

原著論文

沖縄県玉泉洞における洞内大気中ラドンの起源

城間 吉貴*¹, 城間 勝人*², 喜納 正剛*², 細田 正洋*³,
安岡 由美*⁴, 赤田 尚史*¹, 古川 雅英*²

(2016年10月7日受理)

(2016年11月11日再受理)

Source of Atmospheric Radon in the Gyokusendo, a Limestone Cave in Okinawa, Japan

Yoshitaka SHIROMA,*¹ Masato SHIROMA,*² Seigou KINA,*² Masahiro HOSODA,*³
Yumi YASUOKA,*⁴ Naofumi AKATA*¹ and Masahide FURUKAWA*²

In order to understand the source of atmospheric radon concentration in the Gyokusendo which is the limestone cave on Okinawa Island, the radon concentrations in the drip water from the ceiling were measured using a liquid scintillation counter. The arithmetic mean (\pm standard deviation) of radon concentration was 8.7 ± 2.0 kBq m⁻³. This result suggests that the atmospheric radon in the cave was supplied from the drip water. When comparing the monthly precipitations which are considered to exert a profound influence on isotopic compositions of water seeping into a cave, the variation of radon concentration in the drip water was shown the delay of 60–90 days. The radon concentration in the soil water was estimated to be 47.3 kBq m⁻³. Furthermore, the radon concentrations in the percolation water at the cave over a period of 9 to 10 days were calculated to be 9.3–7.7 kBq m⁻³. The estimated radon concentration in the percolation water was almost equivalent with the measurement concentration in the drip water. These results suggest that the radon atoms in the drip water were generated from the soil above the cave. In other words, emanated radon from the soil particles might be the source of radon in the Gyokusendo.

KEY WORDS: radon measurement, Limestone cave, drip water, radon transport, groundwater transport.

I はじめに

人間が受ける自然界からの年間被ばく線量はおおよそ 2.4 mSv とされており、その 50% 以上 (1.26 mSv) が大

気中に存在するラドン (²²²Rn)・トロン (²²⁰Rn) とそれらの子孫核種によることが知られている¹⁾。土壌や岩石中の ²²⁶Ra の α 壊変によって生じたラドンは、土壌粒子から間隙中に散逸 (emanation) し、主に拡散と移流によって移動し、大気中に発散 (exhalation) する²⁾。またその一部は、地下水に溶け込んで移動し、湧水や温泉水に溶存する。これらの各段階のラドン濃度を評価し、ラドンの環境挙動を明らかにすることは、ラドンをトレーサーとして用いた物質輸送とラドンによる公衆被ばくを評価する上で重要である。

一般に、洞窟内の大気中ラドン濃度は高いことから、世界各地で被ばく線量評価や大気交換のトレーサーとして測定されている。例えば、スペインの Altamira Cave の洞内大気中ラドン濃度は、0.19–7.1 kBq m⁻³ (平均値: 3.6 kBq m⁻³) と報告されている³⁾。ポーランドの

*¹ 核融合科学研究所; 岐阜県土岐市下石町 322-6 (〒 509-5292)
National Institute for Fusion Science; 322-6 Oroshi, Toki-shi, Gifu
509-5292, Japan.
E-mail: shiroma.yoshitaka@LHD.nifs.ac.jp

*² 琉球大学; 沖縄県中頭郡西原町千原 1 (〒 903-0213)
University of the Ryukyus; 1 Senbaru, Nishihara, Okinawa 903-
0213, Japan.

*³ 弘前大学; 青森県弘前市本町 66-1 (〒 036-8564)
Hirosaki University; 66-1, Hon-cho, Hirosaki-shi, Aomori 036-
8564, Japan.

*⁴ 神戸薬科大学; 兵庫県神戸市東灘区本山北町 4-19-1 (〒 658-8558)
Kobe Pharmaceutical University; 4-19-1, Motoyamakita-machi,
Higashinada-ku, Kobe-shi, Hyogo 658-8558, Japan.

Radochowska Cave では $0.06\text{--}1.4\text{ kBq m}^{-3}$ (平均値: 0.4 kBq m^{-3}), Neidzwiedzia Cave では $0.10\text{--}4.2\text{ kBq m}^{-3}$ (平均値: 1.3 kBq m^{-3}) と報告されている⁴⁾。日本では、山口県の秋吉洞において1996年11月に 0.01 kBq m^{-3} , 1997年7月に 1.7 kBq m^{-3} , 大正洞において1996年11月に 0.03 kBq m^{-3} , 1997年7月に 3.3 kBq m^{-3} , 影清洞において1997年7月に 3.4 kBq m^{-3} と報告されている⁵⁾。

鍾乳洞は、二酸化炭素を含む弱酸性の雨滴（雨水）が石灰岩の主成分である炭酸カルシウムを溶解することによって形成される。炭酸カルシウムを溶かし込んだ地下水が洞内にしみ出すときに水分が蒸発し、つらら石や石筍などの二次生成物として析出する。日本の南西部に位置する沖縄県は亜熱帯気候に属し、約100万年から50万年前に形成されたサンゴ礁を起源とする石灰岩（琉球石灰岩）⁶⁾ 分布域に多くの鍾乳洞が存在している。その一つである沖縄島南部（南城市）の玉泉洞は、県内最大規模であり、人気の観光施設の一部として一般公開されている。玉泉洞には100万本以上の二次生成物が存在し、本研究で滴下水を採取したストロー（鍾乳管）もその一つである。

これまでに玉泉洞では、洞窟内の大気循環を評価するためのトレーサーとしてラドンを利用した研究が行われている⁷⁾。この研究から玉泉洞内の大気中ラドン濃度は、 $0.010\text{--}3.0\text{ kBq m}^{-3}$ （平均値: 1.5 kBq m^{-3} ）の範囲で変動し、夏季に高く、冬季に低い季節変動を示すことが明らかにされている⁷⁾。しかし、玉泉洞の高い大気中ラドン濃度の起源については推測の域を出ない。洞窟を胚胎する琉球石灰岩の²²⁶Ra濃度と²³⁸U系列濃度は、それぞれ $2\text{--}42\text{ Bq kg}^{-1}$ ⁸⁾ 及び $5\text{--}15\text{ Bq kg}^{-1}$ と低いことが知られている^{9,10)}。一方で、沖縄島中南部の湧水中ラドン濃度は、 $5\text{--}28\text{ Bq L}^{-1}$ であることが報告されており¹¹⁾、この地下水や洞内の壁面・天井から滴る滴下水が洞内へのラドン供給源である可能性が指摘されている⁷⁾。しかしながら、これまでに洞窟内の天井からしみ出す滴下水中ラドン濃度を実測した研究例は無い。

本研究では、この高い洞内大気中ラドンの供給源を定量的に明らかにするため、滴下水中ラドン濃度を測定し、洞内大気中ラドン濃度の供給源としての可能性を検討した。また、滴下水中ラドン濃度の変動と月間降水量の変動との比較から降水が滴下水として洞内に浸出するまでの浸透時間を推定した。さらに、滴下水に含まれるラドンの起源を明らかにするため、簡易的なラドンの挙動モデルから算出した滴下水中ラドン濃度推定値と実測値との比較を行った。

II 手 法

1. 研究対象地域の概要と採水地点

沖縄島は、琉球列島のほぼ中央部に位置する（Fig. 1a）。本研究の対象である玉泉洞は、沖縄島南部の南城市玉城字前川（ $26^{\circ}8'N$, $127^{\circ}45'E$ ）に所在し（Fig. 1b）、「おきなわワールド」という観光地の一部となっている。

沖縄島南部の標高200 m以下の低平な台地は、主に第四紀の琉球層群琉球石灰岩から成り、その基盤を新第三紀から第四紀早期の島尻層群砂岩・泥岩（シルト岩）が構成している¹²⁾。上位の琉球石灰岩が透水性であるのに対し、不整合で接する下位の島尻層群は不透水層で

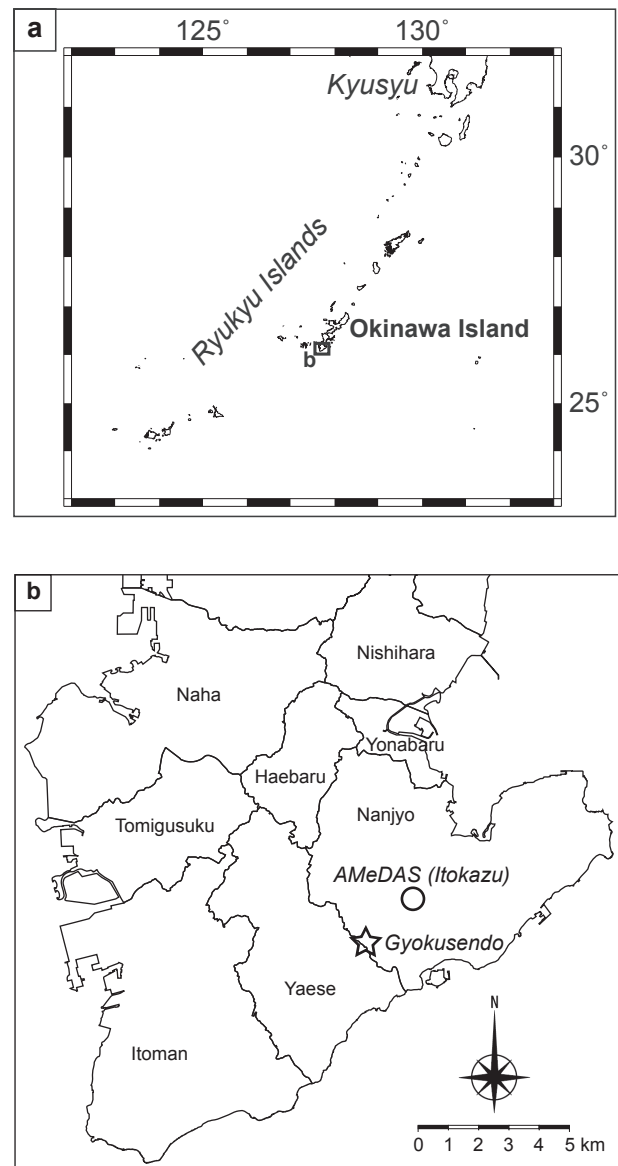


Fig. 1 (a) Map of Okinawa Island subtropical region of Japan. (b) Location of Gyokusendo (the measurement cave).

ある¹³⁾。沖縄島の土壌は、島尻マージ、国頭マージ及びジャーガルの3種に大別される¹⁴⁾が、琉球石灰岩分布域には島尻マージが広く分布する。島尻マージは、弱酸性から弱アルカリ性を呈する赤褐色—暗褐色の土壌であり、土壌分類的には石灰性暗赤色土に分類される¹⁵⁾。

玉泉洞は、厚さ約120 mにおよぶ琉球石灰岩体中に形成され、周辺の地表には島尻マージに相当する褐色土が分布している^{16, 17)}。玉泉洞の総延長は約5,000 m、観光洞として公開されている部分の長さは約890 m、主洞への入り口として高さ約30 mのコンクリート製階段が整備されている。採水地点は、「昇龍の鐘」と名付けられた石筍から奥へ約30 m進んだ非公開の枝洞を選定した(Fig. 2a)。この地点には、滴下速度が著しく大きいストローが存在し、約10分間で10 mLの滴下水を採取することが可能である(Fig. 2b)。

2. 採水

温泉水や飲水の水中ラドン濃度測定については、ラドンが液相から気相へ移行しないよう採水手法が国際的に規格化されている^{18, 19)}。しかし、本研究で対象とする鍾

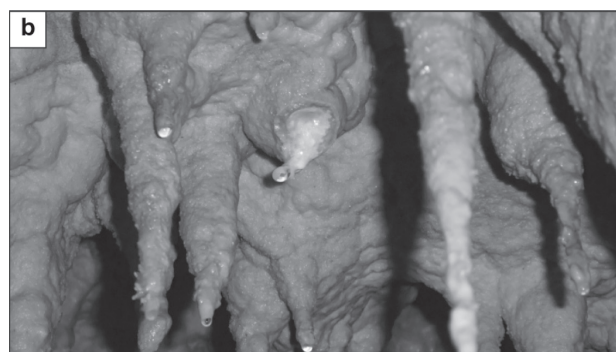
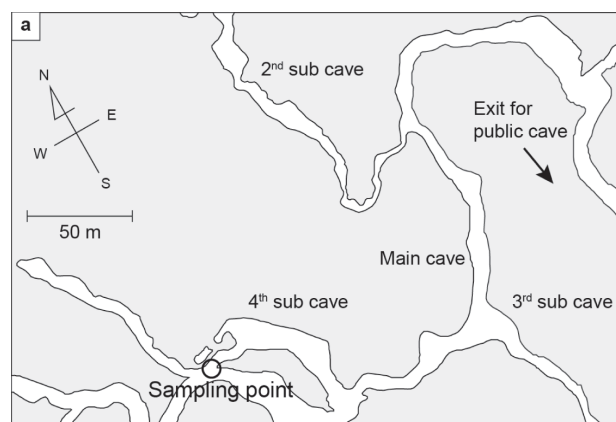


Fig. 2 (a) Location of the sampling point in Gyokusendo. (b) Photograph of the target straw stalactite which has remarkably fast drip speed.

乳洞滴下水の湧出量は少ないため、この規格を満たすことが出来ない。そこで、本研究では2種類の方法で採水を行い、データの比較検討を行った。20 mLの高性能ガラスバイアル (High performance glass vial (20 mL), PerkinElmer, USA)に高引火点ミネラルオイルシンチレーションカクテル (High efficiency mineral oil scintillator, PerkinElmer, USA, 以下ミネラルオイルシンチレータ)を10 mL入れたものを、1回の採水につき3本以上用意した。

第1の方法として、針を外したシリンジを用いてストローから11 mLを採水した。この時、滴下水とともに入り込んだ空気は、シリンジから注出して適宜除去した。その後、針を取り付けて針先をガラスバイアルの底につけ、10 mL注入した。本論では、この方法を『間接採水』とよぶ。

第2の方法として、ガラスバイアルにあらかじめ容量20 mLの目印をつけ、ストローを傷つけないよう注意しながらガラスバイアルとストローを接触させ、滴下水が飛沫しないように注意してこの目印まで直接採水した。この方法を『直接採水』とよぶ。

それぞれの方法で採水後にガラスバイアルの蓋を締め、その時刻を採水時刻とした。採水後、試料水からミネラルオイルシンチレータへラドンを抽出するため、試料を30秒間振とうし、永続平衡に達するまで、暗所で3.5時間以上静置した。2013年5月13日に、間接採水によって3試料を採取した。また、採水方法の検討を行うため、2013年6月20日に間接採水と直接採水によってそれぞれ3試料ずつを採取した。さらに、このときストロー直下の水たまりから、シリンジを用いて1試料を採取した。2013年8月1日から2014年3月25日の期間は、間接採水を2-3試料、直接採水を1試料採取した。これらを含めて2013年5月13日から2014年3月25日の間に約1か月間隔で滴下水を採取した。

3. 測定

水中ラドン濃度の測定には、簡易型液体シンチレーションカウンタ (Triathler, Hidex, Finland, 以下トライアスラー)を用いた。この水中ラドン濃度測定手法についてはすでに報告されている²⁰⁾。トライアスラーは、小型・低価格といった利点を持ち合わせている。一方で、光電子増倍管は1本のみであり、鉛遮蔽もされていないことから汎用型の液体シンチレーションカウンタと比べて、低エネルギー域における、温度・電氣的ノイズの影響が大きい²¹⁾。しかし、後述する手法を用いることで測定時

に2-3 Bq L⁻¹以上のラドン濃度をもつ試料であれば、定量的に評価することが可能である。

試料バイアルをトリアスラーにセットし、0-1023 chのウィンドーを設定し、ラドン及びその子孫核種から放出される α 線と β 線を60分間計数した。試料測定後にバックグラウンド試料を60分間測定した。バックグラウンド試料には、蒸留水に塩化ナトリウム0.1 gを加えたものを用いた²²⁾。

4. 水中ラドン濃度の算出

ラドン濃度 C_R (Bq L⁻¹) は、次式を用いて算出した²²⁾。

$$C_R = (A_0 - B_0) \exp(\lambda T_p) \frac{1}{f_{Rn} V} \quad (1)$$

ここで、 A_0 は測定試料の0-1,000 chの積算計数率(cps)、 B_0 はバックグラウンド試料の0-1,000 chの積算計数率(cps)、 λ はラドンの壊変定数(日⁻¹)、 T_p は採水時刻から測定開始時刻と終了時刻の間時刻までの経過時間(日)、 f_{Rn} はラドン換算係数4.5 cps Bq⁻¹、 V は試料体積(0.01 L)である²²⁾。

A_0 と B_0 は、積分バイアス法²²⁻²⁴⁾を用いて算出した。積分バイアス法の詳細については、過去の論文²²⁻²⁴⁾に記載されているのでここでは、概要のみを記述する。トリアスラーで得られた各チャンネルの計数率(cps)から、50-1,000 ch (A_{50})、75-1,000 ch (A_{75})、100-1,000 ch (A_{100})の積算計数率を求め、チャンネル範囲の下限値である50 ch、75 ch、100 chを横軸に、これに対応する A_{50} 、 A_{75} 、 A_{100} を縦軸にプロットし、最小二乗法から0-1,000 chの積算計数率 A_0 を外挿する。同様に、バックグラウンド試料の測定結果から B_0 を求める。最小検

出ラドン濃度 MDC (Bq L⁻¹) は次の式から算出した²²⁾。

$$MDC = \frac{\frac{2.71}{t_c} + 4.65 \sqrt{\frac{B_0}{t_c}}}{f_{Rn} V} \quad (2)$$

ここで、 t_c は測定時間(s)である。この手法による最小検出ラドン濃度は、2.5 Bq L⁻¹である²²⁾。

III 結果と考察

1. 滴下水中ラドン濃度及び洞内大気中ラドン濃度との関係

測定結果をTable 1に示す。2013年6月20日の間接採水(3試料)の算術平均値±標準偏差は 8.7 ± 0.3 Bq L⁻¹、同様に直接採水(3試料)の算術平均値±標準偏差は 8.5 ± 0.3 Bq L⁻¹で採水方法による濃度の差異は認められなかった。この結果から、本論では間接採水と直接採水の結果を同等として扱う。ただし、間接採水では試料水を正確に量りとることができるが、採水の途中でラドンが気相へ発散している可能性がある。一方で直接採水は、可能な限りラドンの気相への発散を抑えることができる反面、採水量には不確定な要素が含まれる可能性があることに留意が必要である。得られた滴下水中ラドン濃度(34試料)の算術平均値±標準偏差は、 8.7 ± 2.0 Bq L⁻¹ (8.7 ± 2.0 kBq m⁻³)であり、その範囲は、6.4-15 Bq L⁻¹となった。水たまりの水中ラドン濃度(1試料)は、5.0 Bq L⁻¹であり、滴下水中ラドン濃度と比べて3.3-4.1 Bq L⁻¹低い値となった。

本研究のデータは、滴下速度が速い一つのスローから得られたものであるが、この滴下水からのラドンの供給によって、最大で約3.0 kBq m⁻³に達する玉泉洞の大気中ラドン濃度⁷⁾を満たすことができるのかを考察す

Table 1 Result of radon concentration in drip water.

Date	Radon concentration in dropping water (Bq L ⁻¹)						Standard deviation
	Indirect sampling			Direct sampling			
	1st	2nd	3rd	1st	2nd	3rd	
2013/5/13	6.8	7.0	6.4	—	—	—	6.7 ± 0.3
2013/6/20	8.6	9.1	8.4	8.4	8.3	8.8	8.6 ± 0.3
2013/8/1	9.6	13	11	15	—	—	12 ± 2.3
2013/9/26	11	9.3	—	14	—	—	11 ± 2.2
2013/10/31	9.6	9.0	—	9.4	—	—	9.3 ± 0.3
2013/12/4	7.1	8.3	—	6.8	—	—	7.4 ± 0.8
2013/12/30	7.4	8.3	—	7.2	—	—	7.6 ± 0.6
2014/1/27	8.2	8.0	—	7.0	—	—	7.7 ± 0.6
2014/2/27	8.7	8.7	—	7.7	—	—	8.3 ± 0.5
2014/3/25	7.4	7.7	—	6.4	—	—	7.2 ± 0.7
Total (n = 34)							8.7 ± 2.0

る。玉泉洞では、洞外（地上）の気温に対して洞内（地下）の気温が低い夏季に洞内の大気が滞留し、洞内大気中ラドン濃度が高くなる⁷⁾。逆に、洞外の気温が洞内の気温より低くなる冬季には、大気混合が生じて洞内大気中ラドン濃度は低くなる⁷⁾。もし、洞内外の大気が全く混合しないと仮定すると、十分な時間が経過すれば洞内大気中ラドンと滴下水中ラドンが平衡状態となる。気-液相間のラドンが平衡状態にあるときの水中ラドン濃度と気相中ラドン濃度との間には次の式が成り立つ。

$$E_w = K_T E_a \quad (3)$$

ここで、 E_w は水中ラドン濃度 (kBq m^{-3})、 K_T はラドン分配係数、 E_a は気相中ラドン濃度 (kBq m^{-3}) である。ラドン分配係数は次式から求めることができる²⁵⁾。

$$K_T = \frac{9.12}{17.0 + T} \quad (4)$$

ここで、 T は温度 ($^{\circ}\text{C}$) である。玉泉洞内の湿度は年間を通してほぼ 100% であり、洞内気温の変化は、洞外の温度変化と比べて小さい⁷⁾。本研究では、 T を実測値（水温）の平均値 23.5°C とした。滴下水ラドン濃度の算術平均値と範囲を用いて (3) 式から算出した洞内大気中ラドン濃度の平衡値は、それぞれ 39 kBq m^{-3} 、 $28\text{--}66 \text{ kBq m}^{-3}$ となり、玉泉洞の大気中ラドン濃度の最大値 (3.0 kBq m^{-3})⁷⁾ を十分に満たす。

これらの結果から、玉泉洞の滴下水には、定常的にラドンが含まれており、この滴下水から洞内大気へラドンが移行していることが明らかになった。つまり、滴下水から発散したラドンが、玉泉洞内の高い濃度をもつ大気

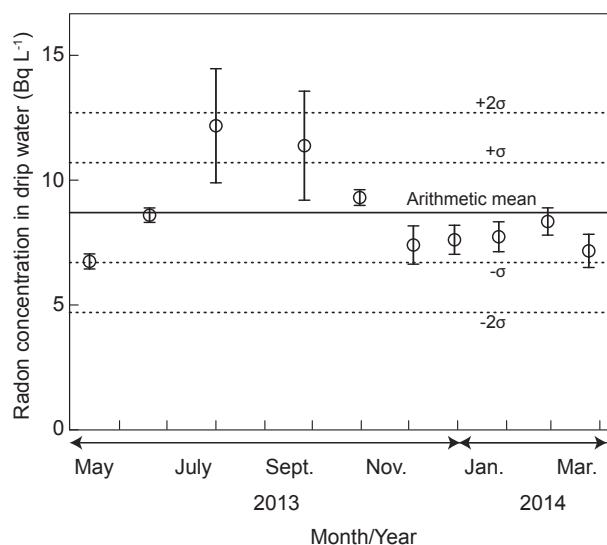


Fig. 3 Variation of radon concentration in the drip water.

中ラドンの起源の一つであることが強く示唆された。しかし、玉泉洞の大気中ラドン濃度の実測値の最大値⁷⁾は、平衡値の 5–11% 程度であり、両者が一致しているとはいえない。これは、滴下水からのラドン供給量に対して玉泉洞の容積が非常に大きいこと、気-液相間の平衡状態が常に成立しているとは限らないこと、ラドン濃度の低い洞外大気の流入によって洞内ラドン濃度が希釈されていることなどが原因だと推定される。

2. 滴下水中ラドン濃度の時間変動とその要因

滴下水中ラドン濃度は、2013 年 5 月から 8 月にかけて上昇し、8 月から 12 月にかけて緩やかに減少した (Fig. 3)。その後はほぼ一定となり、算術平均値と同程度の値を示した。このような変動要因を明らかにするため、玉泉洞から見て直近となる AMeDAS (Automated Meteorological Data Acquisition System) 系数 (Fig. 1b) の降水量データ²⁶⁾と滴下水中ラドン濃度との比較を行った。

2013 年 2 月から 2014 年 3 月までの月間降水量を Fig. 4 に示す。降水量は、2013 年 2 月から 4 月にかけて緩やかに増加し、2013 年 5 月に最大値 538 mm となった。その後は、2013 年 7 月の最小値 2.5 mm を除けば、2013 年 6 月から 2014 年 1 月の期間は $50\text{--}150 \text{ mm}$ の範囲で推移した。2014 年 2 月と 3 月は、 200 mm を超える雨量が観測されている。ラドン濃度の変動と降水量の変動を比較すると、2013 年 5 月から 8 月にかけてのラドン濃度

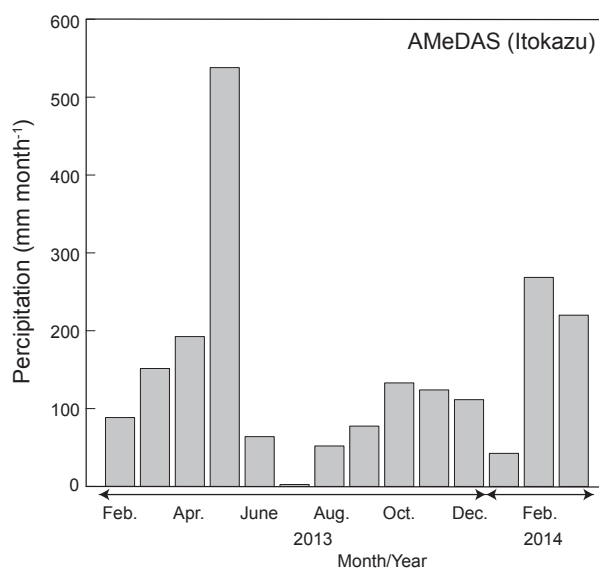


Fig. 4 Monthly precipitation at AMeDAS (Itokazu) from February 2013 to March 2014.²⁶⁾

の上昇傾向と同年2月から5月までの降水量の上昇傾向が一致する。また、2013年8月から12月にかけてのラドン濃度の減少傾向と同年6月から9月にかけての低い降水量との間に相関がみられる。さらに、2013年12月から2014年3月にかけてほぼ横ばいで推移するラドン濃度と2013年10月から2014年1月までの100 mm程度の降水量が類似する。特に、2014年3月のやや低いラドン濃度と2014年1月の低い降水量が一致する。以上から、約1年間の観測結果からではあるが、ラドン濃度は降水量の変化に対して2か月から3か月程度遅れて変動していると推測される。このことから、降雨が60日から90日かけて玉泉洞上の土壌と琉球石灰岩中を浸透し、滴下水として洞内に供給されていると示唆される。

地下水中ラドン濃度は、地層ごとに固有の ^{226}Ra 量を反映する²⁷⁾。また、土壌水の浸透量は、多量の降雨によって増加する²⁸⁾。さらに流速は、流量に比例し、流路の断面積に反比例する。上述のように、琉球石灰岩の ^{226}Ra ・ ^{238}U 系列濃度が低い⁸⁻¹⁰⁾ため、琉球石灰岩から地下水へのラドンの供給がなく、流路の断面積に大きな変化がないと仮定すると、滴下水中ラドン濃度は、主に土壌の ^{226}Ra 量に規定される土壌間隙水中ラドン濃度と降水量に依存する琉球石灰岩体中の地下水滞留時間に支配される。降水量が大きい場合には、土壌への浸透量が増加することで地下水流速が速くなり、琉球石灰岩体中の地下水滞留時間は短くなる。このため、半減期によるラドンの減衰の影響が減少し、滴下水中ラドン濃度は高くなる。一方、降水量が小さいと土壌への浸透量が減少し、地下水流速が遅くなるため、琉球石灰岩体中の地下水滞留時間は長くなる。このため、ラドンの減衰の影響が大きくなり、滴下水中ラドン濃度は低くなると考えられる。つまり、降水量の増減に伴う滴下水中ラドン濃度の変化は、地下水の琉球石灰岩体中の浸透時間に起因すると推定される。

3. 滴下水中ラドン濃度の推定値と実測値との比較

玉泉洞の垂直断面の概念図をFig. 5に示す。図中のAは、土壌と琉球石灰岩との境界を表す。Bは、ストローであり、滴下水がしみ出す点を表す。降雨は鍾乳洞上の土壌と石灰岩体を経て浸透し、やがて鍾乳洞内の天井から滴下水としてしみ出す。この過程でラドンは、降雨にはほとんど含まれず、おもに土壌から供給される。地下水が土壌中を浸透する時間が十分に長ければ、土壌中の気相-液相間のラドン濃度は平衡状態に達し、土壌種によって固有の値となる。これを土壌最下部(地点A)に

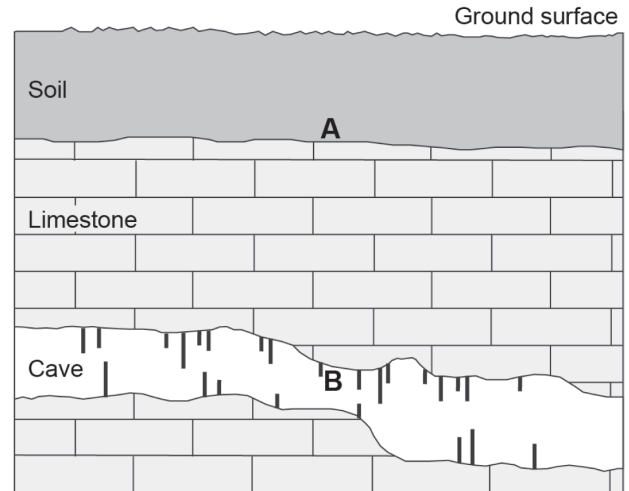


Fig. 5 Schematic diagram of cave profile for Gyokusendo. The A is the boundary between soil and limestone. The B is the target straw stalactite.

おける地下水中ラドン濃度と仮定する。

UNSCEAR 2000 (United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation 2000)によれば、土壌間隙気体中ラドン濃度 E_g (Bq m^{-3})は、次式から算出できる²⁹⁾。

$$E_g = C_{\text{Ra}} f \rho_s \varepsilon^{-1} (1 - \varepsilon) [m(K_T - 1) + 1]^{-1} \quad (5)$$

ここで、 C_{Ra} は土壌中 ^{226}Ra 濃度 (Bq kg^{-1})、 f はラドン散逸係数、 ρ_s は固体粒子密度 (kg m^{-3})、 ε は間隙率、 m は水分飽和度である。本研究では既報に基づき、沖縄島の代表的土壌のラドン散逸係数を0.40、土壌中 ^{226}Ra 濃度を 106 Bq kg^{-1} dry、固体粒子密度を $2,697 \text{ kg m}^{-3}$ 及び間隙率を0.67とした³⁰⁾。水分飽和度は、UNSCEAR 2000の代表値である0.95²⁹⁾を使用した。ラドン分配係数 K_T は(4)式から算出した²⁵⁾。土壌中の温度は、上述の玉泉洞の水温と同じ 23.5°C を使用した。さらに、土壌間隙水中のラドン濃度 E_w (Bq m^{-3})は、(3)式から求めた。これを地点A (Fig. 5)における地下水中ラドン濃度とする。

次に、琉球石灰岩からのラドンの供給がないと仮定し、琉球石灰岩体中の地下水滞留時間によって地下水中のラドンが減衰すると考えた。地点B (Fig. 5)からしみ出す滴下水中ラドン濃度 E_d は、次の式を用いて算出できる。

$$E_d = E_w \exp(-\lambda t) \quad (6)$$

ここで、 t は琉球石灰岩体中の地下水の滞留時間(日)

である。

以上より、滴下水中ラドン濃度の推定値と玉泉洞内滴下水中ラドン濃度の実測値を比較した。(5)式から算出した土壌間隙気相中のラドン濃度は、 210 kBq m^{-3} であった。この値を用いて(3)式から算出した土壌間隙水中のラドン濃度は 47 kBq m^{-3} となった。さらに、琉球石灰岩体中の地下水の滞留時間を1日から100日間(約3か月)と仮定して(6)式から算出した滴下水中ラドン濃度推定値の範囲は、 $39\text{--}0.6 \times 10^6 \text{ kBq m}^{-3}$ であった。特に、浸透時間を9日から10日としたときの濃度は $9.3\text{--}7.7 \text{ kBq m}^{-3}$ であり、滴下水中ラドン濃度の実測値 $8.7 \pm 2.0 \text{ kBq m}^{-3}$ とおおむね一致した。

玉泉洞上の琉球石灰岩の厚さを入り口のコンクリート階段の高さを同じ30 m、琉球石灰岩体中の滞留時間を9日から10日とすると、採水地点上の琉球石灰岩の透水係数は $3.9 \times 10^{-5}\text{--}3.5 \times 10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ となる。この値は、沖縄島南部の琉球石灰岩の透水係数 $10^{-4}\text{--}10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ ³¹⁾及び沖縄県の典型的な琉球石灰岩の透水係数 $10^{-3}\text{--}10^{-5} \text{ m s}^{-1}$ ³²⁾の範囲に収まる。さらに、上述の結果から、土壌と琉球石灰岩の滞留時間を60日から90日、琉球石灰岩の滞留時間を9日から10日間と仮定すると、玉泉洞上の土壌における地下水の滞留時間は50日から80日となる。この滞留時間と沖縄島南部の島尻マージの透水係数 $10^{-6}\text{--}10^{-7} \text{ m s}^{-1}$ ³¹⁾を用いて玉泉洞上の土壌の厚さを算出すると、その層厚は0.7–4.3 mとなる。この結果は、一般的な島尻マージの層厚0.3–1.5 m³³⁾よりもやや厚めであるが、玉泉洞周辺に所在する武芸洞・サキタリ洞遺跡の土壌は3 m以上の厚さ^{16,17)}を有しており、本研究の結果はこれと矛盾しない。

以上のことから、玉泉洞の滴下水に含まれるラドンは、玉泉洞上の土壌からの散逸ラドンであり、地下水は土壌中を50日から80日間、琉球石灰岩中を9日から10日間かけて浸透し、洞内に流入していることが強く示唆された。

本研究は洞内1地点の観測結果から得られた知見である。今後は、他のストローからも採水を行うことでより詳細な検討を行いたい。

IV 結 論

高い大気中ラドン濃度を呈することが報告されている沖縄島の玉泉洞においてその洞内大気中ラドンの起源を明らかにすることを目的として、天井から滲み出す滴下水のラドン濃度を約1年間にわたって断続的に測定した。さらに、簡易的なラドンの挙動モデルから算出した

滴下水中ラドン濃度の推定値と実測値との比較を行った。それらの結果から以下の知見が得られた。

- (1) 玉泉洞の滴下水中ラドン濃度は、 $6.4\text{--}15 \text{ Bq L}^{-1}$ の範囲であり、算術平均値(\pm 標準偏差)は、 $8.7 \pm 2.0 \text{ Bq L}^{-1}$ であった。この濃度レベルから、滴下水が洞内大気へのラドンの供給源の一つとして有力であることが強く示唆された。
- (2) 滴下水中ラドン濃度と降水量の間に相関が認められ、降雨は土壌と琉球石灰岩中を60日から90日間浸透して滴下水として洞内に供給されていると示唆された。
- (3) 簡易的なラドンの挙動モデルから、地下水は琉球石灰岩中を9日から10日間かけて浸透し、玉泉洞上の土壌を起源とするラドンが洞内ラドン濃度に影響していることが示唆された。

謝 辞

本研究は、JSPS 科研費 12J04464 の助成を受けて行われた。玉泉洞における滴下水の採取については、(株)南都の協力を得た。記して謝意を表す。

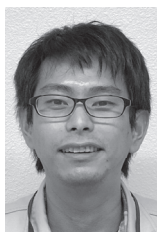
参 考 文 献

- 1) UNSCEAR, United Nation Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation; Annex B: exposures of the public and workers from various sources of radiation. pp. 281–463 (2008), United Nations, New York.
- 2) W. W. NAZAROFF; Radon transport from soil to air, *Rev. Geophys.*, **30**, 137–160 (1992).
- 3) J. LARIO, S. SÁNCHEZ-MORAL, J. C. CAÑAVÉRAS, S. CUEZVA and V. SOLER; Radon continuous monitoring in Altamira Cave (northern Spain) to assess user's annual effective dose, *J. Environ. Radioact.*, **80**, 161–174 (2005).
- 4) T. A. PRZYLIBSKI; Radon concentration changes in the air of two caves in Poland, *J. Environ. Radioact.*, **45**, 81–94 (1999).
- 5) 藤元憲三, 飯本武志, 古川雅英, 床次眞司; 屋内・外のラドン等による被曝線量調査—居住環境中のラドン濃度の調査—, 放射能調査研究報告書(平成9年度), NIRS-R-35, pp. 28–31 (1998).
- 6) Y. IRYU, H. MATSUDA, H. MACHIYAMA, W. E. PILLER, T. M. QUINN and M. MUTTI; Introductory perspective on the COREF Project, *Island Arc*, **15**, 393–406 (2006).
- 7) A. TANAHARA, H. TAIRA and M. TAKEMURA; Radon distribution and ventilation of a limestone cave on

- Okinawa, *Geochem. J.*, **31**, 49–56 (1997).
- 8) 安里博子, 棚原 朗, 平良初男; 南西諸島産鍾乳石の成長速度, 琉球大学理学部紀要, **58**, 13–24 (1994).
 - 9) 益田 和, 向 真希, 外間智規, 本村 大, 謝花達磨, 床次真司, 古川雅英; 沖縄県読谷村の空間 γ 線線量率と地質との関係, *Radioisotopes*, **58**, 187–193 (2009).
 - 10) M. FURUKAWA, S. KINA, M. SHIROMA, Y. SHIROMA, N. MASUDA, D. MOTOMURA, H. HIRAOKA, S. FUJIOKA, T. KAWAKAMI, Y. YASUDA, K. FUKAHORI, M. JYUNICHO, S. ISHIKAWA, T. OHOMOTO, R. SHINGAKI, N. AKATA, W. ZHUO and S. TOKONAMI; Terrestrial gamma radiation dose rate in Ryukyu Islands, subtropical region of Japan, *Radiat. Prot. Dosim.*, **167**, 223–227 (2015).
 - 11) 友寄喜貴, 棚原 朗, 武村盛久, 渡口 輝, 平良初男; 沖縄本島における湧水中の天然放射性核種について. 地球化学, **31**, 227–233 (1997).
 - 12) 木崎甲子郎編著; “琉球弧の地質誌”, pp. 99–110 (1985), 沖縄タイムス社, 沖縄.
 - 13) 兼子尚知, 氏家 宏; 糸満及び久高島地域の地質, 地域地質研究報告 (5万分の1地質図幅), 47p (2006), 地質調査総合センター, 茨木.
 - 14) 浜崎忠雄; 南西諸島の母材と土壌, ペドロジスト, **23**, 43–57 (1979).
 - 15) 小原 洋, 大倉利明, 高田裕介, 神山和則, 前島勇治, 浜崎忠雄; 包括的土壌分類第1次試案, 農業環境技術研究所報告, **29**, 1–73 (2011).
 - 16) 山崎真治, 藤田祐樹, 西秋良宏; 平成19・20年度南城市武芸洞遺跡発掘調査の概要, 沖縄県立博物館・美術館, 博物館紀要, **2**, 5–18 (2009).
 - 17) 沖縄県立博物館・美術館; 沖縄県南城市サキタリ洞遺跡発掘調査概要報告書I, 20p (2014), 沖縄県立博物館・美術館, 沖縄.
 - 18) 環境省自然環境局; 鉱泉分析法指針, 環境省自然環境局ホームページ, Available at: <https://www.env.go.jp/council/12nature/y123-14/mat04.pdf>, 閲覧2016年10月4日.
 - 19) American Society for Testing and Materials; Standard Test Method for Radon in Drinking Water, ASTM D 5072-09 (1999).
 - 20) 堀内公子, 庭山直子, 中山亜矢子; 簡易型測定器 (Triathler) を用いた水中ラドン濃度の測定法について, 大妻女子大学紀要, 社会情報学研究, **15**, 227–233 (2006).
 - 21) M. F. L'ANNUNZIATA; Liquid scintillation analysis: principles and practice, M. F. L'ANNUNZIATA (ed.), “Handbook of Radioactivity Analysis (2nd ed.)”, pp. 355–360 (2003), Academic Press, San Diego.
 - 22) R. TANAKA, S. ARAKI, Y. YASUOKA, T. MUKAI, S. OHNUMA, T. ISHIKAWA, N. FUKUHORI and T. SANADA; A simplified method for improved determination of radon concentration in environmental water samples, *Radioisotopes*, **62**, 423–438 (2013).
 - 23) Y. YASUOKA, T. ISHII, Y. KATAOKA, T. KUBO, H. SUDA, S. TOKONAMI, T. ISHIKAWA and M. SHINOGI; Determination of radon concentration in water using liquid scintillation counter, *Radioisotopes*, **53**, 123–131 (2004).
 - 24) Y. YASUOKA, T. ISHIKAWA, N. FUKUHORI and S. TOKONAMI; Comparison of simplified liquid scintillation counter (Triathler) with conventional liquid scintillation counter in the measurement of radon concentration in water, *J. Hot Spring Sci.*, **59**, 11–21 (2009).
 - 25) 野口正安; 特殊な利用法 (2) ラドンの測定, *Radioisotopes*, **24**, 745–748 (1975).
 - 26) 気象庁; 過去の気象データ検索. Available at: www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/index.php. 閲覧2016年10月4日.
 - 27) 木村重彦; 水中のラドンの測定とその応用 (I), *Radioisotopes*, **27**, 740–746 (1978).
 - 28) 長谷川周一; 土壌浸透水調査法 (水収支法), 農業環境技術研究所 “水環境保全のための農業環境モニタリングマニュアル改訂版”, pp. 103–106, 農業環境技術研究所ホームページ, Available at: <http://www.niaes.affrc.go.jp/techdoc/monitoring/>. 閲覧2016年11月10日.
 - 29) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation; Sources and effects of ionizing radiation UNSCEAR 2000 report to the general assembly, with scientific annexes Volume I sources, Annex B: exposures from natural radiation sources, United nations, New York, pp. 97–108 (2000).
 - 30) Y. SHIROMA, M. HOSODA, T. ISHIKAWA, S. K. SAHOO, S. TOKONAMI and M. FURUKAWA; Estimation of radon emanation coefficient for representative soils in Okinawa Japan, *Radiat. Prot. Dosim.*, **167**, 147–150 (2015).
 - 31) 宜保清一, 宮城調勝; 島尻マージ地帯の透水性について, 琉球大学農学部学術報告, **24**, 449–455 (1977).
 - 32) 古堅勝也, 宮城俊彦, 池間修宏; 沖縄県における地下水中のトリクロロエチレン等の現状について, 沖

縄県公害衛生研究所報, **26**, 113–118 (1992).

- 33) 翁長謙良, 宜保清一: 日本の特殊土壌 (その 11・最終講), 農業土木学会誌, **52**, 517–524 (1984).



城間 吉貴 (しろま よしたか)

琉球大学大学院理工学研究科修了, 博士 (学術)。核融合科学研究所 COE 研究員。専門分野は, 環境同位体地球科学。ラドンの動態研究に取り組んでいる。