

新潟県から得られた Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体

富田純平¹, 山本政儀¹, 佐竹洋²

¹〒923-1224 石川県能美市 金沢大学環日本海域環境研究センター, LLRL ;

²〒930-8555 富山県富山市 富山大学理学部生物圏環境科学科

J. Tomita, M. Yamamoto, and H. Satake

Ra isotopes in Na-Cl type saline spring waters from Niigata Prefecture, Japan

1. はじめに：世界の油田・ガス田地域（例えばアメリカ・ロシア・イスラエルなど）において，副産物である油田塩水中に Ra 同位体（U 系列の ^{226}Ra （半減期 1600 y）および Th 系列の ^{228}Ra （半減期 5.75 y））およびそれらの娘核種が，非常に高濃度で含まれることが知られており，その原因は塩濃度依存性の吸脱着反応に帰すことが知られている．また，油田塩水問題として，これら排水の周辺環境（特に生態系）への影響も近年懸念されている．日本においては，例えば Nakai（1940）により秋田・新潟県などの油田・ガス田地域の温鉱泉水中に比較的高濃度の ^{226}Ra が数例見出されているが，Ra の起源およびその溶出機構について詳細な議論はなされていない．

近年の掘削技術の進歩により平野部や海岸地域などの大深度掘削井において，海水または化石海水を起源とする高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉水が得られるようになった．また，日本海側のグリーントフ地域には第三紀海底火山活動により繁栄したプランクトンなどの死骸（有機物）に絡む海水中 U の濃集層（ ^{226}Ra の供給源）の存在可能性が推測される．以上のことから，我々は日本海沿岸域の大深度掘削井から得られる高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉は ^{226}Ra を高濃度に含むのではないかと考え，日本海沿岸地域に点在する Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体の地球化学的研究を始めた．

本研究では，（1）Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体の濃度分布，（2）Ra 同位体の起源，（3）Ra 同位体が高濃度となる温鉱泉の生成過程を明らかにすることを目的とした．本報では，日本の油田・ガス田地帯として最も有名である新潟県から得られた Na-Cl 型温鉱泉の結果について報告する．

2. 試料採取・実験方法：Na-Cl 型温鉱泉水の試料採取は，2007 年 3 月に，主に新潟県内海岸域を中心に計 23 地点で行った．比較のため，3 地点で河川水採取も行った（図 1）．Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra・U 同位体は，およそ 20 L から BaSO_4 共沈および $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沈法により回収し，それぞれ・線および・線スペクトロメトリーにより定量した．主要溶存成分はイオンクロマトグラフ，アルカリ度は 0.1 M 塩酸を用いた滴定法により測定した．Sr および Ba は，それぞれ ICP-AES および ICP-MS により定量した． δD および $\delta^{18}\text{O}$ は，それぞれ水素平衡法および二酸化炭素平衡法により同位体比用質量分析計で測定した．

3. 結果と考察：本研究で採取した Na-Cl 型温鉱泉水は， δD ， $\delta^{18}\text{O}$ ，Cl および SO_4/Cl の関係から岩石との

反応や粘土鉱物の層間水による希釈などによって化学的・同位体的に変質した海水（化石海水）と天水の混合物であると考えられた（加藤と梶原(1986)，Xu et al. (2006)）．

図 2 に Na-Cl 型温鉱泉水中の ^{226}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の測定結果を示す． ^{226}Ra 濃度は 7.89

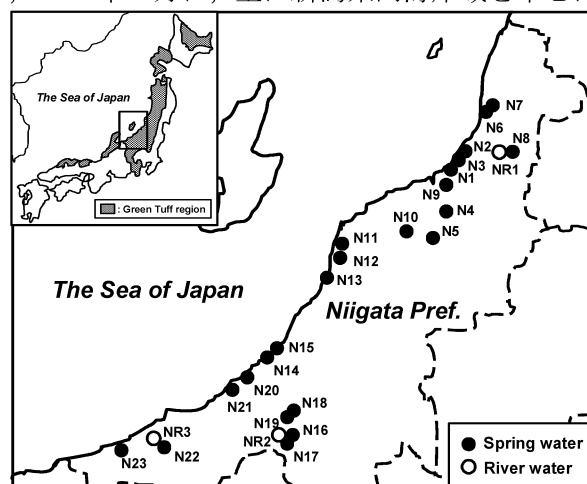


図 1 試料採取地点

—1897 mBq/kg であり、我々の推測通り ^{226}Ra を高濃度に含む温鉱泉が見出された。また、 ^{226}Ra 濃度は Ca, Sr, Ba および塩濃度 (TDS) と正の相関があり (図 3), ^{226}Ra は塩濃度依存性の吸脱着反応やイオン交換反応により水相中に保存されていることが示唆された。

$^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は 0.28 - 5.21 であった。一般的に、石油に絡む U 濃集層が存在する場合、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は低くなると考えられる (Bloch and Key (1981)). N13 の温鉱泉は ^{226}Ra 濃度が高く (1897 mBq/kg) かつ $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比が低い (0.28) ため、Ra 同位体が U 濃集層を起源とする可能性が示唆されるが、大部分の Na-Cl 型温鉱泉水中の Ra 同位体の起源は帯水層岩石に由来すると考えられる。

帯水層岩石から水相への Ra 同位体の輸送メカニズムとして、(1) 岩石の溶解、(2) α -recoil が考えられる。本研究で採取した Na-Cl 型温鉱泉水は化石海水と天水の混合物であると考えられたため、単純な系で ^{226}Ra および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比の進化を見積もった。その結果、岩石の溶解では高濃度の ^{226}Ra は説明可能であるが、 $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比を説明することが出来ず、また、 α -recoil では $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比は説明可能であるが高濃度の ^{226}Ra は説明できないため、その他の Ra の起源が必要であることが示唆された。そこで、 ^{226}Ra および ^{228}Ra はそれぞれ ^{230}Th および ^{232}Th の α 壊変によって生まれる娘核種であること、Th 同位体は天然水中で不溶性であること考慮すると、岩石の溶解によって水相へ輸送された Th 同位体は岩石表面に吸着し、水-岩石界面に Th 同位体を濃集した表面コーティングが存在すると考えられる。このような Th 同位体を濃集した表面コーティングの存在を仮定すると、本研究で得られた高塩濃度 Na-Cl 型温鉱泉水中の ^{226}Ra 濃度および $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比が説明可能であることが明らかとなった。

参考文献

- Bloch, S., Key, R.M. (1981). *The American Association of Petroleum Geologists*, 65, 154-159.
 加藤進, 梶原義照 (1986). *石油技術協会誌*, 51, 113-122.
 Nakai, T. (1940). *Bull. Chem. Soc. Japan*, 15, 333-426.
 Xu, H.-L., Shen, J.-W., Zhou, X.-W. (2006). *Island Arc*, 15, 199-209

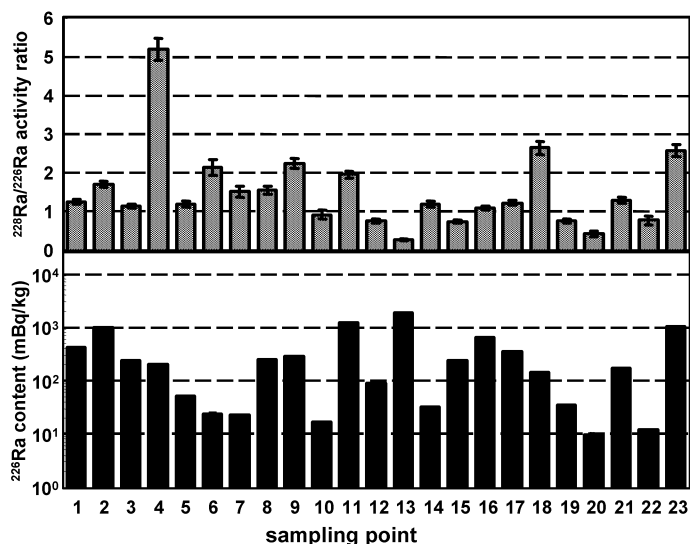


図 2 温鉱泉水中の ^{226}Ra 濃度と $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 放射能比

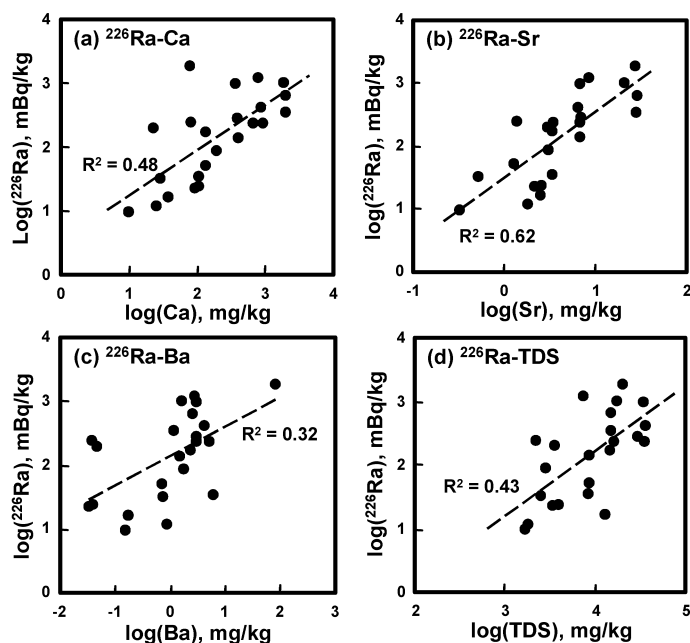


図 3 ^{226}Ra 濃度と Ca, Sr, Ba, TDS の関係