

Fundamental studies on variations of uranium and thorium isotopes in Lake bottom sediment core and their application to the paleoenvironmental changes

メタデータ	言語: jpn 出版者: 公開日: 2017-10-05 キーワード (Ja): キーワード (En): 作成者: Yamamoto, Masayoshi メールアドレス: 所属:
URL	http://hdl.handle.net/2297/48751

This work is licensed under a Creative Commons Attribution-NonCommercial-ShareAlike 3.0 International License.



**湖底堆積物中のウラン・トリウム同位体変動
と古環境解析の基礎研究**

(課題番号：16510005)

**平成 16 年度～平成 17 年度科学研究費補助金
(基盤研究 C-2) 研究成果報告書**

平成 18 年 3 月

研究代表者：山本 政儀

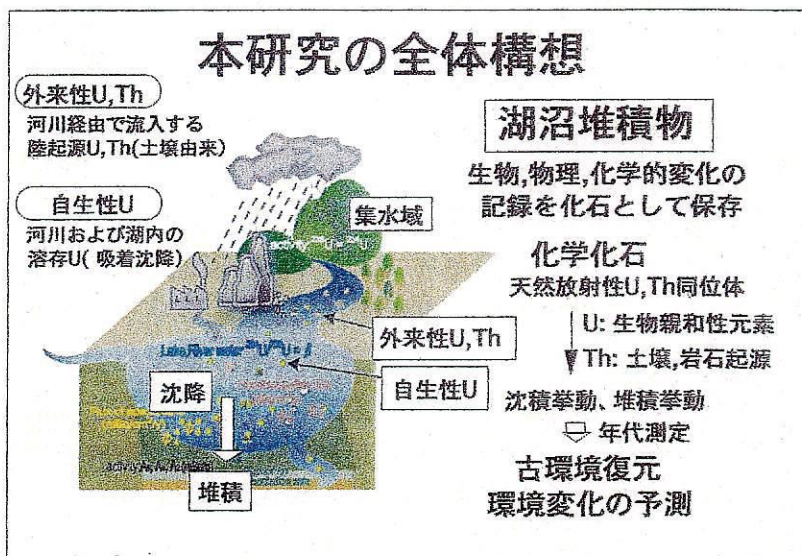
金沢大学・自然計測応用研究センター・教授

金沢大学附属図書館



はしがき

急速に進行する地球環境変動を予測するためには、過去における地球環境変動の情報を的確に把握することが重要である。地球規模の環境変動の情報は、ローカルな影響を受けにくい大洋底堆積物や極域の氷床コア、さらに大陸にある古代湖堆積物の解析から得られている。湖底堆積物は、過去における流域の変動や湖内で生息した生物などの、気候変動に絡む物理・化学・生物的变化のグローバルあるいはローカルな記録をそれぞれの化石として保存している。化学成分は堆積後、続成作用によって変化するものが多く、堆積当時を保存しているとは限らないが基礎的な検討を通じての適



当な手法を用いれば化学成分からの情報も古環境解析に大いに役立つ。上記に研究の全体像を示す。本研究は化学情報、特に化学化石の一つである地殻物質、天然放射性元素ウラン(U)・トリウム(Th)に着目し、湖沼堆積物中のU・Th同位体測定を実施し、それらの堆積物への移行・堆積挙動から周辺の古環境解析を行う。最終的には、湖底堆積物コア中のU・Th同位体記録から自然変動と人間活動による環境変遷史を解読する新たな時計を提示し年代測定、環境変動さらに古環境解析に役立てる。

本研究では、自然-人間活動の結果生ずる環境変動変遷の記録計として、従来からの堆積物の物理特性や無機・有機化学成分測定等からの情報に加えて、新規に化学化石の一つで放射性的ウラン(U)(トリウム(Th)も含む)同位体組成を指標にする。過去の自然(気候変動、降水量変化、突発現象生起など)および人為的(土地利用形態の変化、富栄養化の進展など)活動の事例と組み合わせ、湖やその周辺の古環境変動を復元する基礎研究を目指す。

湖沼中には、流域の土地利用形態、地形、植生、さらに湖沼の物性、水の挙動を反映して河川を通じて流入したさまざまな粒度の土壌粒子等が、湖内

で生産された自生性物質と共に年輪を形成して沈降・堆積している。天然放射性核種である U は、流入する土壌粒子そのものに含まれていると同時に、湖内では溶存 U が主に自生性物質や土壌粒子に吸着・付着して沈積・固定される。これらの沈積過程、少なくとも土壌粒子として河川等から流入する外来性 U 成分（自然変動の指標）と湖内で吸着する自生性 U 成分（植物・動物プランクトンなどの自生性物質の増加をもたらす富栄養化などの人為活動および気候変動の指標）を識別し、過去の自然・人間活動史の事例との対応で解析することで、新たな発想・展開が期待できる。識別は、同位体比 $U-234/U-238$ 、 $Th-232/U-238$ 放射能比などから可能である。ここでは、この一つの新しい切り口を検証しより普遍的なものにするために、湖内での U(Th) の沈降メカニズム、堆積物コアでの U・Th 変動と他の物理・化学・生物的パラメータの関係を検討する。研究対象とする湖沼は、琵琶湖（沈降メカニズム解明）およびロシアのバイカル湖、モンゴルのフスグル湖（ロングコア解析からの気候変動との関連解明）である。

地球環境変動問題は、グローバルな変化に重点が置かれがちだが、そのおこり方は地域の自然と人間系の相互作用によって種々に異なる。それ故、地域からグローバルへとつながるさまざまな角度から見た、地域における自然-人間系の相互作用から生ずる環境変動変遷を科学的に解明し将来動向の予知・予測に生かす研究が極めて重要となっている。地域での環境変動解析の比較・集約がグローバルな問題解決の思索につながると言う発想は極めて重要である。地域ごとの湖沼の堆積物を通じて、新たに U(Th)同位体組成の変化解明手法を導入し、環境変動を定量化しようとするものである。U(Th)の沈積過程の基礎検討を行えば、自然-人間系の相互作用による結果としての環境変動解明研究の一つの方向性のみならず新たな展開を提示できる。U は、天然で3種類の同位体 U-238, U-235, U-234、Th は Th-232, Th-230, Th-228 から成る。これら核種間の放射能比は、岩石では放射平衡状態にあるが、湖水では放射非平衡状態になっている場合が多く、堆積物中でこれらの比が環境変化などに絡んで変化する。この放射能比の使い方がキー・ポイントである。この研究は、最終的に古環境解明に寄与することを目的としているが、湖水の U(Th)の堆積挙動を含む物質循環解明、さらに堆積物で測定困難な数万から 100 万年代の年代に対しての U-238-U-234 および U-238(U-234)-Th-230 年代測定法の妥当性の検証にも大きく貢献できる。

これまでの研究状況

放射性核種は注目する成分のトレーサになるだけではなく、固有の物理的半減期で減少することに加え、その供給源と供給量が良く把握されていることが多いために存在量を測定するだけで、水圏で起こっている種々の過程の時間や速度の変化を提供してくれる側面を持ち合わせている。

数年前から琵琶湖をフィールドにして放射性核種をトレーサとして用いる湖沼環境での物質循環研究に着手し、集水域を含めた湖沼系で、溶存性物質のトレーサとして極微量宇宙線生成核 ^{22}Na を始めて測定することに成功し、水文学へのトレーサ利用を開拓してきた。

また、山梨県環境科学研究所の研究課題「富士五湖周辺の自然環境変遷史の解明」プロジェクトにも参加し、放射性核種(^{210}Pb , ^{137}Cs) を用いて富士五湖の一つである河口湖の堆積年代の決定と共に U・Th 同位体測定の結果から、その濃度および核種間の放射能比が深さとともに大きく変動することを見出した。また、琵琶湖に於ても同様な結果を得てきた。土壌粒子そのものに含まれて流入するウランは流域での自然変動（降水量変化、突発現象生起、土地利用形態の変化など）の指標を、さらに湖内の自生性物質に吸着あるいは取り込まれた溶存ウラン由来のウランは気候変動とも関連する湖内の生物生産変化や富栄養化の進展の指標を与えるのではないかと仮説誘導型の着想に至った。

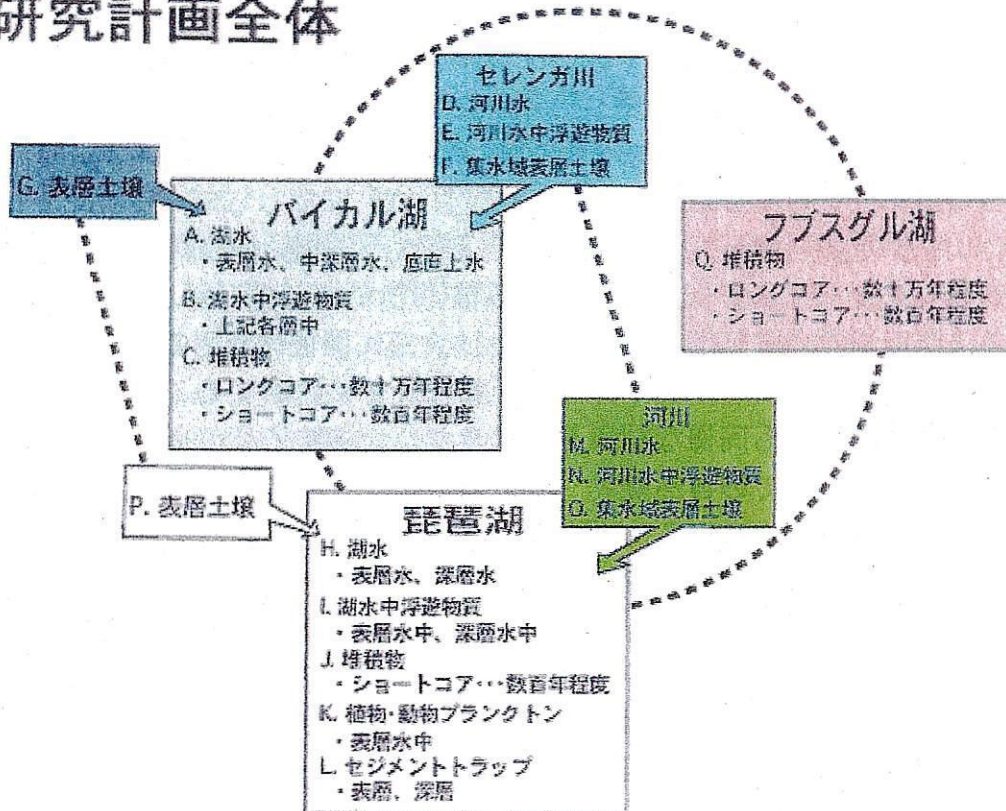
全体の概要

環境変動に敏感な地域であると言われているユーラシア東部に着目し、琵琶湖、バイカル湖、フスグル湖をフィールドにして目的達成のために研究を遂行する。現在、個々の湖について下記に示すような試料を得ている。

通常、湖では河川(+大気)を通じて湖内に運び込まれる外来性物質（流域の土壌粒子など）や湖内で生産された植物・動物プランクトンなどの自生性物質が、湖沼の物性・水の挙動の影響を受けながら湖底に沈積する。この沈積した堆積物中の天然放射性核種であるウラン(U)は、河川から流入する土壌粒子に由来する U (外来性 U) と自生性物質や流入した土壌粒子に吸着あるいは取り込まれて沈積する湖内由来の溶存 U (自生性 U) から成る。従って、①外来性 U と流入する土壌粒子の特性および自生性 U の吸着沈降・沈積メカニズムを定量的に明確にすることがこの手法確立に向けてのキー・ポイントになる。さらに、②自生性 U の沈積が、湖水の環境変化（底層水の酸化還元変化や気候変動に伴う植物・動物プランクトンの増減）とどのように関係しているのかの基礎検討も必須である。これらのことを踏まえ、①については琵琶

湖を、②についてはバイカル湖およびフブスグル湖を主として研究を行う。

研究計画全体



本研究の実施計画

本研究のキー・ポイントは、堆積物コア試料（0.5cm または 1.0cm 毎に表層から切断）の深さごとに測定した bulk U-238 について、河川を通じて湖内に運び込まれる流域の土壌粒子そのものに含まれている U-238 と、湖内で生産された植物・動物プランクトンなどの自生性物質に吸着あるいは取り込まれた溶存 U-238 の識別にある (U-234/U-238, $^{232}\text{Th}/\text{U-238}$, $\text{Th-230}/\text{U-238}$ 比の利用)。それにより、土壌粒子そのものに含まれている U は流域での自然変動（降水量変化、突発現象生起、土地利用形態の変化など）の指標を、さらに自生性物質に吸着あるいは取り込まれた溶存 U は気候変動とも関連する湖内の生物生産変化や富栄養化の進展の指標を与えるのではないかと考えた。それ故、1) U の堆積（沈積）過程や、2) U の堆積挙動と気候変動との関連の

基礎研究が重要である。これを踏まえて、研究を実施した。

11. U の堆積（沈積）過程：琵琶湖をフィールドにして、2年前から湖内の最深域（100m）にセジメント・トラップを2セット（湖面下35mと85m）設置し、毎月沈降物質を採取している。同時に、この深さで湖水および表層のプランクトンも採取している。堆積物コア（ca. 60 cm）は既に採取済みである。河川からの流入水および土壌（懸濁物）中の U・Th 測定用の試料も毎月（2-3 河川で継続）採取している。

1-1) 外来性 U(Th) と流入する懸濁粒子（土壌粒子など）についての定量的関係を把握

琵琶湖の主な流入河川である姉川と安曇川の定点で、河川水（ $<0.45\mu\text{m}$ ）と懸濁粒（ $>0.45\mu\text{m}$ ）を毎月採取する。それぞれの試料について、U・Th 同位体（ ^{238}U , ^{234}U , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th ）及び土壌の指標である Ti、Al 等を併せて測定する。これにより流入する懸濁物、特に土壌粒子と U・Th 同位体組成の関係を把握する基礎データを得る

1-2) 自生性 U の懸濁物への吸着・取り込みを把握（沈降成分と U・Th の関係と Flux）

琵琶湖の安曇川沖（水深約 100m）にセジメント・トラップを設置し（水深 35m と 85m）、一ヶ月間隔で沈降粒子を採取する。同時に、この2水深地点でポンプ採水により 20L の湖水をろ別（口径 $0.45\mu\text{m}$ ）して懸濁物および湖水を採取する。併せて、表層のプランクトンも採取する。これらを継続しながら、懸濁物への U の吸着程度、つまり河川懸濁物、湖水懸濁物、沈降粒子、プランクトンへの分配係数 (K_d) を把握する。さらに、U・Th と土壌、有機物沈降 Flux との関係を検討する。

1-3) 堆積物中の U(Th) と上記の U(Th) 沈降 Flux との関係

セジメント・トラップを設置した地点で 30-50cm 長さの堆積物コアを既に採取し、採集後 1cm 間隔で切断、乾燥してある。この試料を用いて、粒度解析、U・Th 同位体組成分析、 ^{210}Pb , ^{137}Cs 法による堆積年代解析、さらに珪藻変動の指標である Bio-SiO₂ 等の分析を行う。この試料から、堆積物中 U と堆積物の物理的側面との関係、さらに U(Th) 沈降 Flux との関係を把握する。これにより、U(Th) の沈降（沈積）過程を考察する。

2) U の堆積挙動と気候変動との関係

上記の研究と併せて、バイカル湖の研究も遂行する。バイカル湖の堆積物はグ

ローバルな気候変動を明確に記録している。また、バイカル湖水中 U-238 濃度は、約 6mBq/L と国内の湖の 10-100 倍高く、かつ U-234/U-238 比も 2.0 と高いので、気候変動に加えて湖内での溶存 U の沈積挙動の研究に最適である。既に何本かのロング・コアを採取済みであり、磁化率、粒度分布、有機物、Bio-SiO₂含有量などの物理・生物的データも揃っている。

既に 2 本のバイカル湖底堆積物コアを用いて U・Th 濃度と他の物理、生物的パラメータとの関係を検討してきた。一つは、セレンガ川からの影響を受けやすい河口デルタでの約 60cm コアで、もう一つは湖中央のアカデミッシェン湖嶺で採取した 12m コアである。間氷期—氷河期サイクルに対応した Bio-SiO₂-U サイクルが明瞭に記録されている。間氷期では、Bio-SiO₂, U とともに多く、氷河期では逆 (Bio-SiO₂ 殆ど無く、粘土のみ) である。このような結果を踏まえて、

2-1) バイカル湖堆積物に関して

バイカル湖のアカデミッシェン湖嶺で採取したコアを用いて、間氷期—氷河期サイクルの中での U の沈積・堆積過程を解明する。

2-2) フブスグル湖堆積物に関して

フブスグル湖はバイカルリフトゾーンの一部を占めるモンゴル国最大の淡水湖である。バイカル湖最大の流入河川であるセレンガ川の源流部に位置し、湖水面の標高はバイカル湖より 1,000m 以上高い(1,645m)。湖に大きな流入河川はなく、容積もバイカル湖と比べて 1/60 である。このような地理的条件は、標高が高いことによる日射量変動への敏感さや厳冬期の長さ、または容積が小さく流入河川に乏しいことによる湖水面の変動の激しさなど、中央アジアの古環境変動に対するフブスグル湖の鋭い応答を期待させる。バイカル湖との比較でも興味深い。2004 年 2 月に、日本、ロシア、韓国、中国、モンゴルとの共同で 80m のコアを採取済みであるので、この試料について U(Th) 濃度の深度分布を測定し、他の物理・生物・化学的パラメータの深度分布との関係を検討する。

今回の調査研究の主な成果

1) U の堆積 (沈積) 過程: 琵琶湖をフィールドにして, 湖内の最深域 (100m) にセジメント・トラップを2セット (湖面下 35m と 85m) 設置し, 毎月沈降物質を採取している。同時に, この深さで湖水および表層のプランクトンも採取している。堆積物コア (ca. 60 cm) は既に採取済みである。河川からの流入水および土壌 (懸濁物) 中の U・Th 測定用の試料も毎月 (2-3 河川で継続) 採取している。---後半年, 継続しながら, 測定を開始する。植物・動物プランクトン試料については, 0.1g-dry 以下の試料から極微量の U を ICP-MS で測定できることを確認した。一年間通しての U の分配係数(Kd)が 10^3 - 10^4 であることが分かった。量的な現段階で評価はできないが, U が植物・動物プランクトンに取り込まれ(あるいは表面錯体の形成), 沈降していることは確かである。

2) バイカル湖関係

バイカル湖のセレンガデルタ沖で採取した 60cm 深さコアについて分析を完了し, *Journal of Paleolimnology* に受理された。2000 年程度をカバーするコアなので, 現世のウラン・トリウム堆積挙動を考察した。バイカル湖水中 U-238 濃度は, 約 6mBq/L と国内の湖の 10-100 倍高く, かつ U-234/U-238 比も 2.0 と高いので, 河川からの土壌などの陸起源物質以外に湖内 (河川) で溶存している U が沈積していることが明確に読み取れた。解析の結果, この成分の変動は, 河川からの懸濁粒子の組成 (土壌有機物, Fe, Mn

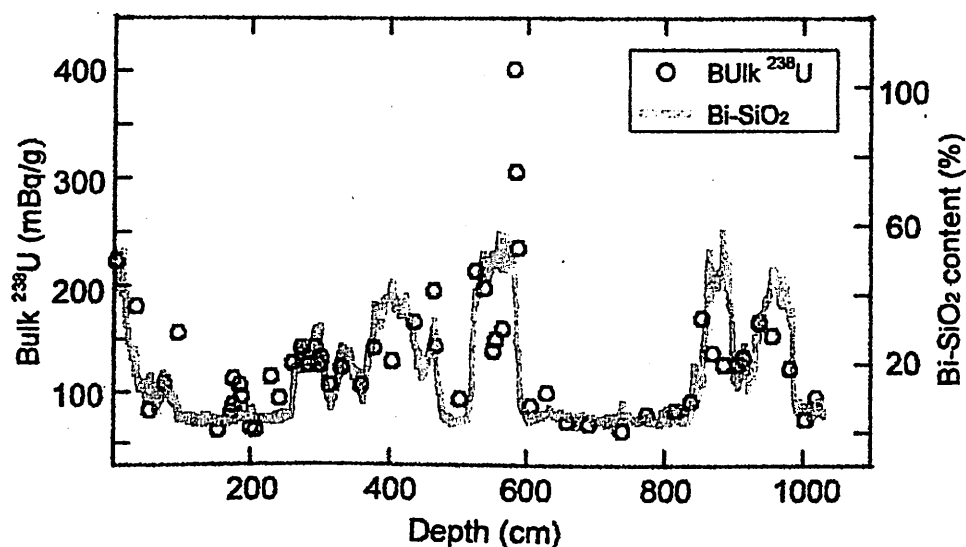


Fig. 1 The depth profiles of Bi-SiO₂(%) and ²³⁸U(mBq/g) for long core sediments from Lake Baikal.

水和酸化物)のU吸着容量の違いに依存していることが示唆された。Thは、陸起源物質のプロキシールになることが分かった。

アカデミッシュン・リッジからの12mの長いコアーについてはすようにBio-SiO₂とUとの良い相関関係を見出しきた。現在、堆積物組成、年代等を交えて解析中であるが、暖かい時期(間氷河期)に濃度が高く、寒い時期(氷期)には低くなることが分かった。何故、UとBio-Siの変動が調和的なのかに焦点を当て解析を進めている。いずれにしても、吸着成分と土壌などの陸起源物質のUを識別することが重要であり、吸着成分Uが暖かい時期のプロキシールになることが強く示唆された。

3) フブスグル湖関係

現在、2本のコアーについて分析を進めている最中である。

研究組織

研究代表者： 山本 政儀 (金沢大学自然計測応用研究センター・
低レベル放射能実験施設)

研究分担者： 柏谷 健二 (金沢大学自然計測応用研究センター)

研究協力者： 坂口 綾 (金沢大学大学院・自然科学研究科物質
科学専攻・博士後期課程)

富田 純平 (金沢大学大学院・自然科学研究科物質
化学専攻・博士前期課程)

交付決定額 (直接経費のみ, 間接経費 : 0 円)

平成 16 年度 2,800 千円

平成 17 年度 1,100 千円

計 3,900 千円

研究発表

(学術論文)

1. A. Sakaguchi, M. Yamamoto, K. Sasaki, K. Kashiwaya: Uranium and thorium isotopes distribution in an offshore bottom sediment core of the Selenga Delta, Lake Baikal, Siberia, *J. Limnology*, (soon issued) (2006).
2. A. Sakaguchi, Y. Ohtsuka, K. Yokota, K. Sasaki, K. Komura, M. Yamamoto: Cosmogenic radionuclide ^{22}Na in the Lake Biwa system (Japan): residence time, transport and application to the hydrology, *Earth Planet. Sci. Letters*, 231, 307-318 (2005).
3. A. Sakaguchi, M. Yamamoto, K. Ishikawa, K. Kashiwaya, Y. Otsuka, K. Yokota: Information from uranium and thorium isotopes recorded in lake bottom sediment: Attempt to evaluate environmental changes, *Proceedings of the International Symposium on Radioecology and Environmental Dosimetry* (J. Inaba, H. Tsukada and A. Takeda, Eds.), Rokkasho, Aomori, Japan, October 22-24, 2003, Institute for Environmental Sciences, Japan, p.348-353 (2004).
4. A. Sakaguchi, M. Yamamoto, T. Shimizu, S. Koshimizu: Geochemical record of U and Th isotopes in bottom sediments of Lake Kawaguchi at the foot of Mt. Fuji, Japan, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 262(3), 617-628 (2004).
5. A. Sakaguchi, M. Yamamoto, Y. Otsuka, K. Sasaki, Y. Yokota, K. Komura: Low-level measurement of the cosmogenic ^{22}Na radionuclide in the fresh water by ultra low- background gamma-ray spectrometry after simple radiochemical separation, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, 258 (1), 101-105 (2003).

(学会発表)

1. A. Sakaguchi, M. Yamamoto, J. Tomita, K. Kashiwaya: Uranium and thorium isotopes distribution in a bottom sediment core from the Academician Ridge, Lake Baikal, Siberia, 4th International Symposium of Kanazawa 21st Century COE Program, march, 8-10, Kanazawa, Japan.
2. M. Yamamoto, A. Sakaguchi, K. Kashiwaya, A. Szyniszewska, A. Krivonogov, T. Watanabe, T. Nakamura: Uranium and thorium isotopes distribution in the sediment core of the lake Hovsgol, Mongolia: As a proxy of paleoenvironmental reconstruction, *Terrestrial Environmental Changes in East Eurasia and Adjacent Areas*, Korea-Japan-

- Russia-China-Mongolia Joint Scientific Program. December 7-9, 2005, Gyeongju, Korea.
3. S. Tamamura, C. Ringor, Y. Ota, A. Sakaguchi, T. Matsuoka, T. Sato, N. Hasebe, M. Yamamoto, K. Kashiwaya, D. Y. Yang, I. Y. Kim., W. H. Nahm: Records of human activities derived from lacustrine sediments in Korea and Japan, *ibid.*
 4. A. Sakaguchi, M. Yamamoto, K. Kashiwaya: Uranium and thorium isotopes in lacustrine sediments-Lake Baikal, Proceedings for 2nd International Conference on Radioactivity in the Environment, October 2-6, 2005, Nice, France.
 5. A. Sakaguchi, J. Tomita, K. Kashiwaya, M. Yamamoto: Uranium and thorium records in bottom sediments from the Lake Baikal: Sedimentary behavior and application for dating, Present earth Surface Processes and Historical Environmental Changes in East Asia, October 17-22, Kanazawa, Japan.
 6. 坂口 綾, 佐々木圭一, 柏谷健二, 山本政儀, ウラン・トリウム同位体組成から見るバイカル湖の堆積環境, 日本放射化学会, 金沢 (2005 10/28-30)
 7. A. Sakaguchi, M. Yamamoto, T. Shimizu, S. Koshimizu, Geochemical record of U and Th isotopes in bottom sediments of lake Kwaguchi at the foot of Mt. Fuji, Central Japan, International Conference on Low-level Measurement of radionuclides in the Environment Guilin (桂林), China, April 19-23, 2004.
 8. 坂口 綾, 山本政儀, 富田純平, 柏谷健二, 河合崇欣: バイカル湖の湖底堆積物中ウラン・トリウム同位体, 日本放射化学会, 東京 (2004.9)
 9. 渡部 論, 井上睦夫, 小藤久毅, 小村和久, 山本政儀: 能登半島沿岸海水における $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ 比の季節変動, 日本放射化学会, 東京 (2004.9)
 10. 山本政儀, 坂口 綾, 星 正治, 高田 純, B. I. Gusev: 異常に高いウラン濃集の湖底堆積物-セミパラチンスク核実験場周辺の幾つかの湖沼, 日本放射化学会, 東京 (2004.9)
 12. K. Kashiwaya, Yamamoto, M., Sato, T., Hasebe, N., Wang, X., Tamamura, S., Sakaguchi, A., Ota, Y., Matsuoka, T., Yang, D. T., Kim, J. K. and Nahm, W. H.: Preliminary results of comparative study on lake-catchment system in Japan and Korea, The 1st International Symposium on Earth Surface Environmental Changes-Present Earth Surface Processes and Historical Environmental Changes in the far East Asia, KIGAM, Daejeon, Korea, October 5-7, 2004.
 13. A. Sakaguchi, Yamamoto, M., Kashiwaya, K., Tsukamoto, T., Sato, T., Hasebe, N. and Kawai, T.: Uranium and thorium isotopes in lake bottom sediments-Lake Baikal, *ibid.*