

表 5.2 st.1 の柱状泥の含水率と強熱減量の結果

深さ (cm)	含水率 (%)	強熱減量 (%)	深さ (cm)	含水率 (%)	強熱減量 (%)	深さ (cm)	含水率 (%)	強熱減量 (%)
0~1	86.5	19.7	25~26	68.8	15.7	50~52	64.4	15.4
1~2	83.1	19.7	26~27	68.8	16.0	52~54	63.4	15.4
2~3	81.2	17.9	27~28	67.7	15.7	54~56	63.3	15.3
3~4	80.5	17.5	28~29	67.9	15.6	56~58	64.0	15.4
4~5	80.4	18.3	29~30	67.6	15.7	58~60	63.4	15.4
5~6	81.0	18.8	30~31	67.1	15.6	60~62	63.8	15.4
6~7	80.9	18.7	31~32	67.1	15.7	62~64	63.8	17.1
7~8	81.1	18.9	32~33	66.5	16.0	64~66	64.4	15.6
8~9	80.5	18.4	33~34	66.0	15.5	66~68	63.6	16.4
9~10	81.9	20.0	34~35	66.0	16.5	68~70	62.5	14.8
10~11	81.0	19.4	35~36	65.9	16.6	70~72	63.3	14.8
11~12	80.5	18.6	36~37	66.3	15.6	72~74	61.9	14.7
12~13	80.1	18.5	37~38	66.1	15.7			
13~14	79.0	17.4	38~39	65.6	15.4			
14~15	79.2	17.1	39~40	65.8	15.8			
15~16	77.2	17.5	40~41	65.7	15.6			
16~17	78.1	17.1	41~42	65.8	15.6			
17~18	77.3	16.3	42~43	65.3	15.4			
18~19	76.4	16.2	43~44	65.4	15.5			
19~20	68.9	11.0	44~45	64.9	16.6			
20~21	60.0	7.3	45~46	63.2	19.1			
21~22	57.5	6.9	46~47	64.1	15.8			
22~23	62.9	10.1	47~48	65.1	15.6			
23~24	68.4	14.5	48~49	64.8	15.6			
24~25	68.4	15.5	49~50	64.5	15.6			

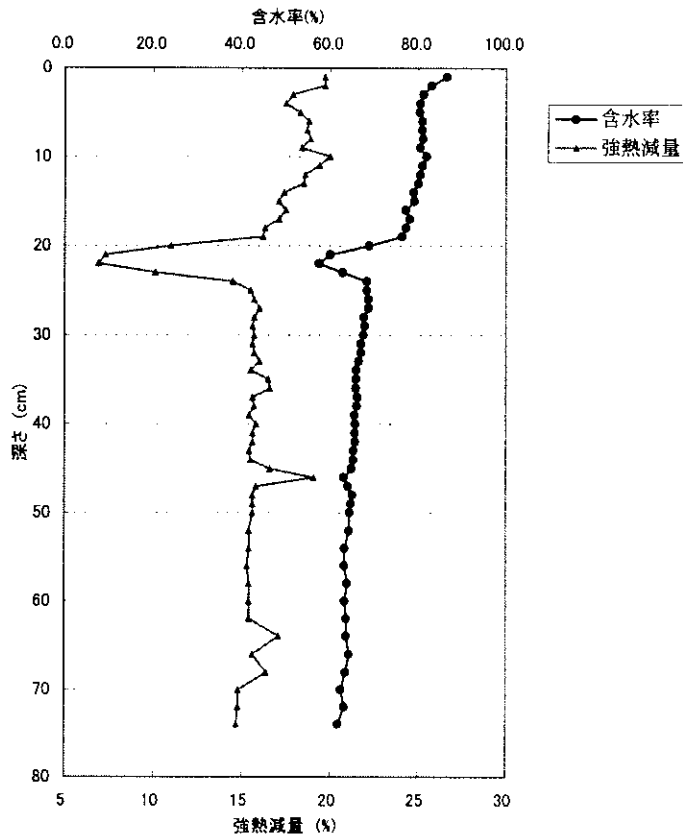


図 5.2 st.1 の柱状泥の含水率と強熱減量の結果

表 5.3 st.2 の柱状泥の含水率と強熱減量の結果

深さ (cm)	含水率 (%)	強熱減量 (%)	深さ (cm)	含水率 (%)	強熱減量 (%)	深さ (cm)	含水率 (%)	強熱減量 (%)
0~1	90.5	21.8	25~26	78.5	19.4	50~52	66.3	15.1
1~2	87.6	21.5	26~27	77.6	18.7	52~54	66.6	15.8
2~3	84.0	21.8	27~28	76.1	17.6	54~56	67.3	16.2
3~4	83.6	21.5	28~29	80.0	19.9	56~58	66.6	15.7
4~5	83.8	21.5	29~30	74.9	16.6	58~60	66.3	15.8
5~6	83.7	21.6	30~31	76.3	17.3	60~62	66.5	15.7
6~7	83.3	21.6	31~32	72.4	14.6	62~64	66.5	15.6
7~8	82.9	21.4	32~33	75.1	16.0	64~66	66.4	16.0
8~9	83.8	21.5	33~34	71.9	14.0	66~68	67.8	15.6
9~10	84.2	21.4	34~35	70.9	14.6	68~70	65.7	15.7
10~11	82.4	21.1	35~36	70.8	14.5			
11~12	83.5	21.4	36~37	70.3	14.6			
12~13	85.3	21.4	37~38	69.0	13.7			
13~14	82.5	21.0	38~39	68.3	13.9			
14~15	82.8	21.1	39~40	72.4	15.9			
15~16	83.3	21.1	40~41	69.0	14.8			
16~17	81.8	20.7	41~42	65.1	12.3			
17~18	81.7	21.1	42~43	66.2	13.5			
18~19	82.7	20.8	43~44	68.0	13.8			
19~20	81.3	20.5	44~45	67.1	13.4			
20~21	80.9	20.4	45~46	66.1	14.2			
21~22	81.0	20.9	46~47	65.6	14.3			
22~23	80.7	20.8	47~48	66.3	14.4			
23~24	80.3	20.3	48~49	65.2	13.7			
24~25	81.6	21.7	49~50	65.9	14.7			

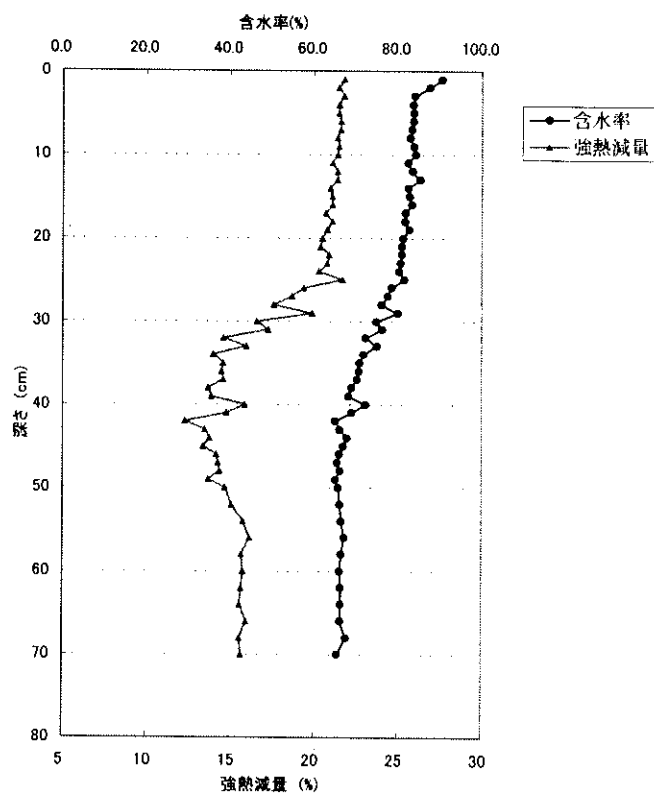


図 5.3 st.2 の柱状泥の含水率と強熱減量の結果

表 5.3 st.3 の柱状泥の含水率と強熱減量の結果

深さ (cm)	含水率 (%)	強熱減量 (%)	深さ (cm)	含水率 (%)	強熱減量 (%)	深さ (cm)	含水率 (%)	強熱減量 (%)
0~1	89.5	22.6	25~26	78.1	19.4	50~52	72.8	20.2
1~2	87.0	23.2	26~27	76.9	19.1	52~54	72.7	20.5
2~3	85.3	23.1	27~28	76.5	19.3	54~56	72.8	20.6
3~4	84.4	22.8	28~29	75.7	19.7	56~58	72.1	20.0
4~5	83.8	22.6	29~30	75.3	19.9	58~60	71.8	19.3
5~6	83.6	22.9	30~31	75.0	20.0	60~62	71.6	19.7
6~7	83.3	22.9	31~32	73.9	20.2	62~64	67.5	17.4
7~8	83.0	22.4	32~33	73.8	20.1	64~66	66.0	17.1
8~9	82.8	22.6	33~34	73.3	20.0	66~68	65.1	17.3
9~10	82.8	22.6	34~35	74.0	20.6	68~70	65.1	18.2
10~11	82.7	22.8	35~36	73.5	20.0	70~72	65.9	18.3
11~12	83.1	22.9	36~37	73.1	19.4			
12~13	82.9	22.8	37~38	72.7	19.3			
13~14	83.1	23.2	38~39	73.1	19.4			
14~15	82.3	22.5	39~40	73.1	19.4			
15~16	82.1	22.3	40~41	72.8	19.6			
16~17	82.2	22.8	41~42	73.1	19.9			
17~18	81.7	22.5	42~43	72.9	20.2			
18~19	81.7	22.1	43~44	73.1	20.4			
19~20	81.7	22.6	44~45	72.4	19.2			
20~21	81.0	21.9	45~46	72.2	19.2			
21~22	81.3	21.7	46~47	72.3	19.7			
22~23	80.6	21.4	47~48	72.5	20.1			
23~24	79.9	21.5	48~49	72.8	20.6			
24~25	79.0	20.5	49~50	72.5	20.4			

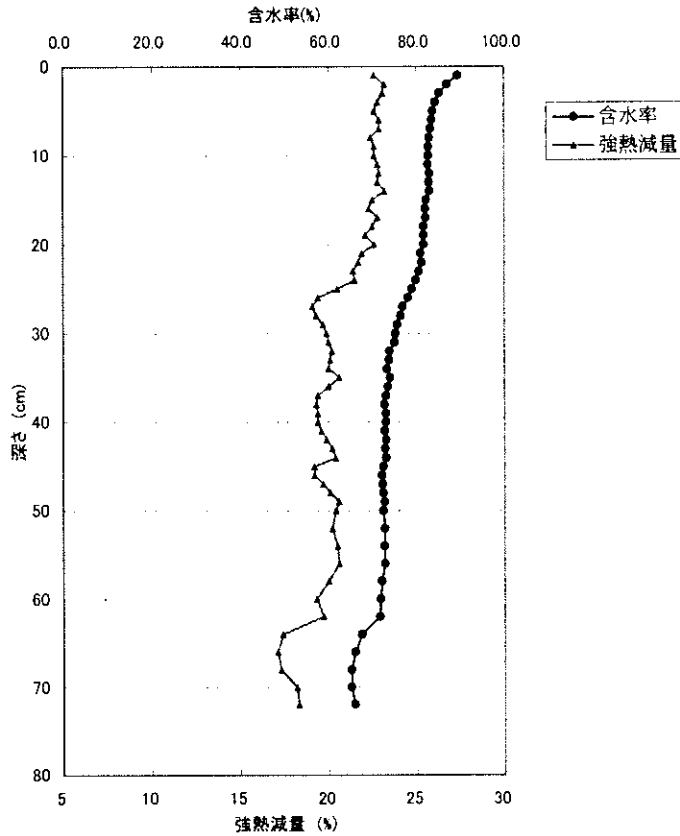


図 5.4 st.3 の柱状泥の含水率と強熱減量の結果

C. 結果

5.2 年代測定（鉛-210法）

5.2.1 概論

鉛-210の供給源は地殻であり、空気中に存在するラドンガスから常に生まれ続けている。ラドンガスが大気中に放出される強さは温泉地などで強い。鉛-210は微小粒子の形で風に乗って空気中を循環しており、微小粒子は雨に出会えば洗い落とされるため、気象現象に支配されながら水圏へ移動する。水中で鉛-210は沈降粒子とともに沈降する。だいたい毎年決まった量だけ泥に移行する。

分析手順としては次のとおりである。

- ①一定の厚さにスライスした柱状泥試料の水分を測定する。
- ②スライスした底質を一般の鉛の底質分析と同様に分解し、白金電極を用いて電着を行い、最終的には鉛を硫酸鉛として回収する。
- ③その後、低バックグラウンドガスフローカウンターで乾燥泥に含まれる鉛-210由来のビスマス-210が壊変する数をカウントし、放射能の強さ（単位：dpm）を求める。半減期22.3年と鉛直方向の1gあたりの放射能の強さ及び圧密効果の補正により堆積年代が推定できる。

あくまでアクリルコア内の泥が攪乱されていないことが前提であり、生物などにより表層泥のみが攪乱されている場合は表層付近で鉛-210のカウント値が一定である。この放射性鉛-210法は、ここ100年程度の泥の厚さまでに対して適用され、それより昔の泥は対象外である。22.3年で放射能の強さが半減する。半減を5回繰り返すのに約100年かかり、放射能の強さは最初の3%に減り、測定が難しくなるからである。

5.2.2 測定方法

各地点3本採取した柱状泥のうち亀裂や砂層のない試料を1本選定した。この試料を2cmごとに層切りし、乾燥させ、乳鉢にてすりつぶした後、適量をるつぼに計り取り、電気炉を用いて有機物を分解した。その状況を図5.5に示した。その後、試料を三角フラスコに移し、酸を加え鉛を溶解させた。その状況を図5.6に示した。

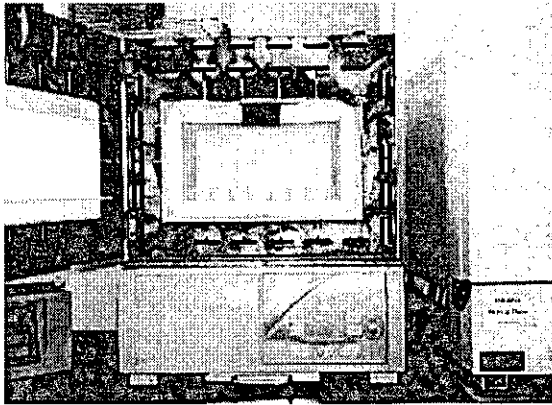


図 5.5 電気炉を用いた有機物の分解



図 5.6 鉛の溶解

酸を用いて溶解させた試料をろ過し、白金を用いた電着装置にかけ、鉛を抽出した。電着状況を図 5.7 に示した。その後、電着した鉛を硫酸鉛として取り出し、ろ紙上に回収した状況を図 5.8 に示した。

ろ紙上に回収された硫酸鉛は、放射平衡にするため 40 日間以上放置した。

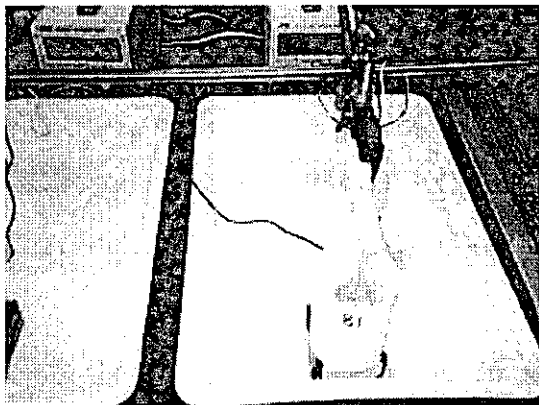


図 5.7 鉛の電着

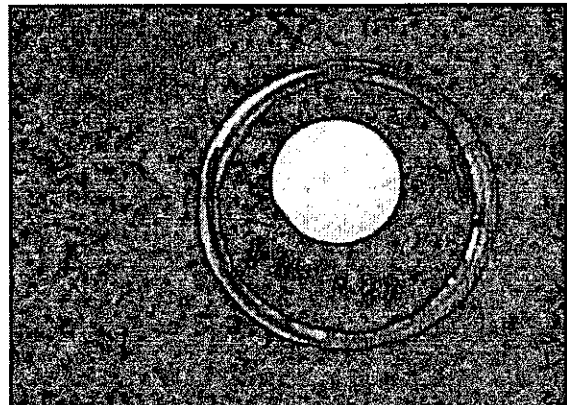


図 5.8 硫酸鉛

40 日以上放置し、放射平衡に達した試料を図 5.9 に示した低バックグラウンドガスフローカウンター（ β 線測定装置）を用いて、24 時間測定を行った。低バックグラウンドガスフローカウンターにセットした状況を図 5.10 に示した。

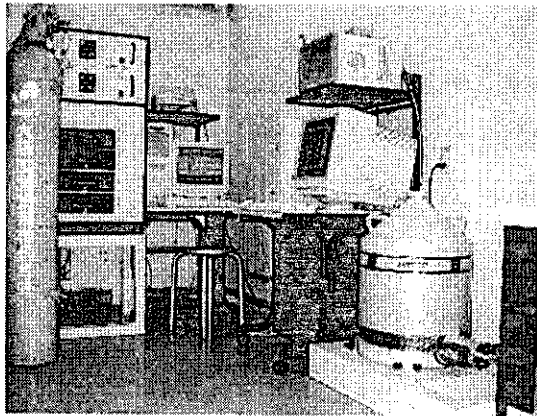


図 5.9 向かって左 β 線測定装置
向かって右 γ 線測定装置

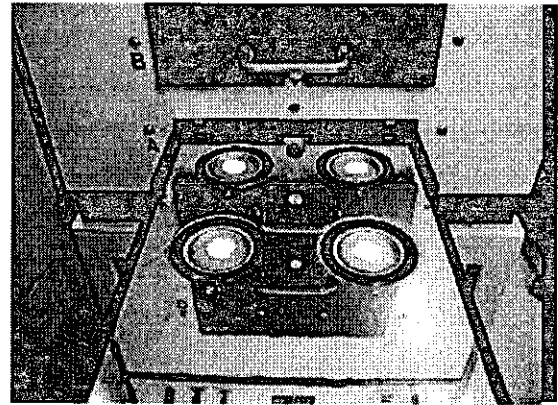


図 5.10 鉛-210測定

5.2.3 年代の計算方法 (鉛-210法)

①ろ紙上に回収された鉛を低バックグラウンドガスフローカウンターを用いて β 線(ビスマス 210、1.1MeV)を測定した。得られた値 = cpm¹から dpm/g²を算出した。この算出方法を次式に示した。

$$\text{dpm/g} = \text{cpm} / \text{採泥量} \times \text{計数効率} / \text{回収率}(\%) / 100$$

・計数効率について

鉛-210の β 線基準源(712Bq)を用いて各検出器の計数効率を求めたものを表 5.4 に示した。

表 5.4 各検出器の計数効率

検出器	標準線源(Bq)	Count time(s)	Total Count	B.G.Count	Net Count	Net cps	係数効率
A-1	712	600	207868	474	207394	346	2.06
A-2	712	600	207773	486	207287	345	2.06
A-3	712	600	210170	528	209642	349	2.04
A-4	712	600	207105	576	206529	344	2.07
B-1	712	600	207502	468	207034	345	2.06
B-2	712	600	205328	438	204890	341	2.09
B-3	712	600	204973	450	204523	341	2.09
B-4	712	600	207213	402	206811	345	2.07
C-1	712	600	216296	438	215858	360	1.98
C-2	712	600	217844	426	217418	362	1.96
C-3	712	600	218494	444	218050	363	1.96
C-4	712	600	218332	480	217852	363	1.96

¹ cpm(count per minute) 放射線測定器で放射線能を測定したときの毎分当たりの係数値に付ける記号。同じ線源でも、線源と測定器との距離、測定器の種類や性能により異なる。

² dpm(disintegration per minute) 毎分当たり放射性物質が壊変する絶対的な係数値に付ける記号。cpm 値を放射

・回収率(%)=分解後から最後まで回収率(%)である。

これは、分解後の試料に鉛として添加したものを白金を用いて電気分解を行い電着させた。その後鉛を取り出し、硫酸を適量加え硫酸鉛とし、ろ紙上に硫酸鉛を回収した。このろ紙上の上の鉛の重さを計り、回収率を求めた。

- ② 各層の dpm/g(鉛-210 濃度)の値と含水率を縦軸に、積算重量深度³を横軸にとりグラフ化し、そのグラフから含水率が落ち着き、鉛-210 濃度が一定になる値(水中のラジウム-226 から生成してくる鉛-210)を求めた。
- ③ 各層の dpm/g(鉛-210 濃度)の値からこの一定値になった鉛-210 濃度を差し引き、過剰鉛-210 (Pb210_{ex})⁴を求めた。
- ④ 片対数紙上に積算重量深度に対し過剰鉛-210 をプロットし、この直線の傾きより平均重量堆積速度⁵を求めた。この平均重量堆積速度から平均堆積速度⁶及び堆積年数⁷を求めた。

線測定器の性能や測定試料の幾何学的条件で決まる測定器の計数効率を掛けて得られる値が dpm である。

³ 積算重量深度(g/cm²)=W とする。 1cm²当たりの堆積粒子の積算重量

$$W = (100 - \text{間隙率}) / 100 \times \text{泥の密度} \times \text{深さ (cm)}$$

⁴ 各層の dpm/g 値 = (水中のラジウム-226 から生成してくる鉛 210) + 過剰鉛-210

次に過剰鉛-210 = A_{ex}(W)とすると、

$$A_{ex}(W) = \text{各層の dpm/g 値} - \text{水中のラジウム-226 から生成してくる鉛-210}$$

⁵ 平均重量堆積速度=ω (g/cm²/年) は片対数紙上に積算重量深度に対し過剰鉛-210 (Pb210_{ex}) をプロットしたグラフの直線の式を下の式に代入する事により求める事が出来る。

直線の式が Y=Ae^{-ax}の場合 (Y=過剰鉛-210、A=切片、a=傾き)

$$A_{ex}(W) = A_{ex}(0) \exp(-\lambda W/\omega) \quad \lambda = 0.693/22.2$$

$$A_{ex}(W) = Y \quad (Y = \text{過剰鉛} - 210)$$

$$A_{ex}(0) = A \quad (A = \text{切片})$$

$$-\lambda/\omega = -a \quad (a = \text{傾き})$$

$$\omega = \lambda/a$$

よって、平均重量堆積速度 (ω) = (0.693/22.2) / 傾き

⁶ 平均堆積速度(cm/年) = ω / ((100 - 間隙率) / 100 × 堆積粒子の密度)

⁷ 堆積年数 (年) = 積算重量深度(g/cm²) / ω

5.2.4 年代測定の結果

③の柱状泥を2cm毎に層切りし、6-2及び6-3に示した方法で分析した結果を表5.5に示した。また、積算重量深度に対する鉛-210濃度と含水率の結果を図5.11に示した。

各層の鉛-210濃度には、大気中で鉛-210となり堆積物と一緒に降り積もったものと、水・底質のラジウム-226から生成してくる鉛-210（以下バックグラウンド値と示す）とが含まれていることから、各層の鉛-210濃度からバックグラウンド値を差し引きPb210exを求めた。このPb210exの結果を図5.12に示した。

バックグラウンド値は、通常含水率と鉛-210の値がほぼ一定となった層(44-45cm層以降)の鉛-210濃度を平均して求めた結果、バックグラウンド値は 0.76 ± 0.015 であった。

表5.5 st.3の柱状泥のPb210濃度、Pb210ex、及び各層の分析結果

地点	深さ (cm)	含水率 (%)	泥の密度 (g/cm ³)	湿潤密度 (g/cm ³)	間隙率(%)	積算重量深度 (g/cm ²)	鉛-210濃度 (dpm/g)			Pb210ex (dpm/g)	
0-1	0.5	89.5	2.186	1.060	94.9	0.06	-	-	-	-	-
1-2	1.5	87.0	2.205	1.076	93.7	0.18	5.00	± 0.014	4.24	±	0.020
2-3	2.5	85.3	2.208	1.087	92.8	0.33	4.15	± 0.012	3.39	±	0.019
3-4	3.5	84.4	2.228	1.094	92.3	0.50	4.45	± 0.012	3.69	±	0.019
4-5	4.5	83.8	2.200	1.097	91.9	0.67	4.55	± 0.012	3.78	±	0.019
5-6	5.5	83.6	2.217	1.099	91.9	0.85	4.29	± 0.012	3.53	±	0.019
6-7	6.5	83.3	2.208	1.101	91.7	1.03	4.44	± 0.012	3.68	±	0.019
7-8	7.5	83.0	2.229	1.103	91.6	1.22	4.41	± 0.012	3.65	±	0.019
8-9	8.5	82.8	2.253	1.106	91.6	1.41	4.71	± 0.014	3.95	±	0.020
9-10	9.5	82.8	2.223	1.105	91.5	1.60	3.65	± 0.012	2.89	±	0.019
10-11	10.5	82.7	2.296	1.108	91.6	1.79	3.73	± 0.012	2.97	±	0.019
11-12	11.5	83.1	2.303	1.106	91.9	1.98	4.41	± 0.012	3.65	±	0.019
12-13	12.5	82.9	2.166	1.101	91.3	2.16	3.69	± 0.011	2.93	±	0.018
13-14	13.5	83.1	2.249	1.104	91.7	2.35	4.02	± 0.012	3.25	±	0.019
14-15	14.5	82.3	2.328	1.112	91.5	2.54	4.14	± 0.012	3.38	±	0.019
15-16	15.5	82.1	2.216	1.109	91.0	2.74	4.63	± 0.014	3.87	±	0.020
16-17	16.5	82.2	2.319	1.113	91.5	2.94	4.08	± 0.011	3.32	±	0.018
17-18	17.5	81.7	2.256	1.113	91.0	3.14	4.29	± 0.012	3.53	±	0.019
18-19	18.5	81.7	2.270	1.114	91.0	3.34	3.78	± 0.012	3.02	±	0.019
19-20	19.5	81.7	2.265	1.114	91.0	3.55	3.64	± 0.012	2.87	±	0.019
20-21	20.5	81.0	2.257	1.118	90.6	3.76	3.82	± 0.012	3.06	±	0.019
21-22	21.5	81.3	2.225	1.115	90.6	3.97	3.80	± 0.012	3.04	±	0.019
22-23	22.5	80.6	2.327	1.124	90.6	4.18	3.73	± 0.012	2.97	±	0.019
23-24	23.5	79.9	2.352	1.131	90.3	4.40	3.42	± 0.011	2.66	±	0.019
24-25	24.5	79.0	2.326	1.136	89.7	4.64	2.99	± 0.010	2.23	±	0.018
25-26	25.5	78.1	2.292	1.141	89.1	4.88	2.78	± 0.010	2.02	±	0.018
26-27	26.5	76.9	2.322	1.151	88.5	5.14	2.54	± 0.010	1.78	±	0.017
27-28	27.5	76.5	2.288	1.152	88.2	5.41	1.90	± 0.009	1.14	±	0.017
28-29	28.5	75.7	2.348	1.162	88.0	5.68	1.30	± 0.008	0.54	±	0.017
29-30	29.5	75.3	2.246	1.159	87.3	5.97	-	±	-	±	-
30-31	30.5	75.0	2.363	1.169	87.6	6.26	1.09	± 0.008	-	±	-
31-32	31.5	73.9	2.313	1.174	86.8	6.56	1.14	± 0.008	-	±	-
32-33	32.5	73.8	2.335	1.176	86.8	6.86	1.21	± 0.008	0.45	±	0.017
33-34	33.5	73.3	2.308	1.178	86.4	7.17	1.04	± 0.008	-	±	-
34-35	34.5	74.0	2.369	1.177	87.1	7.48	1.00	± 0.008	0.24	±	0.016
35-36	35.5	73.5	2.370	1.181	86.8	7.79	-	±	-	±	-
36-37	36.5	73.1	2.334	1.182	86.4	8.11	1.05	± 0.007	-	±	-
37-38	37.5	72.7	2.314	1.183	86.0	8.43	-	±	-	±	-
38-39	38.5	73.1	2.369	1.184	86.6	8.75	-	±	-	±	-
39-40	39.5	73.1	2.296	1.179	86.2	9.07	0.97	± 0.007	0.21	±	0.016
40-41	40.5	72.8	2.287	1.181	86.0	9.39	-	±	-	±	-
41-42	41.5	73.1	2.256	1.176	86.0	9.71	-	±	-	±	-
42-43	42.5	72.9	2.006	1.157	84.4	10.02	-	±	-	±	-
43-44	43.5	73.1	2.266	1.177	86.0	10.34	-	±	-	±	-
44-45	44.5	72.4	2.308	1.185	85.8	10.66	0.69	± 0.007	-	±	-
45-46	45.5	72.2	2.312	1.187	85.7	10.99	-	±	-	±	-
46-47	46.5	72.3	2.297	1.185	85.7	11.32	-	±	-	±	-
47-48	47.5	72.5	2.307	1.185	85.9	11.64	-	±	-	±	-
48-49	48.5	72.8	2.326	1.184	86.2	11.97	-	±	-	±	-
49-50	49.5	72.5	2.321	1.186	86.0	12.29	0.75	± 0.007	-	±	-
50-52	50.5	72.8	2.31	1.182	86.1	12.78	-	±	-	±	-
52-54	51.5	72.7	2.339	1.185	86.2	13.42	-	±	-	±	-
54-56	52.5	72.8	2.358	1.186	86.3	14.07	-	±	-	±	-
56-58	53.5	72.1	2.289	1.186	85.5	14.72	-	±	-	±	-
58-60	54.5	71.8	2.318	1.191	85.5	15.39	0.87	± 0.008	-	±	-
60-62	55.5	71.6	2.399	1.198	85.8	16.06	-	±	-	±	-
62-64	56.5	67.5	2.365	1.231	83.1	16.80	-	±	-	±	-
64-66	57.5	66.0	2.55	1.261	83.2	17.63	-	±	-	±	-
66-68	58.5	65.1	2.492	1.264	82.3	18.50	-	±	-	±	-
68-70	59.5	65.1	2.509	1.266	82.4	19.38	0.74	± 0.008	-	±	-
70-72	60.5	65.9	2.486	1.256	82.8	20.25	-	±	-	±	-
							バックグラウンド値	0.76	±	0.015	

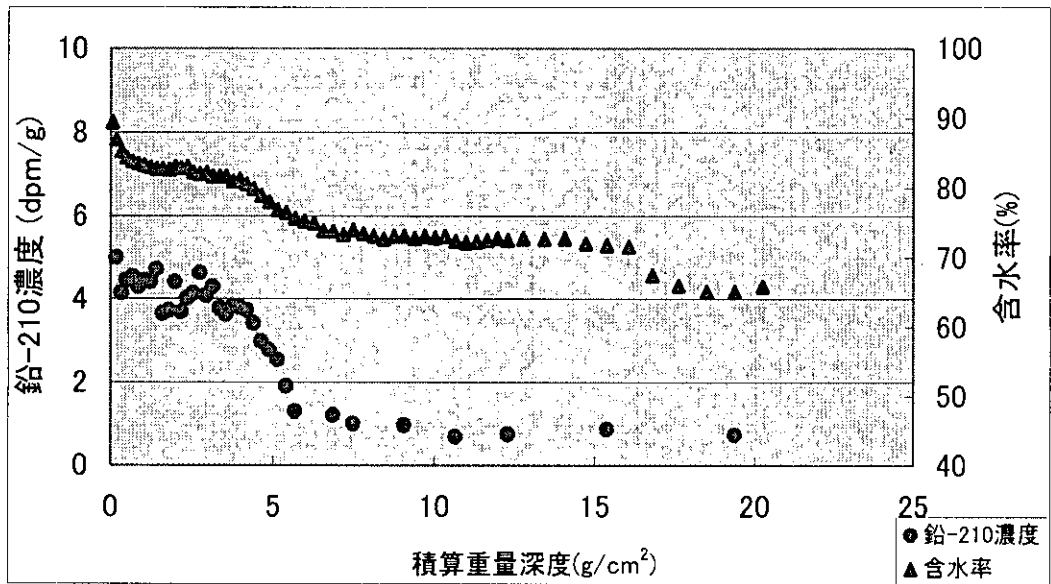


図 5.11 st.3 の積算重量深度に対する鉛-210 濃度と含水率の結果

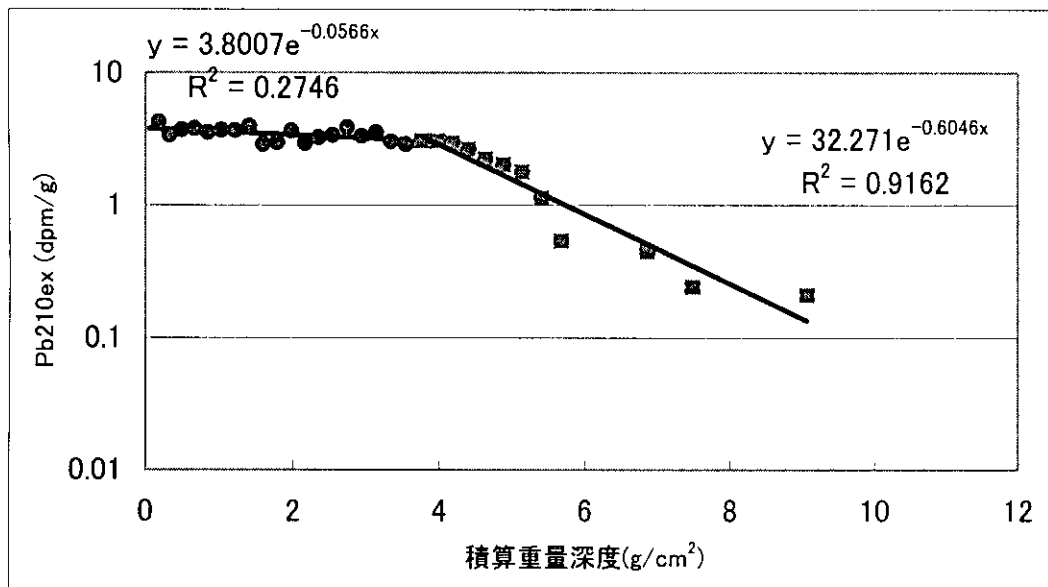


図 5.12 st.3 の積算重量深度に対する Pb210ex の結果

図 5.12 で得られた直線式① $y=3.8007e^{-0.0566x}$ ② $y=32.271e^{-0.6046x}$ を前項の方法に従い平均重量堆積速度($g/cm^2/年$)を求めた結果、① $0.55g/cm^2/年$ 、② $0.052g/cm^2/年$ と推定できた。

また、表層 0-2cm の条件での平均堆積速度($cm/年$)は、 $4.95cm/年$ と推定できた。

各層の積算重量深度(g/cm²)を得られた平均重量堆積速度①0.55g/cm²/年、②0.052g/cm²/年で割ることにより、各層の堆積年数が算出することができる。その結果を表 5.6 に示した。

表 5.6 堆積年数の結果

層	深さ (cm)	積算重量深度 (g/cm ²)	堆積年数 (年)	年代 (年)
0	1	0.5	0.06	2002
1	2	1.5	0.18	2002
2	3	2.5	0.33	2001
3	4	3.5	0.5	2001
4	5	4.5	0.67	2001
5	6	5.5	0.85	2000
6	7	6.5	1.03	2000
7	8	7.5	1.22	2000
8	9	8.5	1.41	1999
9	10	9.5	1.6	1999
10	11	10.5	1.79	1999
11	12	11.5	1.98	1998
12	13	12.5	2.16	1998
13	14	13.5	2.35	1998
14	15	14.5	2.54	1997
15	16	15.5	2.74	1997
16	17	16.5	2.94	1997
17	18	17.5	3.14	1996
18	19	18.5	3.34	1996
19	20	19.5	3.55	1996
20	21	20.5	3.76	1992
21	22	21.5	3.97	1988
22	23	22.5	4.18	1983
23	24	23.5	4.4	1979
24	25	24.5	4.64	1975
25	26	25.5	4.88	1970
26	27	26.5	5.14	1965
27	28	27.5	5.41	1960
28	29	28.5	5.68	1954
29	30	29.5	5.97	1949
30	31	30.5	6.26	1943
31	32	31.5	6.56	1938
32	33	32.5	6.86	1932
33	34	33.5	7.17	1926
34	35	34.5	7.48	1920
35	36	35.5	7.79	1914
36	37	36.5	8.11	1908
37	38	37.5	8.43	1902
38	39	38.5	8.75	-
39	40	39.5	9.07	-

5.3 年代測定（セシウム-137 法）

前項で得られた結果の信頼性を高めるため、セシウム-137（放出率 84%、662keV）の測定を行った。

5.3.1 概論

セシウム-137 は、大気圏水爆実験により地球上に放出された放射性物質である。1945 年広島・長崎の原子爆弾や 1954 年のビキニ環礁の水爆実験に始まり、1963 年の米英ソ 3 国の部分的核実験停止条約成立まで大気圏内の実験が行なわれていたため、1950 年代後半から 1960 年代前半にかけて大量の放射性物質が地表に降下してきたと言われている。

また、近年では 1986 年にチェルノブイリ原子力発電所の事故により放出されたことも知られている。このため、 γ 線測定装置を用いて各層の堆積物（セシウム-137：放出率 84%、662keV）を測定することにより、セシウム-137 の検出され始めた 1950 年代前半や、最大のピークが得られる 1950 年代後半から 1960 年代前半の年代、さらにチェルノブイリ原子力発電所の事故により放出された 1986 年の推定が可能であることから、各層のセシウム-137 を測定し、鉛-210 を用いた堆積年代測定の結果を検証した。

5.3.2 測定結果

測定結果と推定した年代を表 5.7、図 5.13 に示す。

セシウムが検出され始めたのが、30-31 層で、鉛-210 法では 1943 年と計算された層である。だいたい、核実験等によるセシウムの放出が行われ始めた時期と重なっているため、この時期の 2 法の年代測定結果はほぼ合致している。

また、最初のピークは、25-26 層で、鉛 210 法では 1970 年と計算された層である。普通、ピークは、1950 年代後半から 1960 年代前半に水爆実験が行われていた時期に見られることが多いため、若干、2 法には誤差が生じている。

1986 年のチェルノブイリ原子力発電所の事故によるセシウム-137 のピークは、今回確認することが出来なかった。これは、多々良沼の表面に近い部分では、かなり攪乱（混合）がされているためであると考えられる。

1960～70 年代付近において、2 法で誤差が生じていたものの、その差は小さいと考えられるため、多々良沼の鉛-210 法の年代測定は、妥当な結果であったと評価した。

表 5.7 各層のセシウム-137 の測定結果

層	深さ (cm)	Cs-137 (Bq/kg)		Cs-137からの年代推定	鉛-210法から求めた年代 (年)
0-1	0.5	18.17	± 2.11		2002
4-5	4.5	30.70	± 2.09	1986年に起こったチェルノブイリ原子力発電所の事故による顕著なピークは見られなかった。	2001
9-10	9.5	29.41	± 2.01		1999
19-20	19.5	28.88	± 2.05		1996
21-22	21.5	30.30	± 2.10		1988
22-23	22.5	31.67	± 2.08		1983
23-24	23.5	25.81	± 1.96		1979
24-25	24.5	21.33	± 1.81	1950年代後半から1960年代前半の水爆実験によるピーク	1975
25-26	25.5	31.76	± 2.39		1970
26-27	26.5	19.77	± 1.81		1965
27-28	27.5	14.26	± 1.66	セシウム-137が大気中に放出され始めた1940年代後半から1950年代前半と推定	1960
29-30	29.5	5.41	± 1.37		1949
30-31	30.5	3.69	± 1.39		1943
31-32	31.5	N.D.	± N.D.		1938
39-40	39.5	N.D.	± N.D.		-

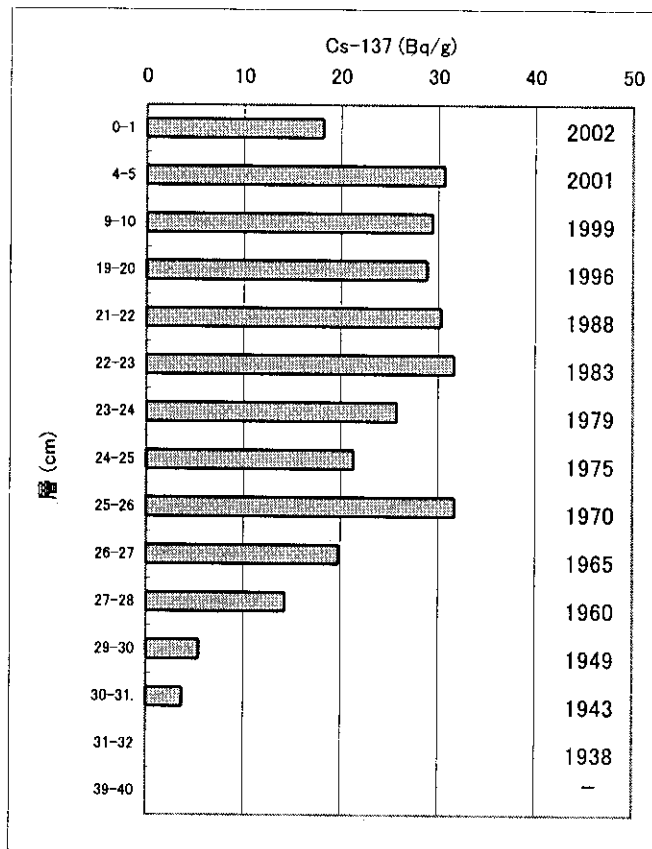


図 5.12 各層のセシウム-137 の測定結果

6. ダイオキシン類分析

前項において年代が特定された堆積層についてダイオキシン類分析を行った。

6.1 分析層

表 6.1に示す6層について、堆積物中のダイオキシン類を測定した。年代が古い順に、1949年、1960年、1975年、1988年、1996年、2002年である。

6.2 分析方法

ダイオキシン類の測定は「曝露評価に関する分担研究報告書」を参照のこと。

表 6.1 堆積物中ダイオキシン類の分析層

層	深さ cm	年代 (年)	分析層
0 - 1	0.5	2002	
1 - 2	1.5	2002	●
2 - 3	2.5	2001	
3 - 4	3.5	2001	
4 - 5	4.5	2001	
5 - 6	5.5	2000	
6 - 7	6.5	2000	
7 - 8	7.5	2000	
8 - 9	8.5	1999	
9 - 10	9.5	1999	
10 - 11	10.5	1999	
11 - 12	11.5	1998	
12 - 13	12.5	1998	
13 - 14	13.5	1998	
14 - 15	14.5	1997	
15 - 16	15.5	1997	
16 - 17	16.5	1997	
17 - 18	17.5	1996	
18 - 19	18.5	1996	●
19 - 20	19.5	1996	
20 - 21	20.5	1992	
21 - 22	21.5	1988	●
22 - 23	22.5	1983	
23 - 24	23.5	1979	
24 - 25	24.5	1975	●
25 - 26	25.5	1970	
26 - 27	26.5	1965	
27 - 28	27.5	1960	●
28 - 29	28.5	1954	
29 - 30	29.5	1949	●
30 - 31	30.5	1943	
31 - 32	31.5	1938	
32 - 33	32.5	1932	
33 - 34	33.5	1926	
34 - 35	34.5	1920	
35 - 36	35.5	1914	
36 - 37	36.5	1908	
37 - 38	37.5	1902	
38 - 39	38.5	-	
39 - 40	39.5	-	

6.3 ダイオキシン類測定結果

6.3.1 濃度

表 6.7、図 6.2に測定結果を示す。

もっとも下層である 29-30cm 層（1948 年）で 4.3pg-TEQ/g、27-28cm 層（1960 年）で 15pg-TEQ/g、24-25cm（1975 年）で 34pg-TEQ/g と濃度が上昇し、その後、3 層については、40pg-TEQ/g 程度で濃度はそれほど変わらなかった。

表 6.7 堆積物中ダイオキシン類測定結果

測定深 (cm)	堆積 年代	PCDDs+PCDFs		Co-PCBs		PCDDs+PCDFs+
		実測濃度 (pg-TEQ/g)	毒性等量 (pg/g)	実測濃度 (pg-TEQ/g)	毒性等量 (pg/g)	Co-PCBs
						毒性等量 (pg-TEQ/g)
1-2	2002	21000	43	1200	1.8	45
18-19	1996	17000	38	1100	1.7	40
21-22	1988	18000	41	1200	1.8	43
24-25	1975	13000	33	920	1.5	34
27-28	1960	5700	15	400	0.66	15
29-30	1949	1600	4.2	110	0.17	4.3

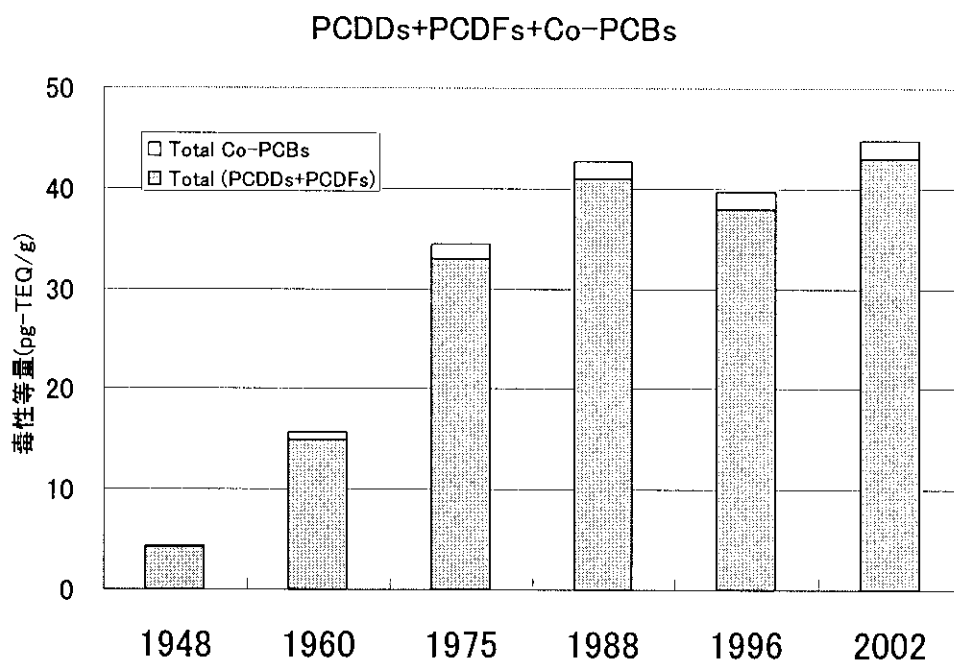


図 6.2 底質中ダイオキシン類結果 (PCDDs+PCDFs+Co-PCBs)

6.3.2 同族体分布

図 6.3に6層のダイオキシン類の同族体分布を示す。各層の分布に、大きな違いは認められず、ほぼ同じパターンであった。また、同族体分布の割合を図 6.4に示す。割合はほとんど変わらなかった。

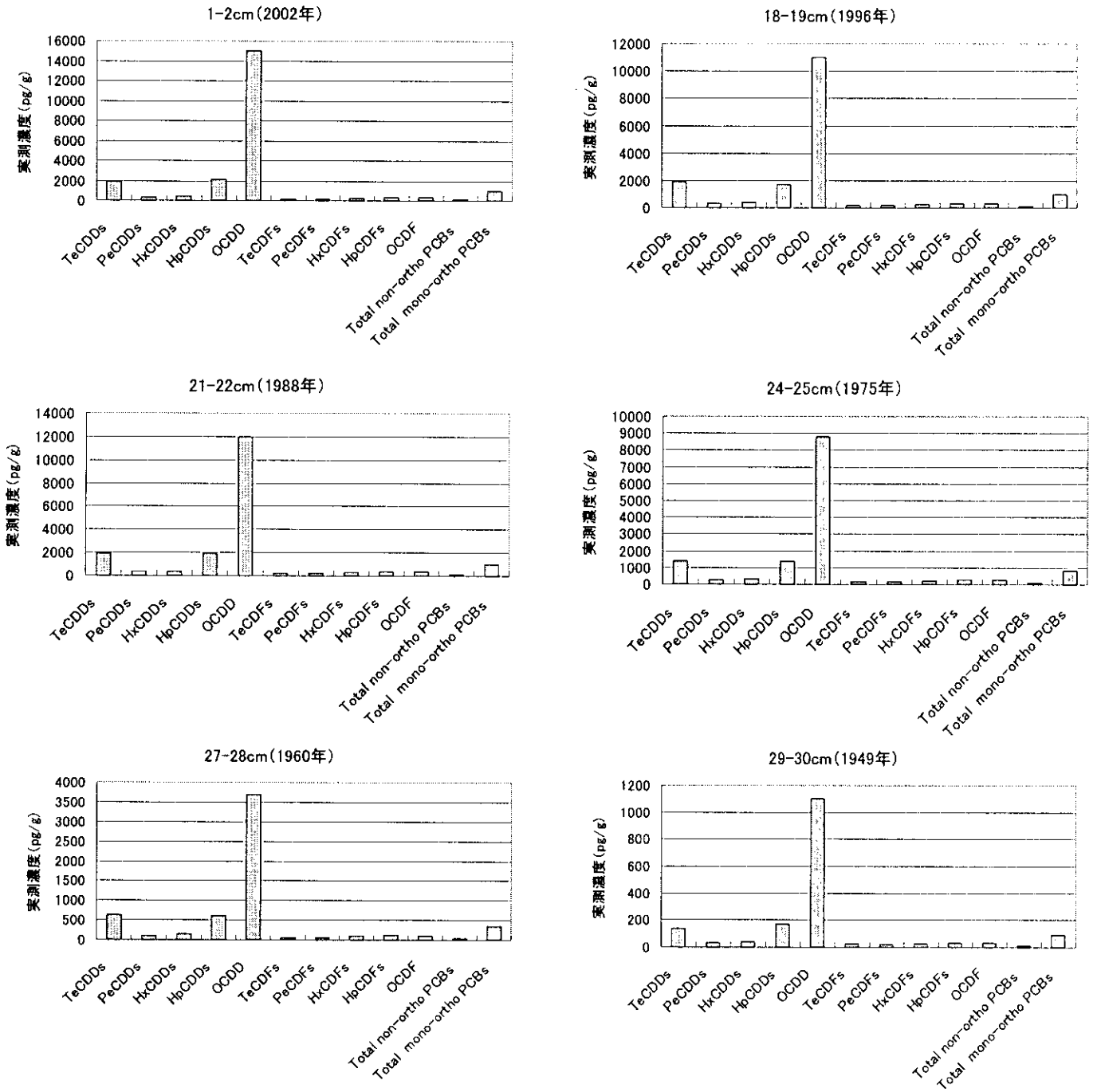


図 6.3 同族体分布

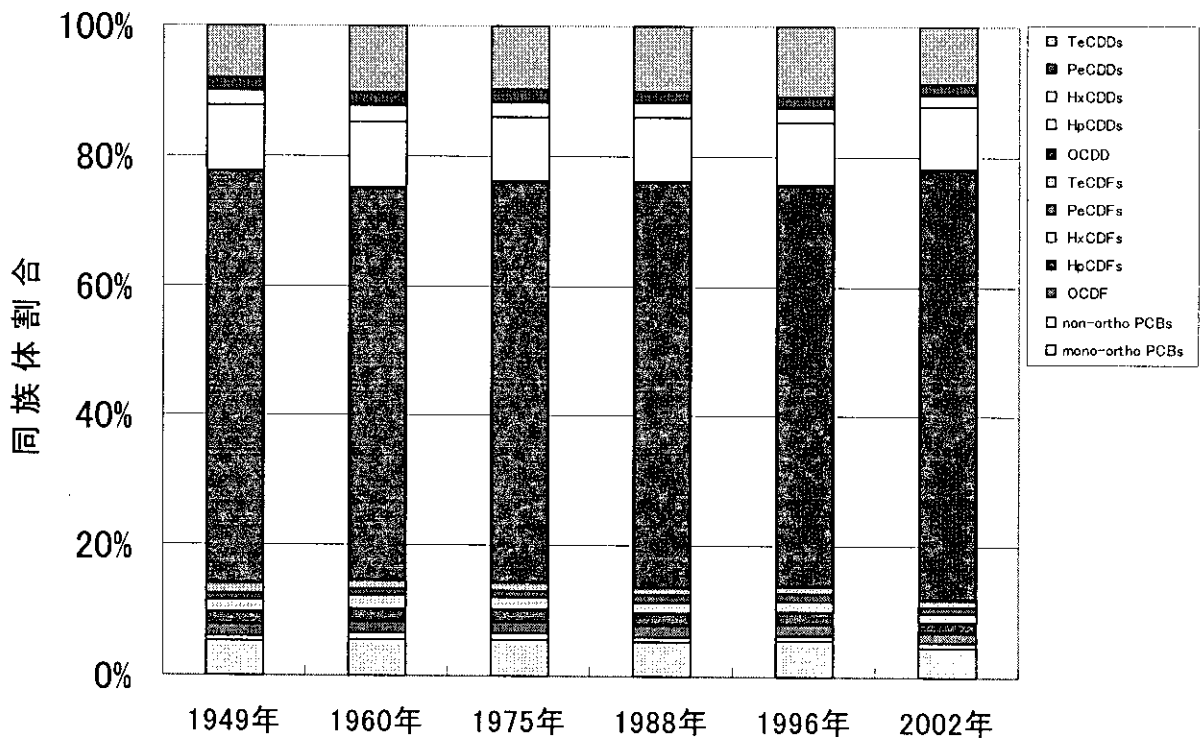


図 6.4 同族体割合の比較

6.3.3 異性体分布

図 6.5～図 6.7に各層の異性体（実測濃度）の割合を示す。同族体同様、異性体についても、各層の割合はほとんど変わらなかった。

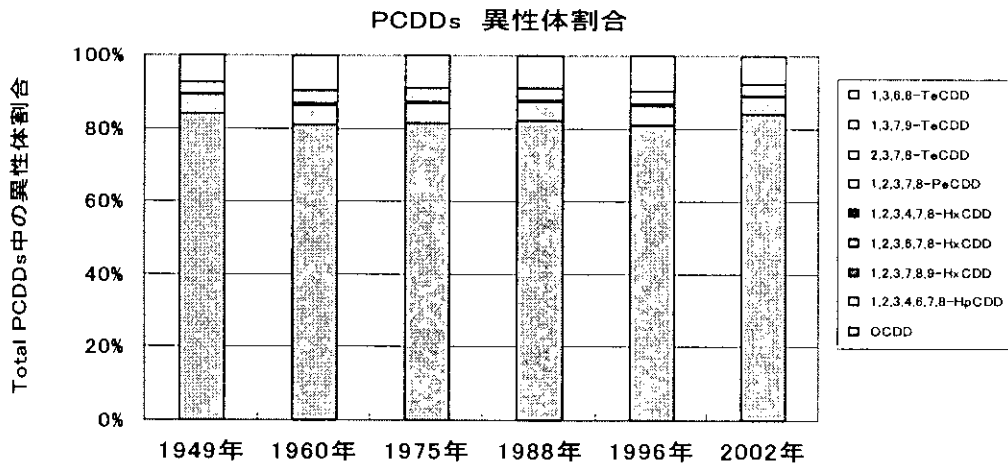


図 6.5 PCDDs 中の異性体割合の比較

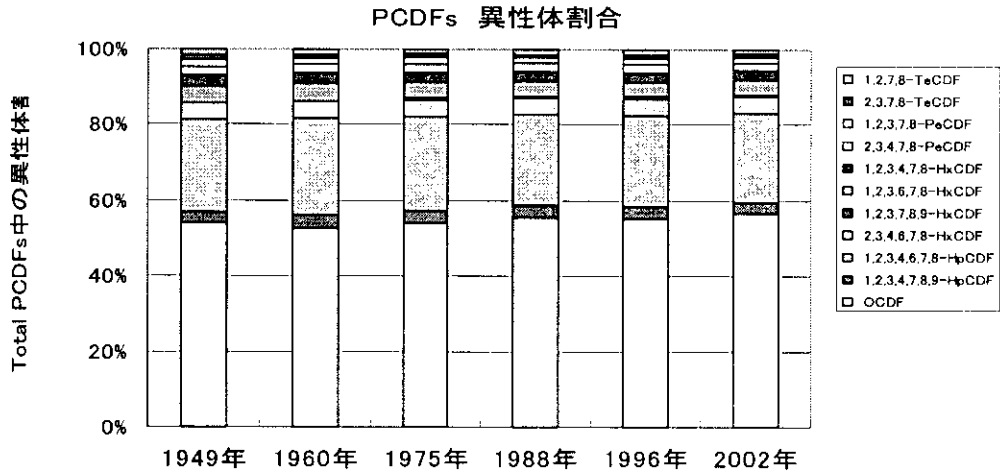


図 6.6 PCDFs 中の異性体割合の比較

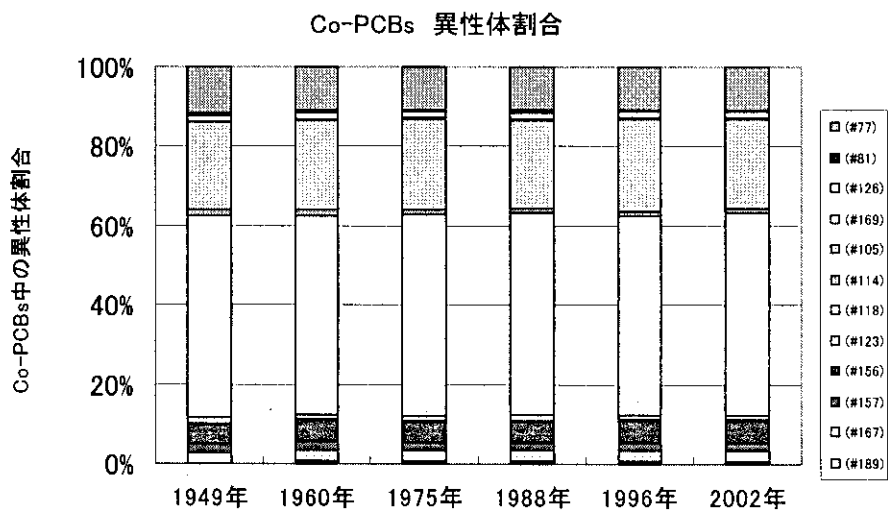


図 6.7 Co-PCBs 中の異性体割合の比較

D. 考察

1. 濃度の変化について

我が国における環境中ダイオキシン類の発生源として、①ごみ焼却、②農薬（ペンタクロロフェノール：PCP、クロロニトロフェン：CNP）、③PCBの三つが大きな割合を占めていたとされている。これらの発生源に対する生産・規制状況を表6.8に示す。環境中へのダイオキシン類排出は、これら発生源の状況を反映し、1970年～80年頃がピークであったがその後減少し、ダイオキシン類特別措置法に係る90年代後半のごみ焼却の排出規制によりかなり減少したと考えられる。

表 6.8 ダイオキシン類発生源の生産・規制状況

分類		用途	生産・規制状況
ごみ焼却 (処理能力)		—	1997年 80ng-TEQ/m ³ の排出規制 (既存施設) 2002年 1ng-TEQ/m ³ の排出規制 (既存施設) (新規施設は0.1ng-TEQ/m ³)
農薬	PCP	除草剤、殺菌剤、 木材防腐剤、防 カビ剤	1955年 農薬登録 (殺菌剤) 1957年 農薬登録 (除草剤) 1970年代前半 水田への使用が急減 1990年 農薬登録失効
	CNP	除草剤	1965年 農薬登録 (除草剤) 1994年 生産中止 1996年 農薬登録失効
PCB		絶縁体	1954年 日本での生産開始 1972年 生産中止

環境庁が、平成10年度に東京湾、霞ヶ浦、水島沖、榛名湖等で行った、堆積物の年代測定とダイオキシン類の分析結果¹⁾を図6.8に示す。それぞれの地点によって濃度の違いや、濃度変化にばらつきがあるものの、おおよそ傾向は同じであると言える。傾向としては、20世紀前半には低レベルではあるものの既に検出されており、その後上昇して、1980年代にピークを迎え（霞ヶ浦のみ1960年代ピーク）、その後、濃度は横這いか、もしくは下がっている。

本調査では、濃度のピークが、1988年までは上昇を続け、それ以降は横這いであった。環境庁等の調査と比較すると、濃度のピークが見られなかった点が整合していなかった。しかし、環境庁調査に比べ、細かく分析を行っていないため、分析しなかった層でピークが見られた可能性もあり、ほぼ妥当なダイオキシン類濃度の変動を示していると考えられる。

2. 同族体・異性体割合の変化について

前項の表6.8に示す通り、ダイオキシン類の発生源は、生産中止や、規制を受けながら年代によって排出状況が変わっていった。それぞれの発生源は、特徴的な同族体や異性体を持つため（表6.9）、堆積層を分析すると、それぞれの年によって、同族体や異性体分布が変わってくるのが考えられる。

今回の多々良沼における堆積層のダイオキシン類は、すでに示すとおり、ほとんど分布が等しかった。表層を中心に攪乱による混合が起こっていたか、もしくは、各発生源について、顕著な主要因になるようなものがなく、寄与の割合がほぼ等しかったため、それぞれの寄与の変動が、それほど同族体分布や異性体分布に反映されなかったのではないかと推測される。

¹⁾ 「平成10年度ダイオキシン類コアサンプリング調査（年代別ダイオキシン類測定）結果について」 環境庁環境保健部環境リスク評価室 平成12年2月17日

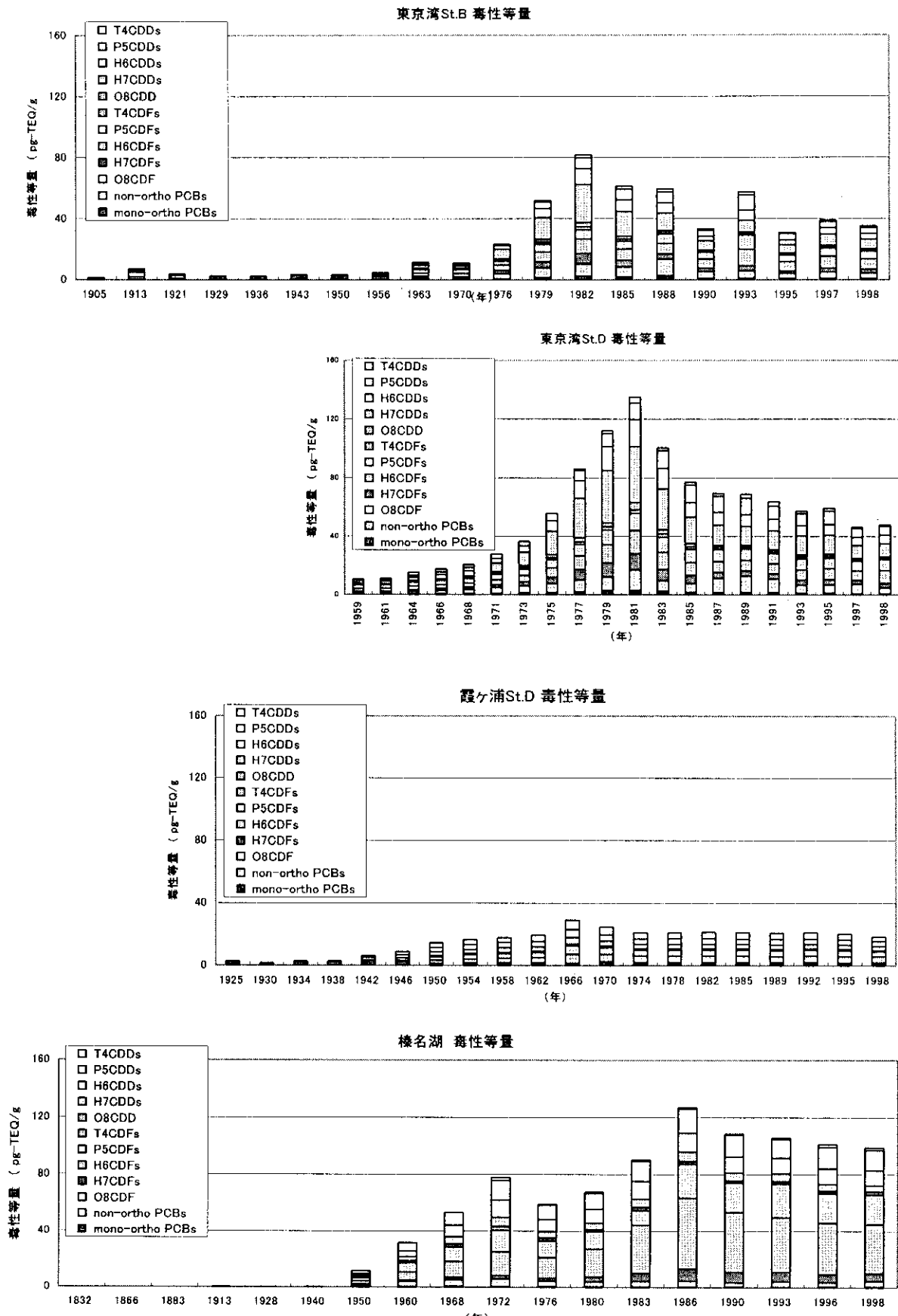


図 6.8 環境庁調査による4地点のダイオキシン類測定結果