

VII-32

鉛・ウランの同位体比を指標とする環境汚染の調査

大阪産業大学工学部 学生会員 ○岡野善徳
 京都大学原子炉実験所 正会員 藤川陽子
 大阪産業大学工学部 正会員 菅原正孝
 京都大学原子炉実験所 正会員 工藤章
 大阪産業大学工学部 正会員 三井光彦

[はじめに]環境科学において微量元素測定は、有害物質の濃度の調査という意義に加え、大気や水、及び特定の物質の循環経路を知るためのツールとなりえる。物質循環の指標としては、各元素の濃度の分布と同位体比がある。

前回、田園地帯の表層土壌に蓄積した鉛の起源を、鉛の同位体比によって検討した結果、人間活動による化学フオールアウトの影響を受けている可能性が認められた¹。今回は、それらの鉛が表層土壌中でどのような挙動をするのかを調査すべく、土壌中有機物に着目してみた。なぜなら、鉛の土壌中移行は、土壌有機物と鉛との結合の関連が言われているため²で、中でもフミン酸(Humic Acid:略してHA)は、環境水中で最もポピュラーな金属との錯体生成物質であり、鉛の挙動を調査する上で大きな指標になると考えられる。

また今回は環境汚染調査の指標として新たにウラン同位体比に着目した。ウランの天然同位体には、²³⁴U、²³⁵U、²³⁸Uが存在する。今回考察の対象として用いた²³⁵U/²³⁸Uでは、比較的長寿命の放射性核種である²³⁵U(半減期 $7.04 \cdot 10^8$ y)、²³⁸U(半減期 $4.47 \cdot 10^9$ y)の天然存在比はほぼ一定{天然起源の²³⁵U/²³⁸U(質量濃度比):0.0072}であると考えられている³。従って環境中の²³⁵U/²³⁸Uの測定結果が天然起源の²³⁵U/²³⁸Uより高ければ、濃縮ウランの存在が示唆される。逆に低ければ、1972年にアフリカ・ガボンのオクロ鉱山から採れた天然ウランのように、自然条件下において核分裂反応がかつて起こっていたためということも考えられるが、一般的には環境中の低い²³⁵U/²³⁸Uは、核燃料の濃縮過程からの廃棄物や使用済み核燃料から発生する可能性が有力である。このようにウランの同位体比は、環境汚染において多くの情報を与えるものである。

以上の観点から本研究では、田園地帯の表層土壌中のフミン酸を抽出し、フミン酸中の鉛の同位体比を最新の誘導結合プラズマ質量分析装置(略してICP-MS)で測定・定量し、表層土壌中の鉛の挙動について検討した。また、土壌中のウランの同位体比によって環境汚染の実態を調査するものである。

[実験方法](1)土壌試料：鉛の同位体比測定には、京都大学原子炉実験所構内の赤黄色土(以後soil-kurと略称)及び茨城県那珂郡の褐色森林土(以後soil-bと略称)、そして同県同群の黒ボク土2種(以後soil-c、soil-dと略称)を用いた。またウランの同位体比測定には、岡山県の人形峠周辺の土壌及び河底土を用いた。

(2)フミン酸抽出：有機炭素量が800mgに相当する供試土壌を遠沈管にとり、これに0.5%NaOHを窒素雰囲気にしたグローブBOX内で注入した。これを加熱・遠沈・ろ過後、HClを加えて沈澱部(フミン酸)を酸洗いし、透析・真空凍結乾燥する。これをHNO₃で分解し、ICP-MSで測定・定量する。

(3)ウラン測定：ウランにおいては、供試土壌を風乾・灰化した後、HNO₃、HClO₄、HFを用いて酸分解後ウランを分離し、ICP-MSで同位体比を測定している。

キーワード：鉛、ウラン、同位体比、表層土壌、土壌有機物(フミン酸)、環境汚染

〒574-8532 大阪府大東市中垣内3丁目1番1号 大阪産業大学土木工学科 TEL 0720-75-3001 FAX 0720-75-5044

〒590-0451 大阪府泉南郡熊取町 京都大学原子炉実験所 TEL0724-51-2442 FAX 0724-51-2620

〔結果と考察〕(1) フミン酸中の鉛同位体比の分布

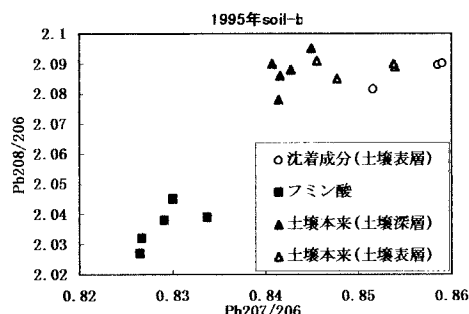


図1 soil-bの鉛同位体比の分布

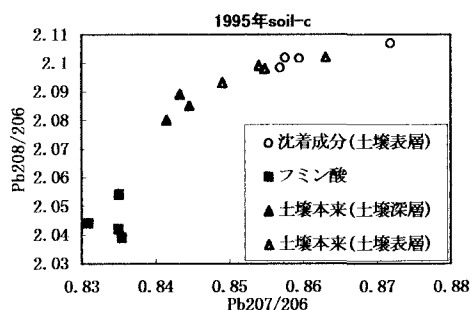


図2 soil-cの鉛同位体比の分布

図1にsoil-b、図2にsoil-cの鉛同位体比の分布を示す。ここで沈着成分の鉛と言うのは、前回の調査でその土壤本来の鉛ではなく化学フォールアウトによる鉛であると認められたものを指している。図1, 2よりフミン酸中の鉛の同位体比は他の鉛と比べて明確な相異が認められ、沈着成分・土壤表層の鉛の同位体比よりも土壤深層(土壤本来)の鉛の同位体比に近いと言える。このことは図には示さないがsoil-kur、soil-dでも同様であった。前回の調査で鉛の濃度を調べた結果、沈着成分・土壤表層の鉛の濃度(約30ppm)は土壤深層の鉛の濃度(約10-15ppm)に比べて2倍から3倍ぐらい高濃度であることがわかっている。仮にフミン酸中に沈着成分の鉛が取り込まれていれば、図中のフミン酸中の鉛の同位体比は、沈着成分の鉛の同位体比にもっと類似しているはずであると考えられる。しかし実測の結果は上記のようであった。故にフミン酸は沈着成分の鉛とはあまり結合していないと考えられる。またフミン酸中の鉛の同位体比が土壤深層(土壤本来)の鉛の同位体比に近いことから、これらのフミン酸が化学フォールアウトの影響を受ける以前に生成し、その生成時にその土壤本来の鉛を取り込んで、それ以後他の鉛とあまり結合しなかったためと考えられる。

(2) ウランの同位体比 ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$) の分布

表1 ウランの同位体比

表1に岡山県の土壤のウラン同位体比を示す。これより供試土壤中のウランの同位体比と天然のウランの同位体比 ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U} : 0.0072$) の差は1%程度で僅かである。これより表記のウランは、天然起源のものである可能性が大きい。特に、河底土、水田土で人工的な影響が認められないということは、試料採取地点周辺からの濃縮ウラン・使用済み核燃料ウランの流入や降雨などのフォールアウトによる運搬がほとんどないということが考えられる。今後は、試料採取地点の鉛直方向のウラン

土壤試料名	U-235/238±Err	天然値との比
人形峠未耕土	0.00719±0.00002	1.00
人形峠未耕土X	0.00723±0.00002	1.00
人形河底土	0.00725±0.00002	1.01
人形河底土X	0.00725±0.00001	1.01
赤和瀬水田土	0.00727±0.00002	1.01
赤和瀬水田土X	0.00727±0.00001	1.01
天王水田土	0.00712±0.00004	0.99
天王水田土X	0.00727±0.00001	1.01

濃度及び同位体比分布を測定し、ウランの土壤中移行について更に検討していきたいと考えている。

〔結論〕●フミン酸中の鉛の同位体比は、化学フォールアウトの鉛と明確な違いが認められた。フミン酸とフォールアウト鉛との親和性はあまり強くない。●岡山の土壤のウラン同位体比 ($^{235}\text{U}/^{238}\text{U}$) より、人工的な環境汚染の影響はほとんど認められなかった。

〔参考文献〕1. 岡野善徳 他, 田園地帯の表層土壤に蓄積した鉛の起源——鉛同位体比による検討, 土木学会平成9年次学術講演会, 1997.

2. 藤川陽子 他, 土壤フミン酸への鉛の結合年代の推定, 原子力学会春の大会予稿集, 1997.

3. 山田隆二 他, ウラン同位体比を利用した環境物質循環解明の可能性, 1-2, 1998(投稿中).

4. Piccolo, A. Reactivity of added humic substances towards plant available heavy metals., The Science of the Total Environment, 81/82, 607-614, 1989.