

## γ線スペクトロメトリを用いた Pb-210 法による

### 東京湾海底堆積物の堆積速度

市村哲成<sup>1)</sup>, 木村賢一郎<sup>2)</sup>, 森本隆夫<sup>3)</sup>, 鈴木顕介<sup>4)</sup>, 本多照幸<sup>5)</sup>

Sedimentation rates calculated from excess Pb-210 activities in marine sediments  
from Tokyo Bay using γ-ray spectrometry

Tetsunari ICHIMURA, Kenichiro KIMURA, Takao MORIMOTO,  
Eisuke SUZUKI and Teruyuki HONDA

#### 1. はじめに

$^{210}\text{Pb}$  は U 壊変系列に属する放射性核種で、これを用いる年代測定法は今から 30 数年前に、その可能性が報告された。その後、湖底堆積物や海底堆積物に適用されるようになった。 $^{210}\text{Pb}$  堆積年代測定法は、 $^{210}\text{Pb}$  の半減期が 22.3 年であることから比較的若い(100 年程度)堆積物に適用されるが、他の年代測定法である  $^{14}\text{C}$  法やフィッション・トラック法等のように任意の試料の分析で絶対年代が求まるというのではなく、「堆積速度」という変化率の計算によって現在から遡って年代を出しているという点で、これらの方法と大きく異なっている。

本研究では、東京湾海底堆積物(2 地点)に  $^{210}\text{Pb}$  堆積年代測定法を適用し、年代測定を行った。また、同時に測定した  $^{137}\text{Cs}$  による年代測定( $^{137}\text{Cs}$  法)を行い、これと比較した。なお、本研究では、新たに導入した γ線検出器を用いており、以下の特色を持っている。

- ①従来は、 $^{210}\text{Pb}$  放射能濃度を求めるために  $^{210}\text{Bi}$  の β線(1.16MeV)や  $^{210}\text{Po}$  の α線(5.30MeV)を測定しており、この際化学処理を必要としていたが、今回  $^{210}\text{Pb}$  の放射能濃度を一切の化学処理を行わず、 $^{214}\text{Bi}$  の γ線(609.3keV)と共に、 $^{210}\text{Pb}$  の γ線(46.5keV)から直接測定できるようになったこと。
- ②日本沿岸部の研究において測定例の少ない、 $^{210}\text{Pb}$  と  $^{137}\text{Cs}$  を同時に測定したこと。

#### 2. 原理

$^{210}\text{Pb}$  堆積年代測定法は、U 壊変系列の放射性鉛( $^{210}\text{Pb}$ )の堆積物中での深度分布から堆積速度を求め、堆積年代を測定する方法である。

岩石・土壌粒子中に含まれる U 壊変系列の  $^{226}\text{Ra}$  の壊変によって生じた  $^{222}\text{Rn}$ (気体)が大気中に拡散し、それから

- 
- 1) 武蔵工業大学工学部 Faculty of Engineering, Musashi Institute of Technology
  - 2) 武蔵工業大学工学研究科 Graduate School, Research Division in Engineering, Musashi Inst. of Tech.
  - 3) (財) 日本分析センター研修・開発部 Research & Development Section, Japan Chemical Analysis Center
  - 4) 水産庁中央水産研究所 National Research Institute of Fisheries Science, Fisheries Agency
  - 5) 武蔵工業大学原子力研究所 Atomic Energy Research Laboratory, Musashi Institute of Technology

生じた  $^{210}\text{Pb}$  がエアロゾルなどに付着して降下し、湖底や海底に沈積し、その後、 $^{210}\text{Pb}$  は半減期 22.3 年で減少していく。

実際に測定される  $^{210}\text{Pb}$  放射能は、堆積粒子中の  $^{226}\text{Ra}$  起源の  $^{210}\text{Pb}$  によるものも含むため、その量を差引く必要があり、それを差引いたものを過剰  $^{210}\text{Pb}$  と呼ぶ。

過剰  $^{210}\text{Pb}$  放射能濃度は式(1)で表すことができる。

$$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}} = ^{210}\text{Pb}_{\text{tot}} - ^{210}\text{Pb}_{\infty} \text{ (or } ^{214}\text{Bi or } ^{226}\text{Ra)} \quad (1)$$

$^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}$  : 過剰  $^{210}\text{Pb}$  放射能濃度、 $^{210}\text{Pb}_{\text{tot}}$  : 全  $^{210}\text{Pb}$  放射能濃度

$^{210}\text{Pb}_{\infty}$  :  $^{210}\text{Pb}$  放射能濃度が一定に達する深さでの値

$^{214}\text{Bi}$ 、 $^{226}\text{Ra}$  : 各核種の放射能濃度

ところで、ある深さ  $z(\text{cm})$ での堆積物は、降り積もる堆積物の重さのため、堆積物中の間隙水が絞り出されて圧縮される。この圧縮の影響を除くために、平均重量堆積速度  $w(\text{g}/\text{cm}^2/\text{y})$ を用いる。平均重量堆積速度  $w$ は、深度  $z$ の代わりに積算重量  $W(\text{g}/\text{cm}^2)$ を用いて求める。積算重量  $W$ は式(2)で表される。

$$W = \int_0^z (1 - \phi) \rho dz \quad (2)$$

$\phi$  : 堆積物試料の間隙率、 $\rho$  : 堆積物試料の密度 ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )

積算重量  $W$ を用いると、式(1)は以下のように書ける。

$$\ln ^{210}\text{Pb}_{\text{ex}}(W) = \ln ^{210}\text{Pb}_{\text{ex}0} - (\lambda/w)W \quad (3)$$

$\lambda$  :  $^{210}\text{Pb}$ の壊変定数 ( $\ln 2/22.3 = 3.11 \times 10^{-2} \text{y}^{-1}$ )

式(3)の傾きより、平均重量堆積速度  $w$ を求めることができる。また、平均堆積速度  $s(\text{cm}/\text{y})$ と平均重量堆積速度  $w$ の関係は、式(4)で表すことができる。

$$w = s(1 - \phi) \rho \quad (4)$$

### 3. 実験

堆積物柱状試料は、1987年5月に、水産庁中央水産研究所が東京湾から重力式柱状採泥器を用いて採取したものである。これらをU-8容器に充填し、分析試料とした。採取試料のデータを表1に示す。

表1 採取試料のデータ

	試料採取地点	水深	試料数	採取年月日
東京湾II	35° 34.4'N, 139° 55.3'E	16m	31層	1987/5/15
東京湾IV	35° 09.2'N, 139° 45.3'E	455m	20層	1987/5/15

本研究では、 $^{210}\text{Pb}_{\text{tot}}$ として $^{210}\text{Pb}$ の $\gamma$ 線(46.5keV)、 $^{210}\text{Pb}_{\infty}$ として親核種である $^{214}\text{Bi}$ の $\gamma$ 線(609.3keV)、また、 $^{137}\text{Cs}$ 法による堆積年代の比較を行うために $^{137}\text{Cs}$ の $\gamma$ 線(661.6keV)を測定した。

### 4. 結果及び考察

東京湾II試料、同IV試料について、定量結果を元に得られた過剰 $^{210}\text{Pb}$ 放射能濃度( $^{210}\text{Pb}$ から $^{214}\text{Bi}$ を差引いたもの)及び $^{137}\text{Cs}$ 放射能濃度の深度分布を図1~図3に示す。ここでの値は、バックグラウンド補正、密度補正、

自己吸収補正、充填高補正、半減期補正、等全ての補正を行ったものである。計数誤差は、 $^{210}\text{Pb}$  は5(堆積物表層部)~20%(下層部)程度、 $^{214}\text{Bi}$  は20%程度、 $^{137}\text{Cs}$  は25~50%以上であった。また、繰返し誤差は、 $^{210}\text{Pb}$  は2(表層部)~5%(下層部)程度、 $^{214}\text{Bi}$  は10%程度、 $^{137}\text{Cs}$  は10%程度であった。

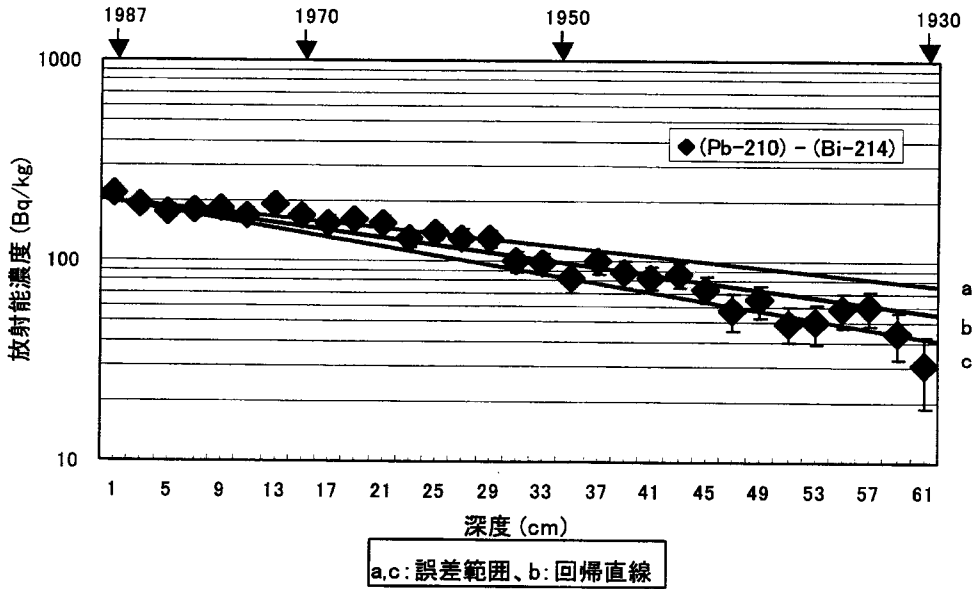


図1 過剰 $^{210}\text{Pb}$ 放射能濃度深度分布(東京湾II)

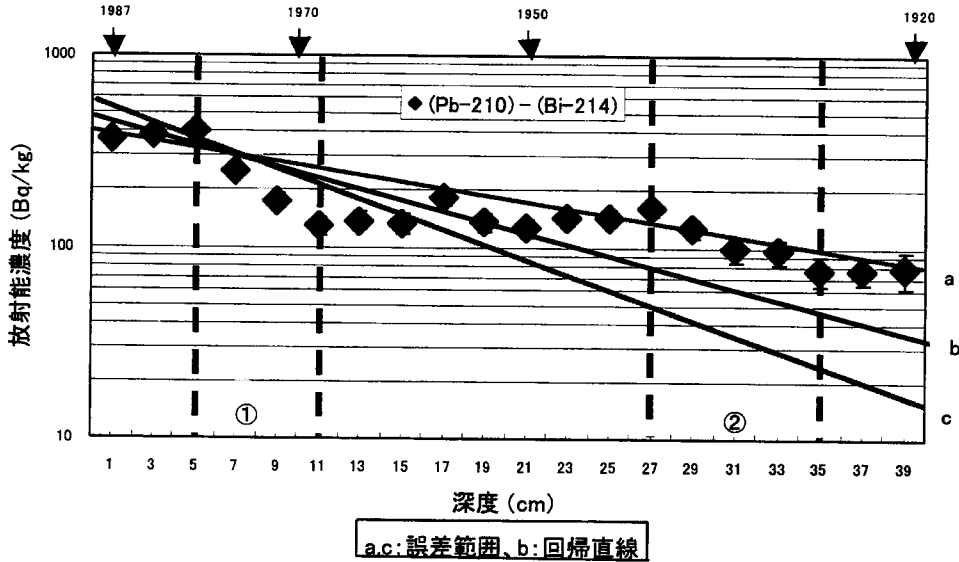


図2 過剰 $^{210}\text{Pb}$ 放射能濃度深度分布(東京湾IV)

両試料共、過剰 $^{210}\text{Pb}$ 放射能濃度は深度に対し指数関数的減少を示した。しかし、東京湾IV試料に関しては深度によっては必ずしも減少しておらず、表層部(0~6cm)や中層部(12~26cm)等で放射能濃度がほぼ一定となってい

る。これは生物攪乱等による試料の混合の可能性を示唆している。図 1 及び図 2 に示した回帰直線から平均重量堆積速度は東京湾Ⅱ試料で  $0.618\text{g/cm}^2/\text{y}$ 、東京湾Ⅳ試料では  $0.468\text{g/cm}^2/\text{y}$ 、平均堆積速度はそれぞれ、 $1.10\text{cm/y}$ 、 $0.823\text{cm/y}$  と求めたが、東京湾Ⅳ試料では特に回帰直線から外れるプロットも多かった。そこで、グラフ上でプロットを視覚的に説明できる範囲を堆積速度の誤差範囲とすると、東京湾Ⅱ試料では平均堆積速度  $0.605\sim 1.56\text{cm/y}$ 、東京湾Ⅳ試料では  $0.645\sim 1.54\text{cm/y}$  の範囲となった。東京湾Ⅳ試料に関しては、試料全体での混合が示唆されている。そこで図中に示した①及び②の部分で混合が無いものとして、それぞれの部分での放射能濃度の深度分布の傾きから平均堆積速度を求めると、 $0.292\text{cm/y}$ 、 $0.598\text{cm/y}$  となる。これらの値は回帰直線から求めた値と大きく異なるが、試料の混合が起こると見かけ上求められる堆積速度が大きくなることが報告されており、これらの値の方がより実際の堆積速度に近いと思われる。東京湾Ⅳ試料で試料全体での混合が起きている原因は、生物による攪乱の他、海底地形によるものと考えられる。東京湾Ⅳ試料採取地点の地形は急勾配となっており、その周辺の堆積物が崩れ落ちてくる等の再堆積が度々起きているのではないかと推測される。

$^{137}\text{Cs}$  は人工放射性核種であり、その起源は大部分が大気圏内核実験である。核実験によるフォールアウトは 1963 年に最大になり、原子力発電所からの寄与がない堆積物における  $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度ピークは 1963 年前後と考えられており、そのピークを起点として堆積年代を測定することができる。そこで、図 3 では  $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度の深度分布にピークは見られないが、深度  $24\text{cm}$ ( $18\sim 32\text{cm}$  の中心)にピーク(1963 年)があると仮定して平均堆積速度を求めると  $1.00\text{cm/y}$  となる。また、深度  $28\text{cm}$ ( $26\sim 32\text{cm}$  の中心)にピーク(1963 年)を仮定すると、平均堆積速度  $1.13\text{cm/y}$  と求まる。ところで、核実験が始まり大気中に有意な量の  $^{137}\text{Cs}$  が放出され始めた年は、一般的に 1954 年だと考えられている。そこで  $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度のピークが見られない深度分布を示す場合は、 $^{137}\text{Cs}$  の検出される最も深い位置を起点にして堆積年代を測定することが可能である。そこで、東京湾Ⅱ試料(図 3)について、 $^{137}\text{Cs}$  が検出され始める深度  $39\text{cm}$  を 1954 年として、平均堆積速度を求めると  $1.18\text{cm/y}$  となる。ただし、試料が  $2\text{cm}$  毎のサンプリングであること及び  $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度の計数誤差を考慮すると、平均堆積速度は  $1.12\sim 1.24\text{cm/y}$  の範囲である。これらの値は  $^{210}\text{Pb}$  法によるものと良く一致している。東京湾Ⅳ試料については、ほとんどが検出限界以下であり、計数誤差も非常に大きかったため、 $^{137}\text{Cs}$  法は適用できなかった。

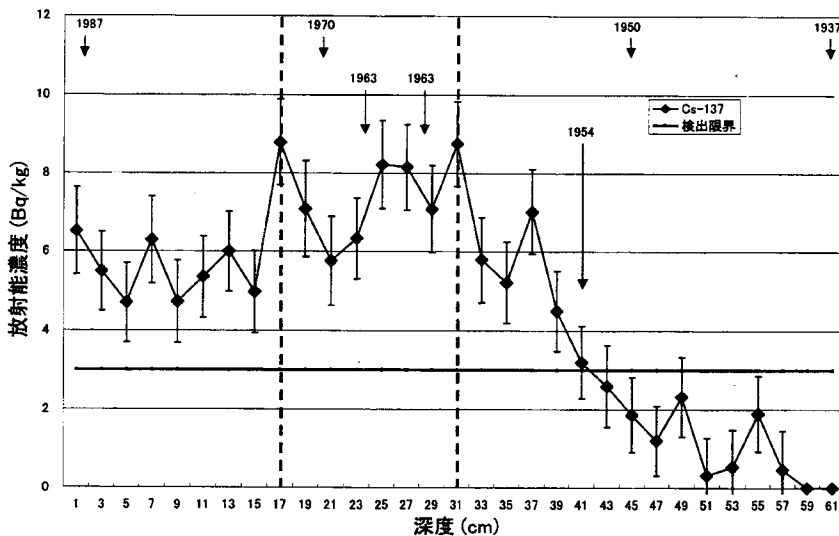


図 3 Cs-137 放射能濃度深度分布(東京湾Ⅱ)

## 5. 結論

本研究により以下のことが明らかとなった。

- ①東京湾海底堆積物に広範囲エネルギー用 $\gamma$ 線測定器を用いることにより、 $^{210}\text{Pb}$ 、 $^{214}\text{Bi}$ 、 $^{137}\text{Cs}$  が同時に定量できた。
- ②過剰  $^{210}\text{Pb}$  放射能濃度の深度分布の回帰直線から、平均堆積速度(平均重量堆積速度)は東京湾Ⅱでは  $1.10\text{cm/y}$ ( $0.618\text{g/cm}^2/\text{y}$ )、東京湾Ⅳでは  $0.823\text{cm/y}$  ( $0.468\text{g/cm}^2/\text{y}$ ) と求めた。また、誤差範囲を含めるとそれぞれ、 $0.605\sim 1.56\text{cm/y}$  ( $0.339\sim 0.874\text{g/cm}^2/\text{y}$ )、 $0.645\sim 1.54\text{cm/y}$ ( $0.367\sim 0.878\text{g/cm}^2/\text{y}$ )となった。東京湾Ⅱのように比較的混合のない試料については、回帰直線から堆積速度を求めることができる。ただし、誤差を含めた堆積速度の範囲を併せて示すのが適当であると考えられる。
- ③試料全体での混合が示唆された東京湾Ⅳについて部分的な堆積速度を求めた結果、 $0.292\sim 0.598\text{cm/y}$  ( $0.166\text{g}\sim 0.340\text{g/cm}^2/\text{y}$ )となった。このように混合が起きている試料については、部分的回帰直線から堆積速度を求める方法が適していると考えられる。
- ④東京湾Ⅱについて、 $^{137}\text{Cs}$  法から求めた平均堆積速度は、'63 を起点とすると  $1.10\sim 1.13\text{cm/y}$ 、'54 を起点とすると  $1.18\text{cm/y}$  ( $1.12\sim 1.24\text{cm/y}$ )となった。これらの値は  $^{210}\text{Pb}$  法による値( $1.10\text{cm/y}$ )とよく一致した。このように、同時に測定した  $^{137}\text{Cs}$  を用いた  $^{137}\text{Cs}$  法は、 $^{210}\text{Pb}$  法による堆積速度の正確さを評価する一つの指標となる。一方、試料の混合が示唆される東京湾Ⅳのような試料に関しては、 $^{137}\text{Cs}$  放射能濃度が検出限界以下となり、 $^{137}\text{Cs}$  法を適用できないことが明らかとなった。

## 参考文献

- 本多照幸, 日本海水学会誌, 第 54 巻第 5 号, 348-359(2000)
- 本多照幸, 鈴木頼介, 森本隆夫, フィッション・トラック ニュースレター, 第 13 号, 39-41(2000)
- 金井豊, 地球化学, 34, 23-39(2000)
- 真田幸尚・佐藤太・熊田英峰・高田秀重・山本愛・加藤義久・上野隆, 地球化学, 33, 123-138(1999)
- Tadjiki S. & Erten H. N., J.Radioanal. Nucl. Chem., 181(No.2), 447-459(1994)
- 松本英二, 地球化学, 17, 27-32(1983)