資 料

日本における主な岩石中の放射能

松田秀晴, 湊 進

名古屋工業技術研究所
462-8510 名古屋市北区平手町 1-1

Key Words: rock, radioactivity, geology, terrestrial gamma-ray dose rate, soil, Japan

1. 緒 論

われわれが観測している地表 γ 線線量率はせいぜい地表から 30 cm までの土壤中に含まれる天然放射性核種 (^{238}U 系列, ^{232}Th 系列および ^{40}K) に起因する γ 線によるものである。土壤は岩石が風化してできたものであり, 土壤中の天然放射性核種の濃度は地質に依存している。したがって, 地表 γ 線線量率の分布形態を支配する要因を究明するためには, まず土壤の源である岩石とそれに含まれる放射能の関係を明らかにした後, 岩石が土壤に変質していく過程における放射能の挙動を解明しなければならない。そこで筆者らは日本に分布する岩石中の放射能の測定・調査を開始した。先に 100 個の岩石を測定した時点で, その概要を報告¹⁾した。その後も測定・調査を続けて日本各地の岩石 455 個の測定を完了した。日本の各種の岩石中の放射能強度がほぼ把握できたと考えられたので, 再度, 世界の岩石中の放射能強度と比較するとともに, 岩石中の放射能強度とこれまでに測定されている日本国内の基盤岩石上の土壤からの地表 γ 線線量率との関係について考察した。

2. 測定方法

測定方法は, 先の報告¹⁾に詳述したのでここでは簡単に述べる。岩石試料は粉碎し, 粉末にしてバイアル瓶に 3 cm (約 20 g) を密封し測定した。使用した測定器は 2" ϕ $\times$ 2" ウェル型 NaI(Tl) シンチレーション検出器と波高分析器である。測定時間は 1 試料 60 000 秒である。検出器は 10 cm の鉛ブロックで遮蔽した。このときのバックグラウンドは約 1 cps であった。

岩石中の放射能強度の評価は, 地表 γ 線線量率との相関を見るために, 地上 1 m の高さにおける放射線強度 (γ 線線量率) の形で表した。測定対象エネルギー範囲は, 50 keV - 3 MeV でこの間の計数率を測定した。計数率は計数効率²⁾を考慮して補正した。計数率から γ 線線量率への換算は HASL 方式³⁾で線量率を算出した標準土壤試料と計数率との関係から検量線を求めて行った。

3. 測定した岩石

測定した岩石の種類とサンプル数を表 1 に示す。火成岩 234 個, 堆積岩 149 個, 変成岩 72 個の合計 455 個である。火成岩については, SiO_2 の含有量で定義されている酸性岩 (66% 以上), 中性岩 (66 - 52%), 塩基性岩 (52 - 45%), 超塩基性岩 (45% 以下) とアルカリ中性岩, アルカリ塩基性岩の六つのグループに分

[†] Radioactivities of Rocks in Japan. Hideharu MATSUDA and Susumu MINATO: National Industrial Research Institute of Nagoya, 1-1, Hirate-cho, Kita-ku, Nagoya-shi 462-8510, Japan.

表 1 測定した岩石の種類とサンプル数

岩石の種類	サンプル数
火成岩 (234)	
酸性岩	95
貫入岩	(69)
噴出岩	(26)
中性岩	60
貫入岩	(22)
噴出岩	(38)
塩基性岩	44
貫入岩	(24)
噴出岩	(20)
超塩基性岩	21
アルカリ中性岩	9
アルカリ塩基性岩	5
堆積岩 (149)	
砕せつ岩*	115
化学・生物岩(含炭酸塩岩)	34
炭酸塩岩	24
変成岩 (72)	72
合 計	455

*: 未固結の堆積物を含む。

類した。火成岩には地球内部のマグマが地殻の割れ目から上昇し、地下で固結した貫入岩と地表に噴出して冷えて固まった噴出岩があるので酸性岩、中性岩および塩基性岩については、貫入岩と噴出岩に分けたサンプル数も表示した。堆積岩は砕せつ(屑)岩と化学・生物岩に大別した。なお、砕せつ岩には未固結の堆積物(粘土, 砂, 関東ローム等)も含めている。また、化学・生物岩については別に炭酸カルシウムを主成分とする炭酸塩岩だけのグループも作った。変成岩は接触変成岩と広域変成岩に大別されるが、放射能的に大きな違いがないと考えたので一つのグループにした。

測定した岩石試料については、その産地がすべて判明しているものを用いた。455 個の岩石の産地を図 1 の日本地図上に示す。地方別の岩石サンプル数は九州地方 (42 個), 中国地方 (40 個), 四国地方 (57 個), 近畿地方 (104 個), 中部地方 (81 個), 関東地方 (55 個), 東北地方 (30 個), 北海道地方 (46 個) である。

表 2 日本の岩石の放射線強度測定結果

() 内の数字はサンプル数

岩石の種類	線量率(nGy/h)
火成岩 (234)	
酸性岩 (95)	109± 48
貫入岩 (69)	116± 47
噴出岩 (26)	94± 40
中性岩 (60)	57± 32
貫入岩 (22)	53± 40
噴出岩 (38)	60± 26
塩基性岩 (44)	20± 17
貫入岩 (24)	9± 10
噴出岩 (20)	34± 15
超塩基性岩 (21)	3± 7
アルカリ中性岩 (9)	257±428
アルカリ塩基性岩 (5)	106± 56
堆積岩 (149)	
砕せつ岩 (115)*	63± 36
化学・生物岩(含炭酸塩岩) (34)	12± 13
炭酸塩岩 (24)	9± 10
変成岩 (72)	48± 49

*: 未固結の堆積物を含む。

4. 測定結果

4.1 各種岩石の放射線強度

4.1.1 火成岩

測定結果を表 2 に示す。放射線強度は酸性岩(花崗岩, 流紋岩など), 中性岩(閃緑岩, 安山岩など), 塩基性岩(斑レイ岩, 玄武岩など), 超塩基性岩(カンラン岩など)と SiO₂ の濃度が高い順になっている。SiO₂ の濃度が高いほど岩石中のウラン, トリウム, カリウムの天然放射性核種の濃度が高いといわれており⁴⁾, したがって, 放射線強度も高いことになる。今回の測定結果でもこのことが確認された。また, 酸性岩, 中性岩および塩基性岩については, 貫入岩と噴出岩に分けた場合の放射線強度も示した。酸性岩, 中性岩については, 貫入岩, 噴出岩ともほぼ同程度の放射線強度を持っているが, 塩基性岩は貫入岩(主に斑レイ岩)が噴出岩(主に玄武岩)の 1/4 程度の値であった。この原因については, 将来, 試料数を増やしてか

図 1 測定した岩石試料の産地
() 内の数字はサンプル数

ら検討したい。

超塩基性岩は測定した岩石 21 個のうち約 70% にあたる 15 個の岩石が検出限界以下で、放射線強度の平均値は $3 \pm 7 \text{ nGy/h}$ であった。

一方、アルカリ中性岩（閃長岩など）とアルカリ塩基性岩（霞石玄武岩など）は、中性岩や塩基性岩でありながら、放射線強度が酸性岩あるいはそれ以上の値を示している。これら SiO_2 濃度依存性にあてはまらない岩石については、文献⁴⁾でも言及されており筆者らの結果と矛盾しない。

次に、測定試料の多かった酸性岩、中性岩、塩基性岩の放射線強度頻度分布を図 2, 3, 4 に示した。酸性岩については、最小値が 26, 最大値が 320 nGy/h で全体の 60% 近くの岩石が $80 - 140 \text{ nGy/h}$ の範囲に分布している。中性岩については、約 60% の岩石が $40 - 80 \text{ nGy/h}$

の間に分布しており、平均値は酸性岩のほぼ半分の値であった。塩基性岩は 55% の岩石が検出限界以下を含めた $0 - 20 \text{ nGy/h}$ の間に分布している。平均値は酸性岩の 1/5, 中性岩の 1/3 程度の放射線強度であった。

また、表 3 に示した地方別の岩石の放射線強度によると、関東・東北・北海道地方の中性岩が他の地方の中性岩に比べてかなり低いことがわかる。

4・1・2 堆積岩

堆積岩はすでに露出していた地殻表面の岩石（その素性を問わずすべての種類）が、風化作用などによってレキ、砂、泥などの堆積物を作り、これらの堆積物が続成作用によって固化したものである。堆積岩はその成因により先に示したように砕せつ岩と化学・生物岩に大別される。表 2 の堆積岩の測定結果によると、砕せつ

図 2 酸性岩の放射線強度頻度分布
N: サンプル数

図 3 中性岩の放射線強度頻度分布
N: サンプル数

図 4 塩基性岩の放射線強度頻度分布
N: サンプル数 ND: 検出限界以下

岩は酸性岩と塩基性岩の中間の値を示している。これは前述したように、砕せつ岩はあらゆる岩石が起源であるので、その成因から十分に理解できる。

砕せつ岩についてさらに詳細に放射線強度を見てみる。砕せつ岩には、火山の噴火に伴って、火口から放出された火山灰や火山レキなどの砕せつ物が固化してできた火山性の砕せつ岩とレキ、砂、泥が堆積し固化した非火山性の砕せつ岩がある。砕せつ岩はそれを構成する砕せつ物の粒径の大きさによって分類されており、前者の代表的な岩石には、凝灰岩や火山カクレキ岩などある。後者にはレキ岩、砂岩、泥岩がある。今回測定した砕せつ岩を凝灰岩など火山性の砕せつ岩、レキ岩、砂岩、泥岩の四つのグループに分けて、放射線強度を比較した結果を表4に示した。表中にはそれらを構成する砕せつ物の粒径の大きさも示した。放射線強度は泥岩、砂岩、レキ岩、凝灰岩の順になり、構成する砕せつ物の粒径の大きさが小さいほど放射線強度が高い傾向がうかがわれる。これは土壤の

表 3 地方別の岩石の放射線強度 (nGy/h)

() 内の数字はサンプル数

岩石の種類	九州地方	中国・四国地方	近畿地方	中部地方	関東地方	東北・北海道地方
酸性岩	112±36(12)	132±36(12)	119±42(26)	93±42(24)	124±75(9)	88±33(12)
中性岩	76±43(9)	63±18(14)	73±21(10)	67±30(13)	40±18(14)	
砕せつ岩*	65±38(10)	86±32(17)	75±24(29)	44±41(18)	44±30(19)	65±28(22)

*: 未固結の堆積物を含む。

表 4 粒径の大きさによる砕せつ岩の放射線強度

岩石の種類	サンプル数	粒径の大きさ (mm)	線量率 (nGy/h)
火山性			
凝灰岩など	49	4 以下	52±35
非火山性			
レキ岩	8	2 以上	54±32
砂 岩	19	2 - 1/16	77±12
泥 岩	25	1/16以下	90±39

図 5 砕せつ岩の放射線強度頻度分布
 N: サンプル数 *: 未固結の堆積物を含む。

放射能の研究^{6),7)}によれば粒径の小さい土壌ほど比表面積が大きく放射性元素が吸着しやすいといわれており, 岩石の放射線強度にもこのことが明確に表れていることがわかる。したがって, これらの堆積岩は砕せつ物であった砂や泥の時代の記憶を十分に持っているといえる。

砕せつ岩の放射線強度頻度分布を図 5 に示す。これまで示した酸性岩, 中性岩, 塩基性岩の分布と違い, 0 - 100 nGy/h の間の各級それぞれに 16 - 18% の岩石が分布しており, このことからすべての岩石が起源となっていることが分かる。

また, 表 3 に示した地方別の岩石の放射線強度を見ると, 中部地方と関東地方の値が他の地方の砕せつ岩に比べて低い。

化学・生物岩は海や湖で水に溶けた物質が沈殿することによってできた岩石である。化学岩には海水に溶けている炭酸カルシウムが沈殿してできる石灰岩, 海水に溶けた二酸化ケイ素が沈殿してできるチャートなどがある。また, 生物岩にも石灰岩とチャートがある。石灰岩はサンゴ, 貝殻など炭酸カルシウムを主成分とする

岩石であり, チャートは放散虫や珪藻が堆積して, 二酸化ケイ素を主成分とする岩石である。炭酸塩岩を含む化学・生物岩の放射線強度は表 2 に示したように 12 ± 13 nGy/h であった。また炭酸塩岩だけの放射線強度は 9 ± 10 nGy/h であった。これらの岩石の放射線強度が低いのはもともと水中には自然放射能が少ないからであり, その成因からもうなずける結果であった。

4.1.3 変成岩

火成岩や堆積岩が熱や圧力などの作用を受け変成してできた岩石を変成岩という。表 2 に示した測定結果は 48 ± 49 nGy/h で全体の平均値くらいに位置していることがわかる。これは変成岩も砕せつ岩と同じく, すべての岩石を起源としているからであろう。

図 6 に変成岩の放射線強度頻度分布を示す。0 - 20 と 60 - 80 nGy/h にピークが見られる。低いピークは塩基性の火成岩を起源とする変成岩 (主に緑色の片岩) などによるものである。

図 6 変成岩の放射線強度頻度分布
 N: サンプル数 ND: 検出限界以下

4・2 世界の岩石の放射線強度との比較

測定した日本の岩石と世界の岩石の放射線強度の平均値を比較した結果を図 7 に示した。世界の岩石の放射線強度は Wollenberg と Smith⁵⁾ が主要大陸から集めた約 2500 個の岩石試料の測定値を文献調査したものである。まず火成岩について見てみると、酸性岩は約 34%，中性岩は約 25%，世界の岩石に比べて低く、超塩基性岩は世界の岩石の 30% 程度の放射線強度しかなく、いずれも統計的にも明らかに有意の差が認められた。塩基性岩はほぼ同じ値を示しているがそれでも約 10% 低い。また、堆積岩の砕せつ岩は世界の平均値と比較して、約 30%，炭酸塩岩は約 55% も低い。さらに変成岩も約 45% 世界の平均値に比べて低い。塩基性岩と砕せつ岩については、統計的には有意の差は認められなかったが、このように今回

の測定で日本の岩石すべてについて世界の岩石に比べて放射線強度が低いことが確認された。なお、アルカリ中性岩およびアルカリ塩基性岩については、日本の岩石試料が少なかったので比較対象から除いた。

4・3 岩石の放射線強度と地表 γ 線線量率との比較

これまで測定されている日本国内の土壌からの地表 γ 線線量率⁸⁾⁻¹⁹⁾を地質地図を基に基盤岩別にとまとめた結果を表 5 に示す。表には直接岩石の放射線強度との比較とは関係のない第 4 紀堆積物の調査結果も参考のために記載した。これらの結果と先の日本の岩石の放射線強度を比較した結果を図 8 に示す。塩基性岩と炭酸塩岩では岩石の放射線強度よりも塩基性岩では約 1.5 倍、炭酸塩岩では 3 倍地表 γ 線線量率

図 7 日本と世界の岩石の放射線強度の比較

() 内の数字はサンプル数 * : 未固結の堆積物を含む。

表 5 基盤岩石上土壌からの地表 γ 線線量率
() 内の数字はサンプル数

基盤岩石	線量率 (nGy/h)
火成岩	
酸性岩	68±22 (298)
中性岩	39±12 (106)
塩基性岩	29±12 (42)
堆積岩	
砕せつ岩*	49±15 (762)
炭酸塩岩	27±7 (7)
第4紀堆積物	46±16 (636)
変成岩	44±18 (58)

* : 未固結の堆積物を除き, 炭酸塩岩を除く化学・生物岩を含む。

の方が高くなっているのが注目される。その他については岩石の放射線強度に比べて地表 γ 線線量率の方が酸性岩では約 40%, 中性岩では約 30%, 砕せつ岩では約 20% 低い。変成岩ではほぼ同じ値を示している。塩基性岩や炭酸塩岩上の地表 γ 線線量率が母岩より高い放射線強度となったのは, より高放射能土壌の侵入によるものと推察される。また, 日本の基盤岩石の占有面積率²⁰⁾を基に, 表 2 のデータから算出した岩石の放射線強度の平均値は約 74 nGy/h であり, 同じく表 4 のデータから算出した地表 γ 線線量率の平均値は約 50 nGy/h であった。地表 γ 線線量率の方が 30% ほど低い。岩石が風化して環境の変化の影響を受けずに, その場所にそのまま土壌として存在するならば, 土壌か

図 8 日本の岩石の放射線強度と日本国内の基盤岩石上土壌からの地表
γ線線量率との比較

() 内の数字はサンプル数

*: 未固結の堆積物を除き, 炭酸塩岩を除く化学・生物岩を含む。

らの地表γ線線量率も岩石の放射線強度とまったく同じになるはずである。しかし岩石が風化してできた土壌の放射能は降水や植物の混入によって希釈されたり, 河川などを通じて運搬されて他の基盤岩石上に移動したりする。また, 岩石の風化中に放射性核種そのものが溶脱および洗脱することも考えられる。さらに土壌中の水分量も影響するであろう。このような種々の環境因子による希釈・攪拌効果等によって最終的には土壌の地表γ線線量率は表4のような結果になったのであろう。これらの結果から岩石と土壌の放射線強度は1:1の対応がつかない。しかしながら土壌の地表γ線線量率レベルは岩石の放射線強度と同じ, 酸性岩, 砕せつ岩, 中性岩・変成岩, 塩基性岩, 炭酸塩岩の順になっ

ており, 土壌は自分が基盤岩石であった頃の記憶をかなり残していることがわかる。

5. ま と め

地表γ線線量率の分布形態を支配する要因を解明する手始めとして, 日本の岩石455個の放射線強度を測定・調査した。世界の岩石の放射線強度と比較するとともに, 地表γ線線量率との関係について考察した。その結果, 以下の知見が得られた。

(1) 岩石の放射線強度は, その成因等からうなずける結果であった。火成岩についてはSiO₂の濃度が高い, 酸性岩, 中性岩, 塩基性岩, 超塩基性岩の順になり, 砕せつ岩および変成岩はほぼ酸性岩と塩基性岩の中間に位置して

いる。また、砕せつ岩はその構成する砕せつ物の粒径が小さいほど放射線強度が高いことが確認された。

(2) すべての日本の岩石は世界の岩石の放射線強度に比べて低いことが明らかになった。

(3) 地表 γ 線線量率レベルは岩石の放射線強度と同じ、酸性岩、砕せつ岩、中性岩・変成岩、塩基性岩、炭酸塩岩の順になっており、土壌は自分が基盤岩石であった頃の記憶をかなり残しているといえる。

(4) 岩石の放射線強度と地表 γ 線線量率との比較および基盤岩石の占有面積率を考慮した検討結果から、岩石から土壌への変質過程における放射能の挙動が浮かび上がってきた。今後は岩石から土壌への核種の移行過程、挙動のモデルを提案したいと考えている。そのためには、現場での露頭と土壌の放射能の比較測定や核種分析などのデータの蓄積が重要であろうと考えている。

謝 辞

本測定を行うに当たり、宮城県原子力センター石川陽一博士から標準土壌試料の提供を受けた。記して深謝する。

文 献

- 1) 松田秀晴, 湊 進: *Radioisotopes*, **44**, 789-793 (1995)
- 2) 松田秀晴, 古川滋子, 上西時司: 名古屋工業技術研究所報告, **37**, 197-201 (1988)
- 3) Beck, H. L., DeCampo, J. and Gogolak, C.: USAEC Rep. HASL-258 (1972)
- 4) Wollenberg, H. A. and Smith, A. R.: *Geophys. Res. Lett.*, **14**, 295-298 (1987)
- 5) Wollenberg, H. A. and Smith, A. R.: *Health Phys.*, **58**, 183-189 (1990)
- 6) Baeza, A., Delrio, M., Jimenez, A., Miro, C. and Paniagua, J.: *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, **189**, 289-299 (1995)
- 7) 恵 和子: 保健物理, **22**, 93-100 (1987)
- 8) Abe, S., Fujitaka, K., Abe, M. and Fujimoto, K.: *J. Nucl. Sci. Technol.*, **18**, 21-45 (1981)
- 9) 矢野隆司, 篠原広充, 安永章二, 安井正良, 金子敏明, 松浦栄美: 愛媛県公害技術センター所報, 第8号, 38-41 (1987)
- 10) 高山裕美, 富山 猛: 福井県衛生研究所年報, **28**, 91-95 (1989)
- 11) 下蘭清香, 四反田昭二, 今村博香, 福田大三郎: 鹿児島県環境センター所報, **5**, 101-110 (1989)
- 12) 藤崎 学, 四反田昭二, 今村博香, 岩田治郎: 鹿児島県環境センター所報, **10**, 69-77 (1994)
- 13) 中谷 光, 四月朔日富司子, 酒井道則, 矢鋪満雄: 石川県衛生公害研究所年報, 第29号, 176-182 (1992)
- 14) 市村雄一, 三好 隆, 橋本和子, 田辺芳次, 平井保夫: 茨城県公害技術センター研究報告, 第5号, 23-31 (1993)
- 15) 平井英治, 玉利俊哉, 佐伯國夫, 岡村政紀, 松岡信明, 高島良正, 松田廣継, 廣 陽二, 大林 誠: *Radioisotopes*, **44**, 846-855 (1995)
- 16) 殿内重政, 米田和広, 原 武彦: 新潟県衛生公害研究所年報, **7**, 147-151 (1991)
- 17) 米田和広, 殿内重政, 葉茸久尚, 鈴木 斉: 新潟県衛生公害研究所年報, **8**, 160-116 (1992)
- 18) 米田和広, 殿内重政, 梅津 了: 新潟県衛生公害研究所年報, **9**, 116-120 (1993)
- 19) 高橋 斉, 小林 正: 新潟県衛生公害研究所年報, **10**, 102-104 (1994)
- 20) 湊 進: 名古屋工業技術研究所報告, **44**, 609-628 (1995)