

柏崎刈羽原子力発電所周辺における海底土の 粒度分布と放射能濃度

猪狩善三郎・殿内 重政・葉茸 久尚

Particle size distribution and radioactivity concentration in sea sediment around
Kashiwazaki-Kariwa Nuclear Power Station

Zenzaburou Igari, Shigemasa Tonouchi and Hisanao Habuki

As for the sea sediment at 28 points around Kashiwazaki-Kariwa Nuclear Power Station, the particle size distribution and the ignition loss were measured, and their relation with the radioactivity concentration was investigated.

As the results, this sea area consists of sandy soil, in which the proportion of the sand having the particle size of 0.063 ~ 0.5 mm takes nearly 90 %, and as water depth was deeper, and on the south side of the investigation areas, finer particles increased. Besides, the ignition loss was about 1 % .

As for the natural radionuclides, the ranges of concentration of ^{238}U , ^{232}Th , and ^{40}K were 7.3 ~ 67, 12 ~ 100 and 260 ~ 560 Bq/kg dry, and the mean values were 20, 29 and 390 Bq/kg dry. Among them, the concentration of ^{238}U and ^{232}Th became high at the points on the south side of the breakwaters where fine particles are more. As for the concentration of the artificial radionuclides, $^{239+240}\text{Pu}$ was detected at all the points, and ^{137}Cs was detected at a part of the points. The range of concentration of $^{239+240}\text{Pu}$ was 0.054 ~ 0.34 Bq/kg dry, and the mean value became 0.19 Bq/kg dry.

1 はじめに

新潟県は柏崎刈羽原子力発電所周辺環境放射線監視調査の一環として、発電所周辺の海底土中の放射能調査を実施してきたが、放射性核種濃度に地点間の差がみられている。

他県の調査によれば、海底土中の人工放射性核種濃度は、粒子の大きさや強熱減量など海底土の物理化学的性状によって大きく異なり、粒子の細かいシルトや粘土の割合が多くて表面積が大きく、有機物が多いところに放射性物質が蓄積されるといわれている¹⁻⁴⁾。したがって、

海底土の放射能を調査していくうえで粒度分布及び強熱減量を把握することは重要なことと考える。

今回、柏崎刈羽原子力発電所周辺における従来の監視調査地点に加えて、その周辺海底土の粒度分布及び強熱減量を分析し、海底土中の天然及び人工放射性核種濃度と粒度分布等との関連について調査したので報告する。

2 調査方法

2.1 試料採取地点

海底土の調査地点をFig.1に示す。調査地点は原子力発電所の南及び北放水口の地点及びそれからそれぞれ

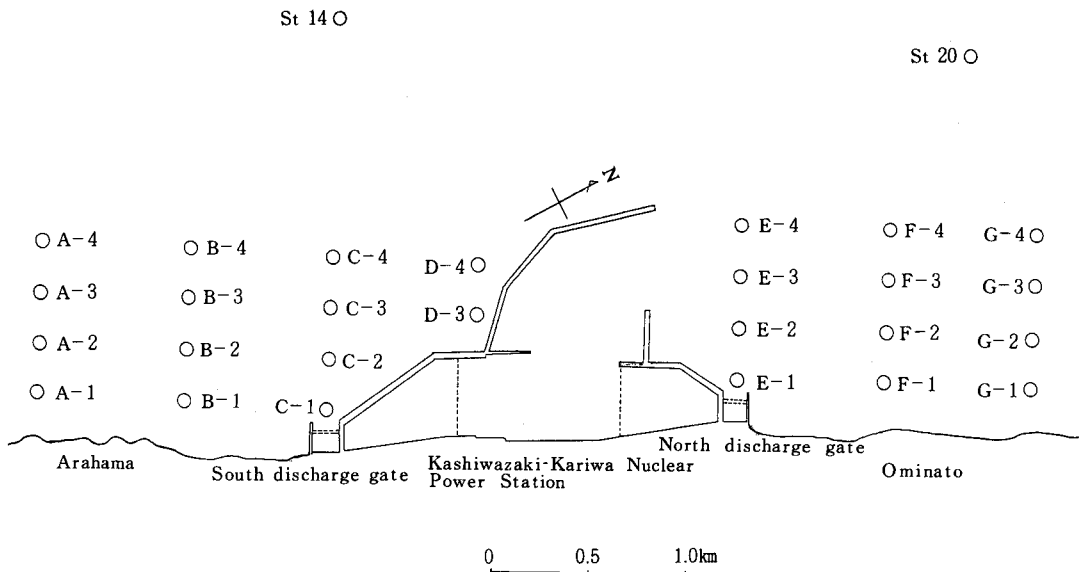


Fig.1 Points of investigation

南西と北東方向の海岸沿いに0.75, 1.5 kmの地点で、海岸線から沖合いに向かって0.25, 0.5, 0.75, 1.0 kmの地点とした。なお、発電所の防波堤内は除いた。これらの調査地点名は南側よりA, B, C, D, E, F, Gとし、海岸線から沖合いに向かってそれぞれ1, 2, 3, 4とした。なお、これらの地点のうちC-1及びE-1は従来からの監視調査地点であり、更に、残りの監視調査地点であるSt14及びSt20も今回の調査地点に加えた。

2.2 試料採取方法

St14とSt20を除く調査地点の水深は4.5~13 mであり、海底土の採取は潜水夫によりソリ型採砂器で海底の表層から約5 cmまでの砂を採取した。St14とSt20は水深20 mで、ソリ型採砂器での採取が困難であることからスミスマッキンタイヤ型採泥器を用いて採取した。試料採取は1993年9~10月に実施した。

2.3 粒度分析

採取した海底土は、105℃で48時間乾燥し、その後、2 mmメッシュのふるいを通したものを分析試料とした。

粒径別分画にはステンレス製ふるいを装着した電磁式ふるい振とう器を用いた。粒径別は沿岸環境調査マニュアル⁵⁾により0.063 mm未満(シルト), 0.063~0.125 mm(極細砂), 0.125~0.25 mm(細砂), 0.25~0.5 mm(中砂), 0.5~1.0 mm(粗砂), 1.0~2.0 mm(極粗砂)の6分画とした。

2.4 強熱減量

強熱減量は「底質調査法」⁶⁾に準拠し、600±25℃で約2時間強熱した後の減量分とした。

2.5 放射性核種濃度の測定

γ 線放出核種の測定は、試料約100 gをU-8容器に

詰めて精秤し、相対効率40%のゲルマニウム半導体検出器で80,000秒測定し、「ゲルマニウム半導体検出器を用いた機器分析法」⁷⁾に準じて定量した。なお、自然放射性核種の ^{238}U と ^{232}Th の濃度については、放射平衡を仮定して ^{238}U 濃度については ^{214}Bi 濃度から、 ^{232}Th 濃度については ^{228}Ac 濃度から求めた。

Puの測定は、試料約40 gに ^{242}Pu (約1 dpm)をトレーサとして添加し、「プルトニウム分析法」⁸⁾に準拠して硝酸抽出-陰イオン交換分離後、ステンレス板に電着し、シリコン半導体検出器を用いた α 線スペクトロメトリーによって300,000秒測定して定量した。

^{239}Pu と ^{240}Pu はそれぞれの放出する α 線のエネルギーが近接して分離できないため両者を併せて $^{239+240}\text{Pu}$ として定量した。

検出下限値はそれぞれ計数誤差の3倍とした。

3 結果と考察

3.1 粒度分布及び強熱減量

調査海域での各地点の粒度分布の測定結果をFig.2に示す。

調査地点のほとんどで「細砂」が50~80%と大きな割合を占め、次に「極細砂」, 「中砂」の順に多く、これらでほぼ90%を占める砂質土であった。また、強熱減量については砂質土であることから0.6~3.2%の範囲と少なく、平均値は1.1%であった。

各地点の粒度分布で「シルト」, 「粗砂」, 「極粗砂」の割合が少ないことから、Table 1に0.125 mm未満(極細砂以下), 0.125~0.25 mm(細砂), 0.25~2.0 mm(中砂以上)

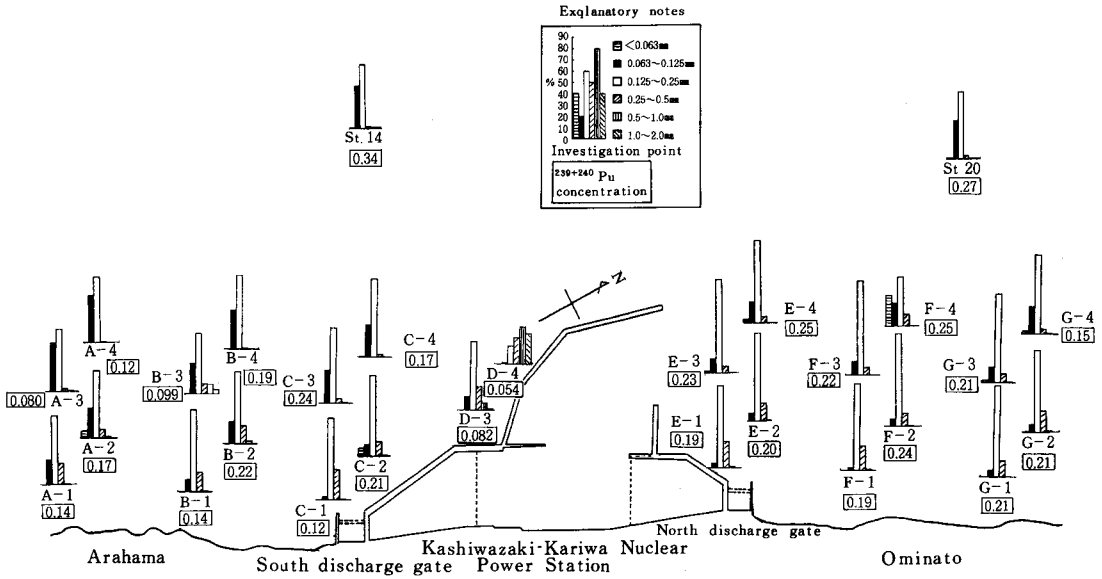


Fig.2 Particle size distribution and ²³⁹⁺²⁴⁰Pu concentration

Table1 Particle size distribution, ignition loss and radionuclide concentration at investigation points

Investigation Point	Water depth (m)	Particle size distribution(%)			Ignition loss (%)	Radionuclide concentration(Bq/kg dry)			
		Very fine sand and smaller (<0.125mm)	Fine sand (0.125~0.25mm)	Medium sand and larger (0.25~2.0mm)		U- 238	Th- 232	K-40	Pu- 239+ 240
A-1	5.4	21.8	59.5	18.7	0.6	27	41	270	0.14
A-2	7.8	32.6	58.3	9.1	0.9	34	47	310	0.17
A-3	9.8	42.4	53.7	3.9	0.6	67	100	290	0.080
A-4	11.9	41.9	57.0	1.1	0.6	55	78	340	0.12
B-1	5.6	10.9	71.3	17.8	0.9	7.6	12	400	0.14
B-2	7.0	19.6	62.3	18.1	1.0	22	35	360	0.22
B-3	9.5	26.6	52.2	21.2	0.8	33	57	380	0.099
B-4	11.7	34.9	64.1	1.0	1.1	33	46	380	0.19
C-1	4.5	2.9	70.6	26.5	0.7	7.3	13	260	0.12
C-2	6.8	17.1	69.6	13.3	1.0	7.6	14	390	0.21
C-3	6.8	29.2	65.4	5.4	0.9	11	21	430	0.24
C-4	11.8	29.2	68.0	2.8	1.2	22	30	370	0.17
D-3	9.5	12.3	59.6	28.1	1.0	21	32	320	0.082
D-4	12.0	1.6	15.8	82.6	0.9	11	16	450	0.054
E-1	5.0	4.7	71.6	23.7	1.1	10	17	430	0.19
E-2	6.5	7.4	76.5	16.1	0.9	7.5	14	430	0.20
E-3	9.0	14.0	80.4	5.6	1.2	12	15	460	0.23
E-4	11.5	22.1	71.9	6.0	1.7	14	18	480	0.25
F-1	4.0	2.7	75.5	21.8	0.9	11	15	430	0.19
F-2	6.5	6.9	80.6	12.5	1.2	12	20	450	0.24
F-3	8.7	12.2	81.1	6.7	1.1	14	17	400	0.22
F-4	13.0	47.0	42.4	10.6	3.2	15	17	560	0.25
G-1	5.8	6.2	79.4	14.4	1.0	8.7	15	430	0.21
G-2	6.1	8.2	71.6	20.2	0.8	11	18	370	0.21
G-3	9.5	15.3	76.4	8.3	1.0	17	24	350	0.21
G-4	11.3	26.1	68.7	5.2	1.3	13	17	450	0.15
St 14	20.0	39.0	56.5	4.5	1.4	26	31	400	0.34
St 20	20.0	36.1	60.0	3.9	1.5	29	37	450	0.27
Mean value	9.2	20.4	65.0	14.6	1.1	20	29	390	0.19
Maximum value	20.0	47.0	81.1	82.6	3.2	67	100	560	0.34
Minimum value	4.0	1.6	15.8	1.0	0.6	7.3	12	260	0.054

の3分画に分けた割合, 強熱減量及び放射性核種濃度を示す。

粒度分布は, 水深が深くなるほど「極細砂以下」の割合が多くなる傾向にあった。防波堤より1と2の調査地点がないDを除いて, A~Gの沿岸寄りの1の地点と水深が深い4の地点の平均値で比較すると, 「極細砂以下」の割合は1の8.2%に対して4では33.5%と多くなり, 「細砂」の割合はそれほど変わらず, 「中砂以上」の割合は1の20.5%に対し4では4.5%と少なくなった。これは水深が浅い所では砂が波に洗われて, 「極細砂以下」の細かい粒子が深い方に流出したことなどによるものと考えられた。

また, 発電所の防波堤をはさんで南側と北側の粒度分布を「極細砂以下」の割合で比較すると, 南側と北側の平均値はそれぞれ23.1及び14.4%と南側の方が高くなり, また, 南側の中でもA, B, C, Dの「極細砂以下」の平均値はそれぞれ34.7, 23.0, 19.6, 7.0%と, より南側のAが最も高く, 続いてB, C, Dの順になった。これは, この海域が年間を通じて北東に流れる対馬海流が流れていることから, 「極細砂以下」の粒子の割合はAより南西側にある鯖石川(Aより南西2.2km)や鶴川(Aより南西5.2km)の影響を受けていることが推察された。

特異的な傾向を示した地点はD-4とF-4で, D-4は「中砂以上」の割合が82.6%と多く, また, F-4は他の地点の「シルト」の割合が0~6.8%に対して26.9%と多かった。

また, C-1及びE-1はそれぞれ発電所の冷却水が流れ出る南及び北放水口付近に位置している。C-1とE-

1の「極細砂以下」の割合をそれぞれ近接する調査地点と比較すると, C-1が2.9%で, C-2, B-1がそれぞれ17.1, 10.9%と差が大きいものに対して, E-1は4.7%で, E-2, F-1がそれぞれ7.4, 2.7%と差が小さかった。この理由としては, それぞれの放水口からの放水量が影響していると考えられた。南放水口からは1984年12月に1号機の冷却水が放水開始されて以来, 順次, 2, 3号機の冷却水が放水され, 現在234 m³/秒放水されている。一方, 北放水口からは5号機の冷却水が1989年7月以降78 m³/秒放水されている。このことから, C-1では南放水口からの放水量が多いことにより「極細砂以下」の粒子が流出したのに対して, E-1では北放水口からの放水量が少なく, 影響が少なかったものと考えられた。

1974年に実施された調査⁹⁾によれば, 当海域は海底勾配が1/100と緩やかで, 沖合い3.7 kmまでの海底土は「細砂」, 「極細砂」の割合が多くて, 「シルト」の割合が少ない典型的な砂質海域と報告しており, 今回の調査結果はこれを裏付けていると考えられる。

3.2 海底土中の放射性核種濃度

3.2.1 自然放射性核種濃度

海底土中の自然放射性核種の²³⁸U, ²³²Th, 及び⁴⁰Kの濃度範囲はそれぞれ7.3~67, 12~100, 260~560 Bq/kg乾であり, 平均値はそれぞれ20, 29, 390 Bq/kg乾であった。⁴⁰Kの濃度は, 地点間の差が2倍程度であったが, ²³⁸Uと²³²Thの濃度は10倍ほどの差がみられた。また, ²³⁸Uと²³²Thの濃度は相関性が高かった(r = 0.99, n = 28)。

²³⁸U, ²³²Th, 及び⁴⁰Kの濃度分布をFig.3に示す。

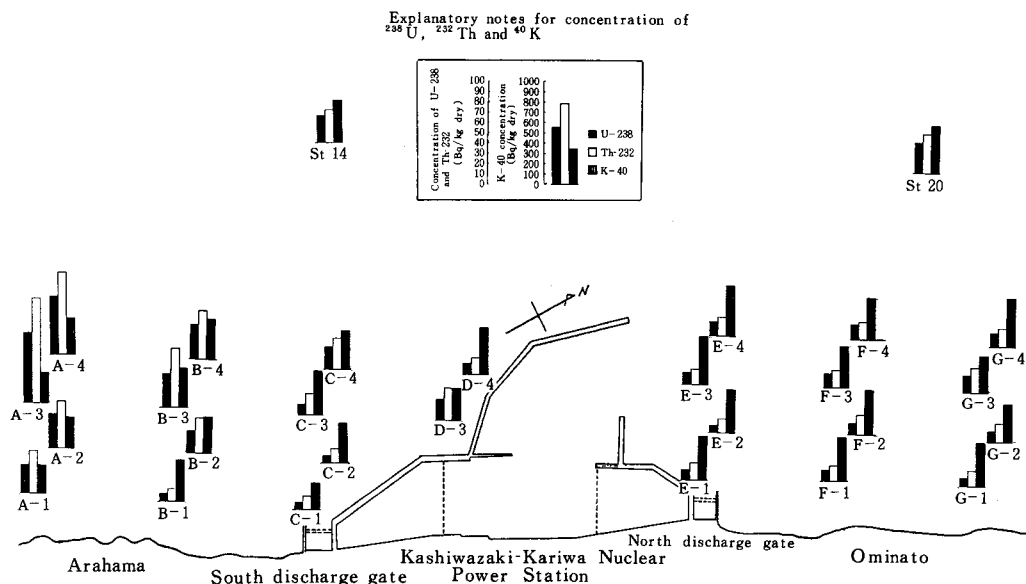


Fig.3 Concentration distribution of ²³⁸U, ²³²Th and ⁴⁰K

Table 2 Radionuclide concentration classified by investigation points and particle size
Unit: Bq/kg dry

Investigation point Radionuclide	A-3			E-2			B-3	F-2
	U-238	Th-232	K-40	U-238	Th-232	K-40	Pu-239+240	Pu-239+240
Very fine sand and smaller (< 0.125 mm)	150	240	120	60	83	170	0.13	0.34
Fine sand (0.125 ~ 0.25 mm)	10	14	360	9.4	14	350	0.068	0.23
Medium sand and larger (0.25 ~ 2.0 mm)	16	36	480	11	14	480	0.031	0.21
Mean concentration	67	100	290	7.5	14	430	0.099	0.24

沿岸から1 kmの調査区域で ^{238}U と ^{232}Th の濃度のそれぞれの平均値を上回る地点は、A-1~4、B-2~4、C-4、D-3と南側で多くなり、これらは「極細砂以下」の割合が多くなるほど濃度が高くなった。一方、平均値を下回る地点は、防波堤の近くと北側に多くなり、この区域では「極細砂以下」の割合が多いF-4でも濃度は高くはなかった。

粒径と濃度の関連をみるため、 ^{238}U と ^{232}Th が高濃度のA-3と低濃度のE-2の地点について粒径を「極細砂以下」、「細砂」、「中砂以上」の3分画に分けて自然放射性核種濃度を調査した。結果をTable 2に示す。それぞれの放射能濃度を比較すると、 ^{40}K は粒径が小さくなるほど低くなる傾向となり、地点間の差はみられなかった。一方、 ^{238}U と ^{232}Th の濃度は「細砂」と「中砂以上」では粒径間及び地点間にあまり差がみられないが、「極細砂以下」では両地点とも ^{238}U と ^{232}Th の濃度が高くなり、また、地点間にも差がみられた。即ち、E-2の「極細砂以下」の ^{238}U と ^{232}Th の濃度が共に「細砂」及び「中砂以上」の濃度の平均値の約6倍なのに対して、A-3では7~17倍程度となっており、両核種ともA-3で高くなった。

3.2.2 人工放射性核種濃度

人工放射性核種は $^{239+240}\text{Pu}$ が全地点で、 ^{137}Cs がE-4とF-4で検出された。

沿岸1 kmの調査区域での $^{239+240}\text{Pu}$ の濃度範囲は0.054~0.25 Bq/kg乾であり、平均値は0.18 Bq/kg乾であった。それぞれの濃度をTable 1に、濃度分布はFig. 2に示す。

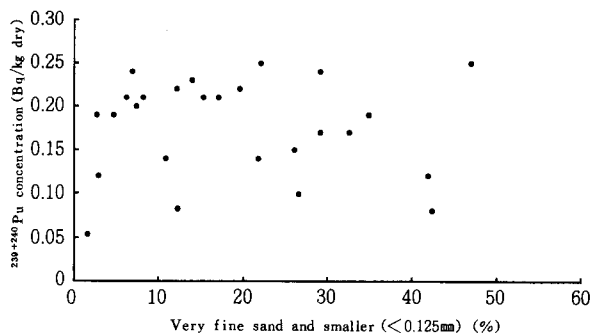
$^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は海底土の粒子の表面積や有機物量に関係があることが報告^{2,3)}されている。 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と粒度分布の関連をみると、最小値は「中砂以上」の割合が多かったD-4で、最大値は「シルト」の割合が多かったF-4であったが、「極細砂以下」の割合が多かったA-3、4及びB-3では濃度が低く、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と「極細砂以下」の割合の相関をみるとFig. 4に示すように関連性はみられなかった($r = -0.023$, $n = 26$)。また、強熱減量はF-4で最大値(平均値の3倍)を示したが、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度は0.25 Bq/kg乾で、他の地点と比較しても特に高い値ではなかった。

また、粒径と濃度の関連をみるため、南側のB-3と北側のF-2について粒径を自然放射性核種同様3分画に分けて $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度を調査した。結果はTable 2に示すように、自然放射性核種でみた ^{238}U 及び ^{232}Th のように「極細砂以下」の濃度が極端に高値を示すようなことはなく、粒径が小さくなるに従い濃度が徐々に高くなる傾向を示し、これらの濃度は粒径すなわち表面積に依存する傾向が推察された。

今回の調査結果を他の海域レベル¹⁰⁾と比較すると同程度かまたは下回っており、また、1984年に実施した環境放射線監視調査の事前調査¹¹⁾におけるC-1の $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の平均値が0.18 Bq/kg乾であることから考えて、海底土におけるPuはほとんどが1980年までに実施された過去の大気圏内核実験の影響によるものと考えられた。

St 14及びSt 20の調査結果はそれぞれ0.34、0.27 Bq/kg乾であった。St 14における1978~1989年の試料で平均値が0.52 Bq/kg乾、また、この海域の沖合い7 kmで水深約90 mの地点では1971~1982年の試料で平均値が1.5 Bq/kg乾の報告¹²⁾があり、これらと比較すると今回の調査結果は低い値であった。

一方、 ^{137}Cs はE-4とF-4でそれぞれ0.88、2.6 Bq/kg乾検出された。 ^{137}Cs は海底土粒子の表面に吸着されやすく³⁾、また、有機物量とも相関があるといわれている⁴⁾。今回の調査で高い値を示したF-4は、他の調査地点と比べて「シルト」及び強熱減量が特に多かったことが寄与したのと考えられた。また、E-4は「極細砂以下」

Fig. 4 $^{239+240}\text{Pu}$ concentration vs very fine sand and smaller

の割合が平均値よりも若干多く、強熱減量はF-4に次いで二番目に多い調査地点であった。

今回の機器分析による検出下限値は約0.85Bq/kg乾であり、ほとんどの試料がそれ未満であった。なお、1986年に行った放射化学分析法による結果¹⁹⁾では、C-1, St 14, 及びSt 20の平均値はそれぞれ0.37Bq/kg乾と低い値で検出されていた。

4 ま と め

柏崎刈羽原子力発電所周辺における28地点の海底土について、粒度分布と強熱減量の分析及び放射能の核種分析をして、粒度分布等の把握及び粒度分布等と放射性核種濃度との関連をみた。

その結果、次のことがわかった。

(1) 海底土の粒度分布は、調査地点のほとんどが「極細砂」、「細砂」、「中砂」でほぼ9割を占める砂質土であった。「極細砂以下」の粒子は水深が深いほど、また、防波堤の北側よりも南側で多かった。

強熱減量は、調査地点のほとんどが1%前後であった。

(2) 発電所南放水口付近では、南放水口からの放水量が多いことから、「極細砂以下」の粒子が流出したものと考えられた。

(3) 海底土中の自然放射性核種の²³⁸U, ²³²Th, ⁴⁰Kの濃度範囲はそれぞれ7.3~67, 12~100, 260~560Bq/kg乾であり、平均値はそれぞれ20, 29, 390Bq/kg乾であった。このうち、²³⁸Uと²³²Thの濃度は、防波堤から南側の「極細砂以下」の割合が多かった地点で高かった。また、2地点で粒径と濃度の関連をみたところ、両地点とも⁴⁰Kは粒径が小さくなるほど低くなり、²³⁸U及び²³²Thは「極細砂以下」で濃度が特に高くなって地点間にも差がみられた。

(4) 海底土中の人工放射性核種は²³⁹⁺²⁴⁰Puが全地点で、¹³⁷Csが一部の地点で検出され、これらの人工放射性核種は、過去の大気圏内の核実験で放出されたものと考え

られた。沿岸1km範囲での²³⁹⁺²⁴⁰Pu濃度範囲は0.054~0.25Bq/kg乾であり、平均値は0.18Bq/kg乾であった。全地点での濃度については、粒度分布や強熱減量と関連がみられなかった。しかし、2地点で粒径と濃度の関連をみたところ、粒径が小さくなるほど濃度が高くなる傾向が認められた。

文 献

- 1) 佐伯誠道編：環境放射能，p.247(1984)，(ソフトサイエンス社)。
- 2) 山本政儀，北川貞治：福井県衛生研究所調査研究報告，14，30(1978)。
- 3) 森田茂樹：茨城県公害技術センター研究報告，1，107(1989)。
- 4) 石川陽一，佐藤信俊：宮城県原子力センター年報，7，16(1988)。
- 5) 日本海洋学会編：沿岸環境調査マニュアル，p.31(1986)，(恒星社厚生閣)。
- 6) 環境庁水質保全局：底質調査方法，(1988)。
- 7) 科学技術庁：放射能測定シリーズ，7，ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー，(1990)，(日本分析センター)。
- 8) 科学技術庁：放射能測定シリーズ，12，プルトニウム分析法，(1990)，(日本分析センター)。
- 9) 新潟県水産試験場：沿岸漁業環境適正調査報告書(新潟県越後側沿岸海域)，p.14(1980)。
- 10) 海上保安庁水路部：平成3年放射能調査報告書，p.9(1993)。
- 11) 新潟県：柏崎・刈羽原子力発電所周辺環境放射線監視調査結果報告書，p.56(1985)。
- 12) 諏訪成雄：新潟県衛生公害研究所年報，5，140(1989)。
- 13) 鈴木 修，高野尚人：新潟理化学，12，13(1986)。