

海底堆積物中の放射能濃度（特に 粒径組成との関係）について

環境理学課 中島英男

1 はじめに

海底堆積物は、核実験による fall-out や原子力発電所などの移動に伴って、沿岸海域に放出される長半減期放射性核種を長期にわたって蓄積する。堆積物に蓄積される放射性核種の濃度は、底質の種類、物理化学的特性、有機物量などによって異なると考えられる。

ここでは、堆積物の粒径組成、強熱減量の分析を行い、それらと放射能濃度との関係について検討したので、その結果を報告する。

2 分析方法

53年7月24日、有明海でS K式採泥器により表層土を採取した海底堆積物10試料（図1）について分析を行った。

(1) 粒径組成

採取した堆積物の湿重量約80~100gをピペット法及び篩分法によって粒径組成を分析した。

ピペット法では以下の処理を行った。

湿土約80~100g→1ℓメスシリンダーに入れ、分散剤としてシュウ酸ナトリウム10ml（25g/ℓ溶液）を加え、蒸留水で1ℓに定容→メスシリンダーを一定温度（16℃）の水槽に入れ対流ができるだけおこらない程度に約15秒攪拌する→1分以上経過してから一定時間ごとに深さ10cmで、10mlホールピペットで10mlを採取し、粒径4.5φから8φの間を0.5φごとにわけると水をとばした後、110℃で約

24時間乾燥→乾燥土の重量測定

次に、ピペット法を行った後の残った試料を篩分法で-1φ以下、-1~1φ、1~2.75φ、2.75~4φ、4~4.5φの5段階の粒径ごとにふるい分けを行った後、110℃で約24時間乾燥して乾燥土の重量測定を行った。

粒径単位φとmm（d）とは、 $\phi = -\log_2 d$ となる。

(2) 強熱減量

DEAN法により次のような処理を行った。

湿度を90~100℃で1時間乾燥→乾燥土の重量測定（約1g）→550℃で1時間加熱→デシケータ中で室温まで放冷→重量測定（減量分が有機物量となる）→850℃で1時間加熱→デシケータ中で放冷→重量測定（減量分は炭酸塩分解によるCO₂量）

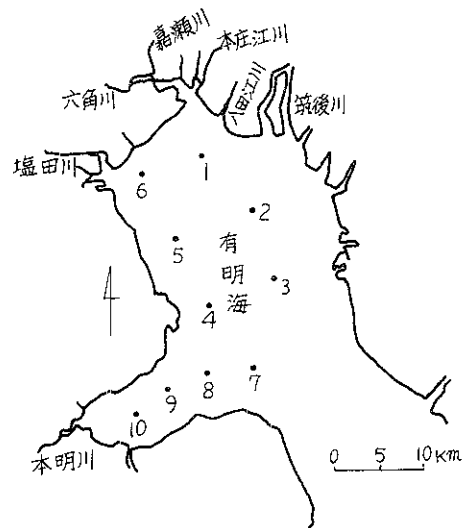


図-1 海底堆積物の採取地点

(3) 放射能測定

採取した各地点の試料ごとに、 -1ϕ 以下、 $-1\sim 1\phi$ 、 $1\sim 2.75\phi$ 、 $2.75\sim 4\phi$ 、 $4\sim 4.5\phi$ 、 4.5ϕ 以上及び全粒径の7段階に分けた試料の全 β 放射能を測定した。

次に、各地点ごとの全粒径を含む試料及び地点2の粒径別の試料について核種分析を行った。

3 測定結果と考察

(1) 粒径組成

各試料ごとに粒径別の重量%から粒径ヒストグラムを、また累積重量%から重量分布累積曲線を作成した。この重量分布累積曲線から、次式によって分級度と歪度を求めた。

$$S_o = \sqrt{\frac{Q_1}{Q_3}} \quad S_k = \frac{Q_1 - Q_3}{Md^2}$$

S_o : 分級度 S_k : 歪度 Q_1 : 25%点

Q_3 : 75%点 Md : 50%点 (中央粒径値)

分級度 S_o が1に近いほど粒径ヒストグラムのバラツキが少なく、堆積物が淘汰され分級が進んだ粒径組成となる。

また、歪度 S_k が1に近いほど粒径ヒストグラムは正規分布に近くなる。 S_o と S_k 及び Md の関係から³⁾鎌田による堆積型の分類を行った。

各採取地点の堆積物中の粒径別含有率を表1に示し、このうち含泥量が最高の地点6と含砂量が最高の地点7についての粒径ヒストグラムを図2と図3に、重量分布累積曲線を図4と図5に示す。

Wentworthの分類(図6)によって堆積物中の

sand-silt-clayの含有百分率を求め、shepardのsand-silt-clay, ratio(図7)による分類法を使って各採取地点の堆積物の分類をプロットしたものを図8に、地図上にプロットしたものを図9に示す。

以上の総括表を表2に示す。

有明海の堆積物の粒径組成分布は、本明川河口から沖合に向ってsilt(地点10), sandy silt(地点9), silty sand(地点8), sand(地点7)と砂質部が多くなり、湾中央部の地点3, 4, 7ではsand 湾北東部の地点1, 2ではsilty sand, 湾北西部の地点5, 6ではsiltとなっている。

分級度及び歪度については、堆積物の大部分がsandで構成されている地点3, 4, 7とsiltで構成されている地点5, 6, 10で1に近く良好であり、sandとsiltの混合物で構成されている地点1, 2, 9では不良となり、地点8では最も不良となっている。

表1の粒径が小さい沈泥と粘土の含有率(%)を加えたものを含泥量(%)とし、それと中央粒径値(ϕ 単位)とは、相関係数が0.98となり高い相関がある。(図10)すなわち、中央粒径値(mm単位)が小さくなるほど含泥量(%)が増加する。

表-1 各採取地点の粒径別含有率

単位：重量%

φ単位 の粒 径	mm単位の粒径	Wentworthの分類		1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
		礫	砂										
-1以下	2以上	礫	砂	0.105	0.180	0.974	0.320	0.258	0.034	2.051	0.335	0.225	0.294
-1~1	2~0.5		極粗砂・粗砂	0.656	1.610	22.861	11.080	0.355	0.062	30.045	1.697	0.818	3.654
1~2.75	0.5~0.149		中砂・細砂	35.538	37.565	63.404	70.651	1.220	0.851	60.812	34.577	7.205	1.877
2.75~4	0.149~0.063		細砂・極細砂	35.887	34.686	3.744	9.914	5.340	2.068	3.785	31.524	17.674	6.578
小計				72.081	73.861	90.009	91.645	6.915	2.981	94.642	67.798	25.697	12.109
4~4.5	0.063~0.0442	粗シルト		3.548	2.540	0.540	0.524	2.892	2.122	0.172	2.296	3.952	2.422
4.5~5	0.0442~0.0313	中シルト		3.455	1.977	0.376	0.295	8.064	4.784	0.216	2.182	7.084	8.337
5~5.5	0.0313~0.0221	細シルト		2.554	1.794	0.481	0.279	20.402	4.891	0.149	1.733	3.891	13.057
5.5~6	0.0221~0.0156	極細シルト		3.718	1.814	0.361	0.372	42.378	7.974	0.054	2.781	7.388	28.104
6~6.5	0.0156~0.0111			2.516	1.182	0.541	0.248	6.072	15.877	0.108	7.552	17.055	18.783
6.5~7	0.0111~0.0078			1.915	2.059	0.541	0.450	4.530	44.760	0.216	6.995	*	6.268
7~7.5	0.0078~0.0055			1.615	1.305	0.511	0.465	2.988	12.049	0.352	3.230	29.246	5.022
7.5~8	0.0055~0.0039			1.408	0.734	0.722	0.109	2.120	1.701	0	1.861	1.155	2.632
小計				20.729	13.405	4.073	2.742	89.446	94.158	1.267	28.630	69.771	84.625
8以上	0.0039以下	粘土	粘土	7.085	12.555	4.944	5.293	3.381	2.828	2.040	3.236	4.305	2.973

* 粒径6.5~7.5φ間を採取した値。

表-2 海底堆積物の粒径組成による分類

採取地点	中央粒径値	* 含泥量(%)	S ₀ (分級度)	S _K (歪度)	** 堆積物の名称	堆積型 ³⁾
1	3.16φ(0.112mm)	27.814	2.05	0.74	silty sand	ⅡbとⅢaの境界型
2	3.04 (0.122)	25.960	1.94	0.77	silty sand	ⅡbとⅢaの境界型
3	1.62 (0.325)	9.017	1.52	0.99	sand	ⅡaとⅡbの境界型
4	1.94 (0.260)	8.035	1.36	0.92	sand	Ⅱb型
5	5.64 (0.02)	92.827	1.26	1.15	silt	Ⅲb型
6	6.64 (0.01)	96.986	1.33	1.21	silt	Ⅲb型
7	1.37 (0.388)	3.307	1.44	1.01	sand	ⅡaとⅡbの境界型
8	3.16 (0.112)	31.866	3.09	0.28	silty sand	Ⅲa型
9	6.11 (0.0145)	74.076	2.66	3.10	sandy silt	Ⅲb型
10	5.76 (0.0184)	87.598	1.49	1.14	silt	Ⅲb型

* 表1の沈泥と粘土の含有率を加算した値(粒径4φ以上の含有率)

** sand-silt-clay ratioによる分類

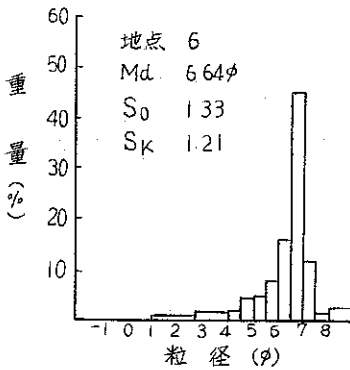


図-2 粒径ヒストグラム

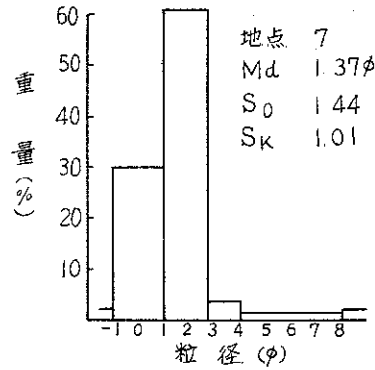


図-3 粒径ヒストグラム

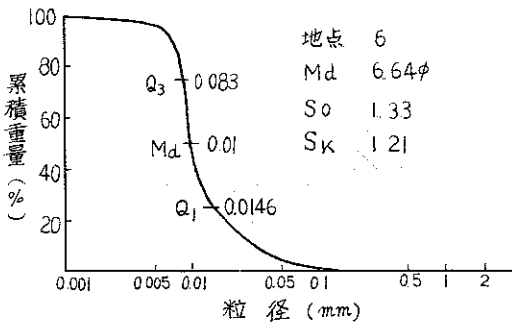


図-4 重量分布累積曲線

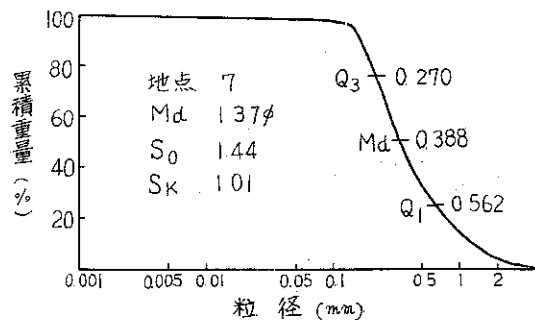


図-5 重量分布累積曲線

礫	砂 (sand)					沈泥 (silt)				粘土
礫 gravel	極粗砂 very coarse sand	粗砂 coarse sand	中砂 mediate sand	細砂 fine sand	極細砂 very fine sand	粗シルト randy silt	中シルト mediate silt	細シルト fine silt	極細シルト very fine silt	粘土 clay
φ単位	-1	0	1	2	3	4	5	6	7	8
mm単位	2	1	0.5	0.25	0.125	0.0625	0.0313	0.0156	0.0078	0.0039

図-6 Wentworth の分類図

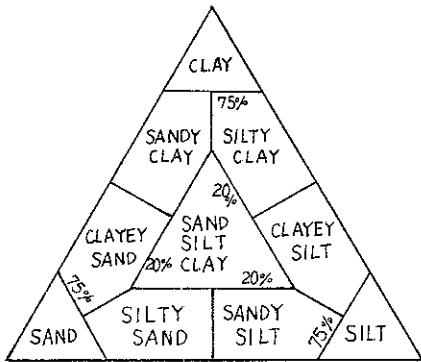


図-7 Shepard の三角座標図

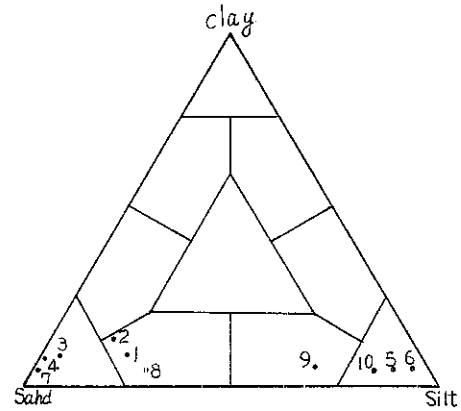


図-8 sand-silt-clay ratioによる堆積物の分類

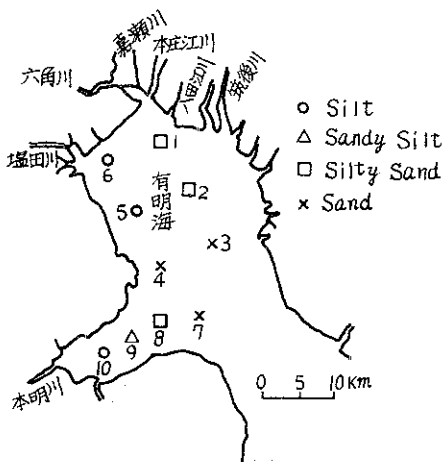


図-9 sand-silt-clay ratioによる堆積物の分類

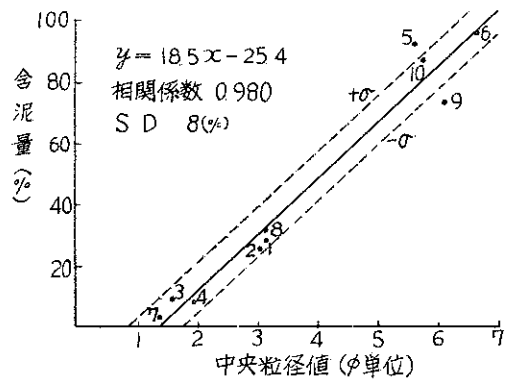


図-10 中央粒径値と含泥量の相関

(2) 強熱減量

乾土の強熱減量測定により得られた有機物、CO₂、CaCO₃ 換算値の重量%及び粒径組成の分析による中央粒径値と含泥量の測定結果を表3に示す。

粒径組成の代表値である中央粒径値と含泥量(%)との間には強い相関があることはすでにわかっている(図10)。そこで、粒径組成の代表値を含泥量(%)におきかえ、これと強熱減量との相関関係を考察する。

① 有機物と含泥量との相関

有機物(%)と含泥量(%)との間には、直線関係の正相関があり、相関係数は0.966と高い相関となっている(図11)。

このことは、海底堆積物中における有機物の蓄積が粒径の細粒化に伴い増加することを示している(図12)。

② 炭酸塩分解によるCO₂と含泥量との相関

10試料全部のデータを用いたものでは、相関係数が最も高い指数関数関係のときでも相関係数は-0.380と低い逆相関となっている。しかし、含泥量30%を境にして2つのグループに分けると、グル

ープ内では強い逆相関をもつようになる(図13)。

このことは、炭酸塩分解によるCO₂(%)すなわち無機物の含有量と有機物の含有量とが含泥量30%を境にして強い逆相関をもつことを示している。(図14)。

表-3 堆積物の強熱減量

採取地点	中央粒径値(φ単位)	含泥量(%)	有機物(%)	* CO ₂ (%)	** CaCO ₃ (%)
1	3.16	27.814	4.91	0.79	1.80
2	3.04	25.960	5.23	0.88	2.00
3	1.62	9.017	4.38	2.08	4.73
4	1.94	8.035	4.20	1.70	3.86
5	5.64	92.827	11.65	1.59	3.61
6	6.64	96.986	11.47	1.77	4.02
7	1.37	3.307	3.60	4.69	10.66
8	3.16	31.866	8.43	4.08	9.27
9	6.11	74.076	11.09	1.91	4.34
10	5.76	87.598	11.63	2.71	6.16

* 炭酸塩分解によるCO₂の減量分。

** CO₂(%)を0.44で除算しCaCO₃換算値で表示。

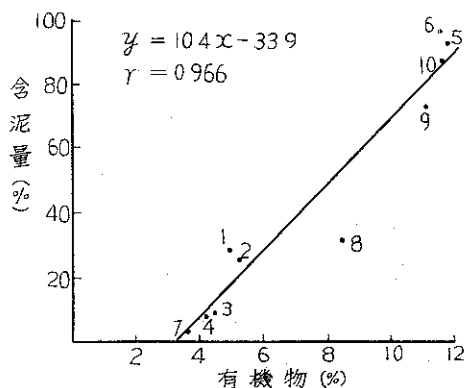


図-11 有機物と含泥量の相関

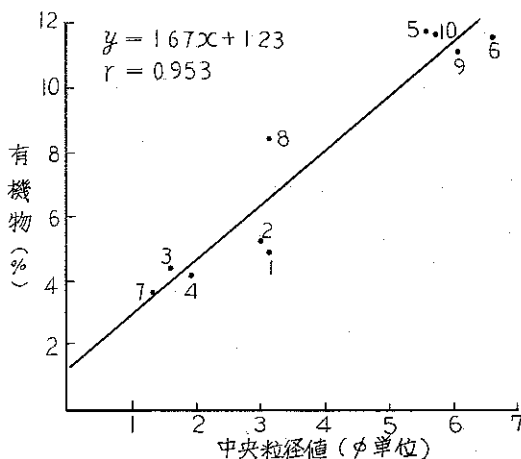


図-12 中央粒径値と有機物の相関

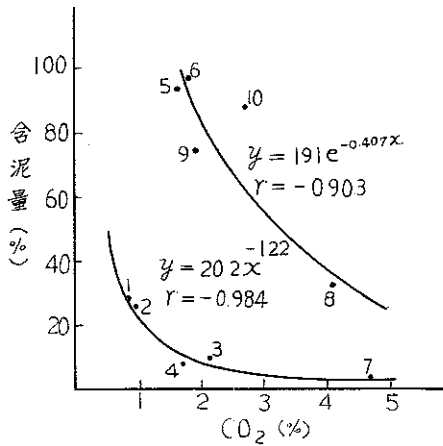


図-13 CO₂と含泥量の相関

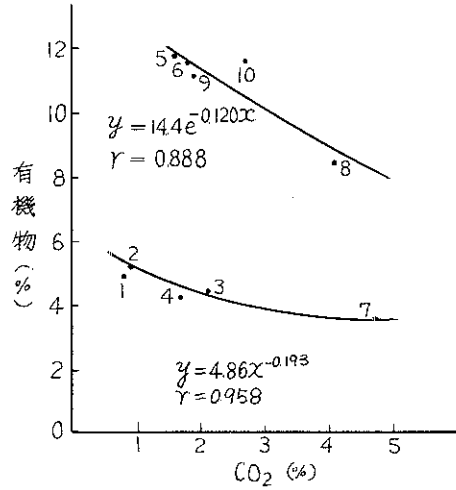


図-14 CO₂と有機物との相関

(3) 放射能測定

① 全β放射能

各粒径別の測定結果を表4に示す。

粒径0.5mm以上の全地点の平均値が他の粒径よりも低い値となっているが、これは貝殻の混入によると思われる。特に地点1, 5, 8, 9, 10での貝殻の混入が著しい。

粒径0.5mm以下のものについては、0.149~0.5mmと0.044mm以下のものが少し高い値となっているが、他の粒径のものと比較して著しい差は見られなかった。

全粒径を含む全β放射能に各粒径ごとの全β放射能がどの程度寄与しているかを逐次選択法による重回帰分析によって調べた。

粒径の大きい方から説明変数 $x_1 \sim x_6$ とし、全粒径を含むものを目的変数 y とする。

$$\text{重回帰式 } y = 7.13 + 0.20x_3 + 0.38x_5$$

$$\text{基準化した重回帰式 } y^* = 0.49x_3^* + 0.65x_5^*$$

重相関係数 0.88 寄与率 78(%) 分散比 12

x_3 : 粒径0.149~0.5mmの全β放射能 (pci/g乾)

x_5 : 粒径0.044~0.063mmの全β放射能 (pci/g乾)

y : 全粒径を含む全β放射能 (pci/g乾)

寄与の程度 $x_5 > x_3 > x_1, x_2, x_4, x_6$

次に、全粒径を含む全β放射能と各採取地点の堆積物の中央粒径値(φ単位)との相関係数は0.14と小さく、全β放射能と粒径との相関は弱い。

全β放射能が粒径に依存しないのは、全β放射能の大部分が⁴⁰Kによって構成されており(表5)、この核種がもともと海底堆積物の構成物質であり、粒径の細粒化に伴い蓄積される物質ではないためである。

② 核種分析

全粒径を含む海底堆積物の核種分析結果を表5に、また各放射性核種と中央粒径値との相互関係についての相関行列を表6に示す。

¹³⁷Csはもともと堆積物の構成物質ではなく、核実験によって大気中に拡散したものが降下し堆積物に蓄積されたものである。

fall-out起源の¹³⁷Csと中央粒径値との相関係数は0.95で高い相関をもつ(図15)。このことは、堆積物への¹³⁷Csの蓄積量が堆積物の粒径の細粒化に伴い増加することを示す。

表-4 粒径別全β放射能

単位: pci/g 乾

採取地点 \ 粒径	2 mm以上	0.5 ~ 2 mm	0.149 ~ 0.5 mm	0.063 ~ 0.149 mm	0.044 ~ 0.063 mm	0.044 mm 以下	全粒径を含む	含有重量%による荷重平均
1	1.93	14.88	22.02	15.77	17.43	18.80	18.21	18.76
2	6.73	13.72	21.14	19.09	16.85	18.21	17.33	19.49
3	7.86	15.72	16.11	14.37	12.12	18.69	14.31	16.07
4	14.36	14.66	19.20	12.44	12.78	16.90	15.87	17.80
5	-	1.87	15.89	19.68	14.66	13.11	16.65	13.47
6	-	-	18.11	17.17	16.30	16.69	17.14	16.69
7	8.57	15.62	13.76	10.86	17.59	20.84	16.06	14.33
8	1.12	2.35	14.34	13.18	16.37	17.34	16.65	14.66
9	1.40	1.05	15.21	16.28	13.66	17.15	15.38	16.55
10	1.81	1.19	16.47	17.15	15.89	16.28	15.48	15.74
平均値	5.47	9.01	17.23	15.60	15.37	17.40	16.31	16.36
変動係数(%)	87	78	16	18	13	12	7	12

堆積物の構成物質である⁴⁰Kと中央粒径値との相関係数は-0.20と低く、このことが前述した全β放射能と中央粒径値との相関が低い原因となっている。

トリウム系核種の²¹²Pb, ²⁰⁸Tl及びウラン系核種の²¹⁴Pbと中央粒径値との相関係数はそれぞれ0.87と0.78及び0.72となり、ある程度の相関がある。このことは以下のように推定される。

トリウム系の親核種²³²Th及びウラン系の親核種²³⁸Uは、もともと堆積物の構成物質であり、これらが放射性壊変によって途中気体状の²²⁰Rn(トロンガス)及び²²²Rn(ラドンガス)の過程を経て娘核種の²¹²Pd, ²⁰⁸Tl, ²¹⁴Pbを生成する。

この途中過程の²²⁰Rnと²²²Rnは一部海水中に放出され、海水中で²¹²Pb, ²⁰⁸Tl, ²¹⁴Pbが生成される。堆積物の粒径の細粒化に伴い、海水中のこれらの核種の堆積物への蓄積量が増加する。

次に、採取地点2の粒径別核種分析結果を表7に示す。

¹³⁷Csについては、大部分が粒径0.063mm以下の細かい粒子に蓄積されている。

²¹²Pb, ²⁰⁸Tl, ²¹⁴Pbについては、粒径0.063mm以下の値が他の粒径にくらべて高く、これらの核種が堆積物の細かい粒子に蓄積される傾向を示している。

全粒径を含む¹³⁷Csに対して0.063mm以下の各粒径ごとの含有重量%がどの程度寄与しているかを逐次選択法による重回帰分析によって調べた。

$$\text{重回帰式 } y = 8.86 - 4.23x_1 + 2.97x_2 + 1.46x_3 + 6.15x_4 + 6.90x_5$$

$$\text{基準化した重回帰式 } y^* = -0.24x_1^* + 0.84x_2^* + 0.38x_3^* + 0.45x_4^* + 0.29x_5^*$$

重相関係数0.99 寄与率98(%) 分散比40

x_1 : 粒径0.031 ~ 0.063 mmの含有重量%

x_2 : 粒径0.016 ~ 0.031 mmの含有重量%

x_3 : 粒径0.008 ~ 0.016 mmの含有重量%

x_4 : 粒径0.004 ~ 0.008 mmの含有重量%

x_5 : 粒径0.004 mm以下

寄与の程度 $x_2 > x_4 > x_3 > x_5 > x_1$

表-5 核種分析と中央粒径値の測定結果

単位:pci/kg乾

採取地点 \ 核種	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K	²²⁸ Ac	²¹² Pb	²⁰⁸ Tl	²¹⁴ Pb	²¹⁴ Bi	全β	中央粒径値(φ単位)	含泥量(%)
1	73	11,141	614	476	502	292	286	18,210	3.16	27.8
2	104	12,276	556	467	353	303	327	17,330	3.04	26.0
3	68	11,635	413	282	194	164	197	14,310	1.62	9.0
4	30	11,200	415	355	341	233	222	15,870	1.94	8.0
5	223	10,979	789	687	692	237	329	16,650	5.64	92.8
6	211	10,741	562	646	540	309	297	17,140	6.64	97.0
7	17	9,151	563	309	238	211	201	16,060	1.37	3.3
8	92	9,898	690	508	535	275	320	16,650	3.16	31.9
9	165	10,232	555	478	493	368	336	15,380	6.11	74.1
10	183	9,100	704	610	501	328	242	15,480	5.76	87.6
平均値	117	10,635	586	482	439	272	276	16,308	3.84	45.8
変動係数(%)	64	10	20	29	35	22	20	7	52	83

表-6 相関行列表

	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K	²²⁸ Ac	²¹² Pb	²⁰⁸ Tl	²¹⁴ Pb	²¹⁴ Bi	Mdφ	含泥量	全β
¹³⁷ Cs										
⁴⁰ K	-0.07									
²²⁸ Ac	0.60	-0.40								
²¹² Pb	0.90	-0.13	0.78							
²⁰⁸ Tl	0.78	-0.14	0.80	0.92						
²¹⁴ Pb	0.53	-0.20	0.34	0.56	0.54					
²¹⁴ Bi	0.60	0.21	0.54	0.66	0.75	0.66				
Mdφ	0.95	-0.20	0.54	0.87	0.78	0.72	0.61			
含泥量	0.98	-0.23	0.61	0.91	0.80	0.60	0.54	0.98		
全β	0.09	0.23	0.38	0.42	0.46	0.33	0.53	0.14	0.10	

※ Mdφ : 中央粒径値 (φ単位)

表-7 粒径別核種分析 (採取地点2)

単位:pci/kg乾

粒径 mm単位	核種 φ単位	¹³⁷ Cs	⁴⁰ K	²²⁸ Ac	²¹² Pb	²⁰⁸ Tl	²¹⁴ Pb	²¹⁴ Bi	全β	含有重量(%)
		0.5 } 2	-1 } 1	ND	10,698	251	305	256	167	145
0.149 } 0.5	1 } 2.75	39	13,936	634	396	351	284	337	21,140	37.6
0.063 } 0.149	2.75 } 4	ND	9,940	538	427	383	278	347	19,090	34.7
0.063 以下	4以上	217	11,714	688	701	770	413	392	-	26.0

※ NDは検出限界以下

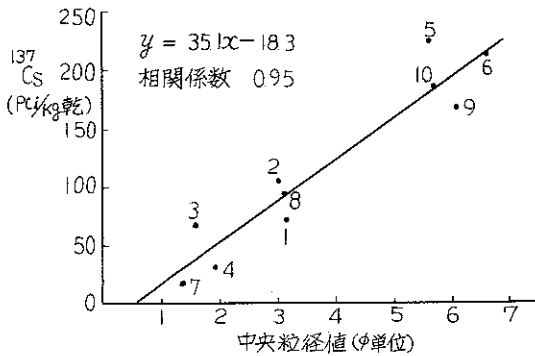


図-15 中央粒径値と¹³⁷Csの相関

4 まとめ

粒径組成の分析結果においては、有明海という同一湾内においてもさまざまな粒径組成の海底堆積物が存在し、地点5、6、10でsilt、地点9でsandy silt、地点1、2、8でsilty sand、地点3、4、7でsandであった。

参考文献

- (1) 鎌田泰彦、西岡幸一：堆積物の粒度分析法の再検討と電算機による数値処理
- (2) 鎌田泰彦、西岡幸一、木寺久美子：長崎県諫早湾の干潟堆積物の強熱減量
- (3) 鎌田泰彦：有明海の海底堆積物
- (4) 井上尚文：橘湾の海底地形の概要と堆積物の粒径分布

強熱減量の分析結果により、海底堆積物への有機物の蓄積量が堆積物の粒径が小さくなるほど増加することがわかった。

海底堆積物の全β放射能と粒径との間には相関はみられなかった。

fall-out 起源の¹³⁷Csと中央粒径値の間には高い相関があり、海底堆積物への¹³⁷Csの蓄積量が堆積物の粒径の細粒化に伴い増加し、しかもその蓄積の大部分が粒径0.063 mm以下の細かい粒子部分で起こっている。

²¹²Pb、²⁰⁸Tl、²¹⁴Pbにおいても、海底堆積物の粒径の細粒化に伴い蓄積量の増加が考えられる。

粒径0.004 mm以下の粒径組成の分析、粒径別核種分析の測定データの収集、海底堆積物の粒子表面積及び吸着能力の測定等について更に検討を必要とする。