地球化学 **42**, 99-111 (2008) Chikyukagaku (Geochemistry) **42**, 99-111 (2008)

# 報 文

# <sup>210</sup>Pb 堆積年代測定法による英虞湾の堆積環境の解析

百 島 則 幸<sup>∗,†</sup>・上 田 祐 介<sup>\*\*</sup>・杉 原 真 司<sup>\*</sup>
 山 形 陽 一<sup>\*\*\*</sup>・国 分 秀 樹<sup>\*\*\*</sup>

(2007年10月25日受付, 2008年6月4日受理)

# Investigation of sedimentation rate in Ago Bay,

Japan by lead-210 dating

Noriyuki Momoshima<sup>\*,†</sup>, Yusuke UEDA<sup>\*\*</sup>, Shinji Sugihara<sup>\*</sup>, Youichi YAMAGATA<sup>\*\*\*</sup> and Hideki KOKUBU<sup>\*\*\*</sup>

- \* Radioisotope Center, Kyushu University, Hakozaki, Higashiku, Fukuoka 812-8581, Japan
- \*\* Faculty of Science, Kumamoto University, Kurokami, Kumamoto 860-8555, Japan
- \*\*\* Fisheries Research Division, Mie Prefectural Science and Technology Promotion Center, Ugata, Ago, Shima 517-0501, Japan
- Corresponding author (momorad@mbox.nc.kyushu-u.ac.jp)

Lead-210 dating method was applied to the sediment cores collected in Ago Bay, Mie prefecture, Japan where the seawater and bottom sediments have been contaminated due to the active pearl cultivation carried out for more than 100 years. A contamination with pearl cultivation was observed on the vertical distribution of the organic carbon (OC) and nitrogen (N), and the OC/N ratio suggesting marine plankton was a major source as the organic contaminants. A surface mixed layer (SML) was observed on the excess <sup>210</sup>Pb vertical distribution and the underlying part, below the SML, was divided into two layers with different sedimentation rates, suggesting the change of sedimentary condition in the late 1960s. The transition of the sedimentation rate is supposed to occur in connection with the change of pearl-production activity in Ago Bay. The surface mixed layer of <sup>137</sup>Cs has expanded to the deeper layer than that of the excess <sup>210</sup>Pb and the inventory of <sup>137</sup>Cs was significantly smaller compared to that of the excess <sup>210</sup>Pb. These facts suggest different behavior of <sup>210</sup>Pb and <sup>137</sup>Cs in the marine environment after they were transferred from the freshwater environment as soil-particle associated radionuclides.

Key words: <sup>210</sup>Pb dating, sediment, <sup>137</sup>Cs, Ago Bay, pearl cultivation, radionuclides

\* 九州大学アイソトープ総合センター 〒812-8581 福岡市東区箱崎6-10-1

t

- \*\* 熊本大学理学部 〒860-8555 熊本市黒髪2-39-1
- \*\*\* 三重県科学技術振興センター・水産研究部 〒517-0501 志摩市阿児町鵜方3098-9

## 1. はじめに

堆積環境の解析には様々な放射性核種が利用される が、この100年位の堆積速度の解析には、半減期22.3 年の鉛-210 (<sup>210</sup>Pb)を用いる<sup>210</sup>Pb 堆積年代測定法(金 井,2000)が有効である。これまでに、<sup>210</sup>Pb 堆積年 代測定法は、内湾(Dellapenna, 1998; Lu and Matsumoto, 2005)、大陸棚(金井・池原,1995; Lewis et al., 2002),外洋(Cochran, 1985),湖沼(金 井ほか, 1995) などのさまざまな堆積物試料に適応 されてきた。人間活動に附随して発生するさまざまな 汚染物質は,水面への直接的降下や河川などを経由す る間接的な経路で湾や湖などにもたらされて堆積す る。堆積物中のこれらの汚染物質の鉛直分布と<sup>210</sup>Pb 堆積年代を対応させることで,人間活動の影響 の歴史が明らかにされてきた(真田ほか, 1999; Yasuhara and Yamazaki, 2005;橫瀬ほか, 2005; Kim et al., 2007)。

英虞湾は三重県志摩半島南部のリアス式の小湾で, 1893年頃に御木本幸吉により本格的な真珠養殖が始 まって以来、真珠養殖の中心となった湾である。複雑 な海岸線や大小さまざまな島は美しい海岸風景をつく り、伊勢志摩国立公園の一部にもなっている。しか し、近年湾内の水質や底質の悪化が著しく、代表的な 産業である真珠養殖への影響が問題となっている。三 重県の真珠養殖の歴史は古く、明治40年以降に天然 真珠形成過程研究から養殖真珠研究へと発展し産業化 への道を進んできた。大正末期から昭和初期にかけ て、海外での真珠需要に支えられて大きく発展してき た。戦前の最盛期の1938年頃には、三重県の生産量 は4,000 kgと全国生産量の約90%を占めるに至っ た。第二次世界大戦後、わが国独自の技術で外貨を獲 得できる産業として,政府は真珠養殖に力を入れ,輸 出量の増加などにより、1955年以降三重県での真珠 の生産量は急増した。そのため、真珠養殖漁場は密殖 状態となり、真珠貝の死亡による歩留まりの低下など の弊害が引き起こされた。1957年に筏を登録制にす ることにより、適切な養殖環境を維持することに努め たが、過密養殖による生産性の低下、瀬戸内海、四 国、九州における真珠養殖産業の拡大もあり、1966 年に最大生産量51トンを揚げた後は、輸出不振によ る長期不況に陥った。1967年に真珠不況により7トン まで減少していた生産量は、1975年過ぎには市況は 徐々に回復し始め、1984年に21トンまで増加した が,現在では7トン前後で推移している(三重県農水 商工部水産室,2007)。

閉鎖性の高い英虞湾における過密養殖は、ヘドロの 堆積や水質悪化などの弊害を引き起こした。弊害の最 たる現象は1956年から始まった硫化水素発生による 養殖貝の大量へい死の頻発であり(沢田ほか、 1958),このような状況は1967年に不況に陥るまで続 いた。赤潮の発生も同様で、英虞湾では全国に先駆け て問題となった。三重県科学技術振興センターが1976 年以降行っている英虞湾における底質と水質の汚染状 況の調査によると(中西ほか,2001;増田ほか, 2004),汚染状況の指標として使用される水質の CODには減少傾向が見られているものの,底質の CODは,観測開始以降ほとんどの水域で増加傾向に あり,湾口部以外の内湾における汚染は深刻な状況に ある。このため,環境再生に向けた三重県地域結集型 共同研究事業「閉鎖海域における環境創生プロジェク ト」が進められた。本研究は,同プロジェクトの一環 として,英虞湾の堆積環境を明らかにする目的で実施 された。

#### 2.<sup>210</sup>Pb 堆積年代測定法の背景

<sup>210</sup>Pbはウラン系列に属する天然放射性核種であ る。ラジウム-226 (226 Ra) の娘核種である放射性気 体ラドン-222 (<sup>222</sup>Rn)は、地表面から大気中に拡散 し、短半減期の子孫核種を経て大気中で<sup>210</sup>Pbに壊変 する。大気中の210Pbは、乾性および湿性沈着物とし て水面や土壌表面に降下する (Momoshima et al., 2006)。土壌表面に降下した<sup>210</sup>Pbの一部は、河川水や 地表流中の懸濁粒子とともに海や湖に移動して堆積す る。一方,水面に直接降下した<sup>210</sup>Pbも水中の懸濁物 質に捕らえられ堆積する。210Pb 堆積年代測定法は, 堆積物に取り込まれた<sup>210</sup>Pb が固有の半減期で減衰し ていくことを利用する年代測定法である。大気由来 の<sup>210</sup>Pb は excess <sup>210</sup>Pb と呼ばれ,一方,堆積物中の土 壌鉱物などに含まれている<sup>226</sup>Raから生じる<sup>210</sup>Pbは supported <sup>210</sup>Pb と呼ばれ区別される。supported <sup>210</sup>Pb の放射能は、堆積物中の226Raとそれから生成し た<sup>210</sup>Pbは放射平衡にあると仮定して、<sup>226</sup>Raの子孫核 種であるビスマス-214 (<sup>214</sup>Bi) から評価することが できる。excess<sup>210</sup>Pbの水中における滞留時間が堆積 速度と比べて短く、そして、堆積速度が一定で、堆積 後の堆積物の移動, 流入, 流失が無く, 堆積物中の excess<sup>210</sup>Pbが閉鎖系に保たれている場合, excess<sup>210</sup>Pb 放射能は堆積物表層から深部に向かって指数関数的に 減衰する。そのとき堆積速度(A)は次式で表すことがで きる (Nittrouer et al., 1983/1984)。

ここで, C<sub>0</sub>は堆積物の上層の放射能, C<sub>z</sub>は堆積物の 上層(C<sub>0</sub>)から距離 z だけ下層の放射能, λは<sup>210</sup>Pb の壊変定数である。

堆積物の表層部は、生物活動と物理作用(波、海 流,潮流)により多かれ少なかれ混合を受けているの で、(1)式は表層混合層以下の深い部分に適応すること になる。生物混合は、底棲生物の摂食行動や移動行為 にともない堆積物が上下混合されるために発生する が、海底では表層10 cm 程度までに分布する生物の影 響による混合効果が大きいとされている。底棲生物の 活動は、堆積物表層が最も活発であり、深くなるにつ れて減少するので,実際の分布構造は,生物混合と堆 積速度の大きさで決まることになる。堆積速度が極め て小さい深海底の表層部において観測される<sup>210</sup>Pbの 深部まで広がる分布構造は,底棲生物の活動にもっぱ ら支配されるところが大きく,このような底棲生物に よる上下混合は拡散に似た現象として解析されている (野崎, 1977)。表層混合層は、生物により堆積物粒 子が上下にあるいは水平方向にかき混ぜられることか ら起こるもので、沿岸部に近い海底では混合層は深さ 20 cm に達する場合もある。生物活動が活発に観測さ れる堆積物表層以深の部分において、<sup>210</sup>Pbの分布構 造に影響を与える生物活動の有無の判断は難しいとこ ろがある。もし、表面混合層より深い層にも生物活動 の影響が及んでいるならば、210Pbの放射壊変のみを 考慮して評価した堆積速度は過大評価になる。

物理混合は,海流や潮流により表層堆積物が舞 上がり再び堆積することで起こる (Nittrouer and Sternberg, 1981; Sanford, 1992)。河川からの流れ込 みがある海域では、河川の影響で流れが速い海岸近く に比較的重い粒子成分が選択的に堆積し、海岸から離 れると粒径のより小さな軽い粒子が堆積する粒子の選 別が見られる。流れにより巻上げられた粒子は、一般 的には流れとともに水平方向に移動して違う場所に堆 積するであろう。しかし, 湾の開口部など潮汐で流れ が反転する日変化が起こっているような場所では、表 層粒子の舞上がりと沈降は活発である一方で、粒子の 移動がほとんどないこともある。海底表層の流れが大 きいほど大きな粒子まで巻上げられるので、台風など で海底が激しく撹拌されると、表層堆積物の大きな再 配置がおこる。また、海底堆積物への影響は浅海域ほ ど大きいので、台風に襲われた湾内部の海底堆積物は 混合される。半閉鎖湾であるキューバ Cienfuegos 湾 (水深14m)では、海底堆積物が大型ハリケーンに より大きな混合を受けたためと考えられる<sup>210</sup>Pb 堆積 速度のギャップとセシウム-137 (<sup>137</sup>Cs) の多重ピー クが観察されている (Alonso-Hernandez et al.,  $2006)_{\circ}$ 

一般に濃度 C の物質の輸送と拡散項は,拡散係数 D を含む方程式で表現される。ここで生物や物理混 合の過程を拡散項(混合係数 D)で表し,定常状態 を仮定すると表層混合層における方程式は次のように なる。

$$A = \frac{\lambda \cdot z}{\ln C_o / C_z} - \frac{D}{z} \left[ \ln \frac{C_0}{C_z} \right] \dots (3)$$

混合がない D=0の場合は,(3)式は(1)式に一致す る。(2)式では,表層混合層における混合係数 D は一 定と仮定しているが (Goldberg and Koide, 1962; Christensen, 1982),深度とともに混合係数が減少す るモデルも提案されている (野崎, 1977)。

堆積物の深さ距離 z は, 堆積物の重みによる圧縮を 受けるため, 堆積層の上部と下部では異なってく る。<sup>210</sup>Pb 年代測定法の解析において, この効果を除 くために, 堆積層の深さを距離の代わりに単位面積当 たりの積算重量を用いたり, 堆積物の空隙率の補正が 行なわれる。単位面積当たりの積算重量を用いる場合 も(2)式は成立することが知られている(Officer and Lynch, 1982)。

#### 3.実 験

#### 3.1 試料採取

志摩半島南部に位置する英虞湾は,湾口幅5.7 km, 湾口最大水深29 m, 湾面積42.23 km², 湾内最大水深 37m,閉鎖度指数1.45で,環境基準類型Aに指定さ れている比較的閉鎖性が高い海域である(国際エメッ クスセンター,2007)。海底堆積物コアは,英虞湾の 湾口部に近いタコノボリ(北緯34度17.120分,東経 136度47.452分)と湾中央部の立神(北緯34度17.860 分, 東経136度49.660分)において, 2004年6月17日 にダイバーにより内径8.2 cm のアクリル製パイプを 用いて採取した (Fig. 1)。タコノボリは水深27 m (干 潮時24.4 m), 立神は水深10 m (干潮時9.4 m) であ り、タコノボリでは長さ41 cm, 立神では長さ51 cm のコアが得られた。中西ほか(2001)は、英虞湾全 域の底質汚染の状況を調べ, 湾奥の枝湾ほど汚染が大 きいことを報告している。汚染状況で英虞湾の海域を 分類すると、汚染の大きい方から、湾奥グループ>湾 中央グループ>湾口グループの順になる。この分類に



Fig. 1 Sampling locations of the sediments in Ago Bay.

よるとタコノボリは汚染が最も少ない湾口海域であり,立神は中程度の汚染状況の湾中央海域となる。堆積物コアは,直ちに実験室に持ち帰り,表層から1 cm間隔で切断し,貝殻などの不純物をできる限り取り除いた後,90°C で乾燥して,乳鉢で粉砕した。各層の 有機炭素量と窒素量は elementar 社 varo MAX CNS を用いて測定した。

#### 3.2 放射能分析

乾燥・粉砕した試料は、プラスチック容器(馬野化 学容器,容量100 ml,内径48 mm,内高58 mm)に 詰め、試料表面をアクリル板(直径47.6 mm,厚さ3) mm) で均一の高さになるように押さえ、アクリル板 はプラスチック容器内壁にボンドで接着することで, 試料から222Rn が散逸しないように封入した。封入試 料は、226Raと214Biの放射平衡が成立するまで一ヶ月 以上放置してから,低バックグラウンド仕様高純度ゲ ルマニウム半導体検出器 (EG&G ORTEC, GAMMA-X,相対計数効率55%)でガンマ線スペクトルを測定 した。ゲルマニウム検出器は、低バックグラウンドの 鉛ブロック (100×200×50 mm) で厚さ150 mm 以 上になるように外側を遮蔽し、内面を厚さ4mmの無 酸素銅で内張りし、空気中のラドンの影響を除くため クライオスタットより気化した窒素ガスを試料室に導 入した(草野・百島, 2002)。測定時間は各試料当た り24時間以上とし、ガンマスペクトルの解析は、解 析ソフト Gamma Studio (SEIKO EG&G ORTEC) で行った。<sup>210</sup>Pbの定量は46.5 keVのピークを用い て, supported <sup>210</sup>Pb の定量は<sup>214</sup>Bi の609.3 keV のピー クを用いた。また, <sup>137</sup>Cs(半減期30年)の661 keV, カリウム-40(<sup>40</sup>K)(半減期1.27×10<sup>9</sup>年)の1460.5 keV, アクチニウム-228(<sup>228</sup>Ac)(半減期6.5時間,半 減期5.76年の<sup>228</sup>Raの娘)の911 keV のガンマ線ピー クの解析も合わせて行った。<sup>210</sup>Pbと<sup>137</sup>Cs の計数効率 は,<sup>210</sup>Pb 標準溶液(AEA Technolog QSA GmbH, 信頼水準95%の不確かさ3%)及び<sup>137</sup>Cs 標準溶液(日 本アイソトープ協会,信頼水準95%の不確かさ1.3 %)を有明海海底土に添加して作製した標準模擬線源 により決定した。その他の核種のエネルギーのピーク 計数効率は,標準模擬線源の<sup>137</sup>Csピークと<sup>152</sup>Eu 点線 源の y 線ピークの相対的な計数値から決定した。

#### 4.結果

#### 4.1 空隙率, 有機炭素量, 窒素量

タコノボリと立神の堆積物の空隙率,有機炭素量及 び窒素量の深度分布を Fig. 2と Fig. 3に示す。空隙率 は堆積物密度を2.48 (Yasuhara and Yamazaki, 2005)として求めた。空隙率は,タコノボリが0.64 ~0.82,立神が0.66~0.91の範囲で変化し,タコノボ リでは表層2 cm の高い値から深部に向かって連続的 で緩やかな減少を見せている。一方,立神では,表層 1 cm が最も高い値であり,それから20 cm 程度まで 比較的大きく減少し,20 cm 以深ではタコノボリと同 様の連続的で緩やかな減少を示している。全体的に立 神の方がタコノボリより空隙率は高い傾向が見られ



Fig. 2 Profiles of porosity, organic carbon (OC), nitrogen (N) and OC/N ratio at Takonobori.

る。英虞湾の堆積物の空隙率は大阪湾で観測された値 と同程度である(Yasuhara and Yamazaki, 2005)。

有機炭素量 (OC) は、表面付近が最も大きく、そ して深部に向かって減少を見せているが、その量と深 度分布のパターンはタコノボリと立神では異なってい る。タコノボリの有機炭素量は、表層付近の19~20 mg/g が20 cm で12~13 mg/g まで減少している。そ れ以深では30~35 cm に若干の変動があるが12~13 mg/gをベースとした分布をしている。立神の有機炭 素量は,表面付近の24 mg/g が13 cm の15 mg/g まで 比較的速やかな減少を示し、さらに30 cm の11 mg/g までゆっくりと減少を続け、それ以深ではほぼ一定値 となっている。窒素量(N)の変化をみると、タコノ ボリでは,表層から20 cm までは減少しているが,そ れ以深はほぼ一定の値で推移している。有機炭素量の 分布と同様に30~35 cm に若干の変動があるが、概 して有機炭素量の分布変化と似ている。立神の窒素量 は、有機炭素量の分布変化と似たような深度プロファ イルを見せており、表層から13 cm までの比較的大き な減少,それに続く30 cm までの緩やかな減少,それ 以深のほぼ一定の分布パターンである。タコノボリも 立神も, 窒素量と有機炭素量の深度分布のパターンに は対応が見られる。英虞湾真珠養殖漁場の底泥の汚濁 流動層の調査では、表層1 cmの強熱減量、COD、 TOCは、夏季に有機物量が増大して汚染が進行し、



Fig. 3 Profiles of the porosity, organic carbon (OC), nitrogen (N) and OC/N ratios at Tategami.

秋季から冬季に浄化される傾向にあることを示している(上野ほか,2000)。そして,通年平均としては悪 化傾向にあることが指摘されている。Fig. 2と Fig. 3 の有機炭素量/窒素量の比(OC/N比)は,表層から 深部に向けてわずかに増加し,深部はほぼ一定の値で あり,深部のOC/N比は立神の方がタコノボリより 少し高い値となっている。

#### 4.2 天然放射性核種濃度

タコノボリと立神における<sup>210</sup>Pb, <sup>214</sup>Bi, <sup>40</sup>K及び <sup>228</sup>Acの深度分布をFig. 4とFig. 5に示す。タコノボリ と立神の<sup>210</sup>Pbの深度分布は、大きな混合を受けた表 層混合層の存在を示唆し、その厚さはタコノボリで表 層0~12 cm,立神で表層0~6 cmと推定される。表 層混合層より深い部分において excess <sup>210</sup>Pbの存在が 確認される深さは、タコノボリが12~30 cm,立神が 6~31 cmであり、この範囲で<sup>210</sup>Pb 濃度は単調な減少 を見せている。これ以深では、<sup>210</sup>Pb と supported <sup>210</sup>Pb(<sup>214</sup>Bi)はほぼ同じ濃度となっている。表層混合 層における<sup>210</sup>Pbの平均濃度は、立神が236±20 Bq/kg、タコノボリが193±13 Bq/kgで、立神はタコ ノボリの約1.2倍の<sup>210</sup>Pb 濃度となっている。

タコノボリの<sup>228</sup>Ac 濃度は、上層と下層で異なり、 上層0~18 cm と下層18~41 cm について平均濃度を 求めると、上層が20.6±1.5 Bq/kg、下層が25.3±1.6 Bq/kg で、有意に上層が低い傾向が認められる(p<



Fig. 4 Profiles of <sup>40</sup>K, <sup>210</sup>Pb, <sup>228</sup>Ac and <sup>214</sup>Bi activities at Takonobori.

0.001)。<sup>40</sup>K濃度は,<sup>228</sup>Ac濃度とは逆の傾向を示し, 上層が492±37 Bq/kg (0~18 cm) で下層が452±36 Bq/kg (18~41 cm) となり, 有意に上層が高い (p <0.001)。<sup>214</sup>Bi濃度には有意差はなく、上層が11.2  $\pm 1.2$  Bq/kg (0~18 cm) で、下層が10.5  $\pm 0.9$  Bq/kg (18~41 cm) である。立神の<sup>228</sup>Acの平均濃度は, 上層0~15 cm が31.5±4.2 Bq/kg, 下層15~51 cm が 43.9±2.7 Bq/kgで、タコノボリと同様に有意に上層 が低い傾向がみられる (p<0.001)。<sup>40</sup>K 濃度は, 上層 が655±37 Bq/kg (0~15 cm),下層が661±26 Bq/kg (15~51 cm) で差はないが、<sup>214</sup>Bi は、上層が14.0± 1.3 Bq/kg (0~15 cm) で、下層が15.6±1.1 Bq/kg (15 ~51 cm) で有意差が認められる (p<0.001)。これ らの放射性核種は、堆積物マトリックスの主要な成分 である土壌粒子や粘土鉱物などに含まれていることか ら、堆積物マトリックスの変化をもたらすような堆積 環境の変化が起こった可能性を示唆している。表層混 合層の<sup>210</sup>Pb 濃度は、立神はタコノボリの1.2倍を示し ていたが、他の放射性核種についても、<sup>228</sup>Ac(1.7 倍), <sup>40</sup>K (1.4倍), <sup>214</sup>Bi (1.4倍) と立神がタコノボリ より高い傾向が確認される。

#### 5.考察

## 5.1 <sup>210</sup>Pb の平均堆積速度

excess<sup>210</sup>Pbの深度分布(対数)をFig.6とFig.7 に示す。タコノボリの excess<sup>210</sup>Pbの分布は,表層混 合層(0~12 cm),堆積層(I)(12~23 cm)と堆



Fig. 5 Profiles of <sup>40</sup>K, <sup>210</sup>Pb, <sup>228</sup>Ac and <sup>214</sup>Bi activities at Tategami.



Fig. 6 Profiles of excess  $^{\rm 210}{\rm Pb}$  and  $^{\rm 137}{\rm Cs}$  activities at Takonobori.

積層(II)(23~30 cm)に分けることができる。excess<sup>210</sup>Pbの検出限界は5 Bq/kgであり,30 cm 以深 は検出限界以下となっている。立神についても、タコ ノボリ同様に表層混合層(0~6 cm)と、それ以深を 二層にわけることができる。堆積層(I)(6~14 cm)と堆積層(II)(14~31 cm)である。(1)式によっ て求めた堆積層(I)と堆積層(II)の平均堆積速度 を Table 1にまとめている。タコノボリは、深さ23 cm



Fig. 7 Profiles of excess <sup>210</sup>Pb and <sup>137</sup>Cs activities at Tategami.

付近を境にして上層の堆積速度が大きく下層は小さ い。立神では逆に深さ14 cm 付近を境にして、上層の 堆積速度が小さく下層は大きい。両地点とも過去のあ る時期に堆積速度の変化をもたらすような堆積環境の 変化が起こったことを示している。Table 1の堆積速 度は, 定常的な表層混合層と堆積物供給量を仮定 し、<sup>210</sup>Pbの放射壊変のみを考慮して産出したもので ある。表層混合層より深い部分が生物混合を受けてい る場合は, excess<sup>210</sup>Pb 放射能の減衰のみから求めた 堆積速度は過大評価になる。一般的には深部ほど生物 活動は少ないので、もし堆積層(I)が生物活動の影 響を受けている層で,堆積層(Ⅱ)が影響を受けてい ない層であるならば、立神のように堆積層(Ⅱ)の堆 積速度が堆積層(I)より大きな値になることは考え 難い。生物混合の有無の判断の一つとして<sup>137</sup>Csの進 入深度が用いられているが (Nittrouer et al., 1983/ 1984), Table 1の平均堆積速度と堆積期間50年 (1954~2004年)を仮定して求められる最大進入深 度は、タコノボリが26 cm、立神が21 cm となる。Fig. 6と Fig. 7を見ると、<sup>137</sup>Cs はタコノボリで36 cm ま で, 立神で32 cm まで侵入していることがわかる。 Nittrouer et al., 1983/1984)の進入深度の評価手法 は、<sup>137</sup>Cs も<sup>210</sup>Pb も堆積物中の粒子成分に捕捉されて いて同じ挙動(同じ混合係数)をとると仮定してい る。従って,<sup>137</sup>Csと excess<sup>210</sup>Pbの表層混合層の大き

Table 1 Thickness of the surface mixed layer and the underlying layers (I) and (II) for excess <sup>210</sup>Pb and the surface mixed layer for <sup>137</sup>Cs. The estimated sedimentation rates of the layers (I) and (II), and the inventories of excess <sup>210</sup>Pb and <sup>137</sup>Cs are summarized.

		Takonobori	Tategami
<sup>210</sup> Pb			
	Surface mixed layer (cm)	0-12	0-6
	$(g/cm^2)$	0-7.6	0-2.4
	Layer (I) (cm)	12-23	6-14 cm
	$(g/cm^2)$	7.6-16.0	2.4-6.8
	Sedimentation rate $(g/cm^2/y)$	$0.23\pm0.02$	$0.12 \pm 0.02$
	Layer (II) (cm)	23-30	14-31
	$(g/cm^2)$	16.0-21.9	6.8-18.6
	Sedimentation rate $(g/cm^2/y)$	$0.13 \pm 0.02$	$0.24 \pm 0.03$
	Inventory (kBq/m <sup>2</sup> )	$28.5 \pm 0.2$	$11.0 \pm 0.1$
<sup>137</sup> Cs			
	Surface mixed layer (cm)	0-21	0-10
	$(g/cm^2)$	0-14.4	0-4.4
	Inventory (Bq/m <sup>2</sup> )	691 ± 13	$704 \pm 12$

さは同じになるはずである。しかし、タコノボリ の<sup>137</sup>Csは、表層0~21 cm がほぼ同じ濃度で、明らか に<sup>210</sup>Pb の0~12 cmより表層混合層は深部まで発達し ている。立神の<sup>137</sup>Cs についても、表面下での濃度の 落込みはあるが表層0~10 cm が表層混合層と思わ れ、<sup>210</sup>Pb の表層混合層0~6 cmより大きい。英虞湾 の堆積物については、<sup>210</sup>Pb と<sup>137</sup>Cs の挙動は異なって いると考えるほうが適当である。

英虞湾で得られた平均堆積速度は、わが国の他の内 湾で測定されている堆積速度と同程度である。東京湾 の堆積速度について、松本(1983)は多摩川,荒川 などの河口域は0.5 g/cm²/y でその他湾域では0.2~0.4 g/cm²/yと報告し、真田ほか(1999)は0.22~0.27 g/cm²/yとしている。有明海について、Kim et al. (2007)は0.5 g/cm²/y、横瀬ほか(2005)は0.11 g/cm²/y (0.24 cm/y)、松岡(2004)は平均で0.58 cm/yとし ている。大阪湾について、Yasuhara and Yamazaki (2005)は0.52 cm/yと報告している。

#### 5.2 excess <sup>210</sup>Pb と<sup>137</sup>Cs の蓄積量

<sup>210</sup>Pbの年間降下量は、熊本市で226~240 Bq/m<sup>2</sup>/y (Momoshima et al., 2006), 日本全国で160~380 Bq/m²/y (Tsunogai et al., 1985), 筑波で176~182 Bq/m<sup>2</sup>/y (Hirose et al., 2004), 長崎で234 Bq/m<sup>2</sup>/y (Hirose et al., 2004) である。英虞湾周辺における <sup>210</sup>Pbの年間降下量を200 Bq/m<sup>2</sup>/yとすると蓄積量は 6.4 kBq/m<sup>2</sup>と見積もられる。タコノボリの excess <sup>210</sup>Pb存在量は28.5±0.2 kBq/m<sup>2</sup>,立神は11.0±0.1 kBq/m<sup>2</sup>であることから,見積もられた蓄積量の1.7~ 4.5倍の<sup>210</sup>Pb が存在している。Kato et al. (2003) に よると、水深1,200mの相模湾で水中に溶存してい る<sup>226</sup>Raから生成する<sup>210</sup>Pbの海底表層への降下量は 128 Bq/m²/y であり、大気からの供給量の約半分の大 きさである。水深20mの英虞湾では、水中に溶存し ている<sup>226</sup>Raからの堆積物への<sup>210</sup>Pbの寄与は、大気降 下量の約1%程度であり無視できる。したがって、英 虞湾堆積物の excess<sup>210</sup>Pb は周辺の陸域から供給され たものが大部分を占めているといえる。

Katsuragi (1983) は<sup>90</sup>Sr の年間降下量は日本海側 に多く、太平洋側に少ないことを報告している。1958 年から1980年に観測された<sup>90</sup>Sr年間降下量を,2004 年現在に半減期補正すると、<sup>90</sup>Sr 蓄積量は、札幌で 1,028 Bq/m<sup>2</sup>, 仙台で978 Bq/m<sup>2</sup>, 東京で934 Bq/m<sup>2</sup>, 大阪で677 Bq/m<sup>2</sup>,福岡で933 Bq/m<sup>2</sup>となる。英虞湾 が太平洋側にあることから東京と大阪の<sup>90</sup>Sr 蓄積量を 採用し、降下物中の<sup>137</sup>Cs と<sup>90</sup>Sr の平均的な放射能比 1.6を用いると、英虞湾周辺における<sup>137</sup>Cs 蓄積量は 1,170~1,617 Bq/m<sup>2</sup>と見積もられる。タコノボリの <sup>137</sup>Cs存在量は691±13 Bq/m<sup>2</sup>,立神は704±12 Bq/m<sup>2</sup> で、両地点の存在量に差はないが、見積もられた蓄積 量より明らかに少ない。存在量が見積もられた蓄積量 より多かった<sup>210</sup>Pbとは対照的である。<sup>137</sup>Cs も<sup>210</sup>Pbと 同様に大部分が周辺陸域から粒子成分として英虞湾に 供給されたと考えられるので, <sup>137</sup>Cs も見積もられた 蓄積量の1.7~4.5倍が英虞湾に流入したと推定され る。従って、タコノボリの<sup>137</sup>Cs存在量は、流入した と推定される量の10~13%, 立神は26~35%とな る。東京湾でも<sup>137</sup>Csの存在量は少なく, Yamada and Nagaya (2000) は<sup>137</sup>Cs 存 在 量 を366~509 Bq/m<sup>2</sup> (2004年に半減期補正すると253~352 Bq/m<sup>2</sup>)と報 告し、1963年に対応するはっきりしたピークは観察

告し、1963年に対応するはっさりしたヒークは観察 していない。真田ほか(1999)は、東京湾堆積物の <sup>137</sup>Cs 存在量を550 Bq/m<sup>2</sup>と449 Bq/m<sup>2</sup>(2004年に半減 期補正をすると,それぞれ427 Bq/m<sup>2</sup>と382 Bq/m<sup>2</sup>) と報告し,<sup>210</sup>Pb による年代と<sup>137</sup>Cs 深度分布の比較を 行っているが<sup>137</sup>Cs ピークと一致が見られる試料と見 られない試料があった。

#### 5.3 <sup>137</sup>Cs の深度分布

上にも述べたように、タコノボリ及び立神とも<sup>137</sup>Cs の表層混合層は excess <sup>210</sup>Pb よりも深部まで広がって いる。もし、表層混合層での濃度の均一性が生物混合 や物理的な粒子混合により生じているとするならば、 両核種の表層混合層の厚さは同じになると考えられる ので、<sup>137</sup>Cs と excess <sup>210</sup>Pb における表層混合層の厚さ の違いは、<sup>137</sup>Cs をより深部まで移動させるメカニズ ムが働いていることを示唆している。

Cs はイライトやスメクタイトなどの粘土鉱物が持 つ特異的吸着サイトに強く保持されるが,粘土鉱物の 表面が土壌有機物で覆われると,特異的吸着サイトの 数は減少する。有機物のブロック効果により<sup>137</sup>Csの 粘土鉱物への吸着量は減少するが,一方では,鉱物表 面を覆った有機物は<sup>137</sup>Csに対して非特異的な吸着サ イトとして働く。この非特異的吸着サイトは,K<sup>+</sup>や NH<sub>4</sub><sup>+</sup>などのイオンと競争的な吸着を行なうので,鉱 物表面の有機物に捕捉されている<sup>137</sup>Cs は,特異的吸 着サイトの<sup>137</sup>Cs より弱く結合していることになる

(Rigol et al., 2002)。<sup>137</sup>Cs は,陸域から海洋に河川 により粒子状及び溶存成分として運ばれる。わが国で は,通常の河川流量の場合,<sup>137</sup>Csの粒子と溶存成分 の比は、0.14~0.87(平均は0.64)で、雨により水量 が増加したときは粒子で運ばれる割合が大きく増加す る (Matsunaga et al., 1991)。<sup>137</sup>Cs を吸着した粒子 が汽水域に運ばれると、塩濃度の増加により粒子から の<sup>137</sup>Csの溶脱が起こる。塩分が0から22になると最大 78%が溶脱し、溶脱と吸着は可逆的に進行すること が報告されている (Ciffroy et al., 2003)。東シナ海海 底土の<sup>137</sup>Csの分析の結果では、海底土中のイライト 含有量と<sup>137</sup>Cs 濃度には正の相関が観察されるが、粒 径が小さくなるとイライトとの相関が見られなくな り,有機物含量と<sup>137</sup>Cs 濃度の相関が見られるように なる (Kim et al., 2006)。英虞湾堆積物の<sup>137</sup>Cs 存在量 が予想される値より小さい理由は、陸域から供給され た粒子から<sup>137</sup>Csが海水中に溶脱したためであると考 えられる。

放射性セシウムは,他の放射性核種に比べると堆積 物の深くまで侵入することが知られている(Santschi *et al.*, 1983; Cochran 1985; Holby and Evans, 1996)。海水中には溶存<sup>137</sup>Cs 成分があり,この成分は 間隙水中にも分布し,堆積物粒子と相互作用をする。 懸濁粒子と溶存成分の相互作用は分配係数で表される が,Csの分配係数は他の金属イオンと比べると小さ く (Ciffroy *et al.*, 2003),Cs は溶液中に留まりやす い保存性が高い元素である。間隙水と底面直上の海水 は海流や波などの物理的な作用により交換することか ら (Rutgers van der Loeff, 1981;Riedl and Ott, 1982),保存性の高い成分は間隙水中を移動し易いこ とになる。間隙水の移動は分子拡散で期待されるより 深部への侵入をもたらす。

### 5.4 推定される堆積年と真珠養殖

Table 1に示した excess <sup>210</sup>Pb 堆積速度から推定し た堆積層(I)と堆積層(I)の境界年を Fig. 6と Fig. 7に示す。堆積層(I)と堆積層(I)の境界は、タ コノボリが1965年,立神が1968年となり,1960年代 の後半に堆積速度が変化したことになる。英虞湾での 真珠養殖は明治の末に始まったが,飛躍的な発展を見 たのは第二次世界大戦後である。戦時中停滞していた 真珠養殖は,戦後,徐々に活動を再開し,1955年以 降,生産量は急速に増加した。1956年に養殖筏は 88,000台にまで増え真珠養殖場は密殖状態になり, それに伴う多くの弊害が引き起された。海外市況の好 況に支えられ1966年に過去最大となる生産量51トン を揚げたが,過密養殖による生産性低下や瀬戸内海,

四国,九州など他地域の漁場拡大により,1967年を 境に長期の不況に見舞われた。1975年から徐々に回 復し始め,生産調整の効果もあり,現在は7トン前後 の生産量で推移している。Fig. 8に三重県の真珠養殖 生産量の推移を示す(三重県農水商工部水産室, 2007)。三重県の真珠養殖は,英虞湾以外の五ヶ所 湾,的矢湾などでも行なわれているが,筏の数は英虞 湾が80%前後を占めていることから,Fig. 8は英虞湾 における真珠生産活動の推移を表していると考えて差 支えないであろう。1960年代の中期から生産活動は 急激に減衰したことがわかる。

過密養殖により漁場が富栄養化すると海底土の有機 物量が増加する。1966~67年の調査(澤田・谷口, 1967)によると,海底土の0.5~3.5 cm 層の有機物量 は,多徳島では30~40 mg/g であったが,富栄養化が 進んでいる立神浦では50~60 mg/g と高い値であっ た。漁場の富栄養化は,枝湾内の海水交流が悪い地形 的なもの,暗礁のような水中障害物の存在,養殖筏か ら垂下されている開放式養殖が何段にも連なって垂下 された養殖籠による海水交流の妨げなどによるところ が大きい。季節的には,海底土表層部0~0.5 cm 層の 有機物量は夏季に増大する傾向を示すが,その値の変 動は大きく非常に不安定である。立神コアが採取され た地点は,富栄養化が進んでいる立神浦の入り口に位 置している。

タコノボリと立神の OC/N 比は,堆積物中の有機 物の主な起源は海洋プランクトンであることを示して いる(Keil et al., 1994)。底土中の有機物の供給源は 主として真珠養殖期間中(普通英虞湾では4月から11 月まで)に海底に落下するアコヤガイの排泄物や付着 生物の残骸であり,これらは海底で微生物その他の作



Fig. 8 The changes of the annual pearl production (bars) and the percentage of produce among fishery (closed circles) in Mie prefecture.

用により分解される。アコヤガイの飼料となる海水中 の珪藻にはクロロフィルが含まれているが、このクロ ロフィルの一部はアコヤガイの体内でフェオフィチン の形に変わって排泄される。英虞湾海底土のフェオ フィチンの分布は、真珠養殖が盛んな海域ほど大きい (澤田・谷口, 1968; 大和田ほか, 1986)。アコヤガ イ排泄物中の有機物量とフェオフェイチン量から判断 すると、漁場底土中にはアコヤガイの排泄物以外の大 量の有機物の蓄積が認められ、これらは養殖されてい るアコヤガイや筏施設の付着生物の遺骸と考えられる (澤田・谷口, 1969)。澤田・谷口(1965)は、富栄 養化が進んでいる漁場である立神浦の中央部以奥の水 域の海底に落下するアコヤガイの排泄物の量を年間 59トンと見積もり、さらに、貝の付着物は、年によっ て多少の増減はあるとしても、1年間に貝の重量と同 じくらいで、これらの残骸も海底に落下するので、莫 大な量の有機物が蓄積されるとしている。このよう に, 真珠養殖の盛んな英虞湾では, 底泥の堆積速度に たいする真珠養殖の影響の大きいことがうかがえる。

タコノボリと立神で堆積速度に変化がみられたの は、いずれも1960年代の後半であり、真珠養殖生産 もピークから減少へと大きく変動した時期でもある。 そこで、堆積速度の変化と真珠養殖との関係について みることにする。ポリロープの開発に伴い波の荒い海 域でも延縄式による垂下養殖が可能になったことか ら, 英虞湾のタコノボリ付近では, 1965年頃から漁 場が設定され、真珠養殖が行われるようになった。区 画漁業権の設定状況をみると、1964年からの10年間 の間に湾央部にいくつかの漁業権が設定され、かなり 広大な漁場が誕生したことがわかる。一方、立神は以 前から真珠養殖が盛んに行われていた海域である。し かし、水深が比較的浅いために、過密養殖による異常 環境が大量斃死に結び付き易いという漁場特性(澤 田・谷口, 1967)から, 1960年代後半には養殖筏の 削減に関する指導がなされたとのことである。従っ て、立神では1965年以降には真珠不況の影響もあり、 真珠養殖量は大きく減少したと推察されることから, タコノボリ、立神での真珠養殖生産の推移は堆積速度 の変化にほぼ対応していると言える。

清水 (2005) は、タコノボリと立神の水深5 m の位 置にセディメントトラップを24時間設置して沈降物 を回収した。2004年5月~2005年3月に測定を6回実 施しているが、沈降物の全粒子束は、タコノボリで0.4 ~17.8 g/m²/d、立神で1.4~5.4 g/m²/d の範囲で変動 し、変動幅はタコノボリの方が大きい値を示した。こ れらの粒子束を年間の堆積速度に換算すると、タコノ ボリで0.01~0.65 g/m²/y, 立神は0.05~0.20 g/cm²/y, となり、excess <sup>210</sup>Pb から求めた平均堆積速度はこれ らの値の範囲内にある。沈降粒子中に占める有機炭素 は、タコノボリで2.5~1,718.7 mg/m²/d, 立神で52.2 ~147 mg/m²/d で、顕微鏡で観察したところ、フロッ ク状の植物プランクトンおよび棒状の物体(2枚貝か ら排出された糞と推測)が多数観察されている。

推定した<sup>210</sup>Pb 堆積年代の傍証として, 堆積物中の 生物の遺骸から真珠養殖の影響を調べた。放射能測定 試料を採取した翌年に,同じ場所でほぼ同じ深さのコ アを採取して、1 cm 毎に貝殻を主体とした生物の遺 骸調査を実施した。養殖に関連すると思われるアコヤ ガイ(真珠養殖貝)とムラサキイガイ(養殖筏の付着 生物)の遺骸の出現状況をみると、タコノボリではア コヤガイは22 cm より浅い層で出現していた。22 cm 層はTable 1の堆積速度から1965~1970年と推定さ れ、この海域で真珠養殖が始まった年代とほぼ一致し ている。ムラサキイガイは22 cm 以浅の全ての層で出 現し、22 cm 以深の層ではほとんど出現しなかったこ とからも, 真珠養殖との関連が示唆される。一方, 立 神では1950年代まで天然のアコヤガイが生息してい たため、アコヤガイの殻は指標にならず、ムラサキイ ガイについては30 cm より浅い層で出現頻度は高かっ たが、これより深い層にも認められた。ムラサキイガ イが日本に移入したとされる1920年代(大谷, 2002) より明らかに古い層にも出現していることから、タコ ノボリのように推定された堆積年代との一致はみな かった。

#### 6. まとめ

長年の真珠養殖により環境汚染が進行している三重 県英虞湾堆積物について、<sup>210</sup>Pb 堆積年代測定法によ る堆積環境の解析を行なった。中程度の汚染海域であ る湾中央部・立神と比較的汚染が少ない海域の湾口 部・タコノボリで採取した堆積物コアを,表面から1 cm 間隔で切断し,Ge 半導体検出器で放射能測定を 行なった。空隙率と有機炭素量は最上層が最も大きな 値で,深部になるほど減少する分布を示し,養殖によ る底質汚染が認められた。OC/N 比は,堆積物中の有 機物の主な起源は海洋プランクトンであることを示し ていた。excess<sup>210</sup>Pb の分布には,放射能がほぼ均一 な表層混合層が認められた。湾口部に位置し海水の出

入りの影響が大きいと考えられるタコノボリ試料は, 湾中央部の立神試料より大きな表層混合層であった。 表層混合層以深は, excess<sup>210</sup>Pb 堆積速度の違いから2 つの層にわけられ、その境界はタコノボリが1965年 頃、立神が1968年頃と推定された。タコノボリの堆 積速度は、1960年代後半以降は増加に転じ、一方、 立神の堆積速度は、1960年代後半以降は減少に転じ ていた。両地点で堆積環境に変化があったと推定され る1960年代後半以降,真珠生産量の激減が起こって いることから、堆積環境の変化と養殖活動との関連性 が示唆される。137Csにもほぼ放射能が均一な表層混 合層が認められたが、表層混合層は<sup>137</sup>Csの方が excess <sup>210</sup>Pb より大きく,より深部まで<sup>137</sup>Cs は混合して いた。また、核実験ファールアウトによる環境汚染が 始まった考えられる1954年より古い堆積層まで<sup>137</sup>Cs の侵入が認められた。堆積物中の<sup>137</sup>Cs存在量は、予 想される蓄積量の10~13%(タコノボリ)と26~35 %(立神)であり、大部分の<sup>137</sup>Csは堆積物から溶脱 したと推定された。

# 引用文献

- Alonso-Hernandez, C. M., Diaz-Asencio, M., Munoz-Caravaca, A., Delfanti, R., Paucci, C., Ferretti, O. and Crovato, C. (2006) Recent changes in sedimentation regime in Cienfuegos Bay, Cuba as inferred from <sup>210</sup>Pb and <sup>137</sup>Cs vertical profiles. Continental Shelf Research 26, 153-167.
- Christensen, E. R. (1982) A model for radionuclides in sediments influenced by mixing and compaction. Journal of Geophysical Research 87, 566– 572.
- Ciffroy, P., Garnier, J. -M. and Benyahya, L. (2003) Kinetic partitioning of Co, Mn, Cs, Fe, Ag, Zn and Cd in fresh waters (Loire) mixed with brackish waters (Loire estuary): experimental and modeling approaches. *Marine Pollution Bulletin* 46, 626–641.
- Cochran, J. K. (1985) Particle mixing rates in sediments of the eastern equatorial Pacific: evidence from <sup>210</sup>Pb, <sup>239+240</sup>Pu and <sup>137</sup>Cs distributions at MANOP sites. *Geochimica et Cosmochimmica Acta* 49, 1195–1210.
- Dellapenna, T. M., Kuehl, S. A. and Schaffner, L. C. (1998) Sea-bed mixing and particle residence

times in biologically and physically dominated estuarine systems: a comparison of lower Chesapeake Bay and the York River subestuary. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* **46**, 777–795.

- Goldberg, E. D. and Koide, M. (1962) Geochronological studies of deep sea sediments by the ionium/ thorium method. *Geochimica et Cosmochimmica Acta* 26, 417–450.
- Hirose, K., Honda, T., Yagishita, S., Igarashi, Y. and Aoyama, M. (2004) Deposition behaviors of <sup>210</sup>Pb, <sup>7</sup>Be and thorium isotopes observed in Tsukuba and Nagasaki, Japan. Atmospheric Environment **38**, 6601–6608.
- Holby, O. and Evans, S. (1996) The vertical distribution of Chernobyl-derived radionuclides in a Baltic Sea sediment. *Journal of Environmental Radioactivity* 33, 129–145.
- 金井豊(2000) 鉛-210堆積年代測定法とその問題点. 地球化学,**34**,23-39.
- 金井豊・井内美郎・片山肇・斎藤文紀 (1995) <sup>210</sup>Pb,<sup>137</sup>Cs法による長野県諏訪湖底質の堆積速 度の見積り.地質調査所月報,46,225-238.
- 金井豊・池原研(1995)新潟沖大陸棚の Pb-210およ び Cs-137法による堆積速度.地質調査所月報, 46, 269-282.
- Kato, Y., Kitazato, H., Shimanaga, M., Nakatsuka, T., Shirayama, Y. and Masuzawa, T. (2003)
  <sup>210</sup>Pb and <sup>137</sup>Cs in sediments from Sagami Bay, Japan: sedimentation rates and inventories. *Progress Oceanography* 57, 77–95.
- Katsuragi, Y. (1983) A study of <sup>90</sup>Sr fallout in Japan. Papers in Meteorology and Geophysics 33, 277– 291.
- Keil, R. G., Tsamakis, E., Fuh, C. B., Giddings, J. C. and Hedges, J. I. (1994) Mineralogical and textural controls on the organic composition of coastal marine sediments: hydrodynamic separation using SPLITT-fractionation. *Geochimica* et Cosmochimmica Acta 58, 879–893.
- Kim, Y., Cho, S., Kang, H. -D., Kim, W., Lee, H. -R., Doh, S. -H., Kim, K., Yun, S. -G., Kim, D. -S. and Jeong, G. Y. (2006) Radiocesium reaction with illite and organic matter in marine sedi-

ment. Marine Pollution Bulletin 52, 659-665.

- Kim, Y. -S., Eun, H., Katase, T. and Fujiwara, H. (2007) Vertical distributions of persistent organic pollutants (POPs) caused from organochlorine pesticides in a sediment core taken from Ariake Bay, Japan. *Chemosphere* 67, 456-463.
- 国際エメックスセンター(2007.10.22)日本の閉鎖性 海域の環境保全,2005. http://www.emecs.or.jp/ closedsea-jp/kaiiki/094.htm
- 草野祐也・百島則幸(2002) 極微量放射能測定用 Ge 半導体検出器システム—バックグラウンドの低減 化について—. 熊大極低温, 13, 2-5.
- Lewis, R. C., Coale, K. H., Edwards, B. D., Marot, M., Douglas, J. N. and Burton, E. J. (2002) Accumulation rate and mixing of shelf sediments in the Monterey Bay national marine sanctuary. *Marine Geology* 181, 157–169.
- Lu, X. and Matsumoto, E. (2005) Recent sedimentation rates derived from <sup>210</sup>Pb and <sup>137</sup>Cs methods in Ise Bay, Japan. *Estuarine, Coastal and Shelf Science* **65**, 83–93.
- 増田健・山形陽一・畑直亜(2004) 英虞湾の水質環境の特徴および長期変動.三重県科学技術振興センター水産研究部研究報告, 11, 23-32.
- 松本英二 (1983) 東京湾の底質環境.地球化学, 17, 27-32.
- Matsunaga, T., Amano, H. and Yanase, N. (1991) Discharge of dissolved and particulate <sup>137</sup>Cs in the Kuji River, Japan. *Applied Geochemistry* **6**, 159–167.
- 松岡數充(2004)有明海・諌早湾堆積物表層部に残 された渦鞭毛藻シスト群集からみた水質環境の中 長期的変化.沿岸海洋研究,42,55-59.
- 三重県農水商工部水産室(2007.7.31)三重県の真珠 養殖概況. http://www.pref.mie.jp/sukyokyu/gyousei/sinnjyugaikyou/gaikyou.html
- Momoshima, N., Nishio, S., Kusano, Y., Fukuda, A. and Ishimoto, A. (2006) Seasonal variations of atmospheric <sup>210</sup>Pb and <sup>7</sup>Be concentrations at Kumamoto, Japan and their removal from the atmosphere as wet and dry depositions. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **268**, 297–304.

- 中西克之・増田健・畑直亜・山形陽一(2001) 英虞 湾における底質汚染の現状と近年の進行状況. 三 重県科学技術振興センター水産研究部研究報告, 10,71-77.
- Nittrouer, C. A. and Sternberg, R. W. (1981) The formation of sedimentary strata in an allochthonous shelf environment: The Washington continental shelf. *Marine Geology* 42, 201–232.
- Nittrouer, C. A., DeMaster, D. J., McKee, B. A., Cutshall, N. H. and Larsen, I. L. (1983/1984) The effect of sediment mixing on Pb-210 accumulation rates for the Washington continental shelf. *Marine Geology* 54, 201–221.
- 野崎義行(1977)生物混合の影響をうけた堆積物中の放射性核種の分布.地質学雑誌,83,699-706.
- Officer, C. B. and Lynch, D. R. (1982) Interpretation procedures for the determination of sediment parameters from time-dependent flux inputs. *Earth and Planetary Science Letters* **61**, 55–62.
- 大谷道夫 (2002) 日本における移入付着動物の出現 状況,最近の動向. Sessile Organisms 19, 69-92.
- 大和田紘一・杉山元彦・田中信彦・淺川明彦(1986) 英虞湾における海洋観測データ.養殖研資料,4, 1-69.
- Riedl, R. J. and Ott, J. A. (1982) Water movement through porous sediments. In: *The dynamic environment of the ocean floor* (eds. Fanning, K. A. and Manheim, F. T.) Lexington Books, D. C. Heath and Company, Lexington, pp. 29–55.
- Rigol, A., Vidal, M. and Rauret, G. (2002) An overview of the effect of organic matter on soilradiocaesium interaction: implications in root uptake. *Journal of Environmental Radioactivity* 58, 191–216.
- Rutgers van der Loeff, M. M. (1981) Wave effects on sediment water exchange in a submerged sand bed. Netherlands Journal of Sea Research 15, 100–112.
- 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(1999) 放射性核種および molecular marker による東京湾の堆積過程の解 明.地球化学, **33**, 123–138.
- Sanford, L. P. (1992) New sedimentation, resuspen-

sion, and burial. *Limnology and Oceanography* **37**, 1164–1178.

- Santschi, P. H., Li, Y. -H., Adler, D. M., Amdurer, M., Bell, J. and Nyffeler, U. P. (1983) The relative mobility of natural (Th, Pb and Po) and fallout (Pu, Am, Cs) radionuclides in the coastal marine environment: results from model ecosystems (MERL) and Narragansett Bay. Geochimica et Cosmochimmica Acta 47, 201–210.
- 沢田保夫・丹下孚・関政夫(1958) 真珠養殖場の養 殖海洋学的研究. I. 1958年7月英虞湾立神浦に おける真珠貝異常斃死漁場の観測結果について. 国立真珠研究所報告, 4, 347-355.
- 澤田保夫・谷口宮三郎(1965) 真珠養殖漁場の養殖 海洋学的研究.Ⅲ.老化漁場における海水ならび に底質の性状の季節変化について.国立真珠研究 所報告,10,1213-1227.
- 澤田保夫・谷口宮三郎(1967) 真珠養殖漁場の養殖 海洋学的研究. IV. 老化漁場における底質の性状 とその改良方法の一例について.国立真珠研究所 報告,12,1379-1408.
- 澤田保夫・谷口宮三郎(1968) 真珠養殖漁場の養殖 海洋学的研究. V. 老化漁場における底泥の有機 物量およびフェオフィチン量の季節変化につい て. 国立真珠研究所報告, 13, 1689–1702.
- 澤田保夫・谷口宮三郎(1969)真珠養殖漁場の養殖

海洋学的研究. VI. 漁揚底泥からみた真珠漁場の 汚染度と漁場収容密度の算定について. 国立真珠 研究所報告, 14, 1719-1734.

- 清水康弘(2005)閉鎖性海域の環境創生プロジェク ト研究事業 底泥表面における物質収支の解明. 三重県科学技術振興センター水産研究部事業報 告,2004,61-63.
- Tsunogai, S., Shinagawa, T. and Kurata, T. (1985) Deposition of anthropogenic sulfate and Pb-210 in the western North Pacific area. *Geochemical Journal* 19, 77–90.
- 上野成三・灘岡和夫・片倉徳男・勝井秀博・山田二久 次(2000) 英虞湾の真珠養殖漁場における底泥 の汚濁流動層に関する現地調査.海岸工学論文 集,47,1046-1050.
- Yamada, M. and Nagaya, Y. (2000) <sup>239+240</sup>Pu and <sup>137</sup>Cs in sediments from Tokyo Bay: distribution and inventory. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* **245**, 273–279.
- Yasuhara, M. and Yamazaki, H. (2005) The impact of 150 years of anthropogenic pollution on the shallow marine ostracodefauna, Osaka Bay, Japan. *Marine Micropaleontology* 55, 63–74.
- 横瀬久芳・百島則幸・松岡數充・長谷義隆・本座栄一 (2005)海底堆積物を用いた有明海100年変遷史 の環境評価.地学雑誌,114,1-20.