

伊勢湾並びに大阪湾海底堆積物中のウラン，トリウムおよびランタノイドの分布と挙動

鈴木美咲*・本多照幸**

Distribution and behavior of uranium, thorium and lanthanoids in Ise Bay and Osaka Bay marine sediments Misaki Suzuki* and Teruyuki Honda**

* 武蔵工業大学工学部, Faculty of Engineering, Musashi Institute of Technology

** 武蔵工業大学原子力研究所, Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology

1. 緒言

湾口部に大小の島々が存在し、かつ、湾内の海底地形が中央域で盆状であることから外海水との水交換が悪く汚染物質が蓄積しやすい閉鎖的の海域である伊勢湾及び、集水域に大きな人口・産業集積を有する閉鎖性海域であり、陸域からの汚染物質が蓄積しやすい状況にある大阪湾(山崎・合田, 1987)の海底堆積物試料中の微量元素等を中性子放射化分析を用いて定量し、それらの値を使って特にランタノイド元素, Th, U等の堆積物中における挙動を把握し、伊勢湾並びに大阪湾海底堆積物の起源及び堆積環境を解明することを目的とする。

2. 実験

2-1 試料

本研究には水産庁中央水産研究所で重力式柱状採泥器を用いて採取した伊勢湾及び大阪湾海底堆積物コア試料を用いた。各23層ある試料のうち、各湾12層分を今回の堆積物試料として実験に供した。各試料の採取データを表1に示す。

表1 各試料の採取データ

採取年月日	採取地点	水深	層数(2cm/層)
1985.9.20	34° 41'N, 136° 41'E	33m	23
1985.9.22	34° 25'N, 135° 02'E	40m	23

2-2 照射試料作製

海水中に多量に含まれ、分析の妨害の原因となりうるNaやClなどの元素をできるだけ少なくするため、海底堆積物試料を1g秤取り、100mlビーカーに移し、蒸留水を80ml注ぎガラス棒でかき混ぜ、超音波洗浄器に3分間かけた。その後0.1µmのメンブランフィルターで吸引ろ過し、乾燥機で乾燥させたものをメノウ乳鉢にて粉体状にした。その堆積物試料を原子力研究開発機構JRR-4のTパイプ(TB)照射用試料は30mg、気送管(PN)照射用試料は10mgそれぞれ電子天秤で正確に秤とり、洗浄済みのポリエチレン袋に密封した。

2-3 中性子照射

作製した海底堆積物試料、比較標準物質(JLK-1)、比較標準試料を照射用カプセルに入れ、JRR-4にて中性子を照射した。

2-4 γ線測定

長半減期核種分析用のTパイプ用試料は武蔵工大原子力研究所に郵送後、短半減期核種分析用の気送管用試料は照射後JRR-4にて測定を行った。γ線の測定は高純度Ge検出器にて行い、本研究所ではORTECのGMX-30200-S(相対計数効率:31.2%, 半値幅:1.33MeV)において

表2 伊勢湾海底堆積物の定量結果 (表層)

元素	照射条件	冷却条件	エネルギー (keV)	誤差 (%)	補正前定量値 (ppm)	補正值 (F値補正)	妨害元素補正值 (ppm)	定量値 (ppm)
Na	TE20min	1week	1368.6	3.57	0.86 (%)	0.92	0.12	0.67 ± 0.03 (%)
Al	FN30sec	5~6min	1779	3.78	8.0 (%)			8.0 ± 0.3 (%)
Cl	FN30sec	30~40min	1642.7	35.39	460			460 ± 160
Sc	TE20min	1month	1120.5	0.81	143	1.01		145 ± 01
Ti	FN30sec	5~6min	3201	56.08	0.21 (%)			0.21 ± 0.12 (%)
V	FN30sec	5~6min	1434.1	10.32	87		0.013	87 ± 9
Cr	TE20min	1month	3201	2.26	107	1.01	0.0062	108 ± 2
Mn	FN30sec	30~40min	846.8	0.78	0.091 (%)		0.00034	0.091 ± 0.001 (%)
Fe	TE20min	1month	1099.3	3.33	3.9 (%)	0.92		3.6 ± 0.1 (%)
Zn	TE20min	1month	1115.5	16.87	240.0	0.92		220.3 ± 01
As	TE20min	1week	559.1	10.99	7.2	1.01		7.3 ± 0.8
Br	TE20min	1week	776.5	1.62	99	1.01		101 ± 2
Sb	TE20min	1week	564.4	16.53	0.96	1.01		0.97 ± 0.16
Ba	TE20min	1week	123.8	25.32	560	1.01		540 ± 140
La	TE20min	1week	1596.5	2.71	342	1.01	0.056	346 ± 0.9
Ce	TE20min	1month	145.4	1.08	821	1.01	0.76	824 ± 0.9
Nd	TE20min	1week	91.1	42.59	26	1.01		27 ± 11
Sm	TE20min	1week	1032	0.79	6.15	1.01	0.00021	6.23 ± 0.06
Eu	TE20min	1month	121.8	10.05	1.0	1.01	0.0000078	1.0 ± 0.1
Tb	TE20min	1month	879.4	14.58	0.65	1.01		0.66 ± 0.10
Dy	FN30sec	30~40min	947	4.96	4.4			4.4 ± 0.2
Yb	TE20min	1week	396.3	6.01	3.1	1.01		3.1 ± 0.2
Lu	TE20min	1week	208.4	7.99	0.49	1.01		0.50 ± 0.04
Hf	TE20min	1month	132.9	3.37	3.6	1.01		3.6 ± 0.1
Ta	TE20min	1month	1221.4	12.95	0.79	1.01		0.80 ± 0.10
Th	TE20min	1month	312	1.08	9.2	1.01		9.4 ± 0.1
U	TE20min	1week	277.6	19.33	2.7	1.01		2.7 ± 0.5

1.75keV) を、また多チャンネル波高分析器には SEIKO EG&G の MCA7700 を使用した。

3. 結果および考察

3-1 定量結果

中性子放射化分析により伊勢湾、大阪湾共にランタノイド元素 (Lu 0.26 ~ Ce 84.9ppm), U (2.3 ~ 4.6ppm), Th (7.13 ~ 9.8ppm) 等のべ27元素が sub ppm ~ % のレベルで定量することができた。そのうちランタノイド元素は、15元素中9元素が定量できた。表2に例として伊勢湾海底堆積物の定量結果 (表層) を示す。

3-2 Th/Sc 比

Th/Sc 比をとることにより、堆積物が花崗岩質なのか、玄武岩のような苦鉄質なのか、その起源を知る指標となる (本多・木村, 2003; Minai et al., 1997)。図1に伊勢湾及び大阪湾における Th/Sc 比を他の堆積物と共にプロットする。図1より、西日本側の Th/Sc 比は一般的に東日本側より高く、本研究で求めた伊勢湾及び大阪湾堆積

物も高くなっている。これは、西日本の地質が主に花崗岩質であり、一方、東日本は苦鉄質 (玄武岩質) であることを反映しているものと思われる。

3-3 Mn 及び Sb

堆積物中の Mn 及び Sb 濃度から、その堆積物が火山活動の影響を受けているか否か、およその推定が可能である。図2に本研究室で得られた各湾における Mn 及び Sb の深度分布 (表層) を示す。図2より、例えば鹿児島湾の堆積物は桜島の噴火活動の影響を受けている可能性があり、Mn (0.520%), Sb (10ppm) とともに濃度が高くなっていたが、それに比べて伊勢湾 (Mn 0.091%, Sb 0.97ppm)、大阪湾 (Mn 0.107%, Sb 0.48ppm) は共に低く火山活動の影響は直接的にはないことが判明した。

3-4 ランタノイド元素パターン

伊勢湾及び大阪湾 (表層) のランタノイド元素を Leedey Chondrite で規格化したランタノイド元素パターンを図3に示す。図3より、伊勢湾、

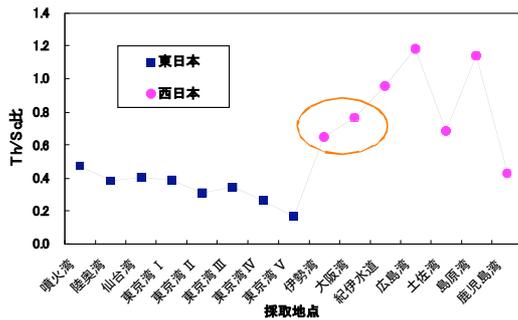


図1 伊勢湾及び大阪湾における Th/Sc 比

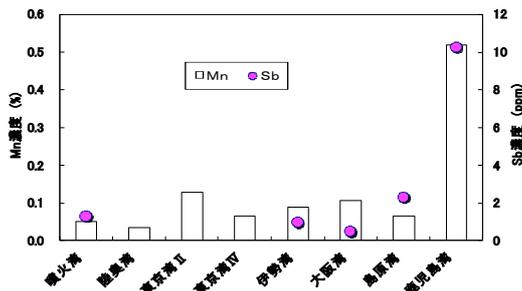


図2 各湾における Mn 及び Sb の関係(表層)

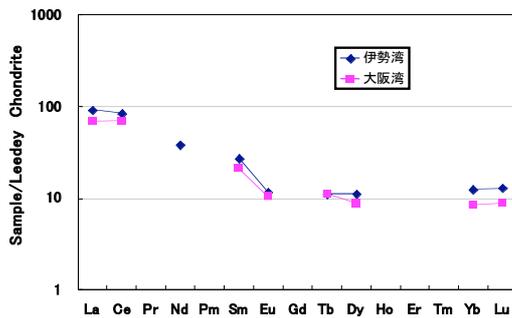


図3 ランタノイド元素パターン

大阪湾共に右上がりであり、基本的に陸起源物質に近いパターンを示した。

3-5 Ce*/La*比

Leedeey Chondrite で規格化した Ce*/La*比は 1.0 よりやや小さいと堆積物が陸起源物質の影響を、1.0 よりやや大きいと生物起源物質の影響を示す指標となりうる。両湾堆積物における Ce*/La*比の深度分布を図4に示す。図4より伊勢湾の多くは 0.93 付近、大阪湾の多くは 1.0 超 (Ce の正のアノマリー) であることから、伊勢湾の方が大阪湾より生物起源物質の影響をより強

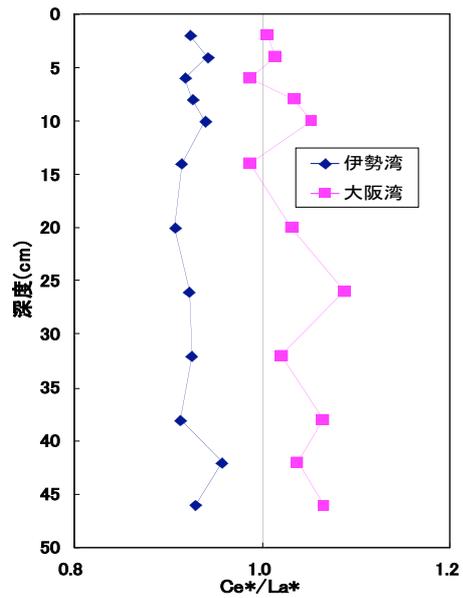


図4 Ce*/La*比の深度分布

く受けていることが示唆された。

3-6 Ce/U 比 - Th/U 比

酸化還元に敏感な Ce, Th, U は Ce, Th が還元環境下に、U が酸化環境下にあると海水や間隙水に溶けやすく、また、Ce, Th が酸化環境下に、U が還元環境下にあると海水や間隙水に溶けにくくなることから、Ce, Th と U では酸化還元的环境下で逆の挙動をすることになる。従って、Ce/U 比 - Th/U 比の相関をとることによって堆積物の堆積環境を推測することができる (本多・木村, 2003)。両湾における Ce/U 比 - Th/U 比の関係を図5に、表層を 1.0 に規格化した両湾における Ce/U 比 - Th/U 比の関係を図6にプロットする。図5より伊勢湾と大阪湾の表層を比べると大阪湾の方が伊勢湾より2つの比が小さく、より強い還元環境下にあることがわかる。図6より伊勢湾の相関係数は $r=0.996$ と極めて高い値となっており、下層ほど Ce/U 比, Th/U 比共に小さくなっていくことから、下層ほど還元環境下にあることが分かる。一方、大阪湾の相関係数は $r=0.914$ と伊勢湾に比べてやや低くなっており、下層ほど Ce/U 比, Th/U 比の値

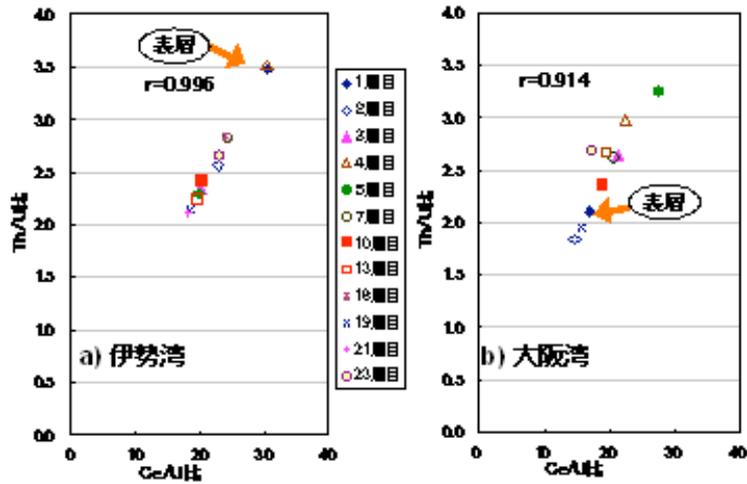


図5 伊勢湾及び大阪湾における Ce/U 比-Th/U 比の関係

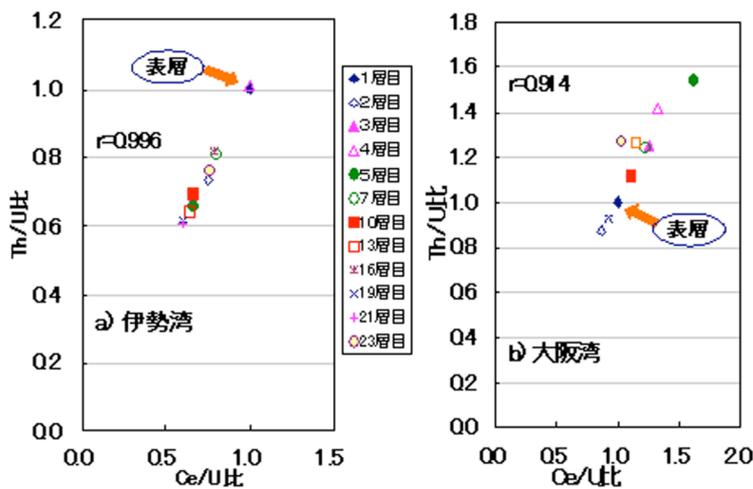


図6 伊勢湾及び大阪湾における Ce/U 比-Th/U 比の関係
(表層を 1.0 に規格化)

も多くの場合表層の値を超えていることから、下層ほど酸化環境下にあることが明らかとなった。

4. 結論

本研究により、以下の知見が得られた。

①Th/Sc 比より、伊勢湾、大阪湾共に西日本の地質を反映していることが分かった。

②Mn 及び Sb の濃度より、伊勢湾、大阪湾共に直接火山の影響は受けていないことが判明した。

③ランタノイド元素パターンより、伊勢湾、大阪湾共に陸起源物質が主であることを反映して

た。しかし、Ce*/La*比より、大阪湾はCeの正のアノマリーを示し、伊勢湾はアノマリーを示さなかった。従って、大阪湾は生物起源物質の影響など陸起源物質以外の影響をより強く受けていることが示唆された。

④Ce/U 比-Th/U 比の相関より、大阪湾堆積物の表層は伊勢湾堆積物に比べより強い還元環境下にあることが分かった。ただし、大阪湾堆積物は、下層の方が表層に比べより酸化環境下であり、逆に伊勢湾堆積物は、下層の方が表層に比べより還元環境下にあることが明らかとなった。

参考文献

本多照幸, 木村賢一郎 : 日本海水学会誌, 第 57 卷第 3
号, 166, 2003

Minai, Y., U.Tsunogai, H.Takahashi, J.Ishibashi,
R.Matsumoto & T.Tominaga : Journal of

Radioanalytical and Nuclear Chemistry,
Vol.216, No.2, 265, 1997

山崎秀夫, 合田四郎 : 近畿大学環境科学研究所研究報
告, 第 15 号, 33, 1987