土壌中のラドン-222拡散：主要な研究とウラン廃棄物への適用および課題

佐々木 朋三^{1,*}, 軍司 康義², 飯田 孝夫³

Radon Diffusion Coefficients for Soils: Previous Studies and their Application to Uranium-Bearing Wastes

Tomozo SASAKI^{1,*}, Yasuyoshi GUNJI² and Takao IIDA³

¹Radioactive Waste Management Funding and Research Center, Toranomon, Minato-ku, Tokyo 105-0001, Japan

²Nuclear Fuel Industries, Ltd., 3135-41 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki 319-1196, Japan

³Nagoya University, Fro-cho, Chikusa-ku, Nagoya 464-8603, Japan

(Received September 3, 2007 and accepted in revised form November 8, 2007)

Radon diffusion in soils has been studied over the years by many researchers. The application of such studies to the evaluation of radiation exposure caused by radon from uranium-bearing wastes disposed in a shallow land site is very important. The present paper surveyed closely relevant studies and elucidated the inherent nature of radon diffusion in terms of the definition of radon diffusion coefficients. Then, basic features of measurement methods for determining radon diffusion coefficients in soils were explained. Furthermore, theoretical aspects of radon diffusion in soils were discussed in terms of microscopic radon diffusion in soils and large-scale radon diffusion through cover soil defects for uranium mill tailings. Finally, in order to apply the radon diffusion studies to uranium-bearing waste disposal in shallow land sites, new challenges were presented: elucidation of radon diffusion in uranium-bearing wastes and cover-soil cracks, and demonstration of the validity of applying only radon diffusion in the evaluation of radiation exposure caused by radon, which would come through Japanese cover soils for uranium-bearing waste disposal.

KEYWORDS: uranium-bearing wastes, radon, radon diffusion, exhalation, emanation, diffusion, radon diffusion coefficients, uranium-bearing waste disposal

I. はじめに

土壌中のラドン移行現象は、移流と拡散に基づくという考え方で扱われることが多い。ラドンの同位体の中で、ラドン-222は半減期が3.8日と長く、ウラン鉱滓等を浅地中処分したときに放射線被ばくが問題となるため、特に重要な研究対象核種となっている。本報では、土壌中のラドン-222(以下ラドン)の拡散に焦点を絞り、その理由について説明する。放射線被ばくの安全基準は年間被ばく線量で決められている。この基準と比較すべき地表面からのラドン散逸は、移流や拡散の結果生じる。したがって、ラドン散逸量は地表面の大気状態や土壌の水分や温度に依存しており、短い時間単位でも変化し得る。すなわち、時間、

日、週、月および季節の単位で変化する。しかし、1年間の平均ラドン散逸量は、第V章で後述するように、アメリカでの実験では拡散が支配的であった¹⁻³⁾。このことは、処分されたウラン廃棄物中のラドンソースタームとラドン拡散特性によって、1年間における地表面からのラドン散逸量が決まることを意味している。ラドンソースタームは、処分に際して申請書に記載されるものであるから、既知の量である。したがって、ラドンの拡散特性がわかれば、ラドンによる被ばく線量評価に必要な地表面からのラドン散逸量を求めることができる。本報は、ウラン廃棄物処分を念頭に置いたときのラドン拡散特性を把握するための研究について総説することがテーマである。そのため、1年未満の単位で変化するラドンの散逸は本報のテーマではない。

本報では、ラドン拡散について、できるだけテーマごとにまとめて記載するよう工夫し、次に示す順で説明を展開する。

¹ 勘原子力環境整備促進・資金管理センター

² 原子燃料工業㈱

³ 名古屋大学

* Corresponding author, E-mail: tosasaki@rwmc.or.jp

(1) 土壌中のラドン拡散研究

過去に行われた研究の概要を紹介する。

(2) 拡散係数の定義

ラドン拡散現象を拡散方程式で扱う際に、研究によっては拡散係数の定義が違っていることを紹介する。定義が違う理由は、土壌中のラドン拡散現象の捉え方が違うことに起因しており、このことを十分理解しておかないと、思わぬ間違いを生じる可能性がある。

(3) 土壌中ラドン拡散係数測定方法

特に過渡測定法が適している理由と、水分飽和度が高いときに測定が困難であることを説明する。

(4) 土壌中ラドン拡散理論

主として、Rogers らの研究⁴⁻⁷⁾を紹介する。

(5) ウラン廃棄物処分への適用と課題

これまでの研究のウラン廃棄物処分への適用と、その際の課題を提示する。

以上の説明に当たって、明確にしなければならない用語がある。英語で示すと、*exhalation* と *emanation* である。この日本語訳には、両者ともに「散逸」という言葉が使われる。例えば、散逸率(*exhalation rate*)と散逸能(*emanation power*)である。「率」や「能」という接尾語が付くと、両者は明確に区別できるけれど、接尾語がないと混乱を招くので、本報では *exhalation* の場合に「散逸」を用い、*emanation* の場合に「エマネーション」を用いることとする。両者の違いは、狭義の意味では、*exhalation* は地表面からのラドン散逸を指し、*emanation* は物質粒子中から粒子間隙中へのラドン移行を指す。本報では、*emanation* の物質粒子に相当するものは、ウラン廃棄物を構成する粒子である。

II. 土壌中のラドン拡散研究

ラドンの拡散に影響を及ぼす土壌構成要素は、間隙を取り巻く固体部分、間隙中の水分および空気である。これらの要素が土壌中ラドン拡散に及ぼす影響に関する主要な研究を以下に紹介する。

常温での固体中ラドン拡散係数は非常に小さい。固体中のラドン拡散係数はいくつかの研究例があり、Tanner⁸⁾のレビューに引用されている。それによると、固体結晶中での常温におけるラドン拡散係数は $10^{-24} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ より小さいといえる。ラドンの半減期は3.8日なので、固体中では拡散によるラドンの移行は考えなくてもよい。

水中でのラドン拡散係数は、Ramsted⁹⁾の報告値 $1.13 \times 10^{-9} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ がよく引用される。この値は1919年に報告されたものである。この文献は、測定方法等の説明に詳細さを欠くため、緻密な検証が困難であり、また、どの程度の誤差があるのか絶対評価がなされていないため、再測定されてもよいのではないと思われる。

空気中でのラドン拡散係数は、Hirst ら¹⁰⁾によって $1.2 \times 10^{-5} \text{ m}^2\text{s}^{-1}$ と報告されている。この報告も1939年と古

い。筆者らはラドン拡散係数の過渡測定装置を開発し、空気中のラドン拡散を測定した。Hirst らの拡散係数を Fick の法則に適用して求めた理論値と実測値は、第1図に示すようによく一致することを確認した。

水中と空気中のラドン拡散係数がわかっても、土壌のような多孔質媒体中のラドンの拡散現象を研究するためには不十分である。土壌間隙に於いて、空気中のラドンは、間隙を取り巻く固体表面および間隙中の水との分配平衡が生じる。固体表面との分配平衡は、1989年に Schery ら¹¹⁾が土壌表面に対して広範囲な測定を実施した。土壌表面に対するラドンの吸着は温度と水分に影響される。水分飽和度が10%を越えていれば固体表面へのラドン吸着は少ないけれど、乾燥状態では常温(15~20℃)でも吸着量が多くなる。このことは、筆者らが実施したラドン散逸割合(*emanation coefficient*)測定実験でも観測された¹²⁾。したがって、土壌の水分飽和度が低い状態で、過渡測定法によってラドンの拡散係数を求めるときは、ラドン測定値の立ち上がり部分が固相への吸着の影響を受けるかもしれない。液相との分配平衡は、1911年に Ramsted¹³⁾が有機液体に対して測定を行った。その測定結果では、グリセリン中のラドン濃度が低い。したがって、グリセリンは拡散係数測定実験をする際に、実験装置に使用するラドンのシール材に適している。同じ年に、Boyle¹⁴⁾は水に対する分配係数の温度依存性を調べた。20℃で0.245という値であり、拡散の観点から水に溶ける量は無視できない。

ミクロ的にみると、以上が土壌中のラドン拡散に影響を及ぼす因子である。しかし、これらの因子だけでラドンの拡散現象を理論式で表すことはできない。なぜなら、IV章で後述するように、土壌中では Fick の法則が成立する保証がないからである。それにも関わらず、Fick の法則が成立するという前提の下に、ラドンの拡散係数を導こうとする研究が行われている。Rogers らに拠れば⁴⁾、多くの研究者は土壌中の拡散係数 D を、空隙(間隙の内、空気の占める割合)のべき乗に比例した実験式で表そうと試み

第1図 空気中ラドン拡散係数：実測値と Hirst らの拡散係数による理論計算との比較

ていた。それに対して、Rogers らは1,600回以上の測定実験を行って、水分飽和度と間隙率をパラメータとする拡散係数の実験式を導いた⁵⁾。拡散係数を導く理論式は、いまだ開発されていない。土壌間隙中の水の空間分布を反映するのが難しいことと、間隙の幾何学的構造を反映することが難しいためである。間隙の幾何学的構造とは、くねり(tortuosity)や極端な狹隘を指す。

III. 拡散係数の定義

土壌中のラドン拡散は、Fick の法則に従うことを前提として論じられることが多い。しかし、自由空間での拡散ではないので、必ずしも Fick の法則に従うという保証はない。間隙内が途中で閉じていればラドンの移行はそこでストップする。ミクロの開いた間隙内での空気相中のラドン移行は、Fick の法則に従うかも知れないけれど、間隙内の水相も含めて土壌全体をマクロ的に観察すると、はたして Fick の法則が成立するかどうかは断言できない。これまでの土壌中のラドン拡散に関する研究は、Fick の法則に従うとして、いきなり拡散方程式から議論が展開されている例が多い。その際に、間隙中でのラドンの移行に関する考え方、すなわち前提条件の説明が十分でないため、拡散係数の定義に違いがあることを見落としがちになる。

ラドンの拡散係数は、間隙内の水中におけるラドンの拡散が土壌全体でのラドン拡散に寄与すると考えるかどうかで異なってくる。本来、ラドンの拡散現象は一義的であり、ラドンの拡散係数が異なるということはあるはずである。この話は混みいっているので整理する必要がある。拡散方程式はマスバランスを表す式であり、本来ラドンの拡散係数はマスバランスで考えなければならない。しかし、フィックの法則が濃度勾配という概念から説明されることが多いため、拡散係数は濃度の測定値から求めるという理解をしている技術者が多いものと思われる。ラドンの濃度は、直接測定できる量ではない。直接測定できるのは測定器に到達した放射線の量である。ラドンからの α 線に限定すると、検出体系によって決まる検出効率を用いて逆算することにより、測定器に近接した空間中のラドンの総量がわかる。濃度はこの空間の体積でラドンの総量を割り算して求めることができるけれど、それは通過してきた土壌中のラドン濃度ではない。このことは、拡散係数を実験によって求める場合は、ラドンの濃度から求めるのではなく、マスバランスの基本式を求めることからスタートしなければならないことを意味している。それにも関わらず、ほとんどの論文は測定値の整理の仕方に言及していない。その結果、測定された拡散係数の定義がどの領域でのマスバランスに基づいているのか示されておらず、どのように適用してよいのかわからなくなっていることが多い。そのため、本報はマスバランスから定義された2つの拡散係数の意味を再確認することから始める。1つはバルク拡散係数で、ラドンが拡散する二媒体間(例：土壌と大気

間、ウランのミルテーリングと覆土間)のマスバランスを表すための拡散係数である。他の1つは、間隙と水分の分布が一樣な単一媒体中(例：土壌)でのラドンのマスバランスを表すための拡散係数である。後者の拡散係数は文献によって呼び方が一定していない。本報では、NUREG/CR-3533⁶⁾に倣って、単に拡散係数と呼ぶことにする。両者は、本質的に同じものでなければならないけれど、いずれのマスバランスを中心に考えるかによって、拡散係数からラドンフラックスを求めるときの計算の方法が異なってくる。これが、ラドン拡散係数の定義が統一されていない原因の1つになっている。

話しをもとに戻して、水中での拡散が、土壌全体での拡散に寄与すると考えるかどうか、論文例を紹介する。Nazaroff¹⁵⁾は、空隙中のラドン拡散だけを考慮した拡散方程式を示している。エマネーションで土壌粒子から空隙に出てきたラドンは、水中に捕捉され、その後短期間で空気相と分配平衡に至るという前提の式であると解釈できる。この考え方は、単一媒体中では問題ないけれど、実際に測定値から直接求めることができるのはバルク拡散係数であって、この拡散係数との関係が説明されていない。一方、Rogers ら⁶⁾は、土壌全体の拡散には空隙中のラドンと水中のラドンと両方の拡散が寄与すると考えて、拡散方程式を示している。このため、拡散係数とバルク拡散係数との関係が明確で、拡散係数はバルク拡散係数を間隙率で割り算すれば求まる。さらに、Cohen ら¹⁶⁾は空隙に水がない状態でのラドン拡散係数を実験で求めることからスタートした。水が存在する場合には、空隙だけがラドンの拡散に寄与するとしている点は、Nazaroff に近いけれど、水に溶けているラドンの割合だけ水の体積を割り引いているため、感覚的には Nazaroff と Rogers らの中間の考え方のような印象を与える。端的に表現すれば、Rogers らがバルク拡散係数を算出するために、拡散係数に間隙率を乗じていたのに対して、Nazaroff と Cohen らは空隙率を乗じるようにしている。Nazaroff と Cohen らの方法は、水分飽和度が高くなったときに難点がある。二媒体間の拡散問題を解くとき、バルク拡散係数が必要になる。彼らのように、拡散係数に空隙率を乗じてバルク拡散係数を求めるような方法では単なる比例計算になって、水分飽和度が高いときの拡散係数を過大評価してしまう。すなわち、2領域間のラドンマスバランスをどう表すかという観点が示されていないのである。

III 章のタイトルが、拡散係数の定義となっているにも関わらず、拡散係数の考え方しか述べていないのには理由がある。実験では、ラドンの拡散は、バルク拡散係数しか測定できない¹⁷⁾。バルク拡散係数と拡散係数の関係を明確にして拡散方程式を論じているのは、Rogers らだけである。このような背景があって、国連科学委員会報告2000年版では、ラドンの拡散係数に混乱が生じるかも知れないということを述べて、特に注意を促しているけれど

も、個別の説明まで立ち入ってはいない。

IV. 土壌中ラドン拡散係数測定方法

1. 測定の基本事項

土壌中ラドン拡散係数は Fick の法則が成立するという前提で測定されている。測定により拡散係数を求めるためには、土壌カラムの入り口と出口でラドン量の違いがなければならない。同じであれば、何の手掛かりも得られないからである。あるいは、土壌カラム中の長さ方向のラドン量の違いがなければならない。本報で、ラドン濃度、あるいは、ラドンフラックスといわずに、敢えてラドン量といういい方をしているのには訳がある。ラドンの濃度やフラックスは直接測定できる量ではないのである。直接測定できるのは検出器に飛び込んでくる一部の放射線だけである。この放射線の量は、必ずしもラドンの量に比例している訳ではない。そのため、例えば、子孫核種が平衡になるのを待って、ビスマス-214からの γ 線のように、ラドンの量に比例する放射線の量を測定する。あるいは、 α 線を放出するポロニウム-218や-214のような子孫核種の挙動を解明して、検出器による測定値からラドンの量を補正計算によって弁別する。このようにみえてくると、ラドン量の単位はあまり重要ではないように思われるけれど、ウラン鉱滓のようにそれ自身にラドンの発生源がある場合には、この発生源との相関を取るためにラドン量の単位に注意を払う必要が生じる。さらに、ラドン量と拡散係数の間には一義的な相関が生じる。このことは、ラドン量を放射能濃度で表したときに成立する拡散方程式(1)をみると、よくわかる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \lambda C + R\rho\lambda E/p \quad (1)$$

この式中の記号は、NUREG/CR-3533⁶⁾で説明に用いられているものを採用した。数式という観点からは、簡潔で重要な点は網羅されているので、この式をベースに説明する。式中の記号の意味は、次のとおりである。

D : 拡散係数 (m^2s^{-1})

C : ラドン濃度 (Bqm^{-3})

x : 長さ方向の引数 (m)

λ : ラドンの壊変定数 (s^{-1})

R : ラジウムの土壌中比放射能 ($Bqkg^{-1}$)

ρ : 土壌の乾燥密度 (kgm^{-3})

E : ラドンのエマネーション係数 (emanation coefficient)

p : 間隙率

(1)式で、発生項がなくなると、(2)式ようになる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - \lambda C \quad (2)$$

この式は、ラドンの量である C を定数倍しても、すなわち、単位を変えても成立する。例えば、ラドンの壊変定数を用いて放射能濃度と化学濃度間の単位の変換をしても

(2)式は成立する。このことは、(2)式の拡散方程式は単位に依存しない単なる微分方程式であって、拡散という物理現象とは同値の関係にないことを意味している。実際、フーリエの法則を表す熱伝導の方程式も全く同じ形式の微分方程式で表されるのである。すなわち、形式の観点から、数式自体の意味が曖昧になっている。特定の物理現象を表す方程式であるという特徴は、数式中に発生項が存在することによって初めて明確になるのである。発生項が存在すると、マスバランスあるいはヒートバランスの式であることが確定し、そのバランスが成立する領域が問題になる。

土壌中でのラドン拡散についていえば、ラドンが自由に移動できる間隙でマスバランスを考えるのが自然であると思われがちである。しかし、ラドンが自由に移動できない土壌粒子の領域まで含めて考えることもできる。ここまで考えたときに、初めて拡散係数を正確に認識する準備ができたことになる。間隙だけでのマスバランスを考えるなら、(2)式の拡散係数に間隙率を乗じなければ式は成立しない。土壌粒子の領域まで含めるのであれば(2)式の拡散係数はそのままよい。あるいは、(2)式の拡散係数に間隙率を乗じたものを単に拡散係数と呼んでもよい。さらに、水中のラドンは空気中に比べて移動が遅いので、空隙だけでマスバランスを考える研究者もいる。

もし、発生項がない(2)式であれば、間隙でのマスバランスを表しているのか、土壌粒子の領域まで含めたマスバランスを表しているのか区別ができないのである。このように、発生項がないことは、同時に、拡散係数 D がどのような領域のマスバランスを表しているのかという意味も曖昧になることを意味している。したがって、ラドン発生源のない土壌を用いて拡散係数を測定するときは、単なる拡散係数か、それともバルク拡散係数として整理するか、よく気を付けなければならない。

次に、測定例を交えて、ラドン拡散係数測定法の特徴を述べる。

2. 土壌のラドン拡散係数測定法の特徴

土壌のラドン拡散係数の測定にはフィールドでの測定と実験室での測定がある。フィールドでの測定は外気の影響を受けるため困難である。困難という意味は、測定精度に難点があるということである。このことは、フィールド測定と実験室測定との比較を行った NUREG/CR-2769¹⁸⁾に記載がある。それによれば、フィールド測定では、測定誤差は測定値とほぼ同じ大きさである。一方、実験室測定では、測定誤差は測定値の約10%である。この実験でのフィールド測定は、一定区画の地表面にテントのようなラドン捕集用の覆いをかぶせ、チャーコールトラップに一定時間捕集して、測定を行っている。フィールド測定は、NUREG-2769のように、地表面に出てきたラドンを捕集して測定する方法が多い。フィールド測定として、土壌の

深さ方向にラドン濃度を測る方法もあるけれど、移流がないという前提条件を必要とするため、その条件を実現するかあるいは補正計算しなければならない。しかし、両者ともに極めて困難である¹⁹⁾。以上述べたように、フィールド測定は実験室測定ほど簡単ではなく、精度も低いので、以後は実験室測定に絞って説明する。

3. 実験室測定

実験室測定は、大気の影響を受けない好条件を設定して測定できることが特徴である。測定方法や試料状態についての着眼点を説明する。

(1) 測定方法

測定方法には、静的測定法と過渡測定法がある。両者の違いは、(1)式の左辺の違いにある。静的測定法では、定常状態での測定となるため、ラドン濃度の時間微分である左辺は0となる。そのため、微分方程式の扱いが簡単になる。過渡測定法では、左辺は0とならないため、ほとんどの場合は、境界値問題としてフーリエ級数解を求めなければならない、微分方程式の扱いが厄介である。拡散係数は直接測定できる量ではなくて、微分方程式を介して求めなければならないので、微分方程式の取り扱いの難易も重要な要素となる。

(2) 試料の着眼点

III章拡散係数の定義で述べたように、研究者によっては間隙中水分の影響に対する考え方が異なる。しかし、ラドンの拡散現象面から、水分に対して考慮が必要であるという共通認識はある。このことは、ラドンの拡散係数測定中に水分状態が変化すると、測定がうまくいかないということでもある。水分状態に変化を与える要因としては、蒸発による水分量の減少および重力による水分の再配置がある。蒸発による水分量の減少は、室温を一定に保ち、測定系を気密構造とし、土壌試料の量に対して測定空間の体積を少なくすることにより、解決しなければならない。重力による水分の再配置に対しては、土壌試料の深さ方向の長さを短くしたり、測定時間を短くすることにより、解決しなければならない。これらのことは、個別の測定装置設計で考慮することになり、一般論で論じるのは難しい。

さらに、微分方程式を介してラドンの拡散係数を求めなければならないので、境界条件を設定する必要がある。この境界条件は測定装置の設計で決まってくる。あるいは、特定の境界条件を満足するように測定装置を設計する。この設計が試料状態に影響を与えないよう注意しなければならない。例えば、ウラン鉱山跡地のミルテレーリングの覆土に対する安全評価では、普通は地表面でのラドン濃度を0とする境界条件が用いられる²⁰⁾。これは、風による乱流拡散によって地表面に出てきたラドンはすぐに移動するからである。この境界条件は、拡散方程式を解く上で都合であるけれど、拡散係数測定のために同じ境界条件を作ろうとして、土壌試料上部に空気を送ってラドンを検出器に

導くと、間隙中の水分の蒸発を助長して水分量が変化し、測定に不都合を生じることになる。研究者は、以上のようなことを認識しており、いくつかの研究が行われている。次に、静的測定法と過渡測定法についてその研究例を説明する。

(3) 静的測定法

静的測定法について、装置の大きさの観点から、Cohen²¹⁾は土壌試料の深さ方向の長さや量が、最悪の場合7 mで7,000 kg、最良の場合0.5 mで30 kgとなることを導いた。これは、拡散方程式の解をもとにして、ラドン濃度とラドンフラックスのいずれかを測定する場合とそれらの組み合わせを測定する場合の3種類の静的測定法の検討結果である。理論的な検討結果であり、特定の測定装置を対象として検討した結果ではないので、汎用性のある結論が得られている。Cohenが述べた最悪の場合というのは、土壌カラム出口のラドンフラックスを測定する方法、または、土壌カラムの複数の深さが異なる位置にサンプル管を差し込んでラドン濃度の深さ方向の分布を測定する方法である。最良の場合というのはCohenが考えた方法である。これは、土壌カラム入り口でのラドンフラックスとラドン濃度は土壌の深さ方向の長さや拡散係数で決まることを利用する方法であり、彼の主張する測定装置のコンパクト化が可能な方式である。しかし、この方法では土壌カラム上部での境界条件であるラドン濃度0を実現するため、ブローワを使うことを提案している。ブローワを使うと、差圧が生じて移流が生じる恐れがあることと、水分が蒸発する恐れがある。この点についての記述はない。それに関わらず、この方法はフィールド測定と実験室測定の比較に使われた¹⁸⁾。このときの土壌の深さ方向の長さは0.1 mである。Cohenの論文では最良の場合で0.5 mとなっていたが、理屈の上では0.5 m以下でも構わない。しかし、土壌の厚さが薄くなるということは、移流量が増えることを意味する。この点についての記載はない。

(4) 過渡測定法

過渡測定法については、筆者らの知る限り、実用化されたのはアメリカで開発された方法しかない。NUREG/CR-2875²²⁾に開発の経緯と測定法の概略が記載されている。それによると、この方法はアメリカNRCの委託によりPacific Northwest Laboratory(PNL)が開発した。この方法によって得られたラドンの拡散係数は、ウラン鉱滓からの放射線被ばくを防止するため、覆土の厚さを設計するために用いられた。測定装置は大変コンパクトで、土壌は直径0.1 m、厚さは1~2 cmでよい。そのため、 $10^{-8} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ のように小さい拡散係数でも1~2日で測定できる。測定期間が短いので、重力による水分の移動をあまり気にしなくて済む。しかし、静的測定法と違って、ラドンの α 線とともに、放射平衡になっていない子孫核種のポロニウム-218、-214の α 線を同時に測定してしまう。したがって、測定値からラドンの α 線だけを弁別しなければなら

ない。さらに、連続測定なので、土壌カラムを出たラドンに対する境界条件の同定が難しい。このような条件で、(1)式に対する境界値問題を解かなければならない。測定装置が簡単になり、水分変動も少なく、都合がよいけれど、測定装置内でのラドン拡散現象を正確に把握して微分方程式に反映し、それを解くためには相当なノウハウが必要になるのである。NUREG/CR-2875には、それに関する説明はない。筆者らは、過渡測定法のノウハウを把握するための研究を行い、3つの論文^{17,23,24)}としてまとめた。最初の論文¹⁷⁾では、直接観測できるのはバルク拡散係数であり、土壌カラム出口側のラドンフラックスが0となる境界位置を、バルク拡散係数と空気中の拡散係数を用いて表すことができることを示した。筆者らの次の論文²³⁾では拡散方程式のフーリエ級数解を用いて、変動の激しい測定値から拡散係数を求めるための現実的方法を示した。それは、土壌カラムの入り口側のラドン設定条件として、ステップ入力またはランプ入力を与え、それぞれ90%平衡値に達する時間またはランプ応答の傾きから拡散係数を求めるという方法である。一方、第2図はNUREG/CR-3533⁶⁾に掲載されている土壌カラム出口側の実測値(●印)と理論値を示している。この図はステップ応答で、よくみると実測値は、経過時間が短いほど理論曲線から離れて描かれ、プラトー値に近づくほど理論曲線に合うように描かれている。なぜこのような例示の仕方なのか、説明がないので詳細は不明である。筆者らの研究²³⁾では、フィッティングによってラドンの拡散係数を求めるためには、プラトー値に近付いたところがよく一致する必要があることを示した。NUREG/CR-3533の例示はこのことと符合している。NUREG/CR-3533でも、測定データのどの部分が拡散係数を求めるのに最適なのか、検討がなされたことがうかがえる。筆者らの最後の論文²⁴⁾では、ポロニウム-218, -214の挙動を突き止め、測定値からラドンの寄与分を弁別する方法を提示するとともに、関東ロームと豊浦砂に関して Fick の法則が成立する例を示した。筆

者らの研究は、過渡測定法のノウハウに関わるものである。このノウハウは、測定体系の大きさや検出器による放射線の捕らえ方によって内容が変わってくるので、個別の検討が必要である。重要なことは、拡散方程式の境界条件設定と境界値問題の解に対する理解が不可欠なことである。このことは、Cohen が拡散方程式を用いて、静的測定法で汎用性のある検討結果を導いたのとは対照的である。

V. 土壌中ラドン拡散理論

土壌中のラドン拡散は、Fick の法則が成立する保証はない。このことは、あまり深く議論されていない。筆者らは、以前の論文¹⁷⁾で土壌の内部構造はわからないので測定可能なのは、ラドンのバルク拡散係数であることを示した。その論文では、第3図の左側に示すような中に何も無いシリンダーと、右側に示すような3つのサブシリンダーが内蔵されているシリンダーを例として述べた。これらは、外側からみても区別できない。しかし、右側のシリンダーについては、ラドンが通過するのはサブシリンダーだけである。サブシリンダーの合計の流路面積はもとのシリンダーの1/3になっている。観測者は、第3図の左右のシリンダーから出てきたラドンの量を測定して、右側のシリンダーのラドン拡散係数は1/3であると思うであろう。実際は、空気中のラドン拡散係数で、両者ともに同じである。単にシリンダーの中がみえないために、バルク拡散係数を測定して間違った解釈をしてしまう可能性がある。バルク拡散係数は流路面積とセットで正しい解釈ができるのである。この例のように、普通は土壌の中を詳しく観測できる訳ではない。

もっと、極端な例として、第4図に示すように、出口のないサブシリンダーがあったときはどうなるであろうか。これは、出口のない土壌間隙に対応していて、観測できるものではない。第3図のサブシリンダーと違って、第4図の2つのサブシリンダーは出口が塞がっているので拡散に寄与しない。このサブシリンダー中のラドン濃度は、ラドン

FIGURE 8. TRANSIENT ALPHA ACTIVITY CURVES FOR MEASURING RADON DIFFUSION COEFFICIENTS.

第2図 ラドン拡散係数過渡測定法：実測値(●)と理論値の比較 (NUREG/CR-3533 から転載)。

第3図 見かけのラドン拡散係数：サブシリンダーの合計面積はもとの(左図)シリンダー面積の1/3

第4図 出口のないサブシリンダがある場合のラドン拡散

ソースと同じ C_0 になる。一方、ラドンの拡散に寄与する中央のサブシリンダのラドン濃度は C である。深さ方向位置 x での土壌のラドン濃度は C_0 と C の体積加重平均である。実は、この体積加重平均濃度は求めることができない。仮に、この濃度を求めることができたとしても、拡散に貢献しないラドンまで含めているので、この濃度で拡散方程式が成立しないことは明らかである。すなわち、土壌中で拡散方程式が成立する保証などないのである。本来は、ここからスタートしないと土壌の拡散係数の正しい認識は得られない。

次に、土壌の中で生じる拡散現象はどのようなものか、認識する必要がある。ミクロ的にみたとき、間隙が大きければラドンは濃度差によって分子拡散している。しかし、間隙が小さくなってラドンの平均自由行程以下になると、ラドンは間隙の壁を構成する固体に衝突しながら Knudsen 拡散することになる。土壌のように間隙のある物質中でのガス拡散は Youngquist²⁵⁾ によると、Knudsen 拡散、分子拡散および表面拡散である。表面拡散というのは、間隙を構成する固体表面にガスを収着する層があって、その中をガスが移動可能ときに考えられる。Knudsen 拡散と分子拡散はともに Fick の法則に従う。両者の拡散が混在する場合も Fick の法則に従うことを紹介している。表面拡散は無視できることが多い。そして、出口が塞がった間隙がほとんどなければ、間隙を球形などでモデル化した拡散理論計算と実測値はよく一致することを示した。

Nielson らは、Youngquist の論文を参考にしながら、ラドンの土壌中拡散の数学モデル構築を試みた⁷⁾。そのモデルの特徴は、くねり (tortuosity) というパラメータを用いて、間隙中の水のテクスチャ (texture) 構造を考慮したこ

とと、小さい間隙まで含めた間隙の大きさの分布を考慮したこと、すなわち Knudsen 拡散を含めて考慮したことである。彼らは、間隙中の空気と水がラドンの拡散に貢献するという立場で拡散方程式を展開している。この際、間隙中の水膜と空気との間でラドンが瞬時に分配平衡に達しているという仮定を立てている。間隙が大きくて水分量が多くなると、瞬時分配平衡の仮定は成立しなくなるので、特に過渡状態の場合は、理論式の適用は難しくなることに注意しなければならない。このことに関連して、実際の現象を考えたときに、同じ水分飽和度でも、水膜の厚さ (一種のテクスチャ構造) が違うと拡散状態が異なるので、水分飽和度が高いときには土壌種によって拡散係数は大きく変動する。極端な場合は間隙の通路が水で塞がってしまう場合である。したがって、ラドンの拡散係数は、単一の実験式をすべての土壌と水分領域に適用することはできない。Rogers らが提案した実験式と実測値を比べてみると、水分飽和度が高い領域での適用性が悪い。これは、彼らの実験式が悪いというよりも、現象そのものが、土壌種 (水分のテクスチャ構造も含めた間隙構造の違いがある) によってバラついている結果なのである⁶⁾。

くねり (tortuosity) について補足説明する。Youngquist によれば、くねりは理論と実験値を一致させるための調整用の定数 (adjustable constant) であって、間隙の形と向き、および、間隙の実行長を説明しようとするものである。けれども、理論的にくねりの特性を説明することには、あまり成功していない。そのため、くねりは実験によって求めなければならない。

以上の理論的研究は、分子レベルで Fick の拡散法則をベースに拡散係数を理論的に求めようとしたものである。これとは別に、アメリカでウラン鉱滓処分場の覆土設計のために行われた研究がある^{26,27)}。それは、覆土にクラックが生じた場合のラドン拡散を説明しようとした研究で、分子レベルでのラドン拡散研究とは趣を異にする。この研究は方法論が固まっていない。クラックの特性を幅で表すか面積で表すかという基本的な考えもまとまっていない。その理由は、実験値と理論値が一致していないので、何をパラメータとして採用すればよいかを決めることができないためであると推測される。理論値と実験値が一致しない理由は、実験での測定時に土の上部にフードを設置し、フード内に $0.45 \sim 2.7 \text{ ms}^{-1}$ ($1 \sim 6 \text{ mile/h}$) の空気を流していることがラドンフラックスに対する外乱となっているためであると推定されている。解析では、クラックが 50%, 75%, 100% 貫通でラドンフラックスがそれぞれ 3 倍、6 倍、31 倍という結果となっている。

この方面の研究は進んでいない。アメリカではクラックが発生する原因として、動物が穴を掘るというような、対策可能な事象しか扱っていないので、ラドンの解析よりも対策を講じることが議論の中心になっている。地震はクラック発生原因となる事象には入っていない。

- ① ウラン廃棄物からのラドン散逸
- ② ウラン廃棄物中でのラドン拡散
- ③ 土壌中ラドン拡散
- ④ 地表での乱流拡散
- ⑤ 床下からのラドン拡散浸入
- ⑥ 床、壁に付着しなかったラドンの吸入

第5図 ウラン廃棄物からのラドン移行挙動

第6図 鉄澱物電子顕微鏡写真

● ラジウム

第7図 鉄澱物へのラジウム付着概念図

VI. ウラン廃棄物処分への適用と課題

ウラン廃棄物処分に際して、安全評価上の検討が必要となるラドンの拡散現象は、第5図の①～⑥で示したラドンの移行挙動で、①のエマネーションを除いた②～⑥までとなる。このうち、土壌中のラドン拡散研究が応用できるのは、②のウラン廃棄物中ラドン拡散と③の土壌中ラドン拡散である。それぞれ個別に取り上げて、検討課題を提示する。

1. ウラン廃棄物中ラドン拡散

現在我が国で行われているウラン廃棄物処分の安全評価では、②のウラン廃棄物中ラドン拡散が評価されていない。ウラン廃棄物のうち、鉄澱物廃棄物のように沈澱で生じた廃棄物中のラドン拡散係数は、非常に小さくなる。このことは、第6図に示した鉄澱物の電子顕微鏡写真からわかる。沈澱生成直後の鉄澱物は、水酸化鉄の多結晶体の中に水分を大量に含んでいて、ドロドロした状態である。これを250℃で乾燥すると、多結晶体中の水分が噴出して

図中に示したようなクラックができる。このクラックの面積が小さいために、ラドンの拡散が制限されるのである。一方、鉄澱物からのラドンエマネーションは大きい²⁸⁾。しかし、拡散まで含めた鉄澱物からのラドン散逸は小さくなるのである。したがって、ウラン廃棄物処分に際して、ラドンによる被ばく線量を評価するときは、廃棄物内でのラドン拡散を含めたモデルで評価する必要がある。そのためには、ウラン廃棄物のラドン拡散係数を測定する必要がある。しかし、鉄澱物のようなスラッジのラドン拡散係数は非常に小さく、 $6.6 \times 10^{-9} \text{ m}^2 \text{ s}^{-1}$ 以下と推定されている²⁹⁾。このように小さな拡散係数になると、試料中でのラドン減衰が大きくなって、拡散係数の測定が難しくなる。しかもラドンの先行核種であるラジウムは、第7図のラジウム付着概念図に示すように、水酸化鉄多結晶体で囲まれた部分にある。そのため、第8図に示すような、従来のように土壤カラム下部にラドンソースを置いて、土壤カラムを通過したラドン量を測定するような拡散係数測

第8図 ラドン拡散係数測定装置

定法は適用できない。その理由は、第8図では水酸化鉄多結晶体の外側を通過するラドンの拡散係数を測定しているのであって、水酸化鉄多結晶体内部からのラドン拡散は測定できないからである。ここで、学術上の定義の問題が生じることがわかる。どこまでをエマネーションと考え、どこからを拡散と考えるかということである。もし、従来のように、土壌カラム下部にラドンソースを置いた測定方法によってラドンの拡散係数を測定するのであれば、水酸化鉄多結晶体から小さなクラックを通して出てくるラドンはエマネーションとして扱わねばならない。しかし、このエマネーションを測定するのは事実上困難である。なぜなら、水酸化鉄多結晶体のクラックから出てきたラドンは、測定器に至るまでに水酸化鉄多結晶体の内外を拡散し、その間に減衰してしまう。水酸化鉄多結晶体のクラックから出てくるラドンを拡散によるものであると考えると、エマネーションと試料全体の拡散係数は測定可能である。この現象面からみた定義の違いは重要である。Strandenら³⁰⁾は乾燥重量で323 gの頁岩のラドン散逸を $0.15 \text{ Bqs}^{-1} \text{ kg}^{-1}$ と報告しているけれど、Nazarov³¹⁾によってエマネーション係数0.68という形で整理し直され、これが2000年版国連科学委員会報告の根拠になっている。この試料から出るラドンを散逸として理解するか、エマネーションとして理解するか、試料の量との関係で難しい。このように、世界的にみてもラドンの挙動についての理解、あるいは、定義は完全には確立されていない。このような状

況を認識した上で、ウラン廃棄物中のラドン拡散係数測定方法の開発を行わなければならない。その結果は、被ばく線量評価に誤解が生じないように、明確な定義とともに整理されなければならない。このようなことを多種類のスラッジ類ウラン廃棄物に対して実施することが課題である。ウラン廃棄物中のラドン拡散係数は大変小さいことが推定できるので、ウラン廃棄物処分の安全評価上、大変重要である。原子力安全委員会では低レベル放射性固体廃棄物の陸地処分に対して、ある程度期間が経過した後に処分場の管理を終了することを前提としており、管理を終了する際の安全評価上の個人被ばく線量が $10 \mu\text{Svy}^{-1}$ 以下となるよう規定している^{32,33)}。この規程を満足するためのウラン廃棄物中ウラン濃度(Bqg^{-1})を安全評価によって求めている。このような被ばく線量(μSvy^{-1})からウラン濃度(Bqg^{-1})への変換に際して、ラドンの拡散係数が用いられており、重要な決定因子になっている。この決定因子は科学的に適切な数値でなければならない。しかし、現時点で、ウラン廃棄物中のラドン拡散はその決定因子に含まれておらず、したがって安全評価に用いられていない。そのためあって、処分可能なウラン廃棄物濃度は非常に低い計算結果となっていて、除染によってそのような低い濃度にすることは困難である。しかし、処分場の管理を終了するときの目安線量 $10 \mu\text{Svy}^{-1}$ が厳しいという主張をする前に、ウラン廃棄物中のラドン拡散係数を評価することも含めて、科学的に適切な評価をすれば、ウラン廃棄物処分の被ばく線量問題は解決できる。

2. 土壌中ラドン拡散

(1) クラックの影響評価

我が国は、地震が多発する。ウラン廃棄物処分場の覆土にクラックが発生した場合のラドン拡散がどうなるか研究する必要がある。この問題へは2つの切り口からアプローチしなければならない。1つは、自己修復性のある覆土の開発である。もう1つは、クラックが発生した土壌のラドン拡散係数評価である。この方面の研究例は、IV章で述べたアメリカの例があるけれど、理論値と実測値は一致していない。筆者らにも、クラックの影響を調査した例がある²⁹⁾。覆土としてベントナイトと砂の混合土を想定し、人為的にクラックを入れた試料を調製して拡散係数を測定した。クラックの深さを変えて貫通クラック(ヘアークラック)まで測定した。貫通クラックのラドン拡散係数はクラックなしの場合と比べて、約5倍となっていた。アメリカの理論計算値は、貫通クラックで31倍であった。ただしアメリカの場合は、ヘアークラックではない。

雨が降れば、自己修復性によりクラックは閉じてくる。筆者らの実験例では、ラドンの拡散係数はクラックがない状態まで戻っている。このことから、クラックがあるときのラドン拡散係数を理論的に予測計算できれば、地震が発生したときの年間被ばく線量は、クラックが閉じるまで安

全側の評価ができると考えられる。ただし、筆者らの実験例は、0.1 m 程度の小規模な試料を対象にしたものなので、大きな試料を対象とした実験とフィールドでの実験を行って、両者の比較を行うとともに、拡散係数を理論的に計算できるようにすることが課題である。

(2) 年間平均ラドン散逸

ウラン廃棄物処分場での、管理期間終了後の被ばく線量は、年間被ばく線量で規定されている。この被ばく線量を評価するためには、処分場の覆土を通過するラドンの散逸量を評価できなければならない。

アメリカでは、ウラン鉱山跡地の修復が問題になるまで評価期間にあまり注意が向けられることなく、土壌を対象として、ラドン散逸量がどのようなファクターに影響されるか研究が行われた。大気圧、降雨、気温、風速などの外気パラメータの影響が調べられた。Schery ら¹⁾は、2週間程度の測定ではあるものの、ラドンの平均フラックスは大気圧や降雨などに依らず、純拡散に近いことを示した。また、ラドン散逸量だけではなく、地中の深い場所(1 m 以上)および浅い場所(1 m 以下)でのラドン支配要因の調査が行われた。Washington ら³⁴⁾は、深い土壌中ではラドンの拡散はほとんどなくて、ラドンは温度と湿度だけに支配されることを示した。これとは別に、彼らは、約2年間に亘って浅い地中でのラドン測定を行い、年間を通じたラドンの支配要因は、拡散であることを示した²⁾。

アメリカで、ウラン鉱山跡地の修復が問題になってから、処分場覆土によるラドン減衰効果の確認研究が行われた。ウラン鉱山跡地修復の文献によく登場する Grand Junction では、12,000 m² の大規模な面積で Hartley ら³⁵⁾によって、種々の覆土(ラドンバリア)を対象に、EPA (Environmental Protection Agency) の基準値である 0.74 Bqm⁻²s⁻¹ (20 pCi m⁻²s⁻¹) 以下までラドンフラックスを減衰させることができることを実証した。しかし、この研究ではラドンフラックスの支配因子が何であるか突き止められた訳ではない。Nielson³⁾らは、ウラン鉱滓に覆土を施し、1年間ラドンフラックスを測定し、年間平均ラドンフラックスは、ラドン拡散係数から求めた値とよい整合性があることを示した。これによって、年間平均で考えれば、ラドン散逸量の日変化や季節変化は考える必要がなく、拡散係数から求めればよいことがわかった。この Nielson らの研究が、日本でも行われることが課題である。

VII. ま と め

本研究は Nielson ら³⁾の研究報告に示された「年間を通してのラドンフラックスは拡散に支配される」という結果に基づいて、我が国でウラン廃棄物を地中処分するためには、土壌中でのラドン拡散について、今後どのような研究課題があるか整理した。そのため、多数の土壌中ラドン拡散研究の中から、土壌中のラドン拡散を理解する上で必須と思われる基礎的現象を扱った研究の概要を紹介した。こ

の理解の上に、土壌中のラドン拡散は、単に Fick の法則が成立するとして拡散方程式を考えればよいというほど単純なものではなく、拡散係数の定義自体が、研究者の混乱を生じさせるほど複雑であることを紹介した。このため、ラドンの拡散係数測定方法は、定義との関連をよく把握しなければならない。本報では、NUREG-3533 で定義された拡散方程式に基づいて、フィールド測定と実験室測定を紹介した。特に、実験室測定はよい精度で拡散係数が測定できるので、この測定法を中心に静的測定法と過渡測定法の特徴を述べた。過渡測定法は、測定時間が短く、土壌試料の厚さが数 cm でよく、水分分布の変動が少ないという利点がある。これは、アメリカで開発され実用化に到った測定法であるけれど、重要なノウハウが明らかにされていない。この点を明らかにするため、筆者らの最近の研究例を紹介した。一方、ラドンの拡散理論の研究は、Fick の法則が成立するという前提で進められているものの、理論的ラドンの拡散係数を求めることは困難である。そのため、Rogers らの実験式が考案されていることを紹介した。

以上のような研究状況をもとに、これまでの研究のウラン廃棄物処分への適用と課題を示した。それらは、ウラン廃棄物中のラドン拡散を安全評価に取り入れること、地震などによる覆土クラックの影響を評価すること、および、一年を通じた安全評価では覆土のラドン拡散を評価すればよいことを検証することである。我が国で、ウラン廃棄物の適切な安全評価が行われるように、今後の研究課題を示した次第である。

— 参考文献 —

- 1) S. D. Schery, D. H. Gaeddert, M. H. Wilkening, "Factors affecting exhalation of radon from a gravelly sandy loam," *J. Geophys. Res.*, **89**, 7299-7309 (1984).
- 2) J. W. Washington, A. W. Rose, "Temporal variability of radon concentration in the interstitial gas of soils in Pennsylvania," *J. Geophys. Res.*, **97**, 9145-9159 (1992).
- 3) K. K. Nielson, V. C. Rogers, D. C. Rich, *Small-Scale Field Test of Simple Earthen Covers for Uranium Mill Tailings*, UMTRA-DOE/ALO-19, U.S.A. (1983).
- 4) V. C. Rogers, *Investigation of Soil Radon Diffusion Coefficient Measurements and Methodology*, RAE-50344-001-1, URS Corporation, Salt Lake City, UT (2001).
- 5) V. C. Rogers, K. K. Nielson, "Correlations for predicting air permeabilities and ²²²Rn diffusion coefficients of soils," *Health Phys.*, **61**[2], 225-230 (1991).
- 6) V. C. Rogers, K. K. Nielson, D. R. Kalkwarf, *Radon Attenuation Handbook for Uranium Mill Tailings Cover Design*, NUREG/CR-3533 (1984).
- 7) K. K. Nielson, V. C. Rogers et al., *A Mathematical Model for Radon Diffusion in Earthen Materials*, NUREG/CR-2765 (1982).
- 8) A. B. Tanner, *Radon Migration in the Ground: A Supplementary Review, Natural Radiation Environ. III, Vol. 1*, CONF-780422 (Vol. 1), Technical Information Center/U.S. Department of Energy (1980).

- 9) E. Ramsted, "Diffusion der radiumemanation in wasser," *Chem. Zentralbl.*, **90**, 993-994 (1919).
- 10) W. Hirst, G. E. Harrison, "The diffusion of radon gas mixtures," *Proc. R. Soc. London, Ser. A*, **169**, 573-586 (1939).
- 11) S. D. Schery, S. Whittlestone, "Desorption of radon at the earth's surface," *J. Geophys. Res.*, **94**[D15], 18, 297-18, 303 (1989).
- 12) 軍司康義, 奥田 武, 佐々木朋三, "ウラン廃棄物のラドン散逸割合測定方法の開発," 日本原子力学会和文論文誌, **4**[3], 194-202 (2005).
- 13) E. Ramsted, "Sur la solubilité de l'émanation du radium dans les liquids organiques," *Radium*, **8**[7], 253-256 (1911).
- 14) R. W. Boyle, "The solubility of radium emanation. Application of Henry's law at low partial pressures," *Philos. Mag.*, **22**, 840-850 (1911).
- 15) W. W. Nazaroff, "Radon transport from soil to air," *Rev. Geophys.*, **30**[2], 137-160 (1992).
- 16) B. L. Cohen, J. Rakowski, R. Nason, "A simple compact apparatus for measuring diffusion properties of Rn through soils and other materials," *Health Phys.*, **50**[1], 133-137 (1986).
- 17) T. Sasaki, Y. Gunji, T. Okuda, "Transient-diffusion measurement of radon in Japanese Soils from a mathematical viewpoint," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **43**[7], 806-810 (2006).
- 18) E. A. Lepel, W. B. Silker, V. W. Thomas *et al.*, *Comparison of Field-Measured Radon Diffusion Coefficients with Laboratory-Measured Coefficients*, NUREG/CR-2769 (1983).
- 19) *Radon Transport through and Exhalation from Building Materials: A Review and Assessment*, NBS Technical Note, 1139, U.S. National Bureau of Standards, Washington, D.C. (1981).
- 20) *Calculation of Radon Flux Attenuation by Earthen Uranium Mill Tailings Covers*, Regulatory Guide 3.64, U.S. Nuclear Regulatory Commission (1989).
- 21) B. L. Cohen, "Methods for predicting the effectiveness of uranium mill tailings covers," *Nucl. Instrum. Methods*, **164**, 595-599 (1979).
- 22) D. R. Kalkwarf, K. K. Nielson, D. C. Rich *et al.*, *Comparison of Radon Diffusion Coefficients Measured by Transient-Diffusion and Steady-State Laboratory Methods*, NUREG/CR-2875 (1982).
- 23) T. Sasaki, Y. Gunji, T. Iida, "Transient-diffusion measurements of radon: practical interpretation of measured data," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **44**[7], 1032-1037 (2007).
- 24) T. Sasaki, Y. Gunji, T. Iida, "Transient-diffusion measurements of radon: Fick's law confirmation and $^{218}\text{Po}/^{214}\text{Po}$ behavior determination," *J. Nucl. Sci. Technol.*, **44**[10], 1330-1336 (2007).
- 25) G. R. Youngquist, "Diffusion and flow of gases in porous solids," *Ind. Eng. Chem.*, 52-63 (1970).
- 26) D. W. Mayer, D. A. Zimmerman, *Radon Diffusion through Uranium Mill Tailings and Cover Defects*, NUREG/CR-2457 (1981).
- 27) D. R. Kalkwarf, D. W. Mayer, *Influence of Cover Defects on the Attenuation of Radon with Earthen Covers*, NUREG/CR-3395 (1983).
- 28) 佐々木朋三, 軍司康義, 今村光孝, "ウラン廃棄物のラドン散逸割合," 日本原子力学会和文論文誌, **6**[4], 503-509 (2007).
- 29) 原子力環境整備促進・資金管理センター, 平成18年度ウラン廃棄物処分技術調査報告書(第1分冊) ラドン挙動調査・安全評価手法調査・検認技術開発(品質保証高度化) (2007).
- 30) E. Strandén, A. K. Kolstad, B. Lind, "The influence of moisture and temperature on radon exhalation," *Radiat. Prot. Dosim.*, **7**, 55-58 (1984).
- 31) W. W. Nazaroff, B. A. Moed, R. G. Sextro, *Soil as a Source of Indoor Radon: Generation, Migration, and Entry, Radon and Its Decay Products in Indoor Air*, eds. by W. W. Nazaroff, A. V. Nero Jr., John Wiley & Sons, New York, 57-112 (1988).
- 32) 原子力安全委員会, 低レベル放射性固体廃棄物の陸地処分の安全規制に関する基準値について, (1992).
- 33) 原子力安全委員会, 放射性廃棄物埋設施設の安全審査の基本的考え方(一部改訂), (1993).
- 34) J. W. Washington, A. W. Rose, "Regional and temporal relations of radon in soil gas to soil temperature and moisture," *Geophys. Res. Lett.*, **17**, 829-832 (1990).
- 35) J. N. Hartley, G. W. Gee, E. G. Baker *et al.*, *1981 Radon Barrier Field Test at Grand Junction Uranium Mill Tailings Pile*, DOE/UMT-0213, U.S.A. (1983).