

ラドン吸収フィルムによる地下水ラドン濃度測定の適合性

吉本周平*・土原健雄*・石田 聡*・今泉眞之**

目 次

I 緒 言	35	5 フィルムの現地適用可能性の検討	39
II ラドン吸収フィルムの概要	36	V 結果および考察	39
III 調査地区の概要	36	1 フィルムの実用的な設置期間	39
IV 研究方法	36	2 フィルムのラドン分配率と現地適用可能性	40
1 従来法によるラドン濃度の測定	36	VI 結 言	42
2 フィルムのラドン吸収量の測定	38	参考文献	42
3 フィルム設置期間の検討	38	Summary	43
4 フィルム設置地点の選定	38		

I 緒 言

地下水は、水質が良好で変化が少なく、井戸を掘るだけで取水が可能であるなどの利点を有し、日本では都市用水および農業用水の使用量の約13%を地下水が占めている(国土交通省, 2009)。また、平時だけでなく、渇水時の補助水源や災害時の緊急水源としても地下水は重要である。しかし、近年、肥料や農薬、有機溶媒などによる地下水質汚染が顕在化している。安全で持続的な地下水利用のためには、汚染物質の流動機構を明らかにした上で、適切な保全・管理を行う必要がある。

農薬や有機溶媒による地下水汚染の調査手法として、近年、ラドン(^{222}Rn)を指標として利用できる可能性が指摘されている(土原ら, 2006)。ラドンは、半減期3.8日の放射性の希ガスで、ラジウム(^{226}Ra)の α 崩壊によって生成される。地下水は帯水層中のラジウムの崩壊によってラドンが付加され、約3週間で放射平衡に達する。一方で、地表水にラドンは殆ど含まれておらず、ラドンは地下水の帯水層内での滞在時間の指標となる。このことから、ラドン濃度の測定によって、数日程度での地表水の地下水への到達時間などの地下水流動状況を把握し、帯水層での汚染物質の吸着・分解などの挙動を解明することが可能となる。また、ラドンは、水よりも有機溶媒に分配されやすいという特性から、帯水層中の

有機溶媒の汚染位置や汚染量の調査に用いることができる。

しかし、従来のラドン濃度測定法(濱田ら, 1997)は分析のために試料水が500mL必要であることから、水が僅少で採水が困難な地点におけるラドン濃度を測定することが困難であった。

このような問題の解決策として、斎藤ら(2003)は、ポリスチレンフィルム(以下、ラドン吸収フィルム)によるラドン測定法を提案している。この方法は、測定手順が簡便で、水量が少ない場合でも測定が可能であるなどの利点があり、岩盤の切れ目から滲出する湧水地点や、底部付近にのみ地下水を有する観測用ボーリング孔など、水量が僅少で従来法による測定が困難な現場への適用が期待される。斎藤ら(2003)は、密閉容器中にフィルムを設置した場合について、設置時間および水温とフィルムの水に対するラドン吸収量の比の関係を示している。また、斎藤(2005)は、水を満たし密封した地質試料中に設置したフィルムのラドン吸収量から帯水層が与える地下水ラドン濃度を推定した。しかし、実際に現地にフィルムを設置して地下水中のラドン濃度を測定した事例はまだなく、現地にフィルムを適用するための条件に関する検討はなされていない。

本研究では、湧水中小および観測用井戸内にラドン吸収フィルムを設置し、従来法で測定したラドン濃度とフィルムのラドン吸収量との関係を調べ、フィルムによる地下水ラドン濃度測定が有効である条件を検討した。

なお、本研究は、文部科学省科学研究費補助金(若手研究B「ダブルトレーサー試験による農薬の不飽和帯水層内移行メカニズムの解明」, 課題番号19710021)の助成を受けたものである。本研究の実施において、湧水の

* 農村総合研究部地球温暖化対策研究チーム

** 農村環境部

平成23年1月20日受領

キーワード: ラドン, 地下水, ポリスチレンフィルム, 液体シンチレーション測定, 簡易法

所有者にフィルム設置・採水を快く許可して戴いた。記して感謝の意を表す。

II ラドン吸収フィルムの概要

ポリスチレンは、発泡スチロールなどの形で一般の生活に多く用いられている高分子材料である。ポリスチレンの分子構造には芳香環が含まれており、芳香族炭化水素であるトルエンとの類似性から、ラドンを吸収または吸着しやすい、トルエンなどの芳香族系シンチレータに溶解しやすい、さらに、その溶液は液体シンチレーション計測に適している、といった性質がある(斎藤, 1999)。

この性質を利用して、斎藤ら(2003)は、一定サイズ、一定質量に揃えたポリスチレンフィルム APDLS#1(ここでは、ラドン吸収フィルム)をラドンの簡易測定法として開発・商品化した。フィルム一枚あたりの質量は1.00g, サイズは50mm × 65mm × 0.3mmの大きさである(斎藤ら, 2003)。このフィルムを地下水中に設置し、一定期間後に回収して、トルエンなどのシンチレータに溶解させると、フィルムが吸収したラドン量を液体シンチレーションカウンタで測定することができる。

一定濃度のラドンを有する地下水中に設置されたフィルムのラドン吸収量は、時間とともに増大し、やがて平衡状態に達する。水温が一定の条件下では、一定のラドン濃度 C_w [Bq L⁻¹] の試料水中に設置されたフィルムのラドン吸収量 A_f [Bq kg⁻¹] の経時変化は、次の微分方程式による単純なモデルで表すことができる(斎藤ら, 2003)。

$$dA_f / dt = k_1 C_w - k_2 A_f \quad (1)$$

ここで、地下水の密度は1 [kg L⁻¹] とみなしており、 t はフィルムの設置期間 [day], k_1 および k_2 は速度定数 [day⁻¹] である。設置前のフィルムにラドンは含まれていない ($t = 0$ のとき $A_f = 0$) として、(1) 式を積分すると、次式に纏めることができる。

$$R = R_p \{1 - \exp(-k_2 t)\} \quad (2)$$

ここで、 $R_p = k_1 / k_2$ で、分配係数と呼ばれる(斎藤ら, 2003)。また、 R はフィルムのラドン分配率(水に対するフィルムのラドン吸収量の比)であり、次式で定義する。

$$R = A_f / C_w \quad (3)$$

R は設置期間が長いほど上昇し、十分な時間 ($t \rightarrow \infty$) を経ると平衡状態となって一定値になる。この値は、分配係数 R_p と等しい(斎藤ら, 2003)。

実用的には、ラドン吸収フィルムを用いて地下水のラドン濃度 \hat{C}_w を推定する場合、 \hat{C}_w は地下水中に設置したフィルムのラドン吸収量の測定値 \hat{A}_f と設置期間に対応する分配率 \hat{R} から

$$\hat{C}_w = \hat{A}_f / \hat{R} \quad (4)$$

として算出することができる。このため、設置期間と \hat{R}

の関係を示すとともに、 \hat{C}_w を推定するために信用できる \hat{R} を得るための条件を明らかにすることが必要である。

III 調査地区の概要

本研究では、茨城県つくば市の湧水および観測用ボーリング孔を対象とした。これらの調査地点の位置と周辺地域の地質を Fig.1 に示す。調査地区であるつくば市の北端に位置する筑波山(標高877m)では、標高500m以上には白亜紀の斑縞岩類が露出し、中腹や山麓部では斑縞岩類に貫入している古第三紀の花崗岩類(花崗閃緑岩)や変成岩(ホルンフェルス)が基盤岩となっている(宮崎ら, 1996)。筑波山の南麓には斑縞岩類や花崗岩類の巨礫や砂などからなる斜面堆積物が広く分布している。

一方、つくば市の表層地質の大部分は関東ローム層の洪積台地からなり、これらの台地は河川によって開析され崖線を形成している(水尻ら, 2006)。関東ローム層の下位には主に常総粘土層が分布し、地下水面は通常地表面下10m以内の関東ローム層や常総粘土層中に分布している(宇野ら, 1988)。

筑波山の周辺に分布する湧水の多くは、斑縞岩類や花崗岩類の巨岩や砂礫からなる斜面堆積物を帯水層とし、地形変換点など地表面と地下水面が交わる点から湧出していると考えられる(水尻ら, 2006)。これらのうち、花崗岩類は、一般にラドンの親核種であるラジウムを多く含んでいる。このため、花崗岩類を帯水層に含む湧水では、ラドン濃度が特に高くなる。一方、洪積台地に分布する湧水の多くは、台地周縁部の崖下に湧出している(水尻ら, 2006)。

洪積台地にある農村工学研究所の敷地内には、地下水観測のための井戸を設置している。井戸周囲の地質断面模式図を Fig.2 に示す。地質は上位から、表土、ローム、凝灰質シルト層、第四紀更新世の砂質土(石田ら, 2005b)、孔口は地表面から30cm上にある。測定時の地下水位は孔口から-7-9mの間で変動していた。なお、観測用井戸の保管材は、内径100mmの硬質塩化ビニル管(VP-100)である。

IV 研究方法

1 従来法によるラドン濃度の測定

従来法によるラドン濃度は、濱田ら(1997)の方法に従った。シンチレータ(PPO 4.0g L⁻¹とPOPOP 0.1g L⁻¹)を溶解させたトルエン40mLを採取した地下水500mLに加えて攪拌、静置し、分離したトルエン20mLをガラスバイアルに回収して、液体シンチレーションカウンタ(パッカード社製2250CA)で測定した。測定時間は1試料50分で、検出限界は約0.037Bq L⁻¹である。

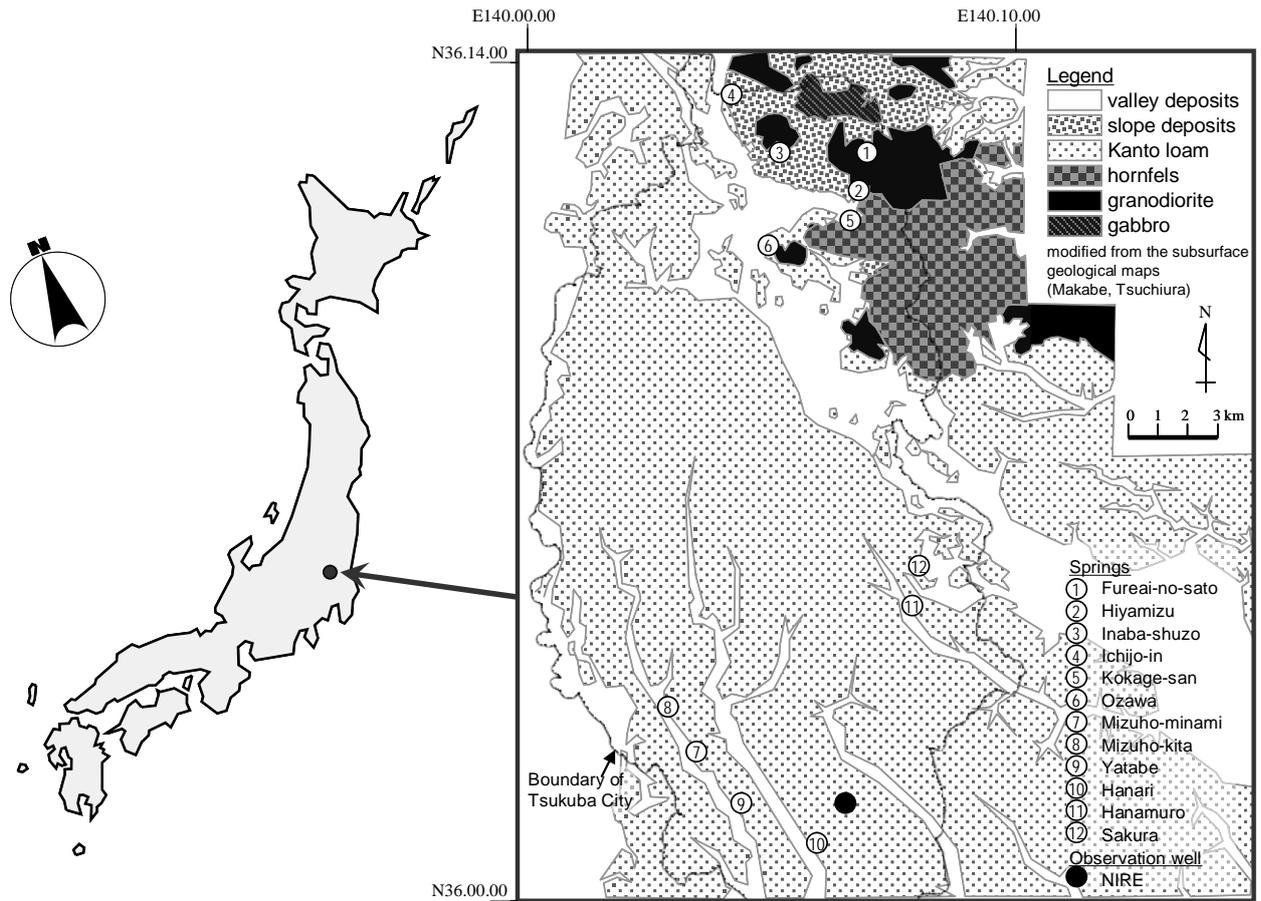


Fig. 1 調査地区の表層地質（茨城県，1981，1983）と調査地点の位置
Subsurface geology in the study area (modified from the subsurface geological map of Makabe and Tsuchiura) and the observation sites

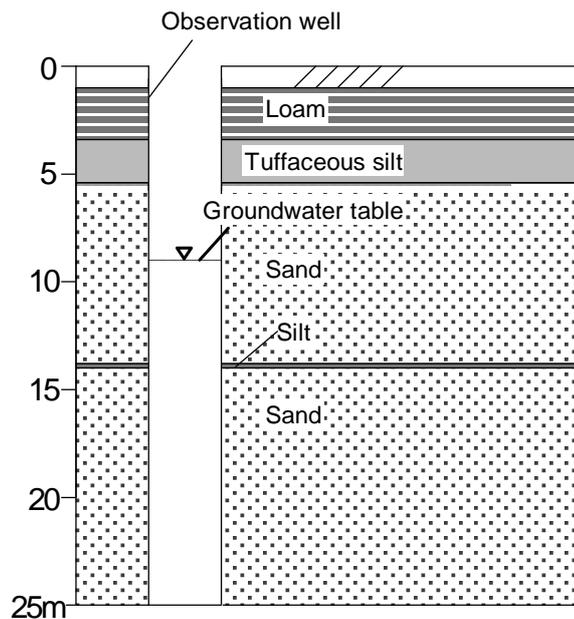


Fig. 2 農村工学研究所内の観測用井戸の地質断面模式図（石田ら，2005b）
Geological section around the borehole in the National Institute for Rural Engineering (NIRE)

2 フィルムのラドン吸収量の測定

ラドン吸収フィルムは、水に対して高いラドン分配率を有し、一定濃度のラドンを含む水中に設置すると時間とともにラドンを吸収してやがて平衡状態となる。このフィルムを回収して、上述のシンチレータに溶解させると、フィルムが吸収したラドン量を測定することができる。

本研究で使用するフィルムは、共立理化学研究所製 APDLS#1 である。湧水や井戸にフィルムを設置する際は、フィルムに錐で直径 2mm 程度の小穴を開鑿し、スナップ付きサルカンと釣り糸を用いて、フィルムが水面下に完全に浸るようにした (Fig.3)。フィルムのラドン吸収量は、一定期間設置した後に回収し、速やかに水分を拭き取り、シンチレータを溶解させたトルエン 20mL に溶かして、液体シンチレーションカウンタで測定した。測定時間は従来法と同様に 1 試料 50 分で、液体シンチレーションカウンタによる検出限界は約 6Bq kg^{-1} (約 0.006Bq g^{-1}) である。



Fig. 3 湧水にフィルムを設置するための器具
Picture of a setting instrument for the film

3 フィルム設置期間の検討

ラドン吸収フィルムのラドン吸収量から地下水のラドン濃度を推定する場合、最善なのは、平衡状態になるまでフィルムを設置し、式 (4) の分配率 \dot{R}_i に分配係数 R_p を当てはめて計算することである。しかし、完全に平衡状態になるまでには多大な時間が必要なため、実用的には、平衡状態とみなすことができる設置時間を決定する必要がある。

本研究では、農村工学研究所の観測用井戸 (Fig.1 の●, 以下、農工研井戸) の孔口からの深さ 14–15m (以下、深度 15m) にフィルムを設置し、設置期間を 1–9 日の間で変えながらフィルムのラドン吸収量を測定した。また、フィルム回収と同時に、採水した地下水試料のラドン濃度を従来法で測定し、それらの結果から設置時間 t とラドン分配率 \dot{R}_i の関係を求めた。なお、この測定は、

2006 年 8 月 3 日から 10 月 12 日までの間に実施された。後述のように、この期間のラドン濃度は $8.3–10.1\text{Bq L}^{-1}$ 、平均は 9.2Bq L^{-1} でほぼ一定と見なすことができる。また、この期間の水温は $17.1–19.4^\circ\text{C}$ 、平均 18.0°C で、これもほぼ一定であった。

4 フィルム設置地点の選定

ラドン濃度の高低に拘わらずラドン吸収フィルムが適用可能であることを確認するために、フィルムの設置地点は、ラドン濃度の高い地点と低い地点からバランス良く選定する必要がある。このため、まず、地区内湧水 12 地点 (Fig.1 の①から⑫) におけるラドン濃度を従来法で測定した。これらの測定のための試料採取は、①から⑥については 2007 年 6 月 8 日に、⑧から⑩は 2008 年 1 月 9 日に、⑪と⑫は 2008 年 1 月 14 日にそれぞれ実施された。

湧水でのラドン濃度の測定結果を Table 1 に示す。筑波山周辺の湧水①から⑥で $6.5–53.9\text{Bq L}^{-1}$ の比較的広い範囲のラドン濃度を示し、②ではラドン濃度が非常に高く 53.9Bq L^{-1} である。これらのラドン濃度の違いは帯水層である斜面堆積物を構成する岩石の違いによるものと考えられ、特に②はラドンの親核種であるラジウムを多く含む花崗岩類の影響を強く受けていることが示唆される。一方、関東ローム分布地帯に位置する湧水⑦から⑫のラドン濃度は $1.9–9.7\text{Bq L}^{-1}$ である。

本研究では、筑波山周辺からは最も高い濃度を示した湧水②とその近隣でフィルムの設置が可能であった湧水①を、関東ローム分布地帯からはフィルムの設置が容易であった湧水⑦と⑫ならびに農工研井戸の水面直下と深度 15m を、それぞれフィルム設置地点として選定した。

また、これらの湧水に加えて、農工研井戸の地下水水面下約 1m (孔口から 8–10m, 以下、水面直下) と深度 15m もフィルム設置地点として選定した。

Table 1 つくば市内の湧水のラドン濃度
 ^{222}Rn concentration of springs in the study area

Springs	^{222}Rn [Bq L^{-1}]	Measurement
①Fureai-no-sato	12.6 ($\pm 1.3\%$)	} Jun. 8 th , 2007
②Hiyamizu	53.9 ($\pm 0.6\%$)	
③Inaba-shuzo	24.8 ($\pm 0.9\%$)	
④Ichijo-in	8.3 ($\pm 1.6\%$)	
⑤Kokage-san	13.1 ($\pm 1.2\%$)	
⑥Ozawa	6.5 ($\pm 1.8\%$)	
⑦Mizuho-minami	6.7 ($\pm 1.9\%$)	} Jan. 9 th , 2008
⑧Mizuho-kita	9.7 ($\pm 1.5\%$)	
⑨Yatabe	5.7 ($\pm 2.0\%$)	
⑩Hanari	1.9 ($\pm 4.0\%$)	
⑪Hanamuro	4.2 ($\pm 2.4\%$)	} Jan. 14 th , 2008
⑫Sakura	4.5 ($\pm 2.2\%$)	

※括弧内の百分率は計数誤差を表す

5 フィルムの現地適用可能性の検討

ラドン吸収フィルムによる地下水ラドン濃度測定の実地適用可能性を検討するために、上述によって選定された湧水①、②、⑦、⑫と農工研井戸の水面直下、深度15mにおいてフィルムの設置と回収を行い、フィルムのラドン吸収量と従来法によるラドン濃度を比較した。調査期間をTable 2に示す。フィルムは、水中に約1週間(6日以上8日未満)設置した後に回収し、20mLのシンチレータに溶解して持ち帰った後、ラドン吸収量 \dot{A}_F を測定した。また、同時に従来法でラドン濃度 \dot{C}_w を測定するとともに、電気伝導度(以下、EC)と水温(横河電機製SC82)を測定した。さらに、農工研井戸では、地表面からの地下水位を圧力式水位計(ウイジン製UIZ-WL2000)で1時間おきに自動観測した。日降水量はつくば市長峰の高層気象台のアメダスデータを参照した。

測定の結果から、約1週間設置したときのフィルムのラドン分配率 \dot{R}_t を \dot{A}_F/\dot{C}_w として計算し、 \dot{R}_t の分布を調べた。また、 \dot{C}_w や他の水質項目の時系列データから各地点における地下水ラドン濃度の変動を検討し、現地適用が可能な条件について検討した。

V 結果および考察

1 フィルムの実用的な設置期間

農工研井戸の深度15mにおけるラドン吸収フィルムの設置期間 t とのラドン分配率 \dot{R}_t の関係をFig.4に示す。従来法で測定したラドン濃度の範囲は $8.3-10.1\text{Bq L}^{-1}$ 、平均は 9.2Bq L^{-1} であった。分配率 \dot{R}_t は、設置後時間とともに上昇するが、 t が4日を超えると \dot{R}_t は30を超え、その後は30-36の間でほぼ横ばいになっている。なお、本実験におけるフィルムに吸着したラドン量の計数誤差は4.2-7.4%の範囲であった。

Fig.4の結果から、設置期間が5-9日の間であればフィルムのラドン分配率は大きく変わらないことが明らかになった。設置期間を約1週間(6日以上8日未満)とすれば、回収が1日程度前後しても分配率はあまり変わらないので実用的であると考えられる。一方、式(2)の指数関数モデルにこの結果を当てはめれば、1週間よりも短い設置期間のラドン分配率を求め、地下水中のラドン濃度を推定することが可能である。ただし、設置期間が短い場合は、フィルムがラドンを吸収している途中であるため、誤差が大きくなる可能性があるため注意が必要と思われる。

Table 2 各地点のEC、水温、ラドン濃度の平均および変動係数(CV)、ならびに測定の期間と回数
Means and variation coefficients (CVs) of EC and ^{222}Rn concentration, and periods and times of the measurement

Sites	Measurement		EC [mS m^{-1}]		Temperature [$^{\circ}\text{C}$]		^{222}Rn [Bq L^{-1}]	
	Period	Time	Mean	CV	Mean	CV	Mean	CV
①Fureai-no-sato	Aug. 20th, 2007, - Dec. 24th, 2007	18	11.4	6.70%	15.3	5.80%	14.9 ($\pm 1.2\%$)	8.80%
②Hiyamizu	Aug. 27th, 2007, - Dec. 24th, 2007	18	11.1	3.20%	14.8	9.90%	58.9 ($\pm 0.6\%$)	6.70%
⑦Mizuho-minami	Jan. 28th, 2008, - Feb. 25th, 2008	4	34.6	4.20%	9.9	27%	6.9 ($\pm 1.9\%$)	17%
⑫Sakura	Jan. 14th, 2008, - Feb. 25th, 2008	5	27.1	1.90%	9.5	40%	4.7 ($\pm 2.3\%$)	24%
●NIRE (IB [†])	Jul. 19th, 2006, - Feb. 14th, 2008	89	11.7	16%	17	7.30%	7.7 ($\pm 1.9\%$)	36%
●NIRE (15m [†])	Jul. 19th, 2006, - Feb. 14th, 2008	89	13.1	13%	17	5.70%	8.6 ($\pm 1.7\%$)	18%

† IB : 水面直下, 15m : 深度15m

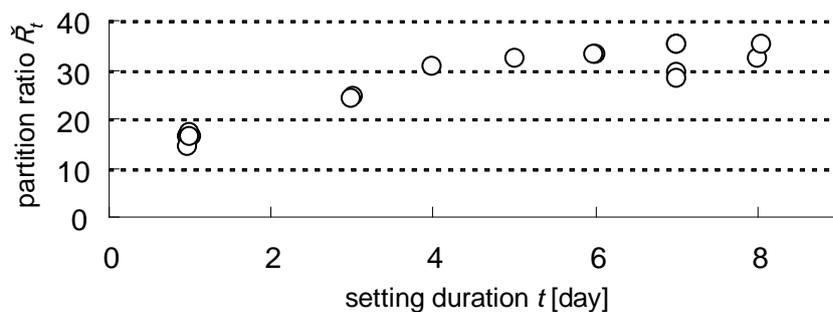


Fig.4 フィルムの設置期間 t と分配率 \dot{R}_t の関係
Relationship between setting durations t and partition ratio of the film \dot{R}_t

2 フィルムのラドン分配率と現地適用可能性

継続的に観測を実施した湧水①, ②, ⑦, ⑫における従来法でのラドン濃度と EC の変化を Fig.5 に, 農工研井戸におけるラドン濃度, EC, 地表面からの水位の変化, 日降雨量を Fig.6 にそれぞれ示す。また, ラドン濃度と EC, 水温の平均および変動係数を Table 2 に示す。湧水中のラドン濃度の変動は農工研井戸と比較して安定して変動係数も小さく, ①および②では特に変動が小さい。一方, 農工研井戸では大きな降雨イベント後に水位が上昇し, それに伴ってラドン濃度も低下して変動が大きくなる傾向があり, 特に水面直下でラドン濃度の変動が大きい。このような農工研井戸での地下水位およびラドン濃度の変動については, 降雨の浸透による希釈の影響が指摘されている(石田ら, 2005a)。なお, EC も, ラドン濃度と同様に, 農工研井戸の変動係数が大きく降雨後

に低下する傾向が見られるが, ラドン濃度ほどの顕著な変動は示さない。

湧水①, ②, ⑦, ⑫および農工研井戸の水面直下と深度 15 m において, ラドン吸収フィルムのラドン吸収量 \dot{A}_F と従来法で測定したラドン濃度 \dot{C}_W の関係を Fig.7 に示す。農工研井戸の水面直下および深度 15 m では, \dot{A}_F と \dot{C}_W の関係がばらついている。従来法によるラドン濃度の変動が比較的大きい農工研井戸の結果を除外すれば, \dot{A}_F と \dot{C}_W との間に非常に高い相関関係 ($R^2 = 0.99$) が認められ, この回帰曲線は $\dot{C}_W = \dot{A}_F/26$ と求められる。また, \dot{C}_W と \dot{A}_F の測定結果から計算されるフィルムのラドン分配率 \dot{R}_7 の平均と変動係数を, \dot{A}_F と併せて Table 3 に示す。農工研井戸の水面直下および深度 15 m の \dot{R}_7 は, 湧水の \dot{R}_7 と比較して, 変動係数, 平均ともに大きい。

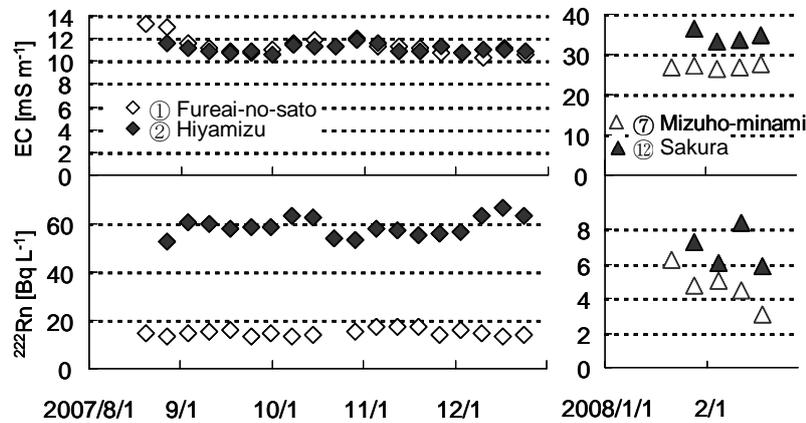


Fig.5 湧水地点における EC と従来法によるラドン濃度の変動
EC and ^{222}Rn concentrations at the springs

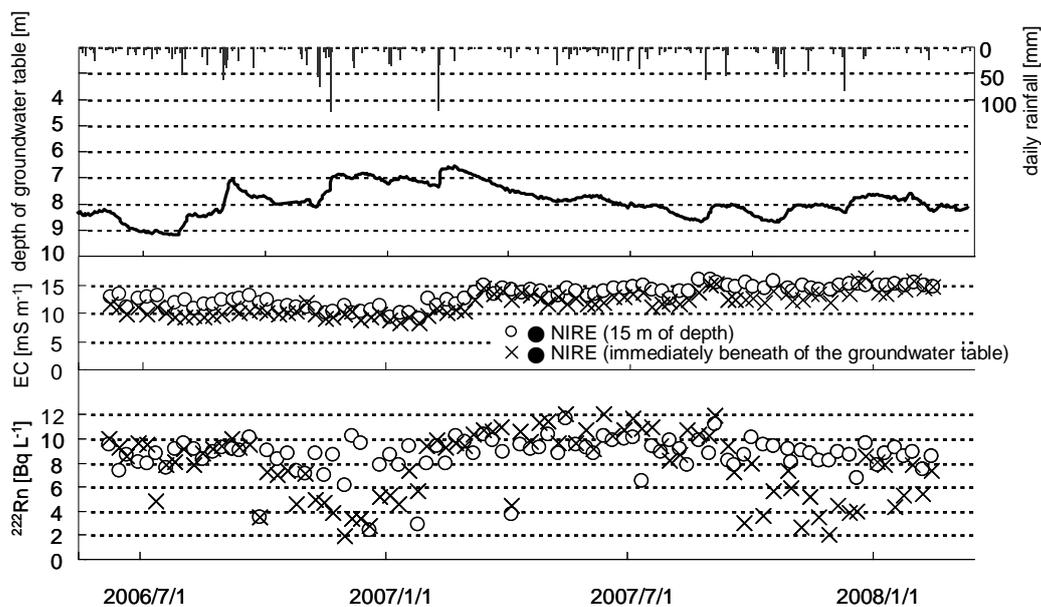


Fig.6 農工研井戸における地下水位, EC, 従来法によるラドン濃度, つくば市の降水量の変動
EC, ^{222}Rn concentrations, and groundwater level at the borehole in NIRE, and rainfall in Tsukuba City

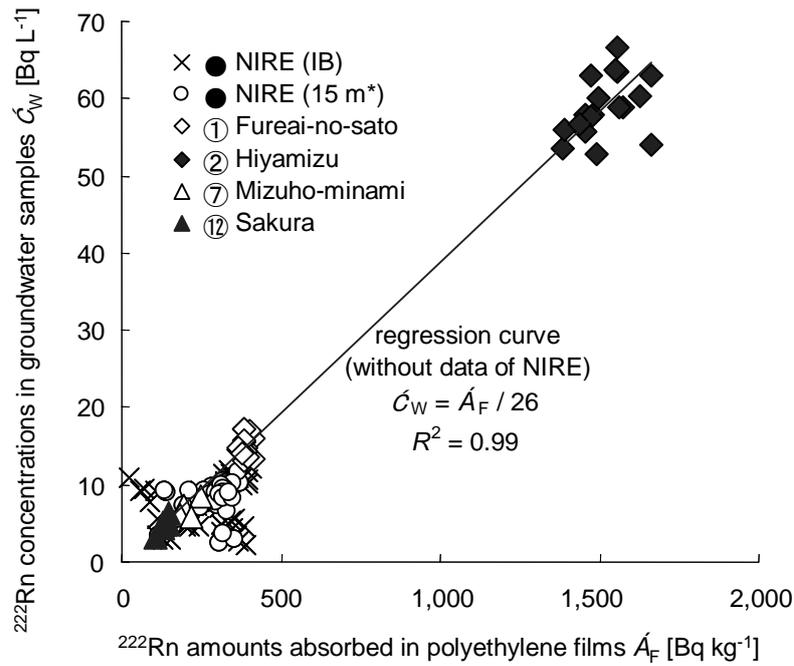


Fig.7 約1週間設置した場合のフィルムのラドン吸収量 \hat{A}_F と従来法によるラドン濃度 \hat{C}_W の関係
Relationship between ^{222}Rn amounts absorbed in the films \hat{A}_F and ^{222}Rn concentrations in groundwater \hat{C}_W

Table 3 約1週間設置した場合のフィルムのラドン吸収量 \hat{A}_F と分配率 \hat{R}_7 の平均および変動係数
Means and CVs of ^{222}Rn amount absorbed in the films \hat{A}_F and partition ratio \hat{R}_7

Sites	Time	\hat{A}_F [Bq kg ⁻¹].		\hat{R}_7 [no unit].	
		Mean	CV	Mean	CV
①Fureai-no-sato	18	390 (±3.7%)	3.30%	26	9.30%
②Hiyamizu	18	1500 (±1.7%)	5.50%	26	6.80%
⑦Mizuho-minami	4	210 (±5.4%)	13%	31	14%
⑫Sakura	5	130 (±7.7%)	12%	29	15%
●NIRE (IB [†])	64*	290 (±5.2%)	32%	45	67%
●NIRE (15m [†])	64*	300 (±4.6%)	16%	38	47%

*設置期間が6日以上8日未満の範囲にあてはまらないデータは除外している

Fig.7に示されるように、湧水における \hat{A}_F と \hat{C}_W の測定結果は直線上に並び、その回帰曲線を(4)式にあてはめれば設置期間1週間($t=7$)の分配率 \hat{R}_7 は26である。本研究の湧水では、ラドン濃度の変動は小さく安定し(Fig.5)、 \hat{R}_7 の変動係数も小さい(Table 3)。このようなラドン濃度が安定している地点で従来法によるラドン濃度とフィルムのラドン吸収量を測定し、回帰曲線を作成して分配率を求めれば、(4)式によってフィルムのラドン吸収量から地下水ラドン濃度を算定することが可能である。一方、農工研井戸の水面直下および深度15mでは、ラドン濃度の変動が大きく(Fig.5)、 \hat{R}_7 の変動係数も47-67%で大きい(Table 3)。このように、ラドン濃度の変動が大きい地点の \hat{R}_7 はばらつきが大きいので、回帰

直線を作成する際に除外すべきである。

フィルムによるラドン濃度推定法の誤差は、フィルムのラドン吸収量の計数誤差のみによるとみなせば、1.7-7.7%と評価できる(Table 3)。従来法での計数誤差は0.6-2.3%(Table 2)である。試料水を少量しか採取できない場合、従来法の測定を行うために n 倍の希釈をすれば誤差率は \sqrt{n} 倍となることから、おおよそ10倍以上の希釈が必要な場合、すなわち50mL以下の水量しか採取できない場合はフィルムによる測定法を用いることでより誤差の少ない測定が可能である。

フィルム内に一旦吸収されたラドン量は、周囲の地下水中のラドン濃度が急速に変化しても、緩やかに平衡状態に近付くため変動が小さい。このことから、フィルム

を用いることで設置期間の平均的なラドン濃度を測定できると考えられる。一時的な変動を調査する目的ならば従来法を、長期的な変動を調査する場合はフィルムを、というように使い分けることが可能である。例えば、かんがい期と非かんがい期の地下水ラドン濃度の違い（例えば、濱田・小前, 1996）など長期的な変化を調査する場合、従来法では傾向を調べるために何度も採水・分析する必要があるが、フィルムによる測定法を用いれば測定回数を軽減することができる。今後の研究によって、ラドン濃度変動に伴うフィルムのラドン吸収量の経時変化を明らかにし、フィルムによって測定されるラドン濃度が設置期間の平均的な濃度であることを確認するとともに、誤差や適用条件を示すことが必要である。

本研究で推定されたラドン吸収フィルムの分配率 \bar{R}_t は、ばらつきの大きい農工研井戸の結果を除くと 26–31 の範囲である (Table 3)。これは、斎藤ら (2003) が示す 15°C で 6 日および 8 日漬け置いた場合の分配率 45.5 および 48.4 と比べて小さい。この差異は、斎藤ら (2003) の実験は閉鎖系であるが本研究は現地の湧水で実施されたことの違いやシンチレータカクテルの違いなどによる可能性が考えられる。また、斎藤ら (2003) が示すようにフィルムのラドン分配率は水温に依存することから、水温が異なる地点に本手法を適用する場合は、調査対象とする地点の水温に対応する回帰曲線を作成して分配率を求める必要がある。

VI 結 言

つくば市内の湧水および観測用井戸における地下水ラドン濃度を従来法によって測定するとともに、ラドン吸収フィルムをこれらの地点に設置してラドン吸収量を測定し、従来法による結果と比較から、フィルムによる地下水ラドン濃度測定の実用性を検討した。結果は以下のとおりである。

- ① ラドン吸収フィルムのラドン分配率は、設置時間が 4 日を超えるとほぼ横ばいになる。フィルムによるラドン濃度測定法を適用する上では、設置期間を 1 週間とすれば回収が 1 日程度前後しても分配率があまり変わらないので、設置期間を 1 週間 (6 日以上 8 日未満) とするのが実用的である。
- ② ラドン濃度が安定している地点において従来法によるラドン濃度とフィルムのラドン吸収量を測定し、回帰曲線を作成して分配率を求められることで、フィルムを用いた地下水ラドン濃度測定が可能である。
- ③ ラドン吸収フィルムによるラドン濃度測定法は、岩盤の切れ目から滲出する湧水地点や、底部付近のみ地下水を有する観測用ボーリング孔など、水量が少ない地点でも測定が可能である。フィルムのラドン吸収量と従来法の計数誤差の比較から、50mL 以下の水量しか採取できない場合は、フィルムによる

測定法を用いることでより誤差の少ない測定が可能である。

- ④ フィルムによって測定されるラドン濃度は、一時的な変動ではなく、設置期間の平均的な濃度を示している可能性が高い。今後の研究によって、フィルムによって測定されるラドン濃度が設置期間の平均的な濃度であることを確認するとともに、誤差や適用条件を明らかにする必要がある。

参考文献

- 1) 濱田浩正, 小前隆美 (1996): 土壌水の ^{222}Rn 濃度と飽和度の関係, *Radioisotopes*, 45(7), 413–418
- 2) 濱田浩正, 今泉眞之, 小前隆美 (1997): ラドン濃度を指標とした地下水調査・解析法, 農業工学研究所報告, 36, 17–50
- 3) 茨城県 (1983): 1/50,000 土地分類基本調査 (表層地質図) 土浦
- 4) 茨城県 (1981): 1/50,000 土地分類基本調査 (表層地質図) 真壁
- 5) 石田 聡, 森 一司, 土原健雄, 今泉眞之 (2005a): 地下水人工かん養施設における段丘砂礫層のマクロポアを流れる卓越流の降下浸透速度, *応用地質*, 46(4), 207–219
- 6) 石田 聡, 土原健雄, 今泉眞之 (2005b): 不飽和帯の自動中性子水分検層技術の開発, *農業土木学会論文集*, 73(3), 313–321
- 7) 国土交通省 (2009): 日本の水資源, 279
- 8) 宮崎一博, 笹田政克, 吉岡敏和 (1996): 真壁地域の地質, 103
- 9) 水尻正博, 藪崎志穂, 田瀬則雄, 辻村真貴 (2006): 茨城県つくば市における湧水の特徴, *筑波大学陸域環境センター報告*, 7, 15–29
- 10) 斎藤正明 (1999): 核種を吸収した高分子材料を液体シンチレータに溶解する新ラドン測定技術, *Radioisotopes*, 48(4), 257–262
- 11) 斎藤正明, 奥村 浩, 岡内完治 (2003): ラドンの簡易測定法—ポリスチレンフィルムを用いる液体シンチレーション計数法, *Radioisotopes*, 52(10), 483–489
- 12) 斎藤正明: 地下水帯水層におけるラドン濃度の不均一性, *地下水技術*, 47(2), 1–6 (2005)
- 13) 土原健雄, 吉本周平, 石田 聡, 今泉眞之 (2006): ラドン (^{222}Rn) を用いた地下水モニタリング技術の新たな展開, *農業土木学会誌*, 74(11), 981–984
- 14) 宇野沢昭, 磯部一洋, 遠藤秀典, 田口雄作, 永井 茂, 石井武政, 相原輝雄, 岡 重文 (1988): 1/25,000 筑波研究学園都市及び周辺地域の環境地質図説明書, 139

Applicability of Polystyrene Film to Measurement of Radon Concentration in Groundwater

YOSHIMOTO Shuhei, TSUCHIHARA Takeo, ISHIDA Satoshi and IMAIZUMI Masayuki

Summary

Application of polystyrene films is a new and simple way to measurement of ^{222}Rn concentrations in groundwater at sites where sufficient sample water is not available to apply existing methods. In order to examine the applicability of the films, we set the films in groundwater at springs and wells in Tsukuba City, and measured absorbed amounts of ^{222}Rn in the films along with ^{222}Rn concentrations in the groundwater by an existing method. Practicable duration of the film setting seems to be a week, because partition ratios of the films would remain roughly flat after 5 days from installation of the films. The measuring method for ^{222}Rn concentrations using the films would be enabled by making a regression curve between ^{222}Rn amounts absorbed in the films and ^{222}Rn concentrations measured by the existing method. At sites where groundwater sample of less than 50 mL is available, errors of measurement using the films are estimated smaller than those by the existing method. Measured ^{222}Rn concentrations by the films seems to reflect not instantaneous concentrations but averaged concentrations in the setting durations, which should be confirmed by future studies.

Keywords : Radon, Groundwater, Polystyrene film, Liquid scintillation, Easy method