

瀬戸内海表層堆積物の地球化学的特徴

その1. 安芸灘表層堆積物

佐野 栄・井内 美郎¹⁾
金井 豊²⁾・丸岡 範子³⁾

(愛媛大学教育学部地学研究室)

(平成11年10月12日受理)

Geochemical properties of surface sediments in Seto Inland Sea Part 1. Aki-nada surface sediments

Sakae SANO, Yoshio INOUCHI, Yutaka KANAI and Noriko MARUOKA

Laboratory for Earth Science, Faculty of Education,

Ehime University, Matsuyama 790-8577 Japan

(Received October 12, 1999)

Abstract

Trace element contents of cored surface sediments from two localities (stations R and S) in Aki-nada, Seto Inland Sea were measured by instrumental neutron activation analyses, in order to evaluate environmental changes in that area. Obvious variations of the zinc and uranium concentrations with the depth below sediment - water interface are recognized on both cored samples. Zinc content abruptly increases at shallow level of 20~25 cm depth. Estimated depositional age of the sediments at that depth is about 1920~1940s, supposing the sedimentation rates of 0.32 cm/year for area S and 0.41 cm/year for area R based on ²¹⁰Pb method. There is no natural source for the high zinc content (~140 ppm) around the Seto Inland Sea, consequently it is difficult to consider the natural weathering processes. Industrial activity of early 20th century such as a zinc company is one possibility to have introduced artificial contamination to seawater and surface sediments.

Key words : Seto Inland Sea, trace element, zinc, surface sediment

キーワード : 瀬戸内海, 微量元素濃度, 亜鉛, 表層堆積物

¹⁾ 愛媛大学沿岸環境科学研究センター (Center for Marine Environmental Sciences, Ehime University)

²⁾ 工業技術院地質調査所地殻化学部 (Geochemistry Department, Geological Survey of Japan)

³⁾ 元愛媛大学理学部生物地球圏科学科 (Department of Earth Science, Faculty of Science, Ehime University)

I はじめに

海底堆積物，とりわけ泥質堆積物は，その構成粒子（主として粘土）が海水中に浮遊していたときの海水中の懸濁物質や海水の汚染状態などの記録を保存している．そのため，海底の泥質堆積物の組成を堆積順にさかのぼって検討すると，堆積当時の環境が明らかとなる．瀬戸内海は，太平洋などとは異なり比較的閉鎖的な環境であるので，それをとりまく様々な環境変化の影響を鋭敏に反映している可能性がある．中国山地や四国山地の浸食による土砂の流入の影響の他に，第二次世界大戦以降，瀬戸内地域の工業化による人為的環境汚染も見逃せない．

本報告は，瀬戸内海海底の表層堆積物の微量元素組成を用いて，環境変遷を明らかにしようとするものである．今回は予察的に，竹原市と大崎上島に囲まれた安芸灘北部で採取された柱状堆積物，特に粒度の細かい泥質堆積物を対象とし，中性子放射化分析によりその微量元素組成の報告をおこなう．さらに，鉛-210を用いた堆積速度の結果を利用して比較的最近の瀬戸内海的环境変化についても考察する．

II 採取試料および分析方法

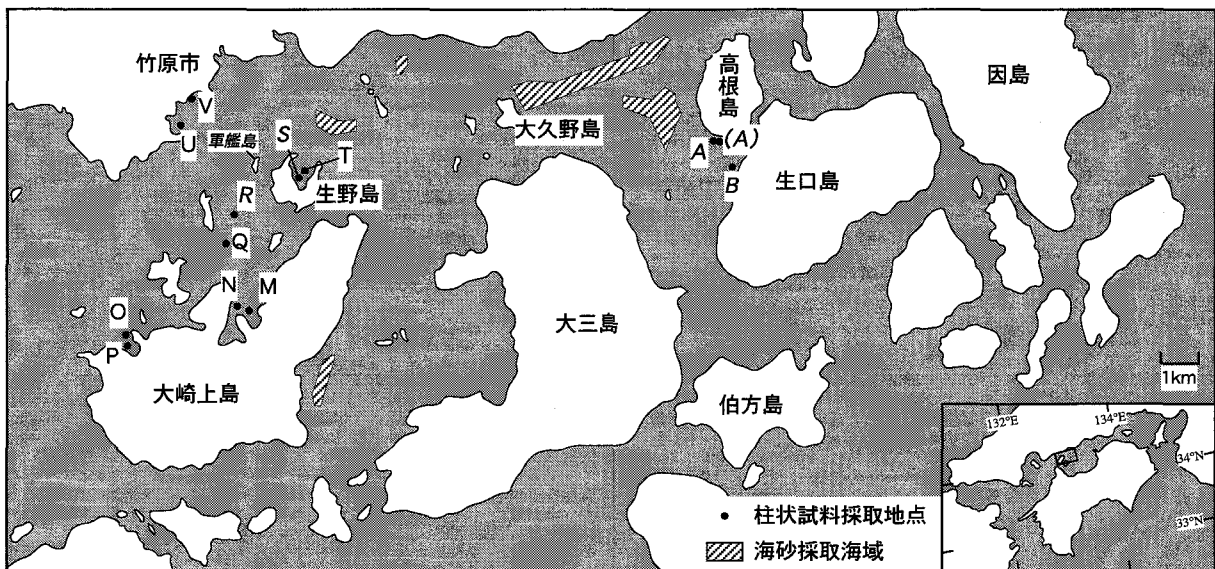
1. 採取地点と試料

分析に用いた堆積物試料は，広島県竹原市と大崎上島に挟まれた安芸灘の海底から採取した（第1図）．この海域には大小多数の島々が分布している．第1図中のアルファベット（A~B，M~V）で示した点が柱状試料を採取した地点である．また，同図には，参考のため海砂

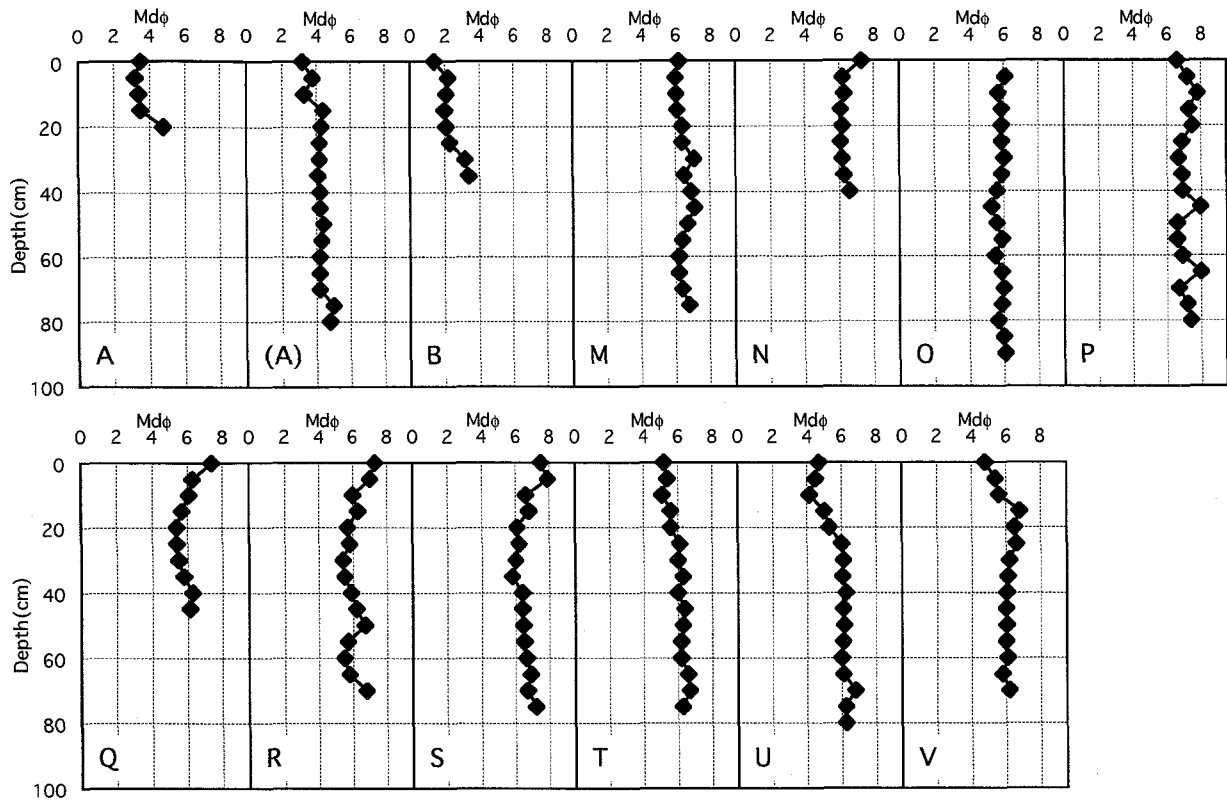
採取海域も示してある．柱状試料は海底表層から20cm ないし90cm の深さまで採取されている．今回微量元素組成分析に用いた柱状試料は，細粒堆積物が卓越する R および S の2地点のものを選定した．第2図には，各々の柱状試料採取地点の深度に伴う構成粒子の粒度変化を示してある．同図において $Md\phi$ の値が大きくなるほど構成粒子の粒径は小さくなる．すなわち， $Md\phi$ の値が-1~4 は砂，4以上が泥である．13の柱状試料の多くは泥であるが，採取地点により，粒度変化に相違が認められる．対象とした R と S の2地点では，両者とも海底から10cm の部分で $Md\phi = 7 \sim 8$ ($1/128 \sim 1/256mm$) と，より深い部分に比べ細粒の粒子から構成される．10~20cm までの深さで，深度とともに粒径が増加する傾向が認められる．R 地点では20cm 以深で多少の粒度の変動はあるもののほぼ $Md\phi = 6$ ($1/64mm$) のシルトである．一方，S 地点では，20~40cm で粒度はほぼ $Md\phi = 6$ であるがさらに深さが増すと粒径は次第に細くなる傾向が認められる．今回は R と S から5cm 間隔でそれぞれ70cm，75cm までの試料が採取されているが，微量元素分析には表層から10cm 間隔の試料を用いた．

2. 分析方法

微量元素（スカンジウム，鉄，亜鉛，ヒ素，アンチモン，セシウム，希土類元素，トリウム，ウランなど）濃度の分析には，中性子放射化分析法を用いた．乾燥させた堆積物約0.1g を正確に秤量し，ポリエチレン袋に封入したものを測定試料とした．試料の中性子照射は，京都大学原子炉実験所の原子炉 KUR の圧気輸送管 Pn-2（熱中性子束 $2.8 \times 10^{13} cm^{-2} s^{-1}$ ）でおこなった．照射



第1図 瀬戸内海西部地域表層堆積物採取地点
柱状試料採取地点をアルファベットと共に黒丸で示す．図中の斜線で表した部分は海砂採取地域．



第2図 表層堆積物の粒度 (Mdφ) と深度の関係
 横軸は堆積物の粒度 (Mdφ) で、数値が大きくなるほど細粒であることを意味する。
 縦軸は柱状試料の深さを表す。図中のアルファベットで示した試料採取地点は第1図に示してある。

時間は50分である。照射後の試料は、中寿命核種について1週間、および長寿命核種について30~40日後に、愛媛大学教育学部のゲルマニウム検出器を用いて測定をおこなった。ガンマ線計測時の積算時間はそれぞれ3000秒と10000秒である。濃度決定のための標準試料は地質調査所発行の標準岩石試料 JB-1a と JSI-1 を用い、モニタとして JR-1 を使用した。JB-1 を標準物質としたときの JSI-1 と JR-1 の分析結果を第1表に示す。

第1表 地質調査所発行の標準岩石試料の分析結果

	JR-1				JSI-1			
	推奨値	本研究	標準偏差	N	推奨値	本研究	標準偏差	N
Na (%)	2.98	3.27		1	1.62	1.69	(0.02)	5
Sc (ppm)	5.07	5.27	(0.19)	9	16.7	17.3	(0.3)	5
Cr (ppm)	2.83	3.41	(1.47)	6	60.9	53.5	(1.9)	5
Fe (%)	0.62	0.63	(0.02)	9	4.73	4.90	(0.07)	5
Co (ppm)	0.83	0.62	(0.03)	9	15.5	16.1	(0.3)	5
Zn (ppm)	30.6	30.3	(1.0)	9	108	98.1	(1.2)	5
As (ppm)	16.3	25.2		1	14.9	13.1	(1.5)	5
Rb (ppm)	257	258	(12)	4	117	115	(16)	4
Sb (ppm)	1.19	1.51	(0.47)	5	0.93	0.79	(0.15)	5
Cs (ppm)	20.8	18.4	(1.3)	9	7.60	7.28	(0.23)	5
La (ppm)	19.7	22.0	(1.5)	9	29.3	30.0	(1.1)	5
Ce (ppm)	47.2	50.8	(1.9)	9	60.6	63.2	(2.0)	5
Sm (ppm)	6.03	7.22	(0.65)	9	6.02	6.03	(0.13)	5
Eu (ppm)	0.3	0.30	(0.02)	9	1.22	1.33	(0.03)	5
Tb (ppm)	1.01	1.21	(0.08)	9	0.717	1.09	(0.13)	5
Yb (ppm)	4.55	5.05	(0.42)	9	2.81	3.11	(0.17)	5
Lu (ppm)	0.71	0.78	(0.08)	9	0.44	0.48	(0.02)	5
Hf (ppm)	4.51	4.79	(0.24)	9	4.63	4.57	(0.16)	5
Ta (ppm)	1.86	1.35	(0.09)	8	0.84	0.57	(0.10)	5
Th (ppm)	26.7	27.8	(1.3)	9	9.97	10.4	(0.2)	5
U (ppm)	8.81	9.12	(0.95)	9	2.63	2.97	(0.39)	5

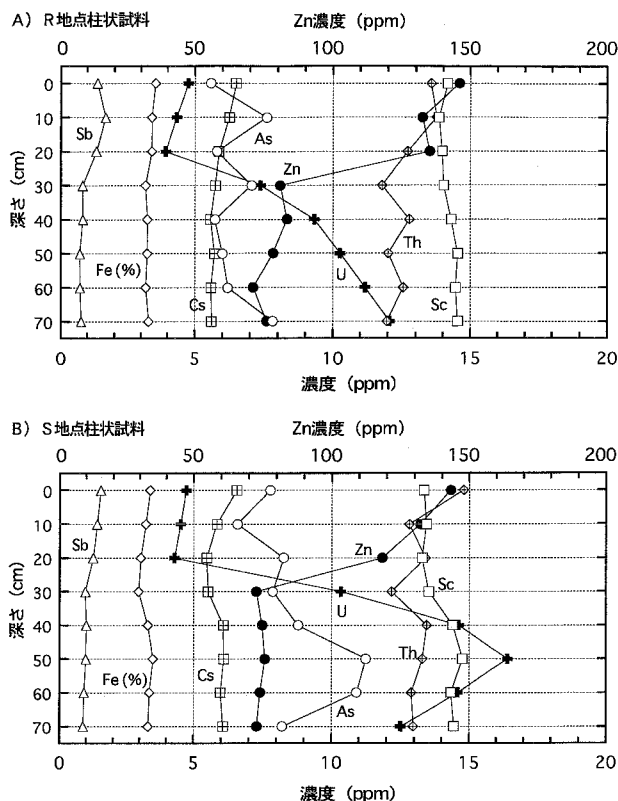
Ⅲ 結果と考察

1. 分析結果

分析結果を第2表に、また、堆積物の深さ方向の元素濃度を第3図に示す。第2表において、R-0やS-10などの試料表記はそれぞれR地点の深さ0~5cmから採取した試料、S地点の深さ10~15cmから採取した試料であることを意味する。深さに伴った元素の挙動に注目すると、スカンジウム、ヒ素、ウランはより上位では濃度が減少する。特にウランでその傾向が著しい。ウランは深さが浅くなるに従い単調にその濃度が減少するが、深度20cmより浅所では濃度が4~5ppmの比較的一定の濃度を示す。鉄、希土類元素は柱状深度に伴った顕著な系統的組成変化を示さない。それに対し、亜鉛、アンチモン、トリウムは浅くなるに従い、その濃度が増加する傾向が認められる。特に亜鉛でその傾向が著しい。亜鉛濃度は、RおよびS地点共に25~30cmの同じ深さにおいて70ないし80ppmから120ないし130ppmの急激な増加が認められる。また、他の元素においても濃度変化が認められるのはほぼ25~30cmの深度である。

一方、堆積物の粒度変化および元素間における濃度の相関関係を第4図に示す。粒度変化に伴った元素濃度はR地点ではクロムが比較的良好な正の相関を示すものの、それ以外の元素では顕著な相関関係は認められない。それに対し、S地点ではコバルト、セシウムが良好な正の相関を示す。元素間における相関関係では、R、S両地点

で鉄、コバルトに対してセシウムが、スカンジウム、サマリウム、ルテチウムに対してウランが、さらに亜鉛に

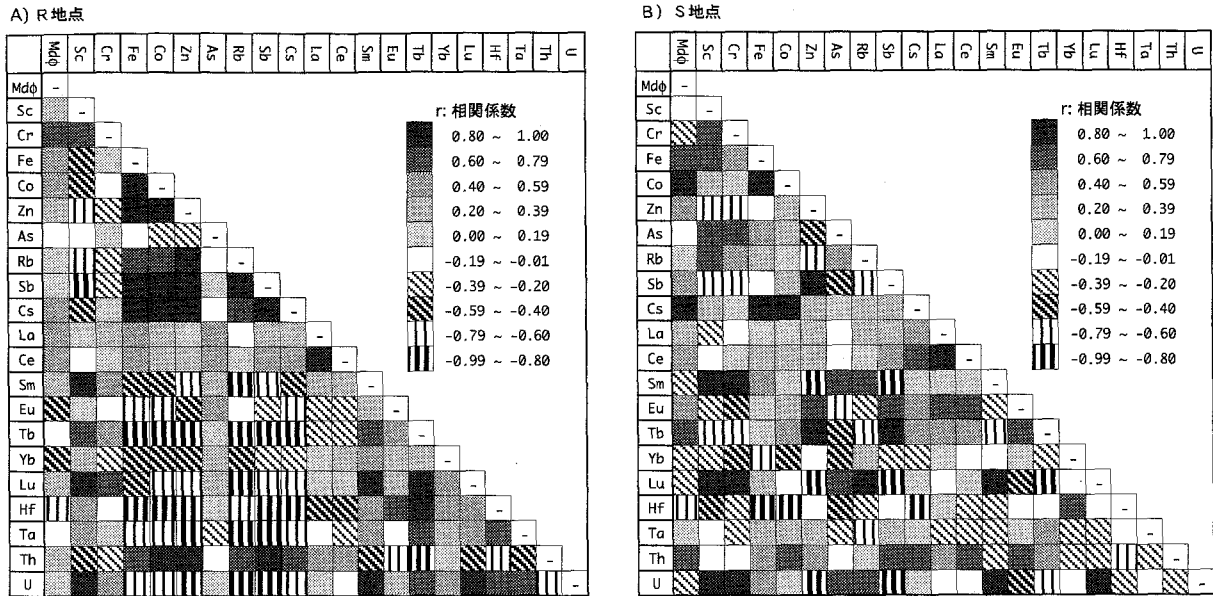


第3図 RおよびS地点の表層堆積物の深さに伴う微量元素濃度の変化。R、S両地点とも20cm以浅での亜鉛濃度の急増と、ウラン濃度の減少が顕著である。

第2表 瀬戸内海表層堆積物コアの微量元素組成

試料	R-0	R-10	R-20	R-30	R-40	R-50	R-60	R-70	S-0	S-10	S-20	S-30	S-40	S-50	S-60	S-70
Na (%)	2.85	2.77	2.63	2.56	2.70	2.67	2.79	2.68	3.58	3.05	2.71	2.72	2.66	2.74	2.76	2.80
Sc (ppm)	14.2	13.8	14.0	14.0	14.3	14.5	14.5	14.5	13.3	13.4	13.3	13.5	14.4	14.8	14.3	14.5
Cr (ppm)	73.7	67.3	66.6	70.1	67.2	75.8	68.4	75.5	66.5	67.0	72.8	72.9	86.9	88.2	79.4	71.5
Fe (%)	3.53	3.40	3.40	3.16	3.23	3.22	3.18	3.28	3.37	3.22	3.03	2.95	3.29	3.48	3.35	3.30
Co (ppm)	12.2	11.5	11.3	10.2	10.4	10.4	10.1	10.4	10.6	9.96	8.88	8.67	9.52	10.3	9.95	9.91
Zn (ppm)*	146	132	135	80.8	83.3	78.3	71.1	75.9	143	132	118	72.6	74.7	75.7	74.0	72.9
As (ppm)*	5.57	7.58	5.80	7.05	5.72	5.99	6.19	7.81	7.76	6.58	8.25	7.86	8.78	11.2	10.9	8.21
Rb (ppm)	98.9	102	106	91.6	88.6	91.0	88.5	87.9	96.9	79.3	92.1	99.2	103	99.3	101	104
Sb (ppm)*	1.37	1.67	1.33	0.82	0.83	0.71	0.72	0.76	1.53	1.40	1.25	0.97	1.00	0.98	0.92	0.88
Cs (ppm)*	6.49	6.25	5.87	5.73	5.56	5.71	5.58	5.60	6.56	5.83	5.46	5.51	6.07	6.09	5.97	6.06
La (ppm)	28.8	29.1	26.8	27.3	28.4	27.2	27.2	29.3	31.5	28.9	29.4	30.5	30.2	30.2	28.2	29.3
Ce (ppm)	63.8	66.1	61.4	61.6	63.0	62.8	62.7	64.6	68.2	63.1	63.6	63.6	67.5	65.1	61.6	62.7
Sm (ppm)	6.06	5.94	5.70	6.02	6.37	6.38	6.56	6.95	6.13	5.95	6.02	6.74	7.29	7.37	6.80	7.08
Eu (ppm)	1.04	1.10	1.11	1.11	1.08	1.10	1.10	1.12	1.13	1.10	1.06	1.06	1.09	1.06	1.02	1.08
Tb (ppm)	0.97	1.00	0.99	1.27	1.22	1.36	1.31	1.31	1.42	1.34	1.03	1.06	0.99	1.04	0.98	0.96
Yb (ppm)	3.08	3.27	3.07	3.14	3.20	3.08	3.43	3.23	3.22	3.19	3.30	3.47	3.21	3.13	3.10	3.46
Lu (ppm)	0.53	0.51	0.51	0.53	0.55	0.58	0.59	0.61	0.50	0.47	0.51	0.60	0.70	0.64	0.65	0.63
Hf (ppm)	5.35	6.32	6.58	8.28	7.73	7.72	8.21	7.22	4.36	5.35	5.70	6.67	5.26	4.27	4.55	4.79
Ta (ppm)	0.72	0.64	0.66	0.82	0.89	0.80	0.81	0.76	0.75	0.90	0.70	0.74	0.75	0.77	0.77	0.76
Th (ppm)	13.6	13.8	12.7	11.8	12.8	12.0	12.5	12.0	14.8	12.8	13.4	12.2	13.4	13.3	12.9	13.0
U (ppm)*	4.76	4.32	3.92	7.35	9.33	10.3	11.2	12.0	4.72	4.52	4.29	10.3	14.6	16.4	14.6	12.5

標準試料にはJB-1を用いた。*:JSI-1を標準試料としたときの結果。



第4図 各元素および粒度間における相関関係.

対してアンチモンがそれぞれ良い正の相関を示す。これに対し、鉄、コバルトに対しハフニウムが、亜鉛、アンチモンに対しウランが良い負の相関を示している。

2. 堆積物の微量元素濃度変化の原因について

後背地依存性

堆積物中の微量元素濃度は、その供給源である後背地の地質に依存する可能性がある。風化運搬作用により瀬戸内海に堆積物を供給しうる地質体は、主として中国山地の広島花崗岩類と四国北部を構成する領家花崗岩類、瀬戸内海島嶼部に点在する瀬戸内火山岩類、四国中央構造線北側に帯状に分布する和泉層群の堆積岩、および三波川変成岩類等が想定される。これらの地質体を構成する岩石の微量元素組成を、第3表に示す。安芸灘表層堆積物のスカンジウム、亜鉛、セシウム、トリウム、ウランの元素濃度のうち、スカンジウム、亜鉛、トリウムの各元素の平均濃度は和泉層群を構成する泥岩のものとよく似る。また、セシウム濃度は花崗岩類や四万十帯、マリアナ海溝堆積物の組成の範疇におさまる。しかしなが

ら、ウラン濃度は、瀬戸内海周辺域の岩石の化学組成を上回る高濃度で特徴づけられる。底質内でのウランの濃集メカニズムについては、底質の還元環境に依存することが指摘(金井他, 1994)されており、別に考慮する必要がある。さらに、亜鉛濃度の組成域に注目すると、安芸灘表層堆積物はその最高濃度が146ppmと異常に高い値を示す。以上のことから、RとS両地点の堆積物の上層で特定の元素、特に亜鉛濃度が高くなり、ウランが低下する原因を、周囲の地質体に由来する粒子に直接関係付けて説明することはできない。

微量元素の化学的特性

海水中でのイオンの挙動は、そのイオンの価数(z)とイオン半径(r)との関係に依存する。イオン半径が大きく価数の低いイオン(例えばセシウムCs⁺など)は、海水によく溶け不活性なふるまいをする。それに対し、3価の鉄(Fe³⁺)やアルミニウム(Al³⁺)などのイオン半径が比較的小さく価数の高いイオンは、水中の粒子状物質に吸着し、海底に沈澱除去されやすい性格をも

第3表 瀬戸内海周辺域の岩石および堆積物の化学組成(比較のためマリアナ海溝の堆積物も掲げた)

表層堆積物 安芸灘	花崗岩類 領家花崗岩		火山岩類 瀬戸内火山岩類		和泉層群		堆積岩類 四万十帯*		マリアナ海溝		変成岩類 三波川泥質片岩*			
	組成域	平均	組成域	平均	組成域	平均	組成域	平均	組成域	平均	組成域	平均		
Sc	13.3~14.8	(14.1)	2.9~19.9	(6.0)	~60.8	(14.2)	11.6~13.9	(12.4)	2.9~16.2	(7.3)	7.3~38.4	(20.9)	6.3~12.0	(9.4)
Zn	71.1~146.0	(97.9)	23.9~85.9	(56.8)	18.9~89.2	(67.9)	78.2~96.2	(89.7)	22.5~131.8	(55.4)	64.2~157.6	(99.3)		
Cs	5.5~6.6	(5.9)	0.7~17.9	(3.2)	0.5~43.0	(8.4)	9.0~10.8	(9.7)	0.7~8.0	(3.3)	~8.3	(2.5)	2.9~9.5	(5.2)
Th	11.8~14.8	(12.9)	1.8~30.5	(11.0)	~17.1	(7.8)	12.4~14.1	(13.3)	0.9~21.2	(9.2)	~10.3	(3.7)	9.0~19.3	(13.6)
U	3.9~16.4	(9.1)	~3.5	(2.0)	0.7~6.0	(2.7)	4.0~4.5	(4.2)	0.9~5.7	(2.7)	0.5~3.1	(1.3)	1.3~5.9	(3.3)

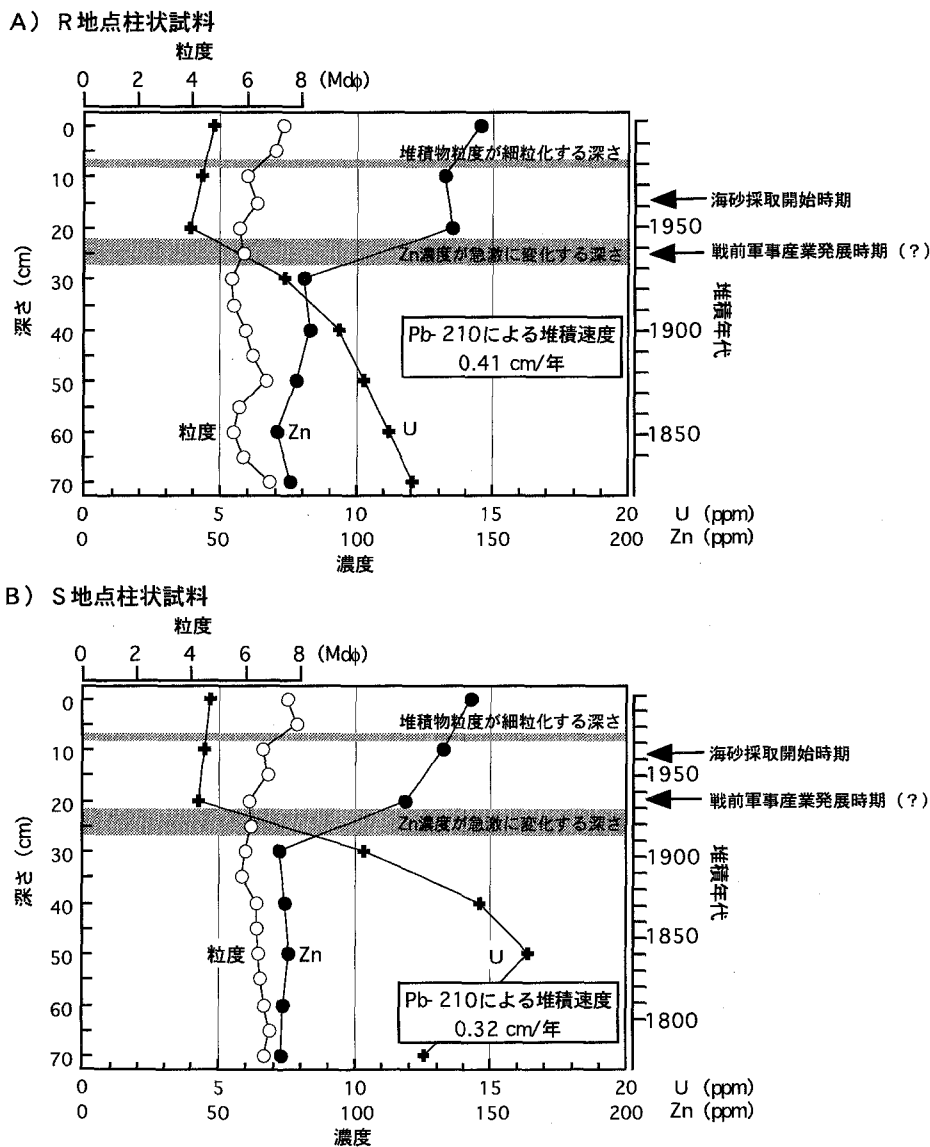
表層堆積物以外のデータは佐野(1999)(*印で示したもの)および佐野(未公表データ)による。

つ. また, 亜鉛 (Zn^{2+}) は両者の中間的性質を示し, むしろ生体に吸収されやすい性格をもつ.

微量元素としての亜鉛は, 海水中で生物の栄養源として吸収されやすいので, 一般には海水の表層では生物に選択的に吸収され, 海水中の濃度が低くなることが予想される. 一方, マリアナ海溝のような深海では, 反対に, 生物の死骸の分解が進み, その濃度が高くなると考えられている. 瀬戸内海のような閉鎖的かつ浅い海域では, 海棲生物の遺骸はそのまま海底に堆積する. したがって, 海棲生物に吸収された亜鉛は, 死骸と共にそのまま海底に保持されるものと思われる. 瀬戸内海の家棲生物の生物圏拡大あるいは縮小が, 堆積物の亜鉛濃度の変

化を引き起こす可能性も考えられるが, 年代幅にして200年あまりの短期間にそのような生物活動の変化が生じているとは考えにくい. さらに, 堆積物粒子に生物遺骸起源の粒子はほとんど認められない. したがって, 現時点では亜鉛濃度変化の原因を生物活動の変遷ととらえることは難しい. しかしながら, 瀬戸内海で多産されるカキなどの貝類は一般に豊富な亜鉛の貯留場所として考えられるので, 今後検討が必要である.

堆積物の酸化還元条件はイオンのふるまいに大きく影響を及ぼす (Bonatti *et al.*, 1971). 彼らは深海底における表層堆積物の元素の挙動について検討を行い, マンガン, ニッケル, コバルト, リン, ランタンは, その続



第5図 堆積物の粒度, 亜鉛, ウラン濃度と堆積年代の関係. 横軸には堆積物の粒度 (Mdφ) およびウラン, 亜鉛濃度を, 縦軸に鉛-210法により求められた堆積速度に基づく年代軸および深さを示す. 図中の灰色で表した部分は, 亜鉛濃度が急激に変化する深さ (約25cmの深さの部分) と表層部での堆積物粒度が若干細粒になる深さ (7-8cmの深さの部分) である. 同図には参考までに第二次世界大戦前の軍事産業が増大していると思われる時期と海砂採取が開始された時期を示してある.

成過程において間隙水に移動しやすく、より酸化的条件の表層ではこれらの元素の堆積物中の濃度が減少し、反対に、クロム、バナジウム、ウラン、イオウはより還元条件である下位で富む傾向にあることを報告した。今回安芸灘表層堆積物で得られた結果（第2表）は、コバルトの濃度が表層からより下位に向かい若干減少し、逆に、ウランが下位から上位に向かい濃度が顕著に減少する傾向が認められる。ウランは還元的なより下位の堆積物中で濃集しているのであろう。しかしながら、ランタンやクロムでは Bonatti *et al.* (1971) で報告されたような明瞭な濃度変化は認められない。また、コバルトは Bonatti *et al.* (1971) と逆の傾向を示した。以上のような瀬戸内海表層堆積物と Bonatti *et al.* (1971) による深海底堆積物との元素の挙動の相違は、おそらく瀬戸内海が浅い海であるために海底付近における還元環境が深海ほど強いものではなかったか、または何らかの元素の攪乱作用を被っていることによるものと思われる。

堆積物の粒度と微量元素濃度の関係

堆積物の構成粒子の粒度の相違は微量元素の濃度変化の一要因となりうる。すなわち、構成粒子が細粒化するに従い、粘土鉱物の占める割合が増加する。海水中に浮遊する粘土鉱物のイオン交換能によってセシウム、ルビジウム、バリウム、ストロンチウムなどの小さい z/r 比をもつイオンが選択的に粘土鉱物に分配される。したがって、粘土鉱物成分の多い細粒の堆積物は、上記の z/r 比の小さいイオンが、より濃集すると考えられる。セシウムについてみると深さに伴った粒度変化と濃度との間には明瞭ではないものの、特に S 地点の粒度が粗い部分（20~30cm の深さ）で濃度が低くなり、反対に粒度が細くなる深さ10cm より浅い部分で濃度が高くなる傾向が認められる。他の元素では、同様の傾向は認められない。

第5図に示すように、海底下10cm 以浅で、堆積物の粒度は細くなる。深さに伴った微量元素濃度の変化に注目すると、10cm 深度で顕著な濃度変化を示す元素は認められない。深さに伴う濃度変化が認められるのはむしろ20~30cm の間である。特に亜鉛とウランの2元素においてその傾向が顕著である。セシウムを除き、深さに伴った微量元素の濃度変化の原因を構成粒子の粒度変化に関係づけて考えることは難しい。

以上のことより、瀬戸内海表層堆積物の微量元素の濃度変化、とりわけその変化が著しい亜鉛濃度の変化の原因を、周囲の地質体すなわち堆積粒子供給源の変化や、海棲生物種の変化などの自然的要因に結びつける積極的根拠をあげることは現時点では難しい。

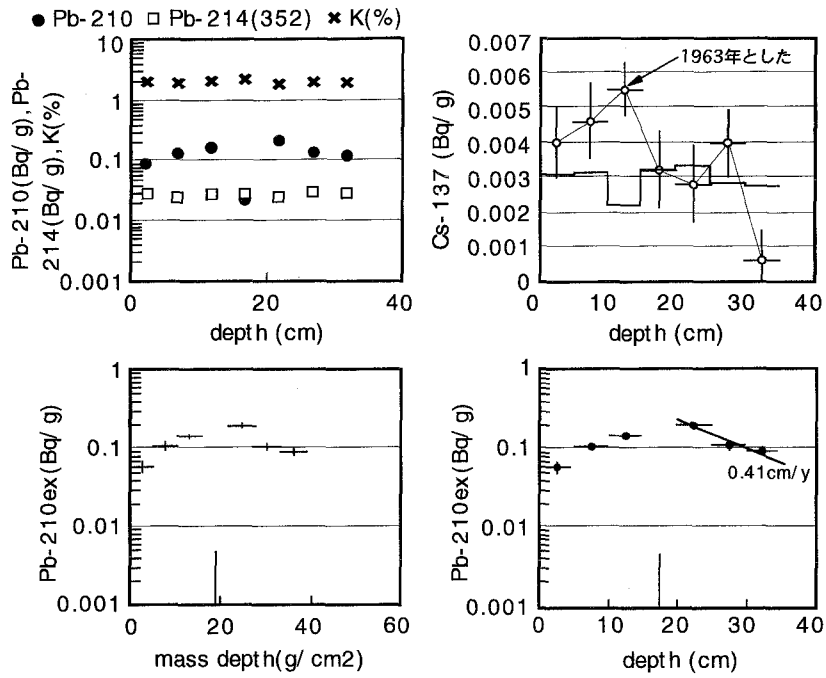
3. 堆積年代と亜鉛濃度変化

柱状堆積物の微量元素濃度の変化に年代軸を加えることにより、その組成変化と海洋環境変遷の影響について考察することが可能となる。なぜならば堆積物に含まれる微量元素濃度の変化は、当時の海水の化学組成を鋭敏に反映するからである。

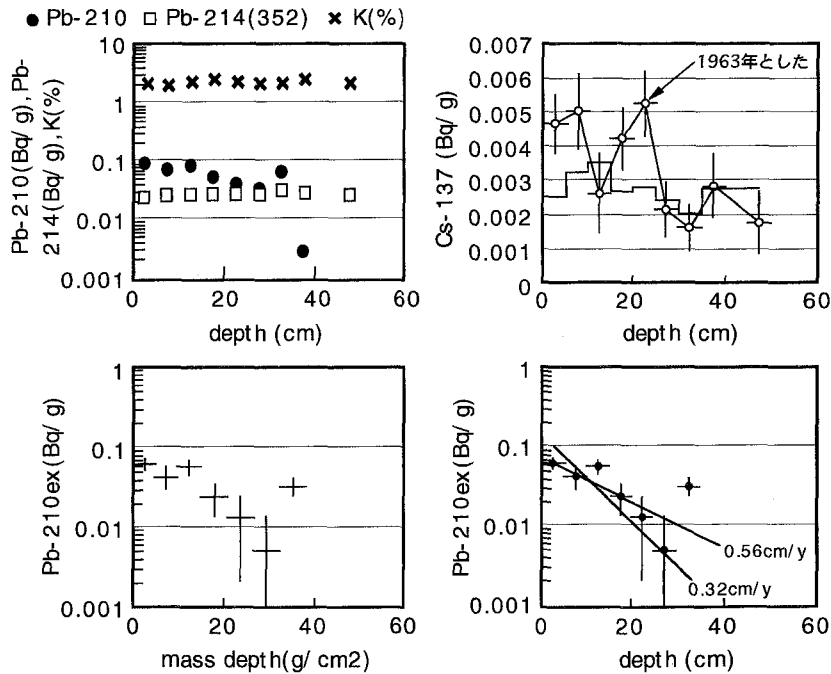
表層堆積物の堆積速度を求めるには、22.3年の半減期をもつ天然起源放射性核種である鉛-210や、30.5年の半減期をもつ大気核実験起源核種のセシウム-137が利用される。鉛-210は大気中に拡散したラドン-222から生じた核種で、それが堆積物と共に堆積する。堆積粒子の供給量が一定で、かつ、堆積後の二次的移動がなければ、鉛-210はその半減期に従い、堆積物の深さに伴った指数関数的減少を示す。第6図に示すように、R 地点では鉛-210は深さ20cm 以深で指数関数的減少を示し、その平均堆積速度は0.41cm/年が、S 地点では深さ30cm のデータを除くと鉛-210は表層より単調な減少を示し、その平均堆積速度は0.32cm/年が求められる。R 地点では表層から約20cm までの間では鉛-210の指数関数的減少が認められないことから、20cm 以浅の表層部では堆積後の二次的移動があったものと思われる。一方、セシウム-137は、大気圏内核実験由来のフォールアウトが1963年に最大になることを利用 (Peirson, 1971; Simpson *et al.*, 1976; Albrecht *et al.*, 1998) して、平均堆積速度を見積もる。この方法で求められた R および S 地点の平均堆積速度は、それぞれ0.29~0.43cm/年、0.57~0.71cm/年である（第6図）。セシウム-137の測定誤差が大きいこと、および基準となる1963年のフォールアウトのピークが明瞭でない点から、測定精度のより高い鉛-210法による堆積速度に基づき、堆積物の年代軸を求めると、堆積物が細粒化する海底下10cm の深さの堆積年代は約1970~80年となる（第5図）。さらに表層堆積物中の亜鉛濃度が急増する深さの堆積年代は1920~40年ごろと見積もられる。鉛-210法による堆積速度見積もりに、ある程度の誤差を考慮しても R, S 両地点で、ほぼ同時期に亜鉛の急激な濃度変化が生じたことは否めない。ところで、この亜鉛濃度が急激に増加するのが1920~40年というのは非常に興味深い。昭和初期、第二次世界大戦前の日本の軍需拡大時期と一致するからである。当時、亜鉛は銃の弾丸の薬莖によく利用されていたようである。また、亜鉛と銅の合金である真鍮は薬莖の他、様々な機械に加工されていたであろう。すなわち、亜鉛は軍事産業とも密接な関係があったことは容易に推測できる。亜鉛の濃度の急増する時期とほぼ同時期にそのような目的の亜鉛工場が付近で稼働していたとすれば、亜鉛濃度変化の原因は、この人為的な海洋環境汚染である可能性が高いといえよう。

東京湾や大阪湾海底の柱状表層堆積物について、亜鉛

A) R地点



B) S地点



第6図 鉛-210およびセシウム-137を用いた堆積速度の見積もり。放射能測定方法は金井(1993)および金井ほか(1997)による。図中Bの鉛-210を用いた堆積速度のうち0.32cm/年と0.56cm/年の二つの速度が示されているが、後者は深さ30cmのデータを含めて計算して求めた値。ここでは30cmのデータが他のデータとはかけ離れているため、除外して求めた値0.32cm/年を利用した。

を含む重金属濃度変化が報告されている(松本・横田, 1977; 1978; 松本, 1983)。松本らの一連の研究結果に基づくと、亜鉛を含む重金属濃度は、東京湾において1930年頃から次第に増加し始め、1970年にその濃度がピークを示す。1920年以前では亜鉛濃度が100ppm以下であったものが1970年にはほぼ10倍の1000ppm近い濃

度に増加する傾向が認められ、松本(1983)は、その原因について人間活動による重金属汚染に起因するとしている。同様の現象は大阪湾でも認められ、表層堆積物中の亜鉛濃度は深層堆積物の5倍に達する(松本・横田, 1978)。一方、湖沼堆積物についてその重金属濃度変化に関する報告がなされている(寺島他, 1989;

1990; 1996). 寺島らは野尻湖, 日光湯の湖, 諏訪湖の柱状堆積物の重金属濃度変化について検討し, そのうち諏訪湖については, より表層で亜鉛の急激な増加を認め, 近年の人為的影響による供給量の増大に起因するとした(寺島他, 1990). このように柱状堆積物における表層部での重金属濃度の増加は本地域だけでなく, 東京湾や大阪湾, さらに淡水の諏訪湖でも認められている. そしてその原因として人為的な環境汚染の可能性を指摘している. 一方, 表層部で亜鉛濃度が増加する現象については, 堆積物の続成過程における元素の表層への移動の可能性(Lynn & Bonatti, 1965; Bonatti *et al.*, 1971; Tsunogai *et al.*, 1979) も考えられる. 亜鉛はマンガンのように還元条件下において, 続成作用の進行に伴い間隙水中に移動しやすい性質を有する. したがって続成作用の影響か, あるいは人為的環境汚染の影響かを明らかにするために, 今後亜鉛とマンガンの濃度変化の関連性についても検討を行う必要がある.

今回の報告では柱状表層堆積物の微量元素濃度分析間隔が10cmごとであり, どの深さで亜鉛濃度が急激に変化するのかわからず, また, 鉛-210法による堆積速度の見積りにも限界がある点などを考慮すると, 今後さらなる慎重な検討が必要となろう. さらに, 本地点では行われていないものの, 1960~70年代の海砂採取により, 瀬戸内海海底は広範にわたり攪乱され, 海水-堆積物間の粒子と元素の再分配が行われている可能性はかなり高いと思われる. このことは底質の表層部が細粒となっていることとも調和的である.

IV まとめ

瀬戸内海芸灘海底の表層堆積物について微量元素濃度を分析し, その組成変化の原因について考察した. 特に今回は, シルト~泥質堆積物が鉛直方向に採取されている2地点について年代軸をも加味した議論をおこなった. その結果, 多くの元素は顕著な鉛直方向の濃度変化を示さないが, 亜鉛とウランについては堆積物の深さに伴う系統的な濃度変化が認められた. 亜鉛は, 2地点とも海底下20~25cm 深度より浅所において急激にその濃度が増加する. 両地点共に亜鉛濃度は20~25cm 以浅で120~140ppm に達する. 表層堆積物を構成する粒子の供給源となりうる環瀬戸内地域に分布する岩石は, 主として花崗岩と安山岩質岩石であるが, これらの岩石中の亜鉛濃度は90ppm 以下であり, 堆積物の表層付近での高亜鉛濃度の直接的な起源とは考えにくい. 一方, 鉛-210法による堆積速度の検討から, 亜鉛濃度が急激に変化する深さの堆積年代は1920~1940年代頃と見積られる. この時期は第二次世界大戦前の瀬戸内地域の鋳工業が急速に発展した時期とよく一致する. 亜鉛濃度の急激

な増加の一つの可能性として, このような人為的な海洋環境汚染が考えられる.

謝辞

放射化分析は京都大学原子炉実験所との共同利用プログラムにより行われた. 同実験所の中野幸廣氏, 竹内孝之氏には中性子照射で大変お世話になった. 以上の方々に感謝の意を表す.

引用文献

- Albrecht, A., Reiser, R., Luck, A., Stoll, J.M.A. and Giger, W. (1998) Radiocesium dating of sediments from lakes and reservoirs of different hydrological regimes. *Environ. Sci. Technol.*, **32**, 1883-1887.
- Bonatti, E., Fisher, D.E., Joensuu, O. and Rydell, H.S. (1971) Postdepositional mobility of some transition elements, phosphorus, uranium and thorium in deep-sea sediments. *Geochim. Cosmochim. Acta*, **35**, 189-201.
- 金井 豊 (1993) 微量環境試料用井戸型 Ge 検出器の効率特性. *Radioisotopes*, **42**, 169-172.
- 金井 豊, 望月常一, 三田直樹 (1994) 海水と間隙水におけるウランの地球化学 - 鹿児島湾・八代海・甌南海水および底質間隙水の例 -. *地調月報*, **45**, 267-277.
- 金井 豊, 井内美郎, 片山 肇, 斎藤文紀 (1997) 低バックグラウンド放射能測定システムによる長野県諏訪湖底質の放射能測定と堆積速度の見積り. *地調月報*, **48**, 277-295.
- Lynn, D.C. and Bonatti, E. (1965) Mobility of manganese in diagenesis of deep-sea sediments. *Mar. Geol.*, **3**, 457-474.
- 松本英二 (1983) 東京湾の底質環境. *地球化学*, **17**, 27-32.
- 松本英二, 横田節哉 (1977) 底泥からみた東京湾の汚染の歴史. *地球化学*, **11**, 51-57.
- 松本英二, 横田節哉 (1978) 大阪湾底泥の堆積速度と重金属汚染. *日本海洋学会誌*, **34**, 108-115.
- Peirson, D.H. (1971) World deposition of long-lived fission products from nuclear explosions. *Nature*, **234**, 79-80.
- 佐野 栄 (1999) 沈み込み過程での堆積物および緑色岩中の微量元素の挙動. *地質学論集*, **52**, 195-204.
- Simpson, H.J., Olsen, C.R., Trier, R.M. and Williams, S.C. (1976) Man-made radionuclides and sedimentation in the Hudson river estuary. *Science*, **194**, 179-194.
- 寺島 滋, 井内美郎, 中尾征三, 米谷 宏 (1989) 野尻湖底層堆積物におけるマンガン, 銅, 鉛, 亜鉛の挙動. *地調月報*, **40**, 113-125.
- 寺島 滋, 井内美郎, 中尾征三, 米谷 宏 (1990) 諏訪湖底質中の重金属, 有機炭素, 硫黄, りん等14元素の地球化学的研究. *地調月報*, **41**, 147-172.
- 寺島 滋, 井内美郎, 谷口政碩 (1996) 奥日光湯ノ湖の湖底堆積物の地球化学的研究. *地調月報*, **47**, 457-469.
- Tsunogai, S., Yonemaru, I. and Kusakabe, M. (1979) Post depositional migration of Cu, Zn, Ni, Co, Pb and Ba in deep sea sediments. *Geochem. J.*, **13**, 239-252.