

令和 3 年 6 月 10 日現在

機関番号：18001

研究種目：若手研究

研究期間：2018～2020

課題番号：18K14543

研究課題名(和文) 石灰岩地域の特異的地下水挙動の定量解析手法の開発

研究課題名(英文) Development of quantitative analysis method for specific groundwater behavior in limestone areas

研究代表者

城間 吉貴 (Shiroma, Yoshitaka)

琉球大学・教育学部・講師

研究者番号：30781455

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,200,000円

研究成果の概要(和文)：石灰岩地域に特有の地下水挙動を明らかにするため、土壌・岩石におけるラドンの生成と地下水への供給を考慮した地下水中ラドン濃度推定モデルを考案し、推定値と実測値の比較からその実用性について検討した。土壌から間隙への供給量を定量化するため、散逸係数測定システムを構築した。石灰岩地域に分布する土壌のラドン散逸係数はおよそ0.30であった。次に、土壌中ラドン濃度の時間変動を推定するモデルを構築し、地中ラドン濃度の推定値を求めた。研究期間中に玉泉洞内の滴水と周辺地域の湧水中のラドン濃度を継続的に実測した。ラドン濃度の推定値と実測値の比較から琉球石灰岩中の浸透速度は、およそ3 m/日と推定された。

研究成果の学術的意義や社会的意義

石灰岩体中では、不均一な透水性のため、既存の数値モデルによって地下水システムを予測することが困難な場合も多い。沖縄島の南部地域には、琉球石灰岩が広く分布しており、複数の地下ダムが整備されており、地下水が農業用水等の貴重な水資源として利用されている。今後の持続的な地下水利用のためには、地下水の挙動を定量的に評価することが不可欠であった。本研究では水中に溶存するラドンに着目して当該地域における特異的な地下水挙動を数値解析と濃度測定の両面から明らかとした。その結果、降水が地下に浸透し地表に湧出するまでの各層における滞留時間を推定することが可能となった。

研究成果の概要(英文)：In order to clarify the specific groundwater behavior in the limestone area, a ground water radon concentration estimation model was devised considering the generation of radon in soil and rocks and the supply to groundwater. Then, the practicality was examined by comparing the estimated value and the measured value. A emanation coefficient measurement system was constructed to quantify the supply from soil to the pores. The radon emanation coefficients of the soil which was distributed in the limestone area were about 0.30. The estimated values of underground radon concentration were calculated from a model that estimates the time variation of soil radon concentration. During the research period, the radon concentration in the dripping water in limestone cave and the spring water in the surrounding area were measured. The permeation rate of Ryukyu limestone was estimated to be about 3 m/day from the comparison between the estimated radon concentration and those measured values.

研究分野：同位体環境学

キーワード：琉球石灰岩 地下水 水中ラドン濃度 滞留時間 ラドン散逸係数

1. 研究開始当初の背景

石灰岩体中の地下水には、岩体の隙間を浸潤する遅い流れや、石灰岩中の管路や割れ目を通る非常に早い流れが存在する。このような不均一な透水性のため、既存の数値モデルによって地下水システムを予測することが困難な場合も多い。亜熱帯島嶼である沖縄島の南部地域には、第四紀に堆積したサンゴ礁を起源とする琉球層群と呼ばれる石灰岩（琉球石灰岩）が広く分布しており、当該地域は断層や急峻な地形勾配などの複雑な水理地質構造を有している。また、複数の地下ダムが整備されており、地下水が農業用水等の貴重な水資源として利用されている。今後の持続的な地下水利用のためには、地下水の挙動を定量的に評価することが不可欠である。

既存の数値モデルでは予測できない特異的な地下水挙動を把握するための手法としてトレーサを用いた実測的手法が有用である。天然放射性核種であるラドンは古くから水文トレーサとして利用されてきた。これまでのラドンをを用いた地下水挙動の解析手法は、井戸、河川および湖沼などの水中ラドン濃度の連続的な観測データを利用して、地下水のかん養や地表水への地下水湧出などを解析していた。しかし、これらの研究では、土壌や岩層中のラドン濃度を規定する重要なパラメータであるラドンの土壌・岩石から地下水への移行係数（散逸係数）についてはほとんど議論されていなかった。一方で、放射線防護学分野では大気中に放出されるラドンの挙動を明らかにすることを目的としてラドンの動態研究が行われていたが、地下水の挙動解析に応用した例はなかった。

2. 研究の目的

石灰岩分布地域における特異的な地下水挙動を定量的に把握することを目的とし、土壌・岩石から地下水へのラドン供給量と地中におけるラドン収支を考慮した地下水中ラドン濃度推定モデルを構築し、推定値と実測値との比較からモデルの実用性を検証する。

3. 研究の方法

上述した目的を達成するために、以下の3つのテーマを実施した。

(1) ラドン散逸係数の実測的な評価

土壌・岩石に含まれるラジウムの壊変によってラドンが生成され、その反跳により原位置からわずかに移動する。生成された全ラドンのうち、隙間に放出されたラドンの割合を散逸係数と呼ぶ。つまり、散逸係数はラドンの隙間への移行量を定量的に表す重要なパラメータの一つである。散逸係数の実験的評価手法として最も一般的なものが蓄積法である。この蓄積法は密封容器の中にサンプルを封入し、容器内の空気を循環しながらラドンモニタで計測する方法である（図1）。

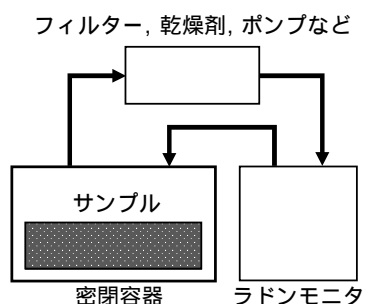


図1. 一般的な蓄積法の概略図

ラドン・トリウム散逸係数の評価には、土壌・岩石中ラジウム（ ^{228}Ra , ^{226}Ra ）濃度および密閉容器内の大気中ラドン濃度が必要である。沖縄県南部に分布する赤褐色土を測定試料として採取した。試料は乾燥処理を行い、ラジウム濃度分析用サンプルと散逸係数評価実験用サンプルに分取した。ラジウム濃度分析用サンプルは、プラスチック容器に密封し、40日以上静置し、Ge半導体検出器を用いて80,000秒の測定を行い、ラジウム濃度を定量した。散逸係数評価に必要な密閉容器内のラドン・トリウム濃度を測定するために、密閉容器、除湿ユニット、静電捕集型ラドン・トリウムモニタからなる実験系を構築した。密閉容器には、粒径を2mm以下に統一した土壌試料を封入した。封入後から72時間にわたって、1時間毎のラドン・トリウム濃度を測定した。同時に、密閉容器内の温度、湿度、気圧を測定した。

(2) 地下水中ラドン濃度推定のためのモデル構築

希ガスであるラドンは、容易に大気中へ拡散する。このため、降水中ラドン濃度は無視できるほど小さい。降雨が地下に浸透すると、土壌・岩石からラドンが供給される。そして隙間水中のラドンは、放射性壊変によって消失する（図2）。つまり、地下水中ラドン濃度の変化を推定することによって、地下水の滞留時間を定量的に把握することができる。

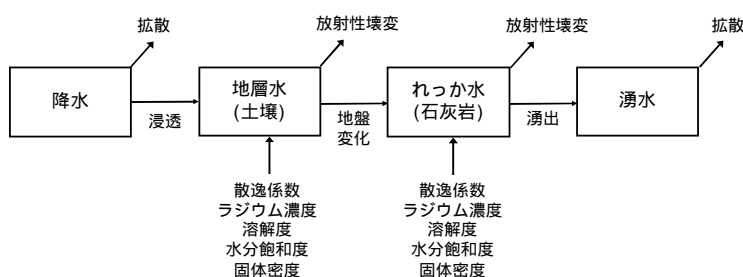


図2. 地下水へのラドンの挙動と濃度に影響するパラメータ

本研究では、ラジウム濃度とラドン散逸係数が異なる土壌（赤褐色土）と岩石（琉球石灰岩）にお

けるラドン濃度の変化を、ラドン散逸係数、ラジウム濃度、土壌物理パラメータを用いて算出し、降水が地中の各層を浸透する際の水中ラドン濃度の時間変化を推定するモデルを構築した。

(3) 地下水中ラドン濃度の推定値と実測値との比較による実用性の検証

構築したモデルの実用性を検討するため、地下水ラドン濃度推定値と実測値の比較を行った。沖縄県における採水地点は、これまでの研究から土壌を起源とするラドンが含まれている可能性が示唆されている玉泉洞の滴水水（複数地点）、内陸に存在する湧水、沿岸域に存在する湧水を対象とした。このような海岸線からの距離が異なる複数地点の水中ラドン濃度を実測することによって、滞留時間が異なる地下水中ラドン濃度とモデルの推定値を比較し、その実用性を検証することができる。ラドン濃度の測定試料は、約1ヶ月間隔で採水を行い、液体シンチレーションカウンターを用いて測定した。

4. 研究成果

(1) ラドン散逸係数の実測的な評価

実験系内のラドン濃度は時間経過に伴って上昇した。一方で、トリウム濃度は低い値で推移した。このことからラドン濃度は正常に測定できたが、トリウム濃度は測定できなかった。その要因として、半減期の短いトリウムが除湿ユニット内で壊変し、検出できなかったと示唆された。

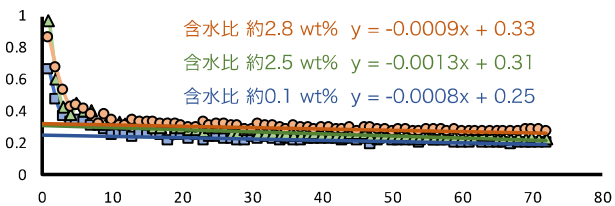


図3. 封入からの経過時間とラドン散逸係数の変動

得られたラドン濃度を用いて、ラドン散逸係数を算出した(図3)。各測定において、測定開始からおよそ5時間程度にわたって異常に高いラドン散逸係数を呈した。その後、漸次的に緩やかに減少し、15時間以降は非常に緩やかに減少する傾向がみられた。ラドン散逸係数に影響する要因として、粒径、ラジウム濃度、含水比が知られているが、本研究においてはこれらの大きな変動は認められなかった。このことから、測定開始直後の異常なラドン散逸係数は、土壌に滞留したラドン濃度の高い空気を吸引したことによるものであり、徐々に減少する要因は、測定系における外気の混入であることが示唆された。そこで、封入時のラドン散逸係数を評価するため、15時間以降のデータを用いて、測定開始時のラドン散逸係数を外挿することで、ラドン散逸係数を評価した。その結果、石灰岩地域に分布する赤褐色土のラドン散逸係数は、およそ0.3となった。

(2) 地下水中ラドン濃度推定のためのモデル構築

本研究では、赤褐色土壌中では土壌粒子から間隙水中にラドンが供給されるため、時間経過とともにラドン濃度が上昇し、ラジウム濃度、ラドン散逸係数が低い琉球石灰岩中では、半減期にしたがってラドン濃度が減少することを仮定したモデルを構築し、各層における水中ラドン濃度を推定した。その結果、間隙水が浸透してから10日で水中ラドン濃度がほぼ平衡に達し、間隙水中ラドン濃度は、およそ50 kBq m⁻³となることが推定された。また、岩石中では、10日後にはおよそ10 kBq m⁻³となり、17日後にはおよそ3 kBq m⁻³、20日後にはおよそ2.5 kBq m⁻³、20日後にはおよそ1 kBq m⁻³まで減少すると推定された(図4)。

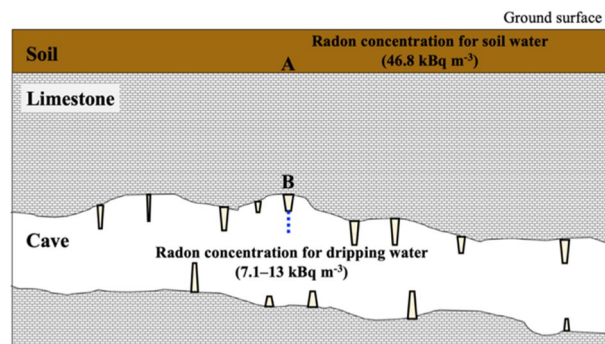


図4. 推定モデルのイメージ図(鍾乳洞滴水水)

(3) 地下水中ラドン濃度の推定値と実測値との比較による実用性の検証

沖縄県南部に所在する鍾乳洞(玉泉洞)の天井からの滴水水とその周辺に位置する受水(内陸湧水)、米須海岸(沿岸湧水)の水中ラドン濃度を、1ヶ月に1回の頻度で採水し、それらの水中ラドン濃度を測定した。鍾乳洞滴水水中ラドン濃度の範囲は、7-13 kBq m⁻³であり、中央値はおよそ10 kBq m⁻³であった。内陸湧水中ラドン濃度は、1-6 kBq m⁻³であり、中央値はおよそ3 kBq m⁻³となった。沿岸湧水中ラドン濃度は、1-6 kBq m⁻³であり、中央値はおよそ2.5 kBq m⁻³となった。これらの水中ラドン濃度は、夏季から秋季にかけて比較的高い値を呈し、冬季から春季にかけて低い値となった。内陸湧水と沿岸湧水で

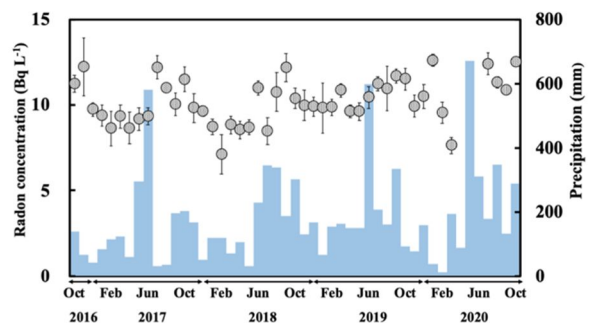


図5. 鍾乳洞滴水水中ラドン濃度と降水量の変動

は、内陸湧水の方がわずかに高い値となった。

本研究で構築したモデルに基づく推定値と水中ラドン濃度の実測値比較した結果、琉球石灰岩中を浸透する時間は、鍾乳洞滴水でおよそ 10 日、内陸湧水でおよそ 17 日、沿岸湧水でおよそ 20 日であると示唆された。降水量とラドン濃度との比較から、大量の降雨の約 45-90 日後に水中ラドン濃度が高くなる傾向がみられた(図 5)。このことから、土壌間隙では間隙水が約 30-80 日かけて浸透し、琉球石灰岩中では、10-20 日と比較的早く浸透することが示唆された。

本研究では、ラドンの生成から環境中に放出されるまでの過程を一連のテーマとして取り扱い、モデルと実測の両面から地下水の挙動を推定することができた。本研究の実施により、土壌や岩石に固有の地下水中ラドン濃度を推定することによって、異なる地盤を介した地下水の時空間挙動を把握できる可能性が示された。本研究から得られた既存の数値モデルから推定できない特異的な地下水挙動への定量的な理解は、気候変動に伴う豪雨などによって引き起こされる地すべりや冠水といった急激な地下水の挙動に関連した局所的な災害の予測・減災に有益な基礎データとなることが期待される。

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計1件（うち査読付論文 1件/うち国際共著 1件/うちオープンアクセス 1件）

1. 著者名 Nakasone Shunya, Ishimine Akinobu, Shiroma Shuhei, Masuda Natsumi, Nakamura Kaori, Shiroma Yoshitaka, Ooka Sohei, Tanaka Masahiro, Kato Akemi, Hosoda Masahiro, Akata Naofumi, Yasuoka Yumi, Furukawa Masahide	4. 巻 18
2. 論文標題 Temporal and Spatial Variation of Radon Concentrations in Environmental Water from Okinawa Island, Southwestern Part of Japan	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 International Journal of Environmental Research and Public Health	6. 最初と最後の頁 998 ~ 998
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.3390/ijerph18030998	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスとしている(また、その予定である)	国際共著 該当する

〔学会発表〕 計3件（うち招待講演 0件/うち国際学会 1件）

1. 発表者名 A. Ishimine, S. Nakasone, Y. Shiroma, N. Akata, M. Furukawa
2. 発表標題 Relationship between the radon concentration of dripping water in limestone cave and the amount of precipitation observed in Okinawa, subtropical region of Japan
3. 学会等名 The 5th International Conference on Environmental Radioactivity (国際学会)
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 伊志嶺聡伸、仲宗根峻也、城間吉貴、赤田尚史、古川雅英
2. 発表標題 日本の亜熱帯島嶼地域沖縄で観測された鍾乳洞滴水水中ラドン濃度と降水量の関係
3. 学会等名 第2回日本放射線安全管理学会・日本保健物理学会合同大会
4. 発表年 2019年

1. 発表者名 城間吉貴、城間修平、加藤明己、伊志嶺聡伸、服部貴昭、仲宗根峻也、真田哲也、赤田尚史、床次眞司、古川雅英
2. 発表標題 沖縄県玉泉洞における滴水水中ラドン濃度の時間変動
3. 学会等名 日本保健物理学会
4. 発表年 2018年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究協力者	古川 雅英 (Furukawa Masahide)		
研究協力者	赤田 尚史 (Akata Naofumi)		
研究協力者	細田 正洋 (Hosoda Masahiro)		
研究協力者	床次 眞司 (Tokonami Shinji)		
研究協力者	平尾 茂一 (Hirao Shigekazu)		
研究協力者	岩岡 和輝 (Iwaoka Kazuki)		

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8 . 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------