

**【課題名】**

別府湾堆積物における重金属汚染の歴史トレンドの解明

**【共同研究者名（所属を含む）】**

加 三千宣（愛媛大学沿岸科学研究センター）

**【研究目的】**

「チバニアン」という前期更新世と中期更新世の地質時代区分境界の世界標準模式地（Global Boundary Stratotype Section and Points: GSSP: 国際境界模式層断面とポイント）が日本で初めて千葉県在地層に決定したことが最近話題となったが、最も新しい地質時代である人新世（Anthropocene）の世界標準模式地及び補助模式地が決まっていない。2019年より、その候補について国際地質科学連合の国際層序委員会（ICS）の下部組織、第四紀層序小委員会（SQS）の Anthropocene 作業部会（AWG）で検討されている。

その有力候補として、日本の別府湾海底堆積物が挙げられている。別府湾堆積物は、有力候補として多数の優位性がある。湾奥部底層には貧酸素水塊が発達し、海底堆積物中に一年数枚の葉理で構成される年縞（木の年輪に相当）が認められ、人新世境界という年解像度が要求される記録媒体として適切である。また、現在の人新世と始まりは、核実験による  $^{14}\text{C}$  や  $^{137}\text{Cs}$  等の放射性核種の増加期とすることが決定しているが、別府湾堆積物にも、核実験由来である  $^{137}\text{Cs}$  の増加が深度約 50cm に認められ、核実験由来放射性元素のキーマーカー層序が明らかとなっている。海底面からの年縞カウントに基づく  $^{137}\text{Cs}$  ピークの年代は、およそ 1964 年になることも判明しつつある（鈴木克明私信）。世界標準あるいは補助模式地となるには世界中で対比可能な人新世を特徴づける多くのキーマーカーによる層序の確立が必要であるが（例えば、PCB や DDT 等の POPs やマイクロプラスチック等）(Lewis and Maslin, 2015; Waters et al., 2018)、別府湾堆積物ではおよそ 1950 年以降からマイクロプラスチック（榎本ほか, 2018）や PCB（加, 投稿準備中）の堆積が始まるということが共同研究者によって明らかになってき

た。

以上のように、年縞年代決定の可能性や、境界を特徴づける多数の人新世キーマーカー層序の存在は、別府湾堆積物が人新世補助模式地あるいは世界標準模式地候補としてポテンシャルの高い堆積物であると考えられる。そこで本研究は、別府湾堆積物を対象に、人新世のキーマーカーとして重金属に着目し、その汚染の歴史トレンドを解明する。

## 【研究内容】

### ①人新世境界を含む年縞年代決定

別府湾堆積物では、人新世境界となる 1964 年に相当する  $^{137}\text{Cs}$  のピークの深度は約 50cm に存在する。その深度の年代は年縞年代と過剰  $^{210}\text{Pb}$  年代決定法によってサポートされる必要がある。しかし、これまでの検討は表層部が採れるコアラーとより深い深度の堆積物が採れるコアラーを用いて、不連続且つわずかに離れた地点の 2 つの柱状堆積物試料を用いて行ってきた。しかし、確度の高い年代決定には、表層から過剰  $^{210}\text{Pb}$  が検出できる層（約 80cm）まで連続した柱状試料によって検討される必要がある。

本研究では 2019 年 9 月に別府湾で分担者・加准教授が採取した柱状試料（ロングアシュラ式コアラーによって得られた約 80cm の連続試料）を用いて、愛媛大学 CMES 所有のガンマ線測定システムにより過剰  $^{210}\text{Pb}$  測定（液体窒素利用）を行い、年縞年代と  $^{210}\text{Pb}$  年代に基づき人新世境界の年代の妥当性を検討した。

### ②人新世キーマーカー層序データセットの確立

充実した人新世キーマーカー層序の確立は、模式地として必須である。別府湾では、 $^{14}\text{C}$  のような必須キーマーカーの他、Waters et al. (2018) に提案されたキーマーカーの内、black carbon（球状微粒炭）、重金属等のキーマーカー層序は明らかになっていない。人新世模式地として別府湾堆積物が採択されるためには、こうしたデータセットの構築が必要である。

本研究では、これらを 1cm 間隔（約 1 年）の高解像度で人新世キーマー

カーを分析することで、過去 150 年間の人新世キーマーカ層序を確立し、別府湾堆積物に記録される人新世境界前後の地球規模の環境・生態系変動を明らかにする。申請者は、誘導結合プラズマ質量分析計を用いて堆積物中の鉛同位体比を測定し、①で得られた年代データを併用しながら重金属の汚染史の解明を試みた。

### 【研究成果】

#### ①人新世境界を含む年縞年代決定

84 cm の別府湾堆積物コアサンプル (BMC19 S1-1) の年代測定の結果、1920 - 2018 年と決定することができた。

#### ②人新世キーマーカ層序データセットの確立

本研究では、上記の堆積物コアサンプルを対象に、Pb 同位体比を測定したところ、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  は 0.925 - 0.955、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  は 2.132 - 2.230 の範囲となった。このように Pb 同位体比のレンジが広がったことから、堆積物に蓄積している Pb の汚染源が 1 つではないことが示唆された。ただし、標準試料として用いた NIST SRM981 の標準値と今回の分析値の間に、許容値以上の差が認められたため、今回の値は参考値として議論する。

Figs. 1 and 2 に、①で決定した年代と  $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  および  $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  の関係を示す。Pb 濃度についても Figs. 1 and 2 に併せて表示した。Pb 濃度は、1940 年代から増加し、1960 年代にピークを迎え、その後濃度減少した (Figs. 1 and 2)。これは、高度経済成長期に Pb の汚染が深刻化し、その後の公害対策による効果が現れていることを示している。一方、 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  は興味深い経年変動を示した。すなわち、同位体比は 1950 年頃に急増し、1960 年代にいったんピークを示した後、2000 年代に急減してすぐ 2005 年付近から急増していった (Fig. 1)。一方、 $^{208}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$  については、Pb 濃度が高かった時期に同様に高値を示したが、その後 2000 年代に急上昇した後、2014 年に低下する傾向がみられた (Fig. 2)。以上のことから、Pb 同位体比は 1960 年代の汚染の特徴を示していること、近年別府湾への Pb の負荷量自体は減少しているが、Pb の発生源は大きく変動していることが明ら

かとなった。

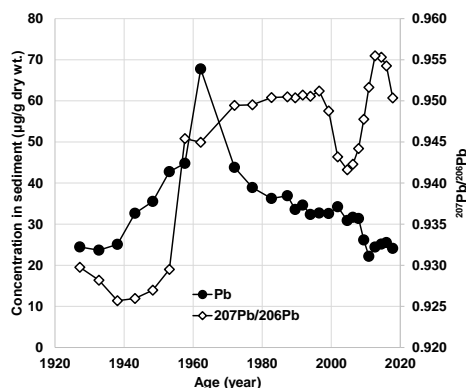


Fig. 1. Temporal variation in Pb concentration and Pb<sup>207</sup>/Pb<sup>206</sup> in sediment core from Beppu Bay.

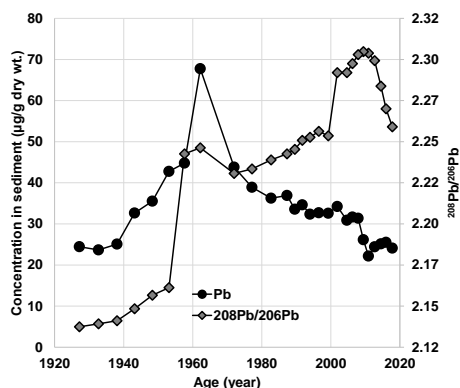


Fig. 2. Temporal variation in Pb concentration and Pb<sup>208</sup>/Pb<sup>206</sup> in sediment core from Beppu Bay.

【成果発表】

阿草哲郎, 加三千宣, 2021. 別府湾堆積物における重金属濃度の歴史トレンドの解明, 人新世国際標準模式地認定に向けた別府湾での取り組み, 東京大学大気海洋研究所共同利用研究集会, 2021年3月27日, オンライン.

関連成果として

Kuwae, M., Tsugeki, N.K., Amano, A., Agusa, T., Suzuki, Y., Tsutsumi, J., Leavitt, P.R., Hirose, K., 2022. Human-induced marine degradation in anoxic coastal sediments of Beppu Bay, Japan, as an Anthropocene marker in East Asia. *Anthropocene* 37, 100318.

【今後の問題点】

先述したように、今回の Pb 同位体の分析値は絶対値ではないため、実験結果内での相対評価しかできていない。今後、分析装置の条件等を再度検討する。