ベリリウム同位体を用いる堆積学的研究

金井 豊^{1*}

Sedimentological studies using beryllium isotopes

Yutaka Kanai^{1*}

Sedimentological and geochemical studies using radioactive beryllium isotopes in the environment are reviewed. Their measurement methods are also explained. These nuclides have some characteristics such as their production in the atmosphere of the earth and continuous fall-down on the earth surface, usefulness as tracers owing to high affinity on the grain, radioactive clock of chronology for their own half-lives. Therefore, they have many extensive application studies; for example, the dating of surface/bottom sediments, continental/soil erosion, behaviors of sediments in the river/estuarine.

Key words: Beryllium, ^7Be , ^{10}Be , geochemistry, review, sedimentology

はじめに

ベリリウム (Be) という元素は、一般には馴染みが少ないかもしれないが、宝石のエメラルド、緑柱石の主要構成元素といわれれば理解しやすいだろう。ベリリウムは、原子番号が4であり、自然界では陽子4個と中性子5個の質量数9の核種 ^9Be のみが安定同位体として存在している。一方、放射性同位体としては質量数が7と10の核種が存在している。 ^7Be および ^{10}Be は、地球の大気上空に存在する酸素 (O) および窒素 (N) が、宇宙線による核破砕反応を受けることによって ^3H や ^{14}C とともに生成しており、その生成速度は太陽活動と関係しているといわれている。一部の ^{10}Be は地表面の固体中でも生成される (次章を参照)。 ^7Be は半減期53.3日で電子捕獲壊変 (EC) をし、もう一方の ^{10}Be は半減期151万年 (139万年? : 後述参照) で

β^- 壊変をするというように、それぞれの壊変様式と半減期は大きく異なっている。

これらのBe核種は、同位体としての共通性や、逆に放射性核種としての特質の相違をうまく利用すると、堆積学的事象の解明に有用な役割を果たすと考えており、著者らは放射性同位体の一つ ^7Be を用いて堆積環境変化を解明する研究を行っている (金井ほか, 2013)。これらの基本となっていることは、その生成が地球大気中で定常的に地表面に降下していること、土壌粒子等に対する親和性が高くそのトレーサーとして有用であること、放射性核種では「半減期」という時計を有していること、などである。このため、長短の半減期を有するBeの同位体を用いる応用研究は多岐にわたり、様々な分野で広がりつつある。

本論文では、堆積学・堆積地球化学の分野におけるBeの同位体に関する応用研究をいくつか紹介したいと考えている。読者の研究分野も様々で、研究対象となる事象のタイムスパンも幅広いが、関連する研究の今後の参考となれば幸いである。

ベリリウム-10

^{10}Be はその151万年 (139万年? : 後述参照) という比

受付: 2014年1月30日 受理: 2014年6月9日

¹ 産業技術総合研究所 地質調査総合センター

〒305-8567 茨城県つくば市東1-1-1

Geological Survey of Japan, National Institute of Advanced Industrial Science and Technology (AIST), 1-1-1, Tsukuba, Ibaraki 305-8567, Japan

* Corresponding author: y.kanai@aist.go.jp

較的長い半減期のために、長期にわたる地質事象のトレーサーとして利用されている。即ち、長い年代の時計としてゆっくりとした堆積速度や成長速度の研究、古い堆積プロセスの研究に利用できる。

地球表面に降下した大部分が大洋底に降り注ぐので、堆積速度が一定で二次的移動がないという仮定をおけば、核種の減衰変化と時間との関係から約 1000 万年までの堆積年代を算出できる（堀部純男編, 1975）。また、海洋底で成長したマンガンノジュールに対しても、ウラン系列核種を用いる $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 法や $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 法と同様に、 ^{10}Be を利用して成長速度が算出されている（Somayajulu, 1967）。

自生堆積物中の ^{10}Be を用いた年代測定では、 ^{10}Be は壊変して ^{10}B となるが天然に元々存在している ^{10}B と区別できないため、U-Th 法、Rb-Sr 法、K-Ar 法のような親-娘核種の減衰-成長関係を利用できない。そこで、 ^{14}C 年代と同様な考えで、1 試料の $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比を用いる。このような研究目的では海底堆積物中の自生相を分別溶解法で抽出し、その中の $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比を測定することで、壊変定数 λ を用いた次式（eq.(1)）により、一試料点の分析値から年代測定がなされる。

$$^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = (^{10}\text{Be}/^9\text{Be})_0 \cdot \exp(-\lambda_{10} \cdot t) \quad \text{-----eq.(1)}$$

後で述べるように $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比は陸の影響を受けるので、初生 $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比 ($(^{10}\text{Be}/^9\text{Be})_0$) は場所によって異なるため、その地域での現世試料の値を代用しなければならない（Bourles et al., 1989; Lebatard et al., 2008）。

陸上では、土壌の年代測定・生成速度や地形面の形成・発達過程の研究に ^{10}Be が利用される。この分野での ^{10}Be の適用法には 2 種類あり、一つには海洋での研究例に示したように高層大気中で生成した核種が地表面に降下して蓄積したインベントリーが時間とともに変化することを利用して解析する「Meteoritic ^{10}Be 法」であり、もう一つは地表面にある岩石表面の石英鉱物などの酸素に宇宙線が照射されて生成した ^{10}Be 量を利用する「in situ ^{10}Be 法」である。我が国においては、前者による土壌の年齢測定（前島・永塚, 2011）の研究例があり、喜界島土壌の年齢が氷河性海面変動曲線と平均隆起測線から推定される年齢とよく一致していることを明らかにしている。また、太陽活動や地球環境によって高層大気での ^{10}Be 生成速度が影響を受けるので、氷床・堆積物コアなどに記録されている過去の長期にわたる太陽活動や地球磁場の変動を、氷床・コア中の ^{10}Be から探る研究として、死海における後期更新世以降の堆積物コアから ^{10}Be の生成速度の変動が調べられた例もある（Belmarker et al., 2008）。後者による研究例としては、青木（2000）が木曾山脈北部に分布するターミナルモレーン構成堆積物に「in situ ^{10}Be 法」を適用して、氷成堆積物の形成年代を報告している。後者についての詳細は、若狭は

か（2004）に詳しい。このように、「in situ ^{10}Be 法」は氷河期事象や沖積扇状地の表層、河岸段丘・海岸段丘、黄砂や風成塵の履歴、火山噴火、地滑りなどの年代測定などにも適用されている（Bierman et al., 2002）。

宇宙線起源の ^{10}Be と大地の風化によって供給される安定同位体 ^9Be を組み合わせた $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比は、大地の風化・侵食のパラメータとなり、堆積学においては重要な指標の一つである。一般に地中海のように陸からの寄与の大きな海水ではこの比は低く、太平洋のように降下 ^{10}Be 量が多く陸からの寄与が小さい海水では大きい。このため、大陸の侵食速度の指標として $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比を用いる研究が行われている。von Blanckenburg and Bouchez（2014）は、海水の $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比が海洋の自生堆積物中に記録されているとしてこれを解析し、過去から現在までの海洋への陸源物質のフラックスの指標としてこの比を利用した。また、Willenbring and von Blanckenburg（2010）は、海洋に溶解した $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比を風化の代理指標として過去約 12 Myr にわたって再解析し、新生代後期には安定した風化フラックスであったと結論づけている。このように、 ^{10}Be は長期にわたる堆積プロセスの研究に有用である。

これまでに述べてきた堆積プロセスの研究とは異なる ^{10}Be の活用例に、核実験調査がある。核爆発で発生する高速中性子は大気中の二酸化炭素の ^{13}C と反応すると ^{10}Be が生成する ($^{13}\text{C}(n, \alpha)^{10}\text{Be}$)。また、構成物に B があるとそれも原料となる。このため、 ^{10}Be の存在は核爆発の一つの証拠となる可能性がある。実際、広島やカザフスタンではバックグラウンドの 2-3 倍の過剰 ^{10}Be が観測されており、半減期が長いので、堆積物に見いだされればそれは過去の核実験活動を示す一つの指標になり得ることが示されている（Whitehead et al., 2008）。

ベリリウム-7

^7Be は Arnord and Al-Salih（1955）により ^{10}Be よりも 1 年早く報告されている。彼らは、地表 15 km の上空で生成した BeO もしくは $\text{Be}(\text{OH})_2$ は拡散してダスト粒子に付着し、その後は大気中ダスト粒子として挙動をとにする、即ち、それらは雲を作り降雨となって地表にもたらされると考えた。彼らは、シカゴで雨水を 19-190 リットル集めて初めて ^7Be を検出した。1 年遅れて Goel et al.（1956）もボンベイで同様に雨水から検出を行っている。 ^7Be は半減期が 53.3 日と比較的短いだけで ^{10}Be の同位体であるから、ほとんどそれと類似した化学的挙動をとり、数日～数ヶ月のタイムスケールの気象や地質現象の解明にトレーサーとして利用できる。

大気上層の酸素および窒素が宇宙線による核破砕反応を

受けて生成し地表面に降ってくるため、 ^7Be は空気中には常時存在している。このため、大気の状態を探る良い指標となっている。その詳細研究は堆積学とは分野違いのために省略するが、エアロゾル中の ^7Be の粒径分布や季節変動、フラックスやインベントリー等に関する研究が多くなされている（例えば、Bourcier et al., 2011; Caillet et al., 2001; Daish et al., 2005; Ioannidou, 2011; Jiwen et al., 2013; Renfro et al., 2013; Sanders et al., 2011; Wallbrink and Murray, 1994; Winkler et al., 1998）。

地上に降り注いだ ^7Be は地表面で堆積するが、建造物の屋上の吹きだまりのような箇所では、ダスト粒子がそのまま蓄積することがある。半減期が短いので長時間経過してしまうと検出困難であるが、堆積した表層部をみると検出が可能である。通常の土壌・底質堆積物であれば、 ^7Be が検出されることはほとんど無く、また ^{210}Pb も0.1 Bq/gのオーダーである（Kanai, 2009）。著者が調査した屋上の排水溝やベランダの隅にたまった塵では、2~3.6 Bq/gという比較的高濃度の ^7Be が検出されており、同時に測定された鉛-210 (^{210}Pb)も1.4~5 Bq/gと高濃度であった（Kanai, 2013）。このような半減期の異なる2核種（ ^7Be は53.3日、 ^{210}Pb は22.3年）を用い、定常的な堆積を仮定すれば、塵の堆積後の経過時間や古い土壌（ ^7Be は不検出）との混合割合などを概算できる可能性が指摘されている（Kanai, 2013）。

海上に降下した ^7Be は、その半減期が短いために海水の表層水のトレーサーとなりうる。Inoue et al. (2013)は、日本海の対馬海流における移流パターンを解析するために $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ と ^7Be を利用し、 ^7Be は50m以深で急激に濃度が低下することから、下方への移動は少なく、50m以浅での平均滞留時間を40~70日と見積もっている。

一方、土壌粒子との吸着反応におけるBeの分配係数は 10^4 ~ 10^6 （Hawley et al., 1986; Steinmann et al., 1999）と大きいので、 ^7Be は降下物として地表に落ちると地表粒子に強く結合し、その良いトレーサーとなる。地表面の堆積物や細屑物は風雨に運搬されて河川に流れ込み、河床や沿岸域に堆積する。従って、堆積場の表層の堆積物には ^7Be が存在している（Murray et al., 1992）。 ^7Be は半減期が短いため、4半減期に相当する約200日経過すると1/16に減衰し検出困難となる（Palinkas et al., 2005）。つまり、堆積物中に ^7Be が検出されるということは、200日以内に堆積した最新の堆積物である証拠になる。我々は、ベトナムのメコンデルタから堆積物を採取し、その中の ^7Be を調べて堆積物の新旧を解明した（金井ほか, 2013）。すなわち、雨季に採取した表層堆積物では ^7Be が検出されたが下位では不検出であり、その後の乾季では表層でも不検出となったことから、新しい堆積物はなく表層堆積物が流失していることを明らかにした。

^7Be に関しては、このような研究例の他にも、地表面での ^7Be のインベントリーを知ることができれば、表層での土壌の運搬・移動、溶脱・蓄積などの短期的な地質作用の見積もりが可能となる。また、海洋や沿岸域での堆積学研究にも多く適用されており、環境中の ^{210}Pb や ^{137}Cs などの他の放射性核種と組み合わせて利用されることも多い。

例えば、 ^7Be は時間の経過した底質では非常に濃度が低く、一方 ^{210}Pb は底質でも浮遊物質でもほぼ同程度であることから、 $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ 比をとって調べれば再浮遊物質の量が定量できる。その一例として、Olsen et al. (1989)は、アメリカ南東部に位置するSavannah EstuaryでのPuの収支を調べる研究において、 $^7\text{Be}/^{210}\text{Pb}$ 比を利用して懸濁物質の80%以上が底質の再浮遊であると見積もった。

当然のことながら、 ^{210}Pb と同様に堆積速度の算出も可能であり、 ^7Be は短い間の堆積速度を計算するために使用できる。半減期の違う核種による堆積速度も比較検討することができ、堆積物の輸送の動的な性質、例えば堆積場の定常性、河川の氾濫や洪水、嵐などのイベントが堆積過程に果たしている重要な役割などを知ることができる。一例として、 ^7Be と ^{210}Pb で求めた堆積速度が同程度であれば、その堆積場は長期にわたって安定であったことを示唆することから、Dibb and Rice (1989)は、チェサピーク湾では底質の再分配があるものの、堆積プロセスが過去100年間比較的一定のままであったことを示した。逆に、Sommerfield et al. (1999)は、北部カリフォルニアの大陸縁辺部の大陸棚と斜面堆積物を調査し、河川の流出がかなり多い洪水時に ^7Be が検出されることから河川堆積物の有力な指標となることを示し、洪水堆積物が堆積履歴に大きなインパクトを与えていると結論づけた。Drexler and Nittrouer (2008)も、ローヌ川が流れ込む地中海に面した河口堆積物を調べ、堆積層理や粘土含有量に変化がみられる洪水堆積物では、 ^7Be が表層に存在し、 ^{210}Pb は希釈されて低濃度となっていることなどを報告している。

このように、我々の研究例と同様に沿岸域での ^7Be 応用研究は多く、ミシシッピ川のデルタ域での底質（Corbett et al., 2004）やウイスクンシンのFox River 河川（Fitzgerald et al., 2001）などでの泥の輸送・堆積・再懸濁などのプロセスの解明に、 ^7Be の他に ^{234}Th 、 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs などの核種を組み合わせて利用している。Murray et al. (1992)は、オーストラリアのCanberraの堆積物調査で、 ^7Be の9割以上が湿性沈着でもたらされて表層数ミリにしか存在しないことから、河川粒子の ^7Be は表層堆積物の寄与を示唆していることを報告し、他にウラン・トリウム系列核種も計測してこれらを輸送過程の研究のトレーサーとして利用している。

一方、 ^7Be は大気から安定的に地表に降り注がれ、土壌等の粒子に強く吸着することから、水文学や地形学の分野

でも広く応用されている。地形の侵食や農地の土壌流出などは、環境保全や農業生産などの施策と密接に絡んで重要な課題の一つである。このような土壌の再移動・再分配の研究には、従来から様々な仮定を置いて半減期の長い ^{137}Cs が用いられ (Mabit et al., 2013; Parsons and Foster, 2011, 2013), そのインベントリーの大きさ, 変動, 分布を議論する数多くの研究がなされ, 解析手法も確立してきている (IAEA, 1998; Porto et al., 2003; Soto and Navas, 2008). ^{210}Pb との組み合わせ (Li et al., 2010; Walling et al., 2003), ^{210}Pb と ^{137}Cs との組み合わせ (Bonniwell et al., 1999; Wallbrink and Murray, 1996), ウラン系列核種を利用した研究例 (Dosseto et al., 2008; Murray et al., 1992) もあり, ^7Be を含めた環境中の放射性核種の利用はさらに広がりつつある (Walling, 2004; Zapata, 2003).

例えば, Walling et al. (1999) では耕作農地における土壌の再分配を明らかにするために ^7Be を使用した。彼らは ^7Be および ^{137}Cs のインベントリーの分布様式が類似していることから, 侵食も蓄積も起こっていない対照地と嵐前後のインベントリーを比較して, 短い (数日), イベント的な, もしくは中期的 (数十年間) なタイムスケールで起きた土壌損失および蓄積のエリアを識別している。Sepulveda et al. (2008) は, 2005 年 5 月にチリで起こった 27 日間に 400 mm という豪雨による耕作地の侵食を, 半減期の短い ^7Be を利用して解明している。Bonniwell et al. (1999) も, 堆積物のトレーサーとして ^7Be , ^{210}Pb , ^{137}Cs を利用したが, Gold Fork River (アイダホ) の小さな分水界における水カラムの中に川底から再懸濁される「古い」堆積物では ^7Be が無視できるとして, 雪解け水の「新しい」堆積物の指標として ^7Be を使用し, 土壌へのインベントリーとの比較から平均侵食速度を 2.3 mm/y と求めている。

また, ^7Be , 過剰 ^{210}Pb および ^{137}Cs は地表土壌において異なる深度分布パターンを示すことから, 懸濁堆積物が土壌のどの部位に由来したのか, どのようなタイプの侵食が行われたか (例えば, シートフローか, 細溝 (リル) 侵食か, ガリー侵食か), などを推測する手立てとして利用できる。Wallbrink and Murray (1993) は, これらの核種を利用してシートフローでは 3 核種が懸濁物中に高濃度であるが, リル侵食になると ^{137}Cs が卓越し ^7Be と ^{210}Pb が時間とともに減少する傾向にあることを示している。また, 土壌における 3 核種による ^7Be - ^{210}Pb と ^{210}Pb - ^{137}Cs の深度プロファイルを用いて, 起源となる各層を解析する手法が提案されている (Wallbrink et al., 1999)。

Be 同位体の測定法

さて, 次に Be 同位体の測定法について触れておこう。

安定同位体の ^9Be は比較的低濃度であるが普遍的に存在している。 ^9Be 濃度は Wedepohl (1995) による上部大陸地殻の平均存在度は約 3.1 ppm 程度で, 日本の河川堆積物の平均濃度は 1.4 ppm とされている (今井ほか, 2004)。この程度の濃度は ICP や ICP-MS で検出可能である。一方, 放射性の ^{10}Be は濃度が低い上に半減期が非常に長い核種であるために, 比放射能 (核種 1 g あたりの放射能) は非常に低いので, 通常の放射能測定は不可能に近い。例えば, ^{10}Be を最初に報告した Arnold (1956) は海の底質中濃度を 0.03 Bq/cm²としているが, これは 1 分間に 2 回の壊変がおこる程度である。赤粘土中の約 0.1 mBq/cm³ という濃度は 3 時間に 1 回の壊変ということになる。このため, ^{10}Be の定量には放射能ではなく, 核種の数直接計測する加速器質量分析法 (AMS 法) が用いられる。AMS 法は 1970 年代末に開発され, 1980 年代になって普及し始め, さらに 1990 年代には検出下限も 1 桁下がって高感度化したため, 研究も活性化した。

AMS 法では, 放射性同位体核種と安定同位体核種をイオン源でイオン化し, タンデム加速器で加速し, 加速したイオンのエネルギーや質量によって妨害イオンと選別を行った後に, ファラデーカップや重イオン検出器で測定する。前者の検出器は安定同位体を電流値として定量し, 後者は放射性核種を個数として計数する。質量分析法では, 同重体である ^{10}B などは妨害イオンとなるので特に注意しなければならない。定量は標準試料との比較法でなされ, 感度としては $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ 比で $3 \times 10^{-15} \sim 5 \times 10^{-14}$ とされる (永井ほか, 1991; 中村, 2003; Matsuzaki et al., 2007)。

試料は Be としてわずか 0.1-0.5 mg と少量でよいが, 前処理としてイオン化するのに適した形に調製する必要がある。まず, 試料を分解後キャリアーとして ^9Be を加え, 妨害となる他の元素からイオン交換法などによって分離精製する。特に, 同重体である ^{10}B には注意が必要で, Be 水酸化物の沈殿生成, 溶解と再沈殿を繰り返して分離精製する。これを焼いて BeO とし, Nb 粉と混合してターゲットとする (永井ほか, 1991; Matsuzaki et al., 2004, 2007; 横山ほか, 2005)。ターゲットに Cs^+ ビームを照射して BeO^- イオンをたたき出し, AMS システムで測定する。

ちなみに, 我が国では東大・筑波大・名古屋大・山形大・国立環境研・日本原子力研究開発機構などで, 更新・予定も含め 9 台の AMS 装置が稼働中というが, ほとんどが ^{14}C 専用機である (若狭ほか, 2004; 東京大学, 2013)。サイクロトロン AMS, タンデム AMS のどちらのタイプでも ^{14}C だけでなく ^{10}Be の測定が可能であるが (中村, 2003), 実際に ^{10}Be の測定が可能な装置は, 2013 年現在においては東大の MALT と建設中の筑波大に限られているようである (若狭, 2013)。今後は ^{14}C , ^{10}Be の他にも, ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca ,

^{129}I なども測定できる多目的タンデム AMS が有望になりつつある。

ところで、本論文では ^{10}Be の半減期を 151 万年 (139 万年?) と記述してきた。これは、151 万年という記述がこれまでは多かったが、近年 1 割ほど短く見直される傾向にあるからである。近年になって AMS 測定がより簡単に高精度で行えるようになると、Fink and Smith (2007), Nishiizumi et al. (2007), Korschinek et al. (2010), Chmeleff et al. (2010) などが 143 ± 10 万年, 136 ± 7 万年, 138.8 ± 1.8 万年, 138.6 ± 1.6 万年というように、以前よりもだいぶ短めな半減期を報告してきており、おそらくこれらが真値に近いものではないかと推定される。National Nuclear Data Center の Evaluated Nuclear Structure Data File (ENSDF) のホームページでも、 ^{10}Be の半減期として $1.387\text{E}+6$ y という記述がなされている (ENSDF, 2014)。

これに対し、放射線測定は半減期の短い ^7Be に有効で、 ^7Be の場合には EC に伴う 478 keV のガンマ線 (放出率 10 %) を計測して定量する。エネルギー弁別の可能なゲルマニウム半導体検出器を用いると、特別な前処理をせず容易にウラン系列核種、トリウム系列核種や ^{137}Cs と同時測定可能である。試料量が少なく濃度の低い試料では、検出効率の高い井戸型のゲルマニウム半導体検出器が効果的で、著者らはこれを用いて放射線測定を行っている。壊変定数 λ 、ガンマ線の放出率や種々の補正係数を含んだ検出効率 ε 、核種の数 N 、半減期を $T_{1/2}$ とすると、その計数率 n は次式 (eq.(2)) に示されるように、

$$n = \lambda \cdot \varepsilon \cdot N = [\ln(2)/T_{1/2}] \cdot \varepsilon \cdot N \quad \text{-----eq.(2)}$$

となる。半減期が 53.3 日の ^7Be では、わずか 10^{-14} g の ^7Be が存在すれば、仮に ε が 0.03 程度でもそのガンマ線は毎秒数カウントになる。一方、同量の ^{10}Be が存在したとしても半減期に 10^7 倍の違いがあるので、 ε の相違を考慮しても $1/10^6$ 倍ほどの計数率の違いとなり、4 日に 1 カウント程度である。中村 (2003) は、1 mg の NBS ベリリウム標準体 ($^{10}\text{Be}/^9\text{Be} = 3.1 \times 10^{-11}$) を用いた放射能測定では 1 時間で 0.11 カウントにすぎないが、AMS 測定では 68400 カウントが可能であるとして、 ^{10}Be に対する AMS 測定の有効性を説いている。

^7Be の放射線測定で不都合な点を一つあげるとすれば、半減期が短いために迅速な測定作業が必要ということであろう。実際、著者らが海外のデルタ地域から底質を採取して、乾燥・微粉碎などの前処理をして最初の試料測定開始までに約 2 週間を要し、1 回の測定時間を 3~4 日間として数試料を測定し終える時には ^7Be の半減期を超える約 2 ヶ月が経過していた。数多くの試料を扱うと後半の試料測定時までにはかなり時間経過があり (2 ヶ月以上)、それによる減衰と検出限界の上昇とにより、すべての試料で有意の値

を確認することは困難となる。このため、今後は更なる手順の迅速化、測定のマルチ化などを検討する必要がある。

おわりに

本論では、ベリリウム、特に放射性ベリリウム同位体である ^{10}Be と ^7Be に関して、地質学、堆積地球化学に応用した研究例を幾つか解説、紹介してみた。半減期の長短による測定法の相違やその研究例の共通点と相違点など、様々なことが理解していただけたと思う。半減期の相違をうまく利用すると、長いタイムスパンの事象や逆に短いタイムスパンの事象などを解明する指標となり、プロセスの解明に有用な手段となるなど、ベリリウム核種を堆積学分野に応用して得られた結果には貴重な情報が多く含まれ、時間の軸を織り込んだ解釈が可能である。今後の幅広い活用が期待される。

また、測定に関しては ^{10}Be では近年分析精度が格段に進展したが、大がかりで高価な AMS も必要であることから、今後は共同利用化をさらに進めるとともに、より多くの情報を得るために ^{26}Al , ^{36}Cl , ^{41}Ca , ^{129}I など測定できる多目的タンデム AMS を活用することが主体となっていくものと思われる。 ^7Be に関して、多数の試料が迅速に測定できるようなシステムを作っていくことが重要と思われる。

謝辞: 本研究を進めるに当たって地質調査総合センターの斎藤文紀氏を初めとして研究グループの方々のご支援、ご協力を賜った。本粗稿に対して、日本大学の永井尚生氏並びに匿名の査読者や編集委員である信州大学の吉田孝紀氏から、数々の貴重なコメントをいただいた。ここに記して深く感謝申し上げる。

文 献

- 青木賢人, 2000, ^{10}Be 露出年代法を用いた氷成堆積物の形成年代の測定—木曾山脈北部, 千畳敷カール, 濃ヶ池カールの事例—, 第四紀研究, **39**, 189-198.
- Arnold, J.R., 1956, Beryllium-10 produced by cosmic rays. *Science*, **124**, 584-585.
- Arnold, J.R. and Al-Salih, H.A., 1955, Beryllium-7 produced by cosmic rays. *Science*, **121**, 451-453.
- Belmarker, R., Lazar, B., Tepelyakov, N., Stein, M. and Beer, J., 2008, ^{10}Be in Lake Lisan sediments-A proxy for production or climate. *Earth and Planetary Science Letters*, **269**, 447-456.
- Bierman, P.R., Caffee, M.W., Davis, P.T., Marsella, K., Pavich, M., Colgan, P., Mickelson, D. and Larsen, J., 2002, 4 Rates and timing of earth surface processes from in situ-produced cosmogenic Be-

10. *Reviews in mineralogy and geochemistry*, **50**, 147–205.
- Bonniwell, E.C., Matisoff, G. and Whiting, P.J., 1999, Determining the times and distances of particle transit in a mountain stream using fallout radionuclides. *Geomorphology*, **27**, 75–92.
- Bourcier, L., Masson, O., Laj, P., Pichon, J.M., Paulat, P., Freney, E. and Sellegri, K., 2011, Comparative trends and seasonal variation of ^7Be , ^{210}Pb and ^{137}Cs at two altitude sites in the central part of France. *Journal of Environmental Radioactivity*, **102**, 294–301.
- Bourles, D., Raisbeck, G.M. and Yiou, F., 1989, ^{10}Be and ^9Be in marine sediments and their potential for dating. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **53**, 443–452.
- Caillet, S., Arpagaus, P., Monna, F. and Dominik, J., 2001, Factors controlling ^7Be and ^{210}Pb atmospheric deposition as revealed by sampling individual rain events in the region of Geneva, Switzerland. *Journal of Environmental Radioactivity*, **53**, 241–256.
- Chmeleff, J., von Blanckenburg, F., Kossert, K. and Jakob, D., 2010, Determination of the ^{10}Be half-life by multicollector ICP-MS and liquid scintillation counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **268**, 192–199.
- Corbett, D.R., McKee, B. and Duncan, D., 2004, An evaluation of mobile mud dynamics in the Mississippi River deltaic region. *Marine Geology*, **209**, 91–112.
- Daish, S.R., Dale, A.A., Dale, C.J., May, R. and Rowe, J.E., 2005, The temporal variations of ^7Be , ^{210}Pb and ^{210}Po in air in England. *Journal of Environmental Radioactivity*, **84**, 457–467.
- Dibb, J.E. and Rice, D.L., 1989, Temporal and spatial distribution of beryllium-7 in the sediments of Chesapeake Bay. *Estuarine, Coastal and Shelf Science*, **28**, 395–406.
- Dosseto, A., Bourdon, B. and Turner, S.P., 2008, Uranium-series isotopes in river materials: Insights into the timescales of erosion and sediment transport. *Earth and Planetary Science Letters*, **265**, 1–17.
- Drexler, T.M. and Nittrouer, C.A., 2008, Stratigraphic signatures due to flood deposition near the Rhone River: Gulf of Lion, northwest Mediterranean Sea. *Continental Shelf Research*, **28**, 1877–1894.
- ENSDF, 2014, NuDat 2.6. (<http://www.nndc.bnl.gov/nudat2/reCenter.jsp?z=4&n=6>) (2014/1/27 アクセス)
- Fink, D. and Smith, A., 2007, An inter-comparison of ^{10}Be and ^{26}Al AMS reference standards and the ^{10}Be half-life. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **259**, 600–609.
- Fitzgerald, S.A., Klump, J.V., Swarzenski, P.W., Mackenzie, R.A. and Richards, K.D., 2001, Beryllium-7 as a tracer of short-term sediment deposition and resuspension in the Fox River, Wisconsin. *Environmental Science and Technology*, **35**, 300–305.
- Goel, P.S., Jha, S., Lal, D., Radhakrishna, P. and Rama, 1956, Cosmic ray produced beryllium isotopes in rain water. *Nuclear Physics*, **1**, 196–201.
- Hawley, N., Robbins, J.A. and Eadie, B.J., 1986, The partitioning of $^7\text{beryllium}$ in fresh water. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **50**, 1127–1131.
- 堀部純男編, 1975, 海洋学講座 6, 海洋無機化学, 東京大学出版会, 202 p.
- IAEA, 1998, Use of ^{137}Cs in the study of soil erosion and sedimentation. IAEA, Vienna, 1998, IAEA-TECDOC-1028.
- 今井 登, 寺島 滋, 太田充恒, 御子柴 (氏家) 真澄, 岡井貴司, 立花好子, 富樫茂子, 松久幸敬, 金井 豊, 上岡 晃, 谷口政碩, 2004, 日本の地球化学図. 産業技術総合研究所地質調査総合センター, 209 p.
- Inoue, M., Furusawa, Y., Fujimoto, K., Minakawa, M., Kofuji, H., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Yoshida, K., Nakano, Y., Hayakawa, K. and Oikawa, S., 2013, $^{228}\text{Ra}/^{226}\text{Ra}$ ratio and ^7Be concentration in the Sea of Japan as indicators for water transport: comparison with migration pattern of Fukushima Dai-ichi NPP-derived ^{134}Cs and ^{137}Cs . *Journal of Environmental Radioactivity*, **126**, 176–187.
- Ioannidou, A., 2011, Activity size distribution of ^7Be in association with trace metals in the urban area of the city of Thessaloniki, Greece. *Atmospheric Environment*, **45**, 1286–1290.
- Jiwen, L., Starovoitova, V.N. and Wells, D.P., 2013, Long-term variations in the surface air ^7Be concentration and climatic changes. *Journal of Environmental Radioactivity*, **116**, 42–47.
- Kanai, Y., 2009, Fluxes and inventories of ^{210}Pb and ^{137}Cs in lake sediments from East Asia and their relationships to sedimentary environment. *Journal of the Sedimentological Society of Japan*, **68**, 91–103.
- Kanai, Y., 2013, High activity concentrations of ^{210}Pb and ^7Be in sediments and their histories. *Journal of Environmental Radioactivity*, **124**, 44–49.
- 金井 豊, 斎藤文紀, 田村 亨, Nguyen, V.L., Ta, T.K.O., 佐藤明夫, 2013, メコンデルタ堆積物におけるベリリウム-7, 鉛-210 及び放射性セシウム同位体の分布と堆積環境の季節変化. *地球化学*, **47**, 89–100.
- Korschinek, G., Bergmaier, A., Faestermann, T., Gerstmann, U.C., Knie, K., Rugel, G., Wallner, A., Dillmann, I., Dollinger, G., von Gostomski, C.L., Kossert, K., Maiti, M., Poutivtsev, M. and Remmert, A., 2010, A new value for the half-life of ^{10}Be by Heavy-Ion Elastic Recoil Detection and liquid scintillation counting. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **268**, 187–191.
- Lebatard, A-E, Bourle, D.L., Durringer, P., Jolivet, M., Braucher, R., Carcaillet, J., Schuster, M. and Arnaud, N., 2008, Cosmogenic nuclide dating of Sahelanthropus tchadensis and Australopithecus bahrelghazali: Mio-Pliocene hominids from Chad. *PNAS*, **105**, 3226–3231.
- Li, M., Yao, W., Li, Z., Liu, P. and Shen, Z., 2010, Effect of landforms on the erosion rate in a small watershed by the ^{137}Cs tracing method. *Journal of Environmental Radioactivity*, **101**, 380–384.
- Mabit, L., Meusburger, K., Fulajtar, E. and Alewell, C., 2013, The usefulness of ^{137}Cs as a tracer for soil erosion assessment: A critical reply to Parsons and Foster (2011). *Earth-Science Reviews*, **127**, 300–307.
- 前島勇治, 永塚鎮男, 2011, 南西諸島に分布するサンゴ石灰岩上

- の土壌の年齢. 地球環境, **16**, 169-177.
- Matsuzaki, H., Nakano, C., Yamashita, H., Maejima, Y., Miyairi, Y., Wakasa, S. and Horiuchi, K., 2004, Current status and future direction of MALT, The University of Tokyo. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, **223-224**, 92-99.
- Matsuzaki, H., Nakano, C., Tsuchiya (Sunohara), Y., Kato, K., Maejima, Y., Miyairi, Y., Wakasa, S. and Aze, T., 2007, Multi-nuclide AMS performances at MALT. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, **259**, 36-40.
- Murray, A.S., Olley, J.M. and Wallbrink, P.J., 1992, Natural radionuclide behavior in the fluvial environment. *Radiation Protection Dosimetry*, **7**, 297-304.
- 永井尚生, 今村峯雄, 小林紘一, 吉田邦夫, 大橋英雄, 山下 博, 1991, 加速器質量分析による ^{10}Be と ^{26}Al の測定. 質量分析, **39**, 315-327.
- 中村俊夫, 2003, I. 加速器質量分析 (AMS) による環境中およびトレーサ放射性同位体の高感度測定. *Radioisotopes*, **52**, 145-171.
- Nishiizumi, K., Imamura, M., Caffee, M.W., Southon, J.R., Finkel, R.C. and McAninch, J., 2007, Absolute calibration of ^{10}Be AMS standards. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, **258**, 403-413.
- Olsen, C.R., Thein, M., Ingvar, L., Larsen, I.L., Lowry, P.D., Mulholland, P.J., Cutshall, N.H., Byrd, J.T. and Windom, H.L., 1989, Plutonium, lead-210, and carbon isotopes in the Savannah estuary: riverborne versus marine sources. *Environmental Science and Technology*, **23**, 1475-1481.
- Palinkas, C.M., Nitttrouer, C.A., Wheatcroft, R.A. and Langone, L., 2005, The use of ^7Be to identify event and seasonal sedimentation near the Po River delta, Adriatic Sea. *Marine Geology*, **222-223**, 95-112.
- Parsons, A.J. and Foster, I.D.L., 2011, What can we learn about soil erosion from the use of ^{137}Cs ? *Earth-Science Reviews*, **108**, 101-113.
- Parsons, A.J. and Foster, I.D.L., 2013, The assumptions of science A reply to Mabit et al. (2013). *Earth-Science Reviews*, **127**, 308-310.
- Porto, P., Walling, D.E., Tamburino, V. and Callegari, G., 2003, Relating caesium-137 and soil loss from cultivated land. *Catena*, **53**, 303-326.
- Renfro, A.A., Cochran, J.K. and Colle, B.A., 2013, Atmospheric fluxes of ^7Be and ^{210}Pb on monthly time-scales and during rainfall events at Stony Brook, New York (USA). *Journal of Environmental Radioactivity*, **116**, 114-123.
- Sanders, C.J., Smoak, J.M., Cable, P.H., Patchineelam, S.R. and Sanders, L.M., 2011, Lead-210 and beryllium-7 fallout rates on the south-eastern coast of Brazil. *Journal of Environmental Radioactivity*, **102**, 1122-1125.
- Sepulveda, A., Schuller, P., Walling, D.E. and Castillo, A., 2008, Use of ^7Be to document soil erosion associated with a short period of extreme rainfall. *Journal of Environmental Radioactivity*, **99**, 35-49.
- Somayajulu, B.L.K., 1967, Beryllium-10 in a manganese nodule. *Science*, **156**, 1219-1220.
- Sommerfield, C.K., Nitttrouer, C.A. and Alexander, C.R., 1999, ^7Be as a tracer of flood sedimentation on the northern California continental margin. *Continental Shelf Research*, **19**, 335-361.
- Soto, J. and Navas, A., 2008, A simple model of Cs-137 profile to estimate soil redistribution in the cultivated stony soils. *Radiation Measurement*, **43**, 1285-1293.
- Steinmann, P., Billen, T., Loizeau, J.-L. and Dominik, J., 1999, Beryllium-7 as a tracer to study mechanisms and rates of metal scavenging from lake surface waters. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, **63**, 1621-1633.
- 東京大学, 2013, 2013 東京大学タンデム加速器研究施設 概要 MALT (Micro Analysis Laboratory, Tandem accelerator, The University of Tokyo) (2013.12.09) <http://malt.n.t.u-tokyo.ac.jp/MALT/status/MALTsummary131209.pdf> (2014/1/27 アクセス)
- von Blanckenburg, F. and Bouchez, J., 2014, River fluxes to the sea from the ocean's $^{10}\text{Be}/^9\text{Be}$ ratio. *Earth and Planetary Science Letters*, **387**, 34-43.
- 若狭 幸, 2013, 原位置宇宙線生成核種を用いた地表面の年代測定—考古学分野への応用の可能性—, フィッション・トラック ニュースレター, **26**, 63-66.
- 若狭 幸, 松崎浩之, 松倉公憲, 2004, 原位置宇宙線生成核種年代測定法: 侵食地形変化速度の解明への適用. 地形, **25**, 247-265.
- Wallbrink, P.J. and Murray, A.S., 1993, Use of fallout radionuclides as indicators of erosion processes. *Hydrological Processes*, **7**, 297-304.
- Wallbrink, P.J. and Murray, A.S., 1994, Fallout of Be-7 in south Eastern Australia. *Journal of Environmental Radioactivity*, **25**, 213-228.
- Wallbrink, P.J. and Murray, A.S., 1996, Determining soil loss using the inventory ratio of excess lead-210 to cesium-137. *Soil Science Society of America Journal*, **60**, 1201-1208.
- Wallbrink, P.J., Murray, A.S. and Olley, J.M., 1999, Relating suspended sediment to its original soil depth using fallout radionuclides. *Soil Science Society of America Journal*, **63**, 369-378.
- Walling D.E., 2004, Using environmental radionuclides to trace sediment mobilization and delivery in river basins as an aid to catchment management. *Proceedings of the Ninth International Symposium on River Sedimentation*, Oct. 18-21, 2004, Yichang, China.
- Walling, D.E., He, Q. and Blake, W., 1999, Use of ^7Be and ^{137}Cs measurements to document short- and medium-term rates of water-induced erosion on agricultural land. *Water Resources Research*, **35**, 3865-3874.
- Walling, D.E., Collins, A.L. and Sickingabula, H.M., 2003, Using unsupported lead-210 measurements to investigate soil erosion and sediment delivery in a small Zambian catchment. *Geomorphology*, **52**, 193-213.
- Wedepohl, K.H., 1995, The composition of the continental crust. *Geo-*

- chimica et Cosmochimica Acta*, **59**, 1217–1232.
- Whitehead, N.E., Endo, S., Tanaka, K., Takatsuji, T., Hoshi, M., Fukutani, S., Ditchburn, R.G. and Zondervan, A., 2008, A preliminary study on the use of ^{10}Be in forensic radioecology of nuclear explosion sites. *Journal of Environmental Radioactivity*, **99**, 260–270.
- Willenbring, J.K. and von Blanckenburg, F., 2010, Long-term stability of global erosion rates and weathering during late-Cenozoic cooling. *Nature*, **465**, 211–214.
- Winkler, R., Dietl, F., Frank, G. and Tschiersch, J., 1998, Temporal variation of ^7Be and ^{210}Pb size distributions in ambient aerosol. *Atmospheric Environment*, **32**, 983–991.
- 横山祐典, 阿瀬貴博, 村澤 晃, 松崎浩之, 2005, 宇宙線照射生成核種を用いた地球表層プロセスの研究, 地質学雑誌, **111**, 693–700.
- Zapata, F., 2003, The use of environmental radionuclides as tracers in soil erosion and sedimentation investigations: recent advances and future developments. *Soil & Tillage Research*, **69**, 3–13.

ベリリウム同位体を用いる堆積学的研究

金井 豊, 2014, 堆積学研究, Vol. 73, No. 1, 19–26

kanai, Y.: Sedimentological studies using beryllium isotopes

Jour. Sed. Soc. Japan, Vol. 73, No. 1, 19–26

環境中に存在しているベリリウムの放射性同位体である ^{10}Be および ^7Be を, 堆積学・堆積地球化学の分野に適用した研究例を紹介した。また, 測定法についても解説を加えた。これらの核種は, その生成が地球大気中にあり定常的に地表面に降下して堆積していること, 粒子とともに挙動するためそのトレーサーとして有用であること, 放射性核種であるため「半減期」という時計を有していること, などの特質を利用して, 地表堆積物や海底堆積物の年代測定, 大陸侵食や土壌侵食・流出, 沿岸堆積物の新旧や挙動解明などの研究例があり, Be の同位体を用いる応用研究は様々な分野で広がりがつつある。