生物混合の影響を受けた堆積物中の放射性核種の分布

野 崎 義 行*

Distributions of natural radionuclides in sediments influenced by bioturbation

Yoshiyuki NOZAKI*

Abstract This article describes the distributions of natural radionuclides in marine sediments which are more or less influenced by biological mixing. The relative importance of mixing over sedimentation is weighed by a dimensionless number, $\alpha = (S^2/K\lambda)^{1/2}$: Mixing can be neglected within 10% of importance *only when* α is greater than 1.5. Biological mixing coefficient of sediment particle, K , ranges from 10^{-6} cm²/sec in near-shore sediment to 10^{-9} cm²/sec in deep-sea sediment. Some of the 'old' radiocarbon dates and, to a lesser extent, anomalously high $^{230}\text{Th}/^{231}\text{Pa}$ ratios in the surface layer of deep-sea sediments may be explained by sediment mixing due to benthic organisms. Influence of bioturbation on the early diagenetic process is also briefly discussed.

緒 論

底棲生物の活動によって堆積物の表層が乱されると、種々の溶存化学成分の海水・堆積物間の移動量は、単純な拡散だけによるよりも大きくなることが予想される。また、古い時代の環境や最近の人類活動の影響を、堆積物層序の記録から読みとることも難しくなる。

近年、新しい採泥器の開発や深海カメラ技術の発展にともなって、底棲生物の活動がかなり広範囲に及ぶことが明らかになってきた。PENBERTON *et al.* (1976) によれば、生物による物質移動の跡は、堆積物表面から 2m 以上にも及ぶところがあるという。ALLER & COCHRAN (1976) は、 ^{234}Th を用いて Long Island Sound の堆積物の生物攪乱の季節変化を研究した。また、NOZAKI *et al.* (1977) は、潜水艇 "Alvin" 号によって深海底より採取したコアにも、生物混合の影響が及んでいることを明らかにした。また、ALLER (1977 MS) は、生物によって引き起こされる初期続成過程の化学的な変化について、すぐれた研究をまとめている。

ここでは、半減期の異なる放射性核種の分布にもとづいて、生物による堆積物の攪乱・混合過程の重要性を考察する。

堆積過程の研究に用いられる核種

堆積物の年代決定や生物混合過程の研究に用いることのできる天然放射性核種には、a) ウラン・トリウム系列核種 (第 1 図) と、b) 宇宙線生成核種 (第 1 表) とがある。その他、人工放射性核種も用いられ始めているが、一般的ではないのでここでは取り扱わないことにする。通常、放射壊変や成長から求められる時間の範囲は、取り扱った核種の半減期の 4 分の 1 から 4 倍程度である。

ウラン・トリウム系列核種の場合には、堆積する際に親核種からの分離が起こり、放射平衡にない部分についてのみ応用可能である。また、堆積後の続成作用によって、化学的な変化を受けないことが必要条件である。

生物混合**と堆積の相対的重要性

生物活動による堆積物の混合過程は複雑であるが、時空的におよそ無秩序な堆積物粒子の動きと考えられる場合が多い (GUINASSO & SCHINK, 1975; DOMENICO, 1977 その他)。GOLDBERG & KOIDE (1962) は、そのような場合を拡散と類似に扱って放射性核種の分布を次の式で表わしている。

$$\frac{\partial N}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left(K \frac{\partial N}{\partial x} \right) - S \frac{\partial N}{\partial x} + P - \lambda N = 0 \quad (1)$$

1977 年 5 月 16 日受理

* エール大学地質学地球物理学部。Department of Geology & Geophysics, Yale University, New Haven, Connecticut 06520, USA.

** 堆積物の混合は、必ずしも生物のみによるとは限らないが、便宜上ここでは生物混合 (bioturbation) と呼ぶことにする。

Z	ELEMENT	U-238 SERIES						U-235 SERIES						Th-232 SERIES					
92	U	U-238 4.49×10 ⁹ y		U-234 2.48×10 ⁵ y				U-235 7.13×10 ⁸ y											
91	Pa		Pa-234 1.18 m					Pa-231 3.43×10 ⁴ y											
90	Th	Th-234 24.1 d		Th-230 7.52×10 ⁴ y				Th-231 25.6 h		Th-227 18.6 d			Th-232 1.39×10 ¹⁰ y		Th-228 1.90 y				
89	Ac							Ac-227 22.0 y						Ac-228 6.13 h					
88	Ra			Ra-226 1622 y				Ra-223 11.1 d					Ra-228 5.7 y		Ra-224 3.64 d				
87	Fr																		
86	Rn			Rn-222 3.83 d				Rn-219 3.92 s							Rn-220 55.6 s				
85	At																		
84	Po			Po-218 3.05 m	Po-214 1.6×10 ⁻⁴ s	Po-210 138 d		Po-215 1.8×10 ⁻³ s							Po-216 0.15 s		Po-212 3.0×10 ⁻⁷ s		
83	Bi			Bi-214 19.9 m		Bi-210 5.0 d		Bi-211 2.16 m									Bi-212 60.5 m		
82	Pb			Pb-214 26.8 m	Pb-210 22.2 y	Pb-206 STABLE		Pb-211 36.1 m		Pb-207 STABLE					Pb-212 10.6 h		Pb-208 STABLE		
81	Tl							Tl-207 4.79 m									Tl-208 3.1 m		

Fig. 1. The three natural U-Th series of radioactive nuclides.

Table 1. Cosmic ray produced radionuclides (half-life > 1 day).

Isotope	Mode of decay	Half-life
Be-10	β^-	1.5×10^6 y
Al-26	β^+	7.4×10^5 y
Cl-36	β^-	3.1×10^5 y
Kr-81	E.C.	2.1×10^5 y
C-14	β^-	5730 y
Si-32	β^-	300 y
Ar-39	β^-	270 y
H-3	β^-	12.3 y
Na-22	β^-, γ	2.6 y
S-35	β^-	87 d
Be-7	γ	53 d
Ar-37	E.C.	35 d
P-33	β^-	25 d
P-32	β^-	14.3 d

ここで、Kは生物による堆積物の混合係数 (cm²/sec), Sは堆積速度 (cm/sec), Nは堆積物中の核種の濃度

(atom/cm³), Pは親核種からの生成率 (atom/cm³/sec), λ はその核種の壊変定数 (sec⁻¹), x は海水と堆積物との境界面から下向きの深さ (cm), また t は時間 (sec)である。(1)式では、濃度を堆積物の単位体積当たりで表わしてあるので、空間率の変化にともなった粒子の混合のされやすさの変化は、Kの中に含まれている。宇宙線生成核種の場合は、Pを(1)式から省くことができる。ウラン・トリウム系列核種の場合の多くは、Pは深さによらないので、ここでは一定と仮定する。Kは、実際には深さに依存していると思われ、そのような場合のモデルは後で述べることにする。ここでは、混合と堆積が放射性核種の分布に与える影響を評価するために、便宜上Kを一定と仮定する。

堆積物表面での濃度を N_0 , および十分に深いところで親核種と等しい濃度 ($N=P/\lambda$) となることを境界条件として(1)式を解けば,

$$\left(N - \frac{P}{\lambda}\right) = \left(N_0 - \frac{P}{\lambda}\right) \exp(x/x_{ms}^*);$$

$$x_{ms}^* = \frac{2K}{S - \sqrt{S^2 + 4K\lambda}} \quad (2)$$

を得る。ここで、 x_{ms}^* は長さの次元をもつ分布を決定する係数 (characteristic depth) である。今、 $(\lambda N - P)$ を親核種よりも過剰の放射能 A (dpm/cm³) で表わし、表面のそれを A_0 とすれば、(2)式は次のように書き換えられる。

$$A = A_0 \exp(x/x_{ms}^*) \quad (3)$$

従来より広く用いられてきた放射性核種の分布から堆積速度を求める式は、(1) 式における右辺第1項を含んでいない (KU, 1976 その他). その場合の解は次式で表わされる.

$$A = A_0 \exp(x/x_{ms}^*); x_{ms}^* = -\frac{S}{\lambda} \quad (4)$$

また、24 日の半減期をもつ ^{234}Th の分布 (ALLER & COCHRAN, 1976) のように、全て混合で分布が支配されるような場合は、(1) 式において $S \rightarrow 0$ としたときの解、

$$A = A_0 \exp(x/x_{ms}^*); x_{ms}^* = -\sqrt{K/\lambda} \quad (5)$$

で表わされる.

このように放射性核種の濃度が、深さに関して指数関数的に減少していても、(3), (4) あるいは (5) 式の中のどれで表わされるかは判断できない. いいかえれば、堆積速度を求めるには指数関数的減少が必要条件であるが、充分条件ではない.

さて、混合あるいは堆積のどちらかを無視してもよいかどうかを判断するには、(1) 式におけるそれぞれの項の相対的重要性を比較すればよい. 今ここで、(3) 式と

(5) 式の指数係数部分の比を $R_M (=x_{ms}^*/x_{ms}^*)$ とし、(3) 式と (4) 式のそれを $R_S (=x_{ms}^*/x_{ms}^*)$ とすると、それぞれ次式で表わされる.

$$R_M = (\alpha^2 + 1)^{1/2} - \alpha \quad (6)$$

および

$$R_S = 2\alpha R_M \quad (7)$$

ここで、 α は無次元数 $(S^2/4K\lambda)^{1/2}$ である. R_M が 1 のときは、その核種の分布は全て混合で表わされ、堆積による項は無視できる. 逆に、 R_S が 1 のときは、分布は全て堆積によるものと判断される. 従って、 α の大きさによって堆積と混合の相対的重要性が判断できる. (6) 式と (7) 式を α に関して第2図に示した. $\alpha = 0.5$ のとき、 $R_M = R_S$ となって、混合と堆積が、同じ重要性をもつことがわかる.

堆積速度を求める際に生物混合を無視してもよいかどうかの判断として、現実的な測定の不確かさを 10% とすれば、第2図より α は 1.5 よりも大きくなければならない. 各放射性核種について、 $\alpha = 1.5$ の場合の K-S 図を作った (第3図). とり上げた堆積環境の K-S プロットが、問題とする放射性核種の線より上にあれば、生物混合は無視できる. また逆に下にあれば、無視できないことを意味する. 半減期の短い核種ほど混合の影響を受けやすいことも、図から明らかである.

生物混合係数 K の変化を含む放射性核種の分布 についてのモデル

底棲生物の活動は、一般に堆積物表層で著しい. 従って、K を深さの関数とした方がより現実的である. そのいくつかの場合を考えてみよう. ここで、深さ X_M までの生物混合の活発な層とそれ以深の余り活発でない層とに分け、それぞれの層での混合係数を K_U , および K_L とする. 堆積物の混合が起こると起こるまいとにかかわらず、定常状態では存在する核種の総量は変わらない. すなわち、次式が成立する.

$$SA^* = \int_0^{X_M} \lambda A dx + \int_{X_M}^{\infty} \lambda A dx \quad (8)$$

ここで、 A^* は新たに堆積しつつある粒子中の放射能である.

(1) $K_U = K_L = 0$ の場合

核種の分布は、すでに (4) 式で与えられている. (8) 式の条件より、 $A^* = A_0$ である.

(2) $K_U = K_L \neq 0$ の場合

分布は、(3) 式で与えられている. また、

$$\frac{A^*}{A_0} = \frac{1}{2} \left[\left(1 + \frac{1}{\alpha_U^2} \right)^{1/2} + 1 \right] \quad (9)$$

Fig. 2. Plot of R versus $\alpha = (S^2/4K\lambda)^{1/2}$ on the basis of equations (6) and (7).

Fig. 3. K-S diagram for natural radionuclides in sediments. The calculation is made for $\alpha = 1.5$ which is equivalent to 10% contribution of biological mixing on their sediment profiles.

である。ただし、 α_U は上層における α 数である。

(3) $K_U \rightarrow \infty$, および $K_L = 0$ の場合
分布は、

$$\begin{aligned} A &= A_0 \quad (0 \leq x \leq X_M) \\ A &= A'_0 \exp(x/x_s^*) \quad (x \geq X_M) \end{aligned} \quad (10)$$

である。 A'_0 は、下層の分布を $x=0$ まで延長したときの値である。また、

$$\frac{A^*}{A_0} = 1 - X_M/x_s^* = 1 + \frac{\lambda}{S} X_M \quad (11)$$

である。

(4) $K_U \rightarrow \infty$, および $K_L \neq 0$ の場合

分布は、 $A = A_0 \quad (0 \leq x \leq X_M)$

$$A = A'_0 \exp(x/x_{MS,L}^*) \quad (x \geq X_M) \quad (12)$$

である。ただし、 $x_{MS,L}^*$ は、下層での x_{MS}^* である。また、

$$\frac{A^*}{A_0} = \frac{1}{2} \left[\left(1 + \frac{1}{\alpha_L^2} \right)^{1/2} + 1 \right] + \frac{\lambda}{S} X_M \quad (13)$$

である。 α_L は、下層での α 数である。

(5) $0 < K_U \neq \infty$, および $K_L = 0$ の場合

この場合の解は、GOLDBERG & KOIDE (1962) が与えている。境界条件として、深さ X_M での濃度連続のほか、フラックスの連続、すなわち、 $K_U(\partial A/\partial x)_{x=X_M} = 0$ が入るので、上層では指数関数分布にならない。また、 A^* の代わりにフラックス (SA^*) と A_0 の関係が与えられている。

(6) $0 < K_L < K_U \neq \infty$ の場合

(5) の場合の $x \geq X_M$ で、 $A = A'_0 \exp(x/x_{MS,L}^*)$ でおきかえればよい。 A^* についても同様である。この場合も、 X_M 以浅では分布は指数関数とならない。

(7) K が連続的に変化する場合

計算機を用いて数値解を求めるのが簡単であるが、 K が比較的簡単な関数形の場合には、Green 関数や Bessel 関数を用いて解析解を求めることもできる。例えば、 $K = K_0 \exp(-\beta x)$ とし、また半減期の短い核種の場合のように $S \ll 0$ と仮定できる場合、(1) 式を書き直すと

$$K \frac{\partial^2 A}{\partial x^2} + \frac{\partial K}{\partial x} \cdot \frac{\partial A}{\partial x} - \lambda A = 0 \quad (14)$$

を得る。ここで、 P は無視した。

$y = \left(\frac{2}{\beta} \sqrt{\frac{\lambda}{K_0}} \right) \exp\left(-\frac{\beta x}{2}\right)$ とおくと、(14) 式の一般解は次式で表わされる。

$$A = [C_1 I_1(y) + C_2 K_1(y)] \exp\left(-\frac{\beta x}{2}\right) \quad (15)$$

ここで、 I_1 は第 1 種 1 次変形 Bessel 関数であり、 K_1 は第 2 種 1 次変形 Bessel 関数である。また、 C_1 と C_2 は積分定数である。 $x=0$ で $A=A_0$, および $x \rightarrow \infty$ で $A=$

0 とを境界条件とすれば、 $\beta > 0$ のとき、

$$\begin{aligned} A &= A_0 \exp\left(-\frac{\beta x}{2}\right) \left[K_1\left(\frac{2}{\beta} \sqrt{\frac{\lambda}{K_0}}\right) \cdot \right. \\ &\quad \left. \exp\left(-\frac{\beta x}{2}\right) \right] / K_1\left(\frac{2}{\beta} \sqrt{\frac{\lambda}{K_0}}\right) \end{aligned} \quad (16)$$

を得る。

KOIDE *et al.* (1975) によって得られた Soledad Basin における堆積物中の ^{228}Th の分布に合わせて、このモデルを第 4 図に示した。 K を深さによらず一定とした場合に比べて、より浅い方で濃度が高く、より深い方で低いことがわかる。

これまで述べてきたモデルでは、全て堆積速度を一定と仮定している。もし、堆積速度が変化している充分な

Fig. 4. ^{228}Th distribution in Soledad Basin sediment (KOIDE *et al.*, 1975). The curve (A) is calculated by using equation (5) with $K = 0.5 \times 10^{-6} \text{ cm}^2/\text{sec}$ and the curve (B) is calculated by using equation (16) with $K = 1 \times 10^{-6} \exp(-0.2x)$.

Fig. 5. ^{210}Pb distribution (a) and the abundance of pumices ($> 2 \text{ mm}$ in diameter, b) in the Funka Bay sediment.

根拠があれば、これまで仮定した K の変化を堆積速度の変化に帰することは可能である。(1)式からもわかるように、 K と S が未知であるので、分布を見ただけではどのモデルで表わされるかの判断はできない。少なくとも、もう一つの独立した情報が必要である。

時間の指標がわかる場合

コアによっては、古地磁気逆転層、古生物種の層序、あるいはX線シマ層序などの時間の指標を見つけ出すことができる場合がある。このような場合には、堆積速度を独自に求めることができ、放射性核種の分布と対比して生物混合の大きさを見つめることができる。

噴火湾堆積物における1929年北海道駒ヶ岳火山噴出物の出現頻度と ^{210}Pb (半減期 22.3 yr) の分布を対比して第5図*に示した。 ^{210}Pb の分布から、“みかけの堆積速度”として 0.17 cm/yr が得られる。一方、一時に堆積したパミスは、堆積後完全に埋没するまでは生物混合によってより下層へと運ばれるが、ピークの位置は堆積時を示すと考えられる。あまり顕著ではないが、深さ 6.5 cm のピークを1929年の火山噴出時とみなすと、堆積速度は 0.14 cm/yr となる。パミスの全堆積物に占める割合は小さいので、その寄与による堆積速度の変化は小さいと思われる。この値を真の堆積速度として、 ^{210}Pb の分布および(3)式とから $K=1\times 10^{-7}\text{ cm}^2/\text{sec}$ が求められる。ただし、 ^{210}Pb の分布の乱れ等を考慮すれば、この K の値の誤差は大きいと思われる。

一方 CRANK (1975) によれば、一時に供給された物質の混合による広がり、標準偏差にして $\sigma=\sqrt{2Kt}$ で表わされる。 $t=45\text{ yr}$ (噴火時からコア採取時までの時間)、および $\sigma=5\text{ cm}$ としてパミスの分布から求めると、 $K=1\times 10^{-8}\text{ cm}^2/\text{sec}$ となる。この差は、計算の誤差によるのか、あるいはパミスとより細粒の堆積物粒子とでは生物による混合のされ方が異なるためなのかは明らかでない。いずれにしても、噴火湾湾奥のこの採取地点では $K=0.1\sim 1\times 10^{-7}\text{ cm}^2/\text{sec}$ 程度であり、混合がないとして ^{210}Pb の分布から堆積速度を求めても 20%程度速いにすぎない。松本 (1976) は、噴火湾における堆積物の ^{210}Pb の分布から、堆積速度を 0.27 cm/yr と報告している。この差の原因は、まだ明らかでない。

堆積しつつある粒子中の放射性同位体比のわかる場合

$^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比や $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比のように、堆積する際にほ

ぼ一定の比であることがわかっている場合がある。また、現場吊下式トラップによって集めた堆積しつつある粒子の核種の比を実測することも可能である。そのような場合には、先に述べたモデルを導入して堆積によるものと生物混合の影響とに分けて見つめることができる。

Nozaki *et al.* (1977) は、ウズホル海洋研究所の潜水艇“Alvin”号によって、北大西洋深海から採取したコアの ^{14}C (半減期 5,730 年)、およびその他の核種について研究した。第6図に示した ^{14}C 年代の深さに対する分布は、8 cm 以深できわめてよい直線性があり、その傾きから堆積速度 $S=2.9\text{ cm}/10^3\text{ yr}$ が得られる。これは、8 cm 以深の分布が生物混合の影響を受けていないと仮定してのことであるが、図中の $\alpha_L=0.5$ の線からわかるように、もし混合によって影響されているなら ^{14}C 年代は古い方に大きくずれることが予想され、実測値とは合わなくなる。また、 $\alpha=\infty$ の場合の線は、混合の全くないときの分布を示している。かりに、深さ 8 cm までの ^{14}C 年代の変化のないことが、試料採取のときに乱されたためであるとすれば、それ以深では点線と実測値とは一致するはずである。 ^{14}C 年代はいずれも若い方にずれており、一時の攪乱によるものでないことは明らかである。また、表層 8 cm まで ^{226}Ra に対して過剰の ^{210}Pb が存在し、その分布から $K=0.6\times 10^{-8}\text{ cm}^2/\text{sec}$ が得られている (Nozaki *et al.*, 1977)。この K の値は、8 cm まで ^{14}C 年代に変化のないことと合致している。

海洋堆積物表層の ^{14}C 年代が予想より古い年代を示すことはよく知られているが、ここに述べたように、生物混合はそのかなりの部分を説明しうるように思われる (PENG *et al.*, in press)。

Fig. 6. Radiocarbon distribution in submersible-taken deep-sea core from the Mid-Atlantic Ridge (Nozaki *et al.*, 1977).

* 野崎義行・南川雅男・日下部正志・角皆静男：地球化学討論会口頭発表 (1974)。

半減期の異なる2核種を用いる場合

半減期の異なる2核種以上の分布を用いれば、混合と堆積とに分けて解くことが可能である。深海堆積物における ^{230}Th (半減期 75,200 年) と ^{231}Pa (半減期 32,500 年) の組み合わせは有効であろう。Ku *et al.* (1972) は、 ^{14}C の場合と同じように海水中の $^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$ 比から期待される ^{230}Th と ^{231}Pa の生成比は、多くの深海堆積物表層で見られないとし、その原因として、海水から堆積するまでの間に化学的分離が起こっているのではないかと示唆している。従ってここでは、 $^{230}\text{Th}/^{231}\text{Pa}$ 比の異常値が、堆積物の混合過程を考慮すればどの程度説明できるかを考察する。

(9) 式を ^{230}Th と ^{231}Pa にそれぞれ適用して比の形に整理すると、次式が得られる。

$$\left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right)^* = \left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right)_0 \frac{\alpha_{\text{Pa}} + \sqrt{\alpha_{\text{Pa}}^2 + \left(\frac{\lambda_{\text{Th}}}{\lambda_{\text{Pa}}}\right)}}{\alpha_{\text{Pa}} + \sqrt{\alpha_{\text{Pa}}^2 + 1}} \quad (17)$$

ここで、 $(A_{\text{Th}}/A_{\text{Pa}})^*$ および $(A_{\text{Th}}/A_{\text{Pa}})_0$ は、それぞれ堆積しつつある粒子中、および堆積物表面での $^{230}\text{Th}/^{231}\text{Pa}$ 放射能比であり、 α_{Pa} は $(S^2/4K\lambda_{\text{Pa}})^{1/2}$ である。海水中の $^{234}\text{U}/^{235}\text{U}$ 比はほぼ一定であり、その生成比から期待される $(A_{\text{Th}}/A_{\text{Pa}})^*$ は 11 である。

また、(3) 式を同様に組み合わせて、(17) と合わせて整理すると次式を得る。

$$\left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right) = \left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right)^* \left\{ \frac{\alpha_{\text{Pa}} + \sqrt{\alpha_{\text{Pa}}^2 + 1}}{\alpha_{\text{Pa}} + \sqrt{\alpha_{\text{Pa}}^2 + \left(\frac{\lambda_{\text{Th}}}{\lambda_{\text{Pa}}}\right)}} \right\} \times \exp \left[\left\{ \frac{2(\lambda_{\text{Pa}} - \lambda_{\text{Th}})\alpha_{\text{Pa}}}{\sqrt{\alpha_{\text{Pa}}^2 + 1} + \sqrt{\alpha_{\text{Pa}}^2 + \left(\frac{\lambda_{\text{Th}}}{\lambda_{\text{Pa}}}\right)}} \right\} \frac{x}{S} \right] \quad (18)$$

$K=0$ ($\alpha_{\text{Pa}}=\infty$) のとき、(18) 式は、

$$\left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right) = \left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right)^* \exp \left\{ (\lambda_{\text{Pa}} - \lambda_{\text{Th}}) \frac{x}{S} \right\} \quad (19)$$

となる。また、 $K \rightarrow \infty$ ($\alpha_{\text{Pa}} \rightarrow 0$) のときには、(18) 式は、

$$\left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right) = \sqrt{\frac{\lambda_{\text{Pa}}}{\lambda_{\text{Th}}}} \left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right)^* \quad (20)$$

に近づく。

一方、(11) 式を ^{230}Th と ^{231}Pa について同様に組み合わせると、

$$\left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right)_0 = \left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right)^* \left(\frac{1 + \lambda_{\text{Pa}} X_{\text{M}}/S}{1 + \lambda_{\text{Th}} X_{\text{M}}/S} \right) \quad (21)$$

を得る。 $X_{\text{M}} \rightarrow \infty$ のとき、(21) 式は、

$$\left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right)_0 = \left(\frac{\lambda_{\text{Pa}}}{\lambda_{\text{Th}}}\right) \left(\frac{A_{\text{Th}}}{A_{\text{Pa}}}\right)^* \quad (22)$$

に近づく。

第7図に、(19)、(20)、(21) および (22) 式の計算結果を図示した。実線に囲まれた範囲は、 $^{230}\text{Th}/^{231}\text{Pa}$ 比の混合によって説明可能な領域である。Ku *et al.* (1972) の実測値を発表されている堆積速度にもとづいて、図にプロットしてある。多くは、実線の内側にあるが、混合によって説明できない $^{230}\text{Th}/^{231}\text{Pa}$ の異常値が、かなりの割合で出現することは、注目に値する。TUREKIAN & CHAN (1971) は、堆積物中での鉄-マンガン相に入る際に、 ^{230}Th と ^{231}Pa の分離が起こることを重要視している。また、プロットはしていないが、SAKANOUÉ *et al.* (1973) の太平洋コアの測定値は、いずれも説明可能な領域に入っている。さらに詳細な検討を加えるには、今後の研究に待たねばならない。

間隙水化学や初期続成過程との関連

生物による混合は当然間隙水にも及ぶので、その影響を考慮しなければならない。続成過程の1次元モデルは、次式で表わされる。

$$D \frac{\partial^2 C}{\partial x^2} - S \frac{\partial C}{\partial x} + R = 0 \quad (23)$$

ここで、 C は間隙水中の成分の濃度であり、 R は生成・分解あるいはその他の化学的変化の総和であり、 D は間隙水中の成分の拡散係数である。BERNER (1975) が指摘したように、研究者間で拡散係数の取り扱いに著しい混乱がみられる。改めて整理すると次のようになる。

Fig. 7. $^{230}\text{Th}/^{231}\text{Pa}$ distribution in the Mid-Atlantic Ridge sediments reported by Ku *et al.* (1972). The curves are: (a) equation (19), (b) equation (20), (c) equation (21) and (d) equation (22) in the text.

D_m : 溶液中のイオンの拡散係数

D_s : 堆積物間隙水中のイオンの拡散係数で, tortuosity (θ) について補正したもの. すなわち, $D_s = D_m/\theta^2$

D'_s : D_s をさらに空間率 (ϕ) について補正したもの. すなわち, $D'_s = \phi D_m/\theta^2$

D_a : 吸着平衡にあるイオンのみかけの拡散係数. k を吸着平衡定数とすれば, $D_a = D_s/(1+k)$

生物混合による間隙水の混合は, 堆積物粒子のそれよりもはるかに大きいであろう. 吸着を考えに入れないときの生物の効果を入れた間隙水のみかけの拡散係数を D_b とすれば, 吸着平衡にある場合の D'_b は,

$$D'_b = \frac{D_b + kK}{1+k}$$

で表わされる. このように, 続成過程のモデルにおいて生物混合の無視される場合は, D_s , D'_s あるいは D_a が D_b にほぼ等しく, かつ kK よりもきわめて大きい場合に限られる.

その他, 堆積物における深さの軸を時間軸とみなして有機物の分解やその他の化学反応の速度定数を求める場合にも, 生物混合が問題となってくる. この場合, 混合の影響は求めようとする化学反応の速さにも依存する. 従って, 問題とする反応の速度定数よりも小さな壊変定数をもつ, すなわち長寿命核種の分布に混合の影響がみられなくても, 混合を無視できない場合がある. 求めようとする反応に比べてより速い壊変をする短寿命核種で検討する必要がある.

結 論

これまでの要点をまとめると, 次のようになる.

(1) 1 放射性核種の深さに対する指数関数的分布から求められた堆積速度は, 無批判に受け入れることはできない. 半減期の短い核種を用いる場合はとくに注意を要する.

(2) 表層堆積物の生物混合係数 K は, 沿岸域の 10^{-6} cm^2/sec から深海の 10^{-9} cm^2/sec の範囲にわたる.

(3) 深海堆積物表層で得られる異常な ^{14}C 年代や, $^{230}\text{Th}/^{231}\text{Pa}$ 比には, 堆積物の混合過程で説明可能なものがある.

(4) 間隙水化学や初期続成過程の研究には生物混合を考慮する必要がある.

謝辞 この稿を書くにあたって, Yale 大学の TUREKIAN 教授, KRISHNASWAMI 博士その他の同僚および大学院諸氏に論議していただいた. 感謝の意を表したい.

文 献

- ALLER, R. C., 1977 MS: *The influence of macrobenthos on chemical diagenesis of marine sediments*. 600 p. Ph.D. thesis, Yale University, New Haven, Connecticut.
- and COCHRAN, J. K., 1976: $^{234}\text{Th}/^{238}\text{U}$ disequilibrium in near-shore sediment: particle reworking and diagenetic time scales. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **29**, 37—50.
- BERNER, R. A., 1975: Diagenetic models of dissolved species in the interstitial waters of compacting sediments. *Amer. Jour. Sci.*, **275**, 88—96.
- CRANK, J., 1975: *Mathematics of diffusion*. 414 p. Oxford University Press, London.
- DOMENICO, A., 1977: Transport phenomena in chemical rate process in sediments. In DONATH ed.: *Annual Review of Earth and Planetary Sciences*, **5**, 287—317. Annual Reviews Inc., Palo Alto, California.
- GOLDBERG, E. D. and KOIDE, M., 1962: Geochronological studies of deep-sea sediments by thorium-ionium method. *Geoch. Cosmoch. Acta*, **26**, 417—450.
- GUINASSO, N. L., Jr. and SCHINK, D. R., 1975: Quantitative estimates of biological mixing rates in abyssal sediments. *Jour. Geoph. Res.*, **80**, 3032—3043.
- KOIDE, M., GRIFFIN, J. J. and GOLDBERG, E. D., 1975: Records of plutonium fallout in marine and terrestrial samples. *Ibid.*, **80**, 4153—4162.
- KU, T. L., 1976: The uranium-series methods of age determination. In DONATH ed.: *Annual Reviews of Earth and Planetary Sciences*, **4**, 347—379. Annual Reviews Inc., Palo Alto, California.
- , BISHOFF, J. L. and BOERSMA, A., 1972: Age studies of Mid-Atlantic Ridge sediments near 42°N and 20°N. *Deep-Sea Res.*, **19**, 233—247.
- 松本英二, 1976: 堆積物中の有機物の初期続成作用に関する kinetic model. *地球化学*, **10**, 23—26.
- NOZAKI, Y., COCHRAN, J. K., TUREKIAN, K. K. and KELLER, G., 1977: Radiocarbon and ^{210}Pb distributions in submersible-taken deep-sea cores from Project FAMOUS. *Earth Planet. Sci. Lett.*, **34**, 167—173.
- PEMBERTON, G. S., RISK, M. J. and BACKLEY, D. E., 1976: Supershrimp: Deep bioturbation in the Strait of Canso, Nova Scotia. *Science*, **192**, 790—791.
- PENG, T. H., BROECKER, W. S., KIPPURUT, G. and SHACKLETON, N., in press: Benthic mixing in deep-sea cores as determined by ^{14}C dating and its implications regarding climate stratigraphy and the fate of fossil fuel CO_2 . In ANDERSON & MALAHOFF eds.: *Fate of fossil fuel CO_2 in the ocean*, Mar. Sci. Ser., **6**. Plenum Press, New York.
- SAKANOE, M., NOMURA, T., IMAI, T. and UZUYAMA, H., 1973: Radiochemical studies on ^{228}Ra in sea water and ^{231}Pa in sea sediments. In: *Hydrogeochemistry*, **1**, 293—308. The Clarke Co., Washington D. C.

- TUREKIAN, K. K. and CHAN, L. H., 1971: The marine geochemistry of the uranium isotopes, ^{230}Th and ^{231}Pa . In BRYNFELT & STEINNES eds.: *Activation analysis in geochemistry and cosmochemistry*, 311—320. Universitetsforlaget, Oslo-Bergen-Trömsö.
-