率 [vol/vol]、 D_b は土壤のバルク拡散係数 [m²s⁻¹]、 λ はラドンの拡散定数 [s⁻¹]、 S は土壤中のラドン生成率 [Bqm⁻³s⁻¹] である。バルク拡散係数 D_b は Roger 等の経験式 $D_c = D_0 p \exp\{-6\theta p - 6\theta^{14p}\}$ で得られる。ここで、 $D_0 = 1.1 \times 10^{-5}$ m²s⁻¹ は空気中のラドンの拡散定数である。

3-2-3 計算条件

計算は土壤内を深さ方向に 1 次元に格子状に区切り、格子間の物質及び熱収支とそれに伴うラドン輸送を計算する。土壤内の格子の定義を図 3-2 に示す。地表面で格子番号は 0、土壤方向に負の値で格子番号を定義する。

夜次露天採掘場跡地は採掘後の埋め戻しによって土壤は多層構造を成している。計算で使用した土壤は図 3-3 に示す様に 3 層構造とした。地表面から深さ 1.5m まではマサ土による覆土、1.5m から 4.5m までは周辺土による覆土、4.5m から 7.5m までは捨石が存在する。ただし、粘土を覆土した場合は地表面から深さ 0.12m までマサ土ではなく粘土が存在している。計算条件として実環境の土壤の物理定数を与えることが重要である。本研究では前章の測定値を基に各層での土壤物理定数を与えた。計算で用いた土壤パラメータを表 3-1 に示す。

土壤中の格子数は 173 とし、格子の上端の境界条件として地表面で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、日射量及び放射収支量の観測値に

基づき地表面からの蒸発量が失われるとした。地表面ラドン濃度は 0Bqm^{-3} とした。下端の境界条件として捨石層と風化花崗岩の境界ではラドンフラックス無し、土壤水は飽和とした。

計算の助走期間として初期の体積含水率のままラドンの計算のみを 20 日分行い、その計算結果をラドン濃度の初期条件とした。2004 年 9 月 14 日 0 時から計算を開始し、2004 年 12 月 3 日 0 時まで行った。計算の時間増分は 1 秒、出力は 1 時間毎とした。

表 3-1 計算で用いた土壤パラメータ

	マサ土	周辺土	捨石	粘土
間隙率 P	0.39	0.40	0.30	0.40
透水係数 $K_s [\text{ms}^{-1}]$	6.75×10^{-6}	6.75×10^{-6}	6.75×10^{-6}	1.00×10^{-11}
ラドン生成率 $R [\text{Bqm}^{-3}\text{s}^{-1}]$	0.03	0.21	22.4	0.029

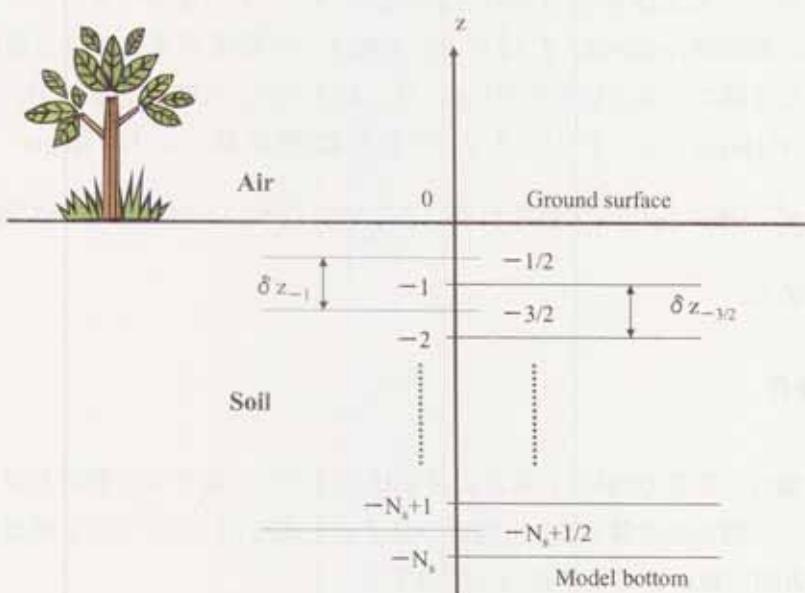


図 3-2 SOLVEG の格子構造

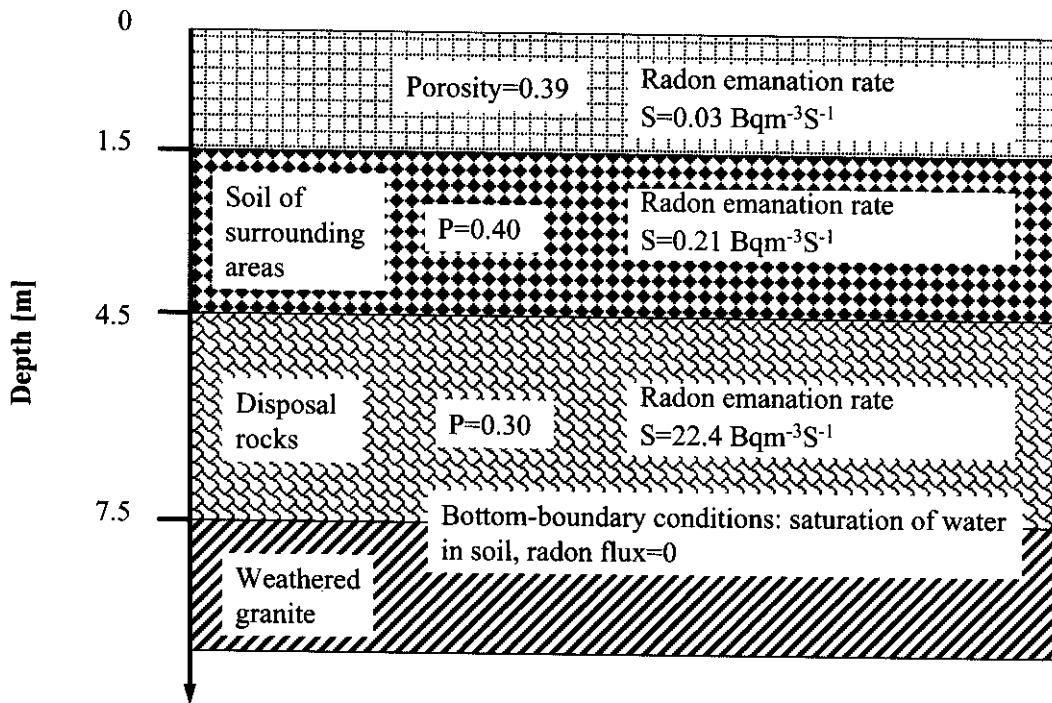


図 3・3 モデルで仮定した夜次露天採掘場跡地の 3 層構造

3-3 計算結果と考察

3-3-1 裸地面の土壤水分量

図 3・4 に裸地土壤の体積含水率時間変化の計算結果を示す。体積含水率は 0.35 前後の飽和に近い湿潤状態を保って変化している点では測定結果を再現しているが、降水に伴う含水率の増加とその後の減少の振幅が測定結果より大きい。また、初期条件の含水率が測定値より小さめに設定されたため、計算初期の土壤水分量を幾分過小評価している。

これらの測定結果と計算結果の差はの原因としては、上記の 1)初期条件の過小設定と、計算結果では土壤水の浸透がより早い計算結果となっているため 2)地下水面の設定が深すぎること、および 3)透水係数を過大に設定していることが考えられる。透水係数については実サイト土壤の値が得られていないために、前年度までの計算と同じ一般土壤の透水係数を採用した。より一致度の高い計算のためには上記の入力パラメータおよび関連する水分特性曲線の取得が必要である。また、本来のモデルでは飽和透水係数以上の降雨強度があった場合は、土壤表層に水の層が形成されるとして計算を行うが、今回の計算では飽和透水係数以上の浸透しきれない水分については表面から除去されると仮定した計算を行った。これは、試験対象土壤面の周囲に排水用の溝を掘り、表面流出による水はけを良くしたことを表したものであるが、今回の計算では溝により除去された水分量を過大評価した

可能性も考えられる。

以上のような計算結果と測定結果の差異があるが、含水率が概ね 0.35 程度と測定結果に近い値が得られていることを踏まえて、次節以降でラドン濃度および散逸率の計算結果を議論する。

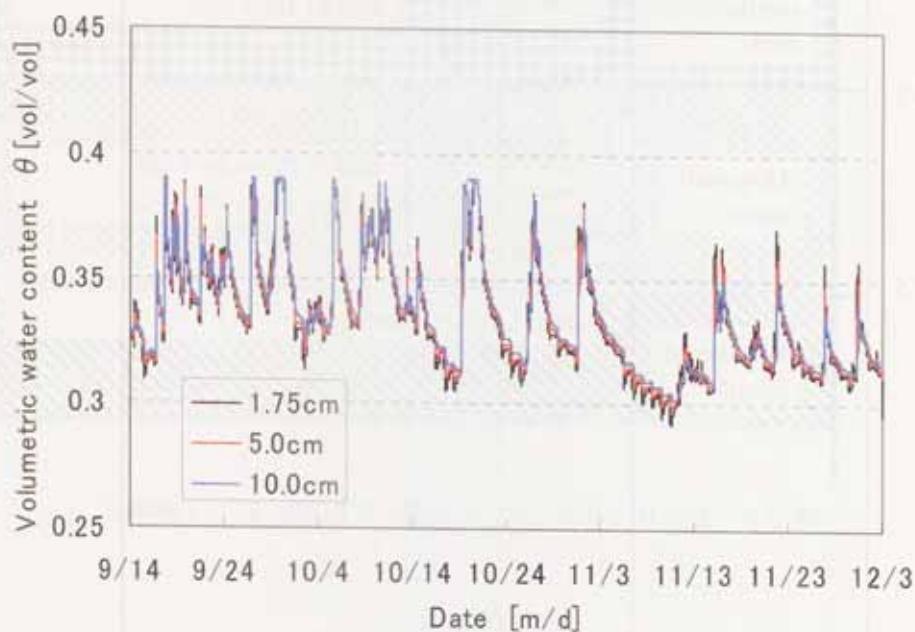


図 3-4 裸地土壤の体積含水率時間変化の計算結果

3・3・2 裸地面の土壤中ラドン濃度および地表面散逸率

図 3-5 に裸地面からのラドン散逸率時間変化の計算結果を示す。散逸率の変動は表層土壤の含水率の変動と対応しており、降雨直後はほぼ 0、降水がない日が継続した場合には徐々に散逸率が増加し 0.005 から 0.01 $\text{Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 程度の値に達している。日々のスパイク状の変動は日射の入射に伴う蒸発の促進（土壤の乾燥）に伴うものである。降雨に伴う数日周期の変動は測定結果と対応しており（図 2-13,14）、測定および計算の両者で 9 月 15 日、10 月 18,19 日頃、および 11 月 10 日頃にピークが見られる。

観測値に見られる観測初期の大きなピークを除くと、散逸率の計算値は測定値の約半分となっている。地表面のラドン散逸に寄与しているのは表層の土壤であり、計算では表層土壤のラドン生成率として第 2・4 節で述べた実サイト土壤を対象とした測定結果を用いた。この測定では、容器内土壤の表面を押し固めたために、ラドン生成率を過小評価している可能性がある。仮にラドン生成率を 2 倍にすると、散逸率と後述する土壤中ラドン濃度の両者とも測定値とほぼ同程度の値となる。

この点を考慮して計算結果を測定値と比較すると、1)9 月 15 日の測定値のピーク ($0.35 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$) が十分再現されていない点、および 2)10 月はじめまでに測定値に見られ

る $0.01 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ を超える比較的大きな散逸率の再現がされていないこの点が異なる。これらは、初期条件で与えた表層の含水率が過小であったためと考えられる。この点を除けば、湿润状態のために極めて小さくなつた散逸率に関してもこのモデルにより定量的に再現できることが示された。

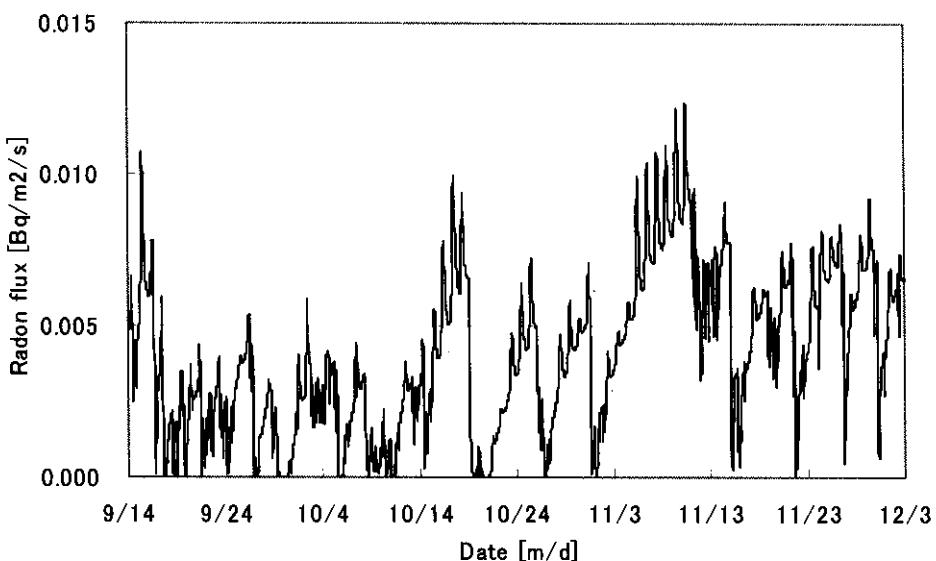


図 3-5 裸地面からのラドン散逸率時間変化の計算結果

数値計算による深度 20 および 40cm のラドン濃度の計算結果を図 3-6 および図 3-7 に示す。ラドン濃度は 20cm では約 100 kBqm^{-3} 、40cm では約 150 kBqm^{-3} の値を示し、図 2-15 および 2-16 に示した測定結果の約半分である。上記の通り土壤のラドン生成率を過小に設定したことによると考えられる。

計算結果には、10月 1 日および 20 日前後に大きな濃度低下が見られる。測定結果は十分得られていないが、覆土面で 20 日前後に極めて類似した大きな濃度変化が起こっている。10月 19 日からの 200mm を超える降水があったため、それによって引き起こされた広範囲な変化であると考えられる。その降水前および降水中の裸地面での体積含水率の鉛直分布の計算結果を図 3-8 および 3-9 に示す。これらの図より、強い降水により表層土壤にほぼ飽和した湿润層が形成されていることが分かる。これと同じ時間のラドン濃度の鉛直分布を図 3-10 に示す。数 cm の極表層では降水により濃度の勾配が小さくなり、値も増加しており、表層での散逸抑制が働いている様子が分かる。それ以深の 20~30cm の深さでは、逆に濃度が減少しており、その層は体積含水率の大きい層に対応している。これらのことから、極めて強い降水がある場合は、速い速度で浸透する水によりラドンが下方に輸送されていると考えるのが合理的である。この現象が全面にわたって生じたために、裸地面および粘土面の両方で濃度の減少が起つたものと考えられる。数値モデルによりこの現象が再現されたことは興味深い。

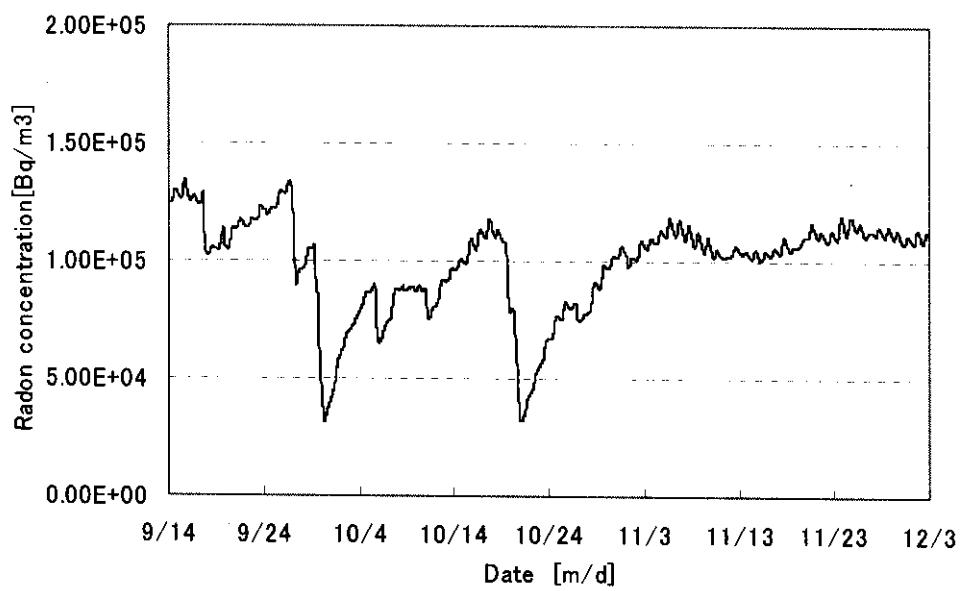


図 3-6 裸地土壤中ラドン濃度の時間変化の計算結果（深さ：20cm）

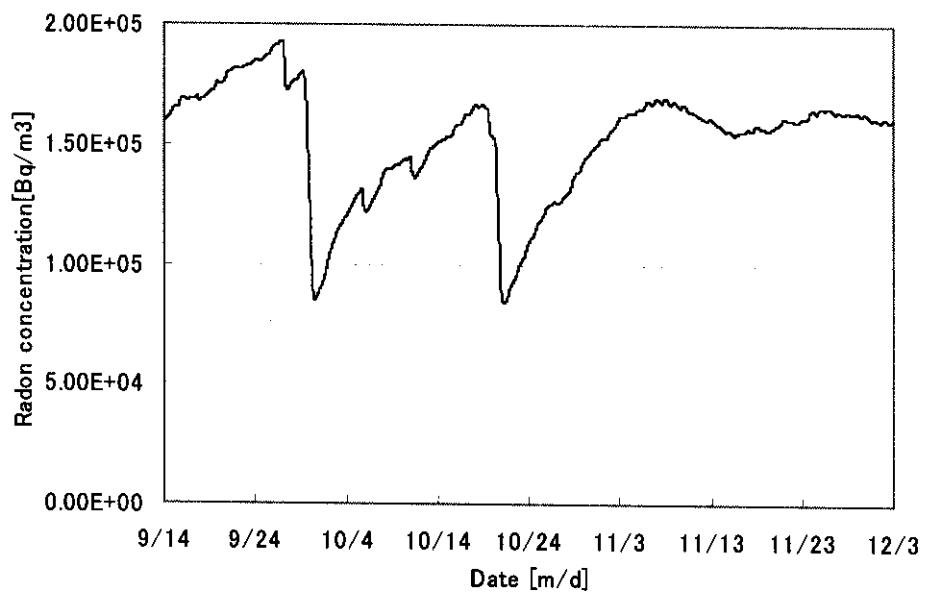


図 3-7 裸地土壤中ラドン濃度の時間変化の計算結果（深さ：40cm）

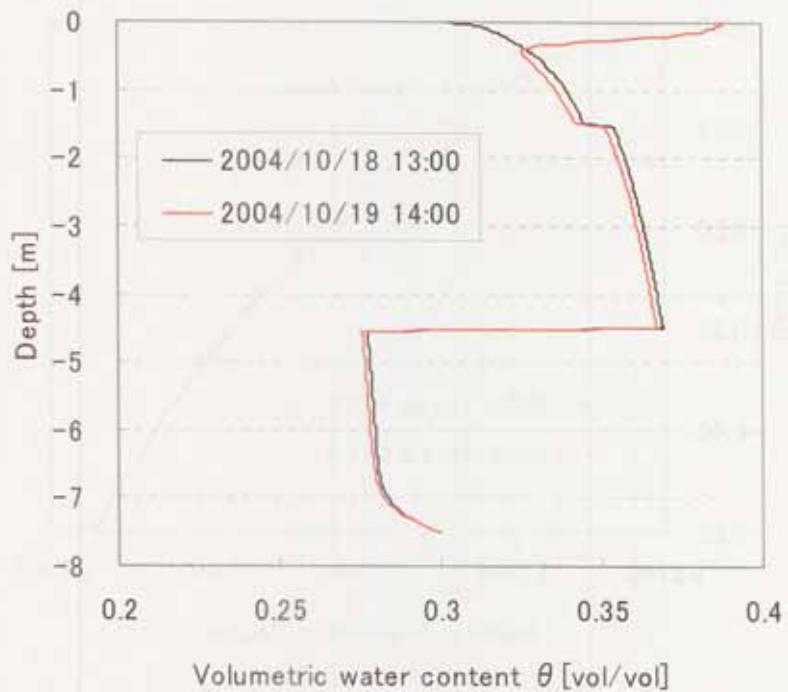


図 3-8 強い降水の前および降水中の体積含水率鉛直分布の計算結果（裸地面、全層）

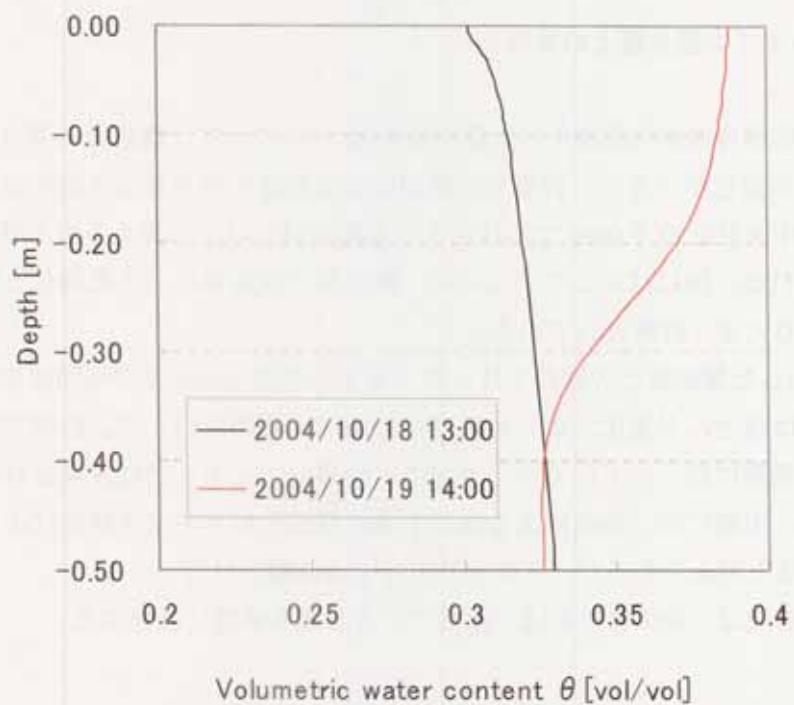


図 3-9 強い降水の前および降水中の体積含水率鉛直分布の計算結果（裸地面、表層部分）

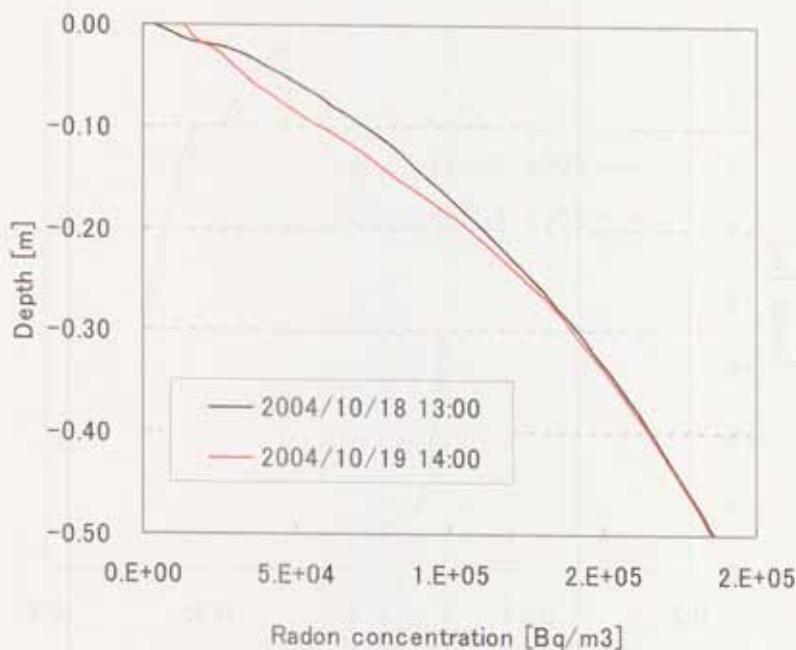


図 3-10 強い降水の前および降水中のラドン濃度鉛直分布（裸地面、表層）

3-3-3 ベントナイト混合覆土の効果

粘土面での体積含水率時間変化の計算結果を図 3-11 に示す。裸地面と異なり、粘土面では体積含水率の変化が小さく、表層では降雨による湿潤化が進行して飽和に近い状況が継続し、覆土の中央付近の 7.0cm ではほとんど変化が見られず、覆土下の土壤中では含水率の低下が見られる。図には示していないが、極表層では蒸発による乾燥化と降水による湿潤化の変化より大きく計算されている。

図 2-11 に示した測定値との比較では、覆土層下の深度 15cm での時間変化が逆である。測定においてはほとんど変化がないか緩やかに増加するのに対して、計算では減少している。これは、実際に起こっている水平方向の水分移動がモデルでは表現されていないためと考えられる。実際には、多雨による周辺土壤の湿潤化が水の水平移動により粘土面下にも波及していると考えられるが、1 次元モデルでは再現されない。

粘土中層でのほぼ一定の含水率は、極めて小さな透水係数に起因する。

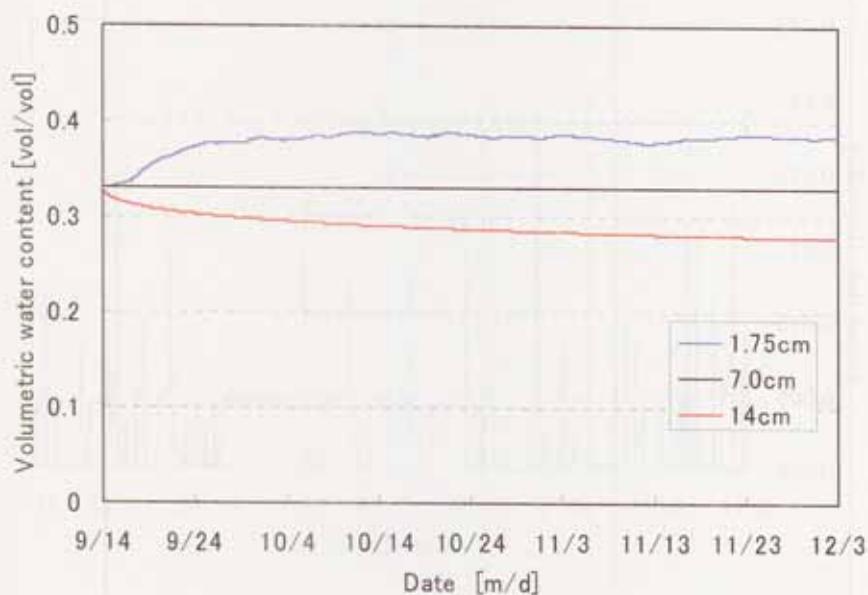


図 3-11 粘土面土壤の体積含水率時間変化の計算結果

図 3-12 に粘土面からのラドン散逸率時間変化の計算結果を示す。降水による覆土表面の温潤化により散逸がほとんどなくなること、散逸率の回復時に比較的大きなピークが見られることを除くと、裸地に比べて変化が小さい。散逸率の大きさは変化の小さいプラト一部が $0.005 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であり、計算対象期間の平均値が $0.0027 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ である。裸地面の計算対象期間の平均値 $0.0040 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ と比較して約 2/3 であり、十分ではないものの覆土による散逸抑制が計算されている。

裸地面の計算結果で指摘された土壤のラドン生成率が過小設定である可能性を考慮すると、上記の粘土面の散逸率は、測定値の期間平均値 $0.0020 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ より大きく、計算は散逸率を過大評価していることになる。後述するように計算は土壤中のラドン濃度を過小評価していることを考慮すると、覆土面のラドン拡散係数を適切に設定できていない可能性が高い。今回の計算では、Rogers and Nielson の式を用いたが、圧密土壤に対して適用できるか今後検討が必要である。また、計算では粘土面がチャンバーにより覆われていないと仮定している点が実際と異なる。従って、計算では人為的な排水も考慮しており、この露出の仮定と合わせて土壤がより乾燥する計算設定となっている。この点も、覆土面での拡散の過大評価の原因と考えられる。また、散逸率の計算結果にはスパイク状の変化が表れており、この原因については今のところ不明である。これらの点について、今後検討が必要である。

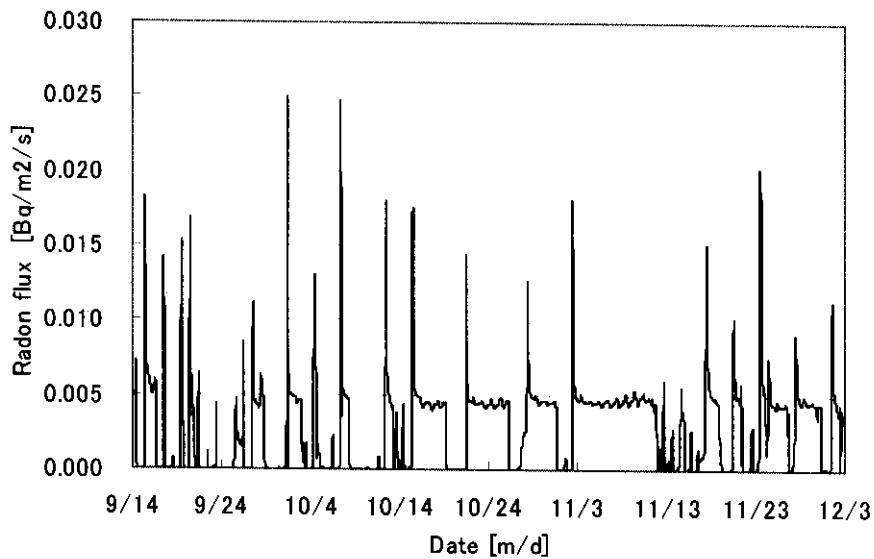


図 3-12 粘土面からのラドン散逸率時間変化の計算結果

図 3-13,14 に粘土面土壤中のラドン濃度時間変化の計算結果を示す。粘土面では裸地面と比べて濃度の変動が小さい。計算によると透水係数の小さい覆土の存在により土壤中の含水率の変化も小さいため、表面での降水による湿潤化と蒸発による乾燥の影響が覆土中層以深に顕著に及んでいないことによる。

深さ 40cm の濃度の計算値は $120\sim160 \text{ kBqm}^{-3}$ 程度であり、測定値の約 400 kBqm^{-3} に比べて小さい。深さ 20cm については測定値がないため比較できない。これらは第 2 章で述べたラドン発生率の過小設定および上述の拡散の過大評価に起因すると考えられる。

降水前および降水中の裸地面での体積含水率の鉛直分布の計算結果を図 3-15 および 3-16 に示す。粘土面では土壤の乾燥および湿潤化は表層の 1、2cm の浅い層のみで起こっており、降水による湿潤化でほぼ飽和に達している。降水前後の何れの濃度分布も、裸地面に比べて鉛直勾配が小さく、覆土による散逸抑制効果が計算されている。飽和に達した後は表面での濃度勾配が減少し、フラックスが減少していることに対応している。濃度の減少は移流によるものと考えられるが、今後計結果の精査が必要である。粘土層内に分布に見られる極大または屈曲は含水率の極大に対応しており、含水率の大きな箇所では生成ラドンを受け入れる体積が小さいために濃度が高くなる。降雨後の分布は比較的降雨開始直後に近いため、表層土壤の湿潤化に伴う拡散の抑制による高濃度形成に十分至っていない。

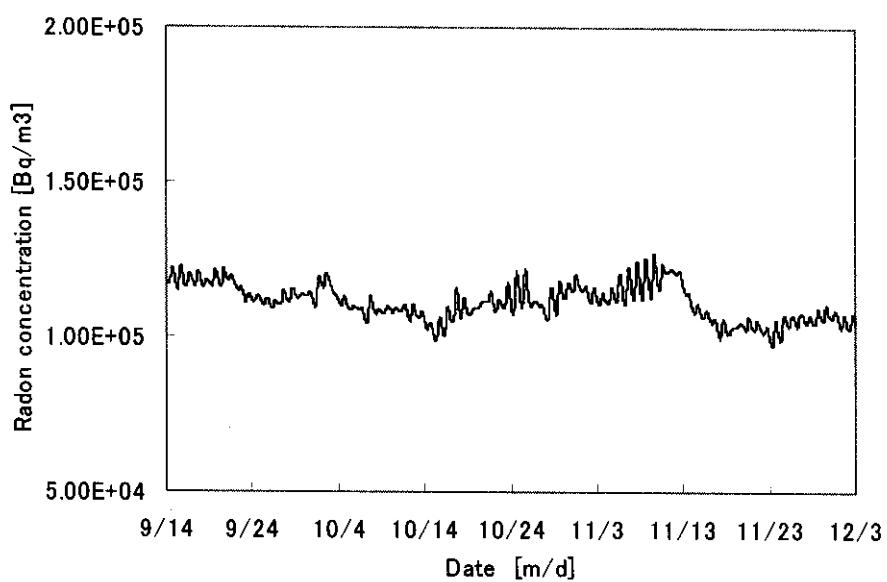


図 3-13 粘土面土壤中のラドン濃度時間変化の計算結果（深さ：20cm）

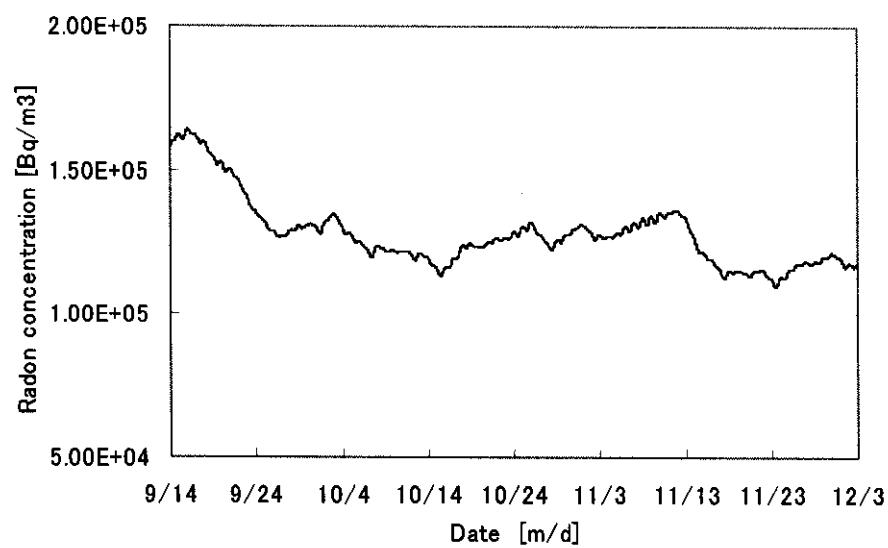


図 3-14 粘土面土壤中のラドン濃度時間変化の計算結果（深さ：40cm）

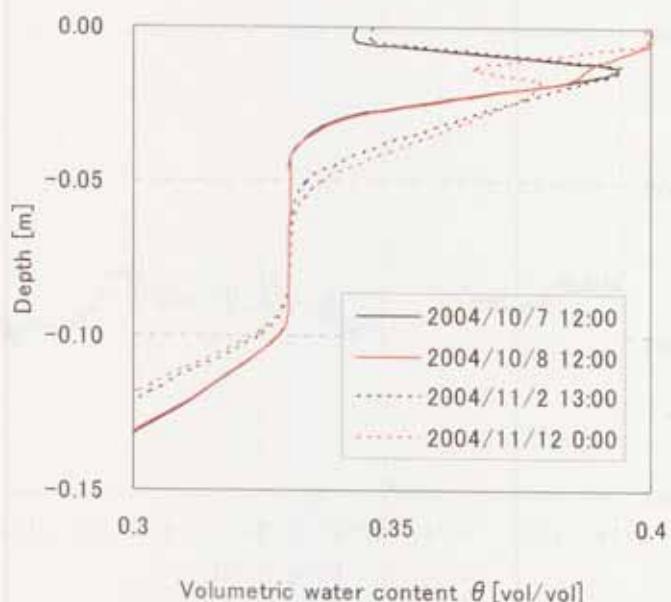


図 3-15 強い降水の前および降水中の体積含水率鉛直分布の計算結果（粘土面、表層部分）

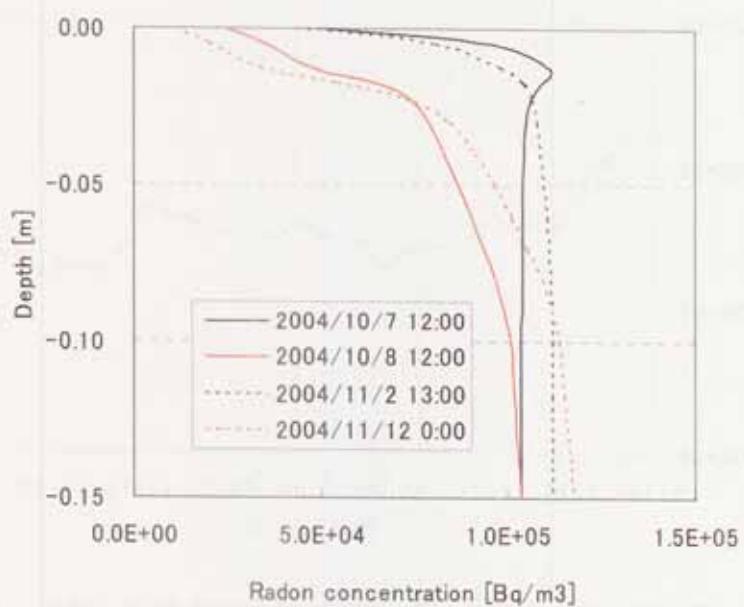


図 3-16 強い降水の前および降水中のラドン濃度鉛直分布（粘土面、表層）

3-4 まとめ

数値モデルSOLVEGによる裸地面および粘土面からのラドン散逸および土壤中濃度の数値計算を現地の気象データを入力して行った。

裸地面においては、土壤含水率が 0.35 程度と湿润状態が再現されたが、実測に比べて降水による湿润化と蒸発による乾燥が幾分強調された計算となった。計算による散逸率は、降雨後にはほぼ 0 となり、降雨後徐々に回復し 0.005 から 0.010 $\text{Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ になることが再現され、計算では土壤のラドン生成率を過小設定している可能性を考慮すると、この変化は概ね観測値と一致するものであった。土壤中のラドン濃度は 20cm では約 100 kBqm^{-3} 、40cm では約 150 kBqm^{-3} と評価され、上記の過小設定を考慮に入れると、観測値と矛盾の無いものであった。

粘土面では、表層の含水率がほぼ飽和に近い湿润な状態が再現された。計算対象期間のラドン散逸率の平均値が 0.0027 $\text{Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ と評価され、上記のラドン生成率の過小設定を考慮に入れると、散逸率は測定より过大評価傾向が見られた。また、土壤中濃度も深さ 40cm の濃度の計算値は 120～160 kBqm^{-3} 程度であり、測定値の約 400 kBqm^{-3} に比べて小さく評価された。

裸地面および粘土面での計算結果と測定の差異は、土壤の特性、特に土壤水分特性曲線および透水係数とラドンの生成率の設定に起因していると考えられる。今回の計算では概ね現地の測定結果と矛盾しない結果が得られたものの、より精度の高い計算のためには上記の入力パラメータの取得が重要である。

参考文献

- Ferry, C. et al., "Evaluation of the effect of a cover layer on radon exhalation from uranium mill tailings: transient radon flux analysis", J. Envir. Radioactivity, Vol 63, 49-64, 2002
- 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.
- 飯田孝夫 : 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、2003.
- 飯田孝夫 : 土壤中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究VII、核燃料サイクル開発機構委託研究成果報告書、2004.

第4章 鉱山跡措置にかかるラドン評価の観点での研究のまとめ

4-1 はじめに

本委託研究「土壤中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究」は、平成10年度を初年度として本年度で7年目となる。開始当初は、ウラン鉱山跡の措置方法で問題となるラドンの表層土壤での挙動を解明するために必要なラドン濃度等の計測方法の開発から始まり、人形峠環境技術センターの夜次露天採掘場跡地（以下、実サイト）や名大構内での装置の実証測定、実サイトやその他の高ラドン濃度地点でのラドン動態の測定・解析、ペントナイト覆土による散逸抑制効果の評価、表層土壤中ラドン拡散モデルの開発と検証、および同モデルを用いた評価を行ってきた。本年度には実際の施工を想定したペントナイト混合土の覆土によるラドン散逸抑制効果の実サイト実験を行い、散逸抑制および散逸評価に関する手法の基本的な方法論が整備されたことになる。しかしながら一方では、測定手法、評価のためのモデル等に未だに問題点が残されている。また、環境影響評価の観点からは、一連の委託研究では対象としてこなかった項目もある。

これらを踏まえて本章では、鉱山跡措置にかかるラドン評価の観点でこれまでの一連の委託研究で得られた成果、残されている問題点を整理し、とりまとめる。

4-2 鉱山跡措置にかかるラドン評価の観点の整理

鉱山跡措置の技術的課題およびに措置後の鉱山跡からのラドンの環境影響評価で考慮しなければならない事項を表4-1に示す。ここでは、土壤水を経由して施設外に達する可能性のあるラドンおよびその親核種に関する事項は対象外とし、表層土壤を経由して大気に達するラドンのみを対象とする。表中の「委託研究での記載」欄に、本委託研究で行った内容を記載した報告書の代表的な箇所を示した。次節で各分類について本委託研究で行った概要を述べる。

鉱山跡措置にかかるラドン評価のためには、1)環境影響を抑止するためのラドン散逸を抑制する技術の開発、および2)対象地表面からのラドン散逸量測定および評価が主要な項目であり、そのためには表4-1に示すようなラドン輸送・散逸過程に関する知見の取得およびラドン散逸に関する測定・評価技術の開発が必要となる。

表 4-1 鉱山跡措置にかかるラドン評価の観点

分類	項目 小項目	報告書での記載
A.輸送過程の知見	A-1 捨石層から地表面までの輸送 A-1-1 捨石からの発生 A-1-2 深部でのラドン濃度 A-1-3 深部での輸送 A-2 表層土壌からの発生 A-2-1 表層土壌のラジウム濃度 A-2-2 表層土壌のエマネーション A-2-3 表層土壌含水率への依存性 A-2-4 その他の因子への依存性 A-3 表層土壌中の輸送 A-3-1 表層土壌中の拡散係数 A-3-2 表層土壌中の移流 A-3-3 表層土壌含水率への依存性 A-3-4 土壌物理特性への依存性 A-4 大気への散逸 A-4-1 散逸率の値 A-4-1 表層土壌含水率への依存性 A-4-2 土壌物理特性への依存性 A-5 散逸後の大気拡散、大気中濃度 A-5-1 サイト内地上濃度 A-5-2 施設周辺での濃度	III 4,5 章、IV 3 章 II 4 章、V 2 章 III 3 章、VII 2 章 VII 2 章 II - 3 章、VI 2 章 II 3 章、III 3 章 VI 2 章 II 2 章、III 4 章 IV 2 章、VII 2 章 II 2 章、III 4 章
B.散逸抑制技術	B-1 湿潤化による抑制 B-2 覆土による抑制 B-2-1 一般土壌による覆土 B-2-2 ベントナイト覆土 B-3 覆土の健全性の確保 B-3-1 乾燥時の挙動 B-3-2 湿潤度の保持	III 4 章、V 3 章 V 4 章、VI 3 章

表 4-1 鉱山跡措置にかかるラドン評価の観点（続き）

分類	項目 小項目	報告書での記載
C.散逸評価技術	C-1 土壤中濃度測定法 C-1-1 気相濃度 C-1-2 液相濃度	I 4 章、IV付録
	C-2 地表面散逸率測定法 C-2-1 薩積法 C-2-2 通気法	II 2 章、III 4 章 V 4 章、VII 2 章
	C-3 拡散係数測定法	I 3 章、VI 2 章
	C-4 数値モデルによる評価法 C-4-1 土壤中濃度 C-4-2 地表面散逸率 C-4-3 大気中拡散	V 3 章、VII 3 章 VI 6 章、VII 3 章

4-3 輸送過程の知見

(A-1) 捨石層から地表面までの輸送

捨石層から表層土壤に達する過程については、本委託研究では直接の測定は行っていない。従って、捨石層での気相中および液相中の濃度と輸送過程についての実験的知見はない。

捨石層から表層土壤への輸送過程については、他の研究で得られている知見を基に数値モデルによる評価を本委託研究のほとんどの年度で実施しており、周辺土壤等で覆土され地下 4、5m 以深に埋められている捨石からの地表面ラドン散逸への寄与はほとんどなく、また土壤が湿潤であることによりさらに散逸が抑制されていると評価された。従って、鉱山跡措置のラドン評価（大気への散逸）の観点からは、深部土壤でのラドン輸送に関する知見の取得の重要度は低い。

(A-2) 表層土壤からの発生

これまでの現地での散逸率の測定および土壤のラジウム含有量の分析により、覆土表層のまさ土はこれまでの測定によると、 $150\sim1700\text{Bqkg}^{-1}$ と一般の土壤に比べて数倍から数 10 倍高いラジウム含有率を持ち、含有率測定値の範囲が広いことから局地性が強いと考えられる。地表面からのラドン散逸率も後述するように一般の土壤より高いことが示された。従って、表層土壤中の発生、輸送、および地表面散逸についての知見の取得の重要度は高い。この観点から、表層土壤中ラジウム含有量の測定、表層土壤からのラドンエマネーションの大きさおよび土壤水分への依存性の評価が本研究において実験的に行われて来た。本年度の現地土壤を用いたエマネーシ

ヨン測定においても、体積含水率が 0.1~0.2 で最も高いラドンエマネーション（単位体積当たり単位時間当たりラドン生成率で $0.3 \text{Bqm}^{-3}\text{s}^{-1}$ ）となり、その範囲より乾燥側および湿潤側ではラドン生成率が低下することが示された。

ラドンエマネーションは体積含水率以外にも、土壤の粒径分布、粒子形状、温度等に依存するものと考えられ実サイト土壤での知見は得られていない。夜次露天採掘場跡地に限っても、本委託研究で得られた値は比較的狭い範囲の土壤についてであり、ラジウム含有率およびラドンエマネーションパワーの空間分布を把握することは、比較的重要度が高い今後の課題である。

(A-3) 表層土壤中の輸送

表層土壤中の輸送過程に関するパラメータのなかで、不飽和土壤中でのラドン拡散係数が最も重要なパラメータである。夜次露天採掘場跡地の表層土壤の拡散係数の測定を行い、 $3.0 \sim 4.4 \times 10^{-6} \text{m}^2\text{s}^{-1}$ の値が得られている。また、文献調査によるとラドン拡散係数は土壤の間隙率および含水率に依存して大きく変化することが知られており、Rogers and Nielson の式が有用性の高いものとして評価された。ただし、圧密されたペントナイト混合土については拡散係数を過大評価する可能性が指摘され、この式の圧密ペントナイト混合土への適用性の検討が必要である。また、土壤表面が凍結した場合に、ラドン拡散係数が約半分減少するという知見も実験的に得られた。これらについても、A-2 と同様比較的狭い場所で取得されたもので、深さ分布を含めて実サイトを代表する値であるかの確認が必要である。

気圧変動および風速変動に伴い土壤中空気の巨視的な運動が生じ、移流によりラドン散逸に寄与することが考えられる。これに関する知見は得られていない。気圧が減少する場合は上向きの流れが生じラドン散逸を促進し、気圧上昇の場合はその逆となるとされているが、長期の平均で見た場合は両者が相殺され、実質的な影響は少ないと考えられている。従って、空気の運動に伴う移流に関する知見の取得の重要度は高くない。

一方、土壤水の浸透に伴うラドンの輸送は、地表面からの散逸減少の方向に働く。ヘンリーの無次元平衡定数は常温で 0.2~0.3 程度であるため、地表面からのラドン散逸にある程度影響を与えると考えられる。これに関しては、土壤中ラドン輸送の評価モデルで水分移動（浸透）に伴う移流の考慮を行うように改良した。しかし、本格的な評価のためには実サイトでの水の移動に関する実測データが必要となる。

(A-4) 大気への散逸

地表面からの散逸量が鉱山跡措置のラドン評価で対象とすべき最も重要な知見である。これまでの測定では、非積雪時には 0.005 から $0.68 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の値が得られた。これらの値は、一般土壤での $0.01 \sim 0.02 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 程度と比べて高い値であり、モデルによる評価によると主に表層土壤の高ラジウム含有率に起因していると考えられる。大きな変動幅は、主に表層土壤の湿潤度に依存したもので、降雨後のような表層土壤が湿潤な状態では小さな値が得られている。特に、H16 年度 (VII) の連続測定では、平年の 2.5 倍程度の例年にはない多雨のため、ほとんどの期間

で土壤表面が湿潤に保たれ、 $0.01 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 以下の散逸率が長期間継続した。フラックスの平均値は $0.010 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ で最小、最大値はそれぞれ 0.004 および $0.351 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ であった。また、H15 年度 (VI) 積雪時には土壤表面が常に湿潤に保たれるため、 $0.009 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ の値が得られた。

(A-5) 散逸後の大気拡散および大気中濃度

鉱山跡措置のラドン評価では最終的に実サイトおよび周辺環境中でのラドン濃度に及ぼす鉱山跡地からのラドン散逸の寄与の評価が必要となるが、本委託研究では大気への散逸までを対象としたため、この項目についての知見は得られていない。

4-4 散逸抑制技術

(B-1) 湿潤化による抑制

捨石層から表層土壤までを湿潤に保つことにより、主要なラドン輸送過程である気相での拡散を遮断し地表面からの散逸を抑制することができる。ラドン散逸率や土壤中ラドン濃度の測定結果より、土壤の湿潤化による散逸率の顕著な減少が見いだされたが、これを積極的に利用する立場での研究は行わなかった。

(B-2) 覆土による抑制

周辺土壤等を覆土した場合の散逸抑制効果については、表層土壤のラドン拡散係数の測定値を用いた初期の 2 層構造を仮定した数値モデルによる評価では、表層土壤について測定された拡散係数を全層に適用すると 2m 厚の一様な覆土によりラドン散逸抑制は 0.25~0.6 倍程度と評価されたが、土壤の 3 層構造、土壤中の含水率およびその拡散係数を考慮したより詳細なモデルにより、実サイトでは覆土厚が十分であり、土壤がある程度湿潤（計算で仮定した地下 7.5m の地下水位と平衡程度）に保たれれば捨石層からのラドン散逸の寄与は小さく、実サイトの覆土が高ラジウム含有率であることに起因したラドン散逸が主であることが示された。

粘土を用いた覆土による散逸抑制については、他の土壤と混合しないベントナイト 100% の覆土による屋外実験を名古屋大学構内で行い、2-3cm の厚さの覆土ではフラックスが覆土無しに比べて 1/3 に減少し、5-7cm の厚さでは検出限界以下であることが示された。また、別の年度の実験では、5cm 厚の覆土によりフラックスが約半分となることが示された。前者の実験ではベントナイト覆土を湿潤に保つために適宜覆土表面に散水したのに対して、後者の実験では降水がほとんどなく散水も行わなかったため、散逸抑制効果が低下したものと考えられる。何れの実験においても、土壤中のラドン濃度の増加が測定され、覆土の有効性が実証された。

本年度の実験では実際の施工を想定し、まさ土にベントナイトを 12.5% 混合した覆土材により 4t 振動ローラーによる厚密を加えて 12cm の厚さで覆土した地表面を対象に散逸率の連続測定を行った。観測期間に平年の 2.5 倍の降水があったため、覆土面と対照のための裸地面の両方とも湿潤状態が維持され、裸地面からのフラックスも過去の測定値に比べて極めて小さい値であ

ったが（A-4）、覆土面での平均値は $0.002 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ となり、対照の裸地面の約 2 割の散逸率であった。また、この値は一般の土壤からの散逸率の 5~10% 程度の値である。覆土面の湿潤度が保たれれば通常の降雨でもこの散逸率が期待できることから、湿潤でない場合の裸地面からの散逸率測定値（最大 $0.7 \text{ Bqm}^{-2}\text{s}^{-1}$ 程度）と比較してペントナイト混合土による覆土の有効性が実証されたと結論することができる。

（B-3）覆土の健全性の確保

以上のように、ペントナイト混合土による覆土がラドン散逸抑制に極めて有効であるが、長期の抑制効果を担保するためには、覆土が乾燥した場合のラドン散逸の把握および覆土を湿潤に保ちかつ流出を防ぐための方策の検討が必要である。これらについては、ペントナイト 100% の覆土材を用いた時に乾燥による覆土面での亀裂の発生すること、乾燥に伴い抑制効果が低下することが分かっているものの、実際の施工を想定したペントナイト混合土の乾燥時の特性、乾燥・流出防止の方策等に関する試験研究は行われておらず、今後の重要な課題である。

4-5 散逸評価技術

（C-1）土壤中濃度測定法

土壤空気中の濃度測定方法については、濃度を連続的に測定できる「地中ラドン濃度連続測定装置」を開発した。これは、金属パイプの先端に小さな測定空間を設けその空間に入ったラドンの α 壊変を側面に取り付けたシンチレータおよびパイプ内の光電子増倍管により検出するものである。現地試験により濃度測定が可能であることを実証し、その後その後継である測定装置（UGRMS）を開発し、現地測定で使用してきた。土壤含水率が飽和に近いほど高くなく、また土壤の間隙率が極端に小さくない測定対象では良好にラドン濃度が得られた。

この測定器の欠点は、土壤中の水分の侵入による装置の故障で、先端の形状、気水分離膜の装着、光ファイバーを用いることによる光電子増倍管のパイプ上端への装着等の改良を加えて、水分侵入への対応を施してきた。しかし、未だに水分の影響による不具合が発生し、湿潤な土壤内でのラドン濃度の連続測定は満足できる段階に達していない。また、含水率が高く土壤中の気相が極めて小さい場合は、測定空間へのラドンの拡散が不十分となるために、原理的に濃度の測定が困難である。

本委託研究では、土壤水に溶存するラドンの濃度の測定は行ってこなかった。鉱山跡措置のラドン評価の観点からは、高含水率でも運用可能な連続測定装置の開発、土壤水中ラドン濃度の測定方法の採用等により、ラドン散逸率測定と組み合わせた連続測定により、散逸抑制が十分であることを実証する必要がある。

（C-2）地表面散逸率測定法

地表面散逸率はラドン散逸抑制が効果的に行われて散逸ラドンが自然に発生するラドン濃度

を有意に増加させないことを実証する上で、最も重要で直接的な情報であり、ラドン散逸評価のためには必須の測定である。

本研究においては蓄積法によりラドン散逸率を測定してきた。また、連続的に測定するための通気チャンバを用いた方法を開発し、ここ2年の観測で使用してきた。この方法は、地表面に設置するチャンバ、通気のためのポンプおよび市販のラドン濃度測定装置（AlphaGUARD）を利用した簡便な方法である。

蓄積法はチャンバの開閉を行う必要があり、人手もしくは機械的な機構が必要であり連続測定が困難であるという欠点があるが、測定時以外は地表面を周辺と同じ状態に保つことが可能であるという利点がある。一方、本研究で用いた通気チャンバ法は、連続的に散逸率を測定できる利点があるが、チャンバを設置したままとなるためチャンバ内の土壤面が降水や蒸発の影響を受けず、周辺土壤面と異なる状態になる欠点がある。今回は低散逸率を精度良く測るために底面積を大きな $40\text{cm} \times 50\text{cm}$ のチャンバを用いたが、大きさおよび形状の工夫によりチャンバ内土壤面が周辺と極端に異なる状態にならないようにすることが可能であると考えられる。

(C-3) 拡散係数測定法

拡散係数測定のための装置は、本研究の初年度に土壤中ラドン拡散係数測定装置（RDSM）の開発を行い、本研究の中で使用してきた。しかし、この初期の装置は老朽化により使える状態ではない。また、凍結土壤中の拡散係数を評価する目的で類似の原理であるがより簡便で温度制御が可能な装置を作成した。

土壤中のラドンの拡散係数は、ラドン散逸率を決定する重要なパラメータであるため、数値モデル評価での使用を考えるとできる限り詳細な値が必要である。しかし、拡散係数は土壤の粒径分布、間隙率（圧密の状態）、含水率等に依存して大きく（数桁程度）変化するため、測定のみにより評価するのは困難で、経験式等のこれまでの知見と現地土壤の測定値を組み合わせて用いる必要がある。実サイトの拡散係数の測定値はあるものの十分な空間代表性を持つかどうか確認する必要がある。このため、数値モデル評価の目的に応じて必要な測定を行うべきであり、その際、されていない現状では、数値モデル評価の目的に応じて必要な測定を行なうべきである。ラドン拡散係数の測定も必要となることが考えられる。

(C-4) 数値モデルによる評価法

鉱山跡措置のラドン評価において、措置前の計画段階および措置後の監視段階で、ラドン散逸率等の実測による検証が必要であるが、数値モデルによる包括的な評価が有効である。本研究においては、土壤中のラドン濃度分布、地表面からの散逸率評価、覆土材の有効性評価の目的で土壤中ラドンの鉛直1次元拡散モデルによる評価を行ってきた。開発されたモデルは、評価対象に応じて、複数層の土壤構造の考慮、降水および蒸発を考慮した土壤含水率の予測、土壤水の移動に伴うラドン移流の考慮が可能である。モデルでは、土壤中濃度および地表面の散逸率、土壤水中の溶存ラドン濃度が計算される。

このモデル自体は他の目的で開発されたもので、計算内容およびモデルコードの検証がなされ

ている。しかし、計算結果の正しさは与える土壤パラメータに大きく依存するため、モデル評価を行う場合は、入力パラメータの入手可能性を十分検討する必要がある。特に重要な入力パラメータ（◎）および得ることが望ましいパラメータ（○）は以下のとおりである。

土壤物理パラメータ

- ◎間隙率
- ◎乾燥バルク密度
- ◎水分特性曲線
- ◎透水係数（飽和および水分量依存性）
- 熱伝導率および熱容量

ラドン関連パラメータ

- ◎ラドン生成率（単位時間、単位重量当たり：エマネーションパワーでも可）
- ラジウム含有率（上記がエマネーションパワーの場合必須）
- ◎ラドン拡散係数

気象および地下水データ

- ◎降水量（毎時）
- 風速、気温、湿度、日射量、大気放射量（または放射収支量）：何れも毎時
- 地下水水面の位置

対象サイトおよび周辺環境の大気中濃度の評価のためには大気拡散モデルが必要であるが、本研究では対象としていない。

4-5 まとめと今後の課題

本章では、鉱山跡措置にかかるラドン評価の観点でこれまでの一連の委託研究で得られた成果および残されている問題点をラドン輸送過程の知見、散逸抑制技術および散逸評価技術項目に分けて整理した。一連の研究により、土壤中ラドン挙動に関する測定方法を開発し、一般土壤および夜次露天採掘場跡地でのラドン挙動に関する知見が得られた。また、抑制技術について特にペントナイトを主とする覆土材による散逸抑制が実用的かつ効果的であることが示された。

今後、これらの成果を踏まえて鉱山跡措置にかかるラドン評価を進めるためには、水分に影響されない土壤中ラドン濃度測定装置の開発（あるいは、現装置の改良）、実サイトおよび覆土材の土壤特性の把握、覆土材の健全性の確保に関する研究が特に重要である。

参考文献

- 飯田孝夫：土壤中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究Ⅰ、核燃料サイクル開発機構委託研究
成果報告書、1999.
- 飯田孝夫：土壤中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究Ⅱ、核燃料サイクル開発機構委託研究
成果報告書、2000.
- 飯田孝夫：土壤中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究Ⅲ、核燃料サイクル開発機構委託研究
成果報告書、2001.
- 飯田孝夫：土壤中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究Ⅳ、核燃料サイクル開発機構委託研究
成果報告書、2002.
- 飯田孝夫：土壤中のラドンの拡散係数測定手法に関する研究Ⅴ、核燃料サイクル開発機構委託研究
成果報告書、2003.
- 飯田孝夫：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、2004.