

堆積物コア中の ^{137}Cs 濃度分布のモデル化に関する研究

志々目友博*・渡辺正孝**・土井妙子***

沿岸海域の底質中に蓄積するダイオキシン類等の化学物質の汚染防止対策を講じる際、化学物質の底質中の挙動を説明できるモデルの開発が有用である。モデルの開発では、コアサンプリングによる年代測定から推定された底質中の濃度のピークが発生する時期と沿岸海域への同化学物質の負荷のピークが発生する時期に差異が生じる場合があることに留意する必要がある。本研究では底質表層近くにおける生物学的擾乱を考慮し、これらのピーク濃度の発生時期の差異について説明できるモデルを開発した。 ^{137}Cs を指標としてこのモデルを検証したところ、 ^{137}Cs の主な発生源である大気中のフォールアウトの経年変化を適切に説明できる結果が得られた。

1. はじめに

沿岸海域に流入する化学物質等は、海水中に拡散し、一部は底質に蓄積する。底質中の化学物質は底質中のベントス等を介して高次の生物に蓄積される。底質における化学物質の挙動を解明することは、高次の生物等を与える影響を解明するための基礎となると考えられる。このため、本研究においては、底質中における化学物質の蓄積過程を明らかにすることを目的として、東京湾のコアサンプリング調査で得られた ^{137}Cs の濃度を指標として、海水中から底質に沈降する同物質の濃度と底質中に堆積している同物質の濃度の関係を記述できるモデルを開発した。

このモデルにより、推定された沈降物中に含まれる ^{137}Cs のピーク濃度が発生する時期は、東京湾内の 2 地点のいずれにおいても 1964 年頃となり、実測された大気降下物中の ^{137}Cs の活動量のピークが発生している時期 (1963 年) とほぼ一致することが確認され、当該モデルの妥当性について検証された。

また、大気降下物中の ^{137}Cs 濃度減少にもかかわらず 80 年代以降も一定の ^{137}Cs が流域から負荷され続けていること、沈降物中の濃度ピークは堆積物中の濃度ピークより約 10 年前に出現することが判明した。

2. 東京湾のコアサンプリング調査の概要

環境庁と国立環境研究所は、ダイオキシン類の環境中での挙動等を評価する際の参考とするため、平成 10 年度に東京湾の 2 地点における底質のコアサンプリングを実施しており、各層毎のダイオキシン類、 ^{210}Pb 、 ^{137}Cs 等の濃度を測定している。この調査では、底質の擾乱が少なく層別の年代の特定が行えるコアサンプリングを選定し、 ^{210}Pb 法により年代測定を実施している (環境庁, 1999)。本研究においては、東京湾で測定されたコアサン

プリングについて、浦安沖で採取されたコアサンプリング (地点名称: St-B (北緯 $35^{\circ}35.816'$, 東経 $139^{\circ}55.335'$)) 及び多摩川沖で採取されたコアサンプリング (地点名称: St-D (北緯 $35^{\circ}31.514'$, 東経 $139^{\circ}51.459'$)) を利用した (図-1)。

この調査では、ダイバーによりアクリルパイプを用いて底泥を採取し、これを実験室でスクリージャッキを用いてアクリルパイプの下部より底泥を押し出し、底質を 1 cm もしくは 2 cm 間隔で採取している。この採取されたサンプルの一部を用いて含水率、湿潤密度、密度 (比重) が測定されている (環境庁, 1999)。

東京湾海底堆積物コアの年代は ^{210}Pb 年代測定法を使って行われた (環境庁, 1999)。底質を乾燥粉末として、5-10 g とり、電気炉中で 450°C 、3 時間熱処理し、 Pb キャリヤーを加え、硝酸でさらに分解した。その後白金電極

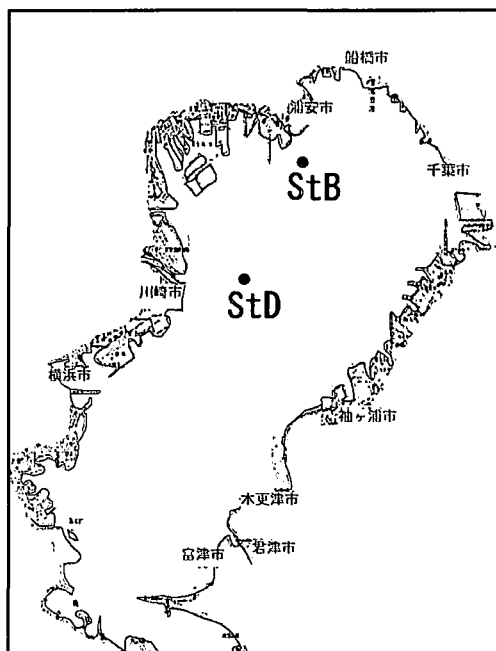


図-1 コアサンプリングの採取位置

* 正会員 工修 厚生労働省健康局水道課課長補佐
** 正会員 Ph.D. (独法) 国立環境研究所水圏環境研究領域長
*** 島博 (独法) 国立環境研究所水圏環境研究領域主任研究員

を用いて電気分解を行い、白金陽極上に PbO_2 として電着させ単離した。電着された鉛は H_2O_2 の溶液に溶解した後、硫酸を加えて PbO_4 の沈殿を作り、フィノレター上に捕集した。これを40日間放置し²¹⁰Pbの生成を待つて、低バックグラウンドガスフローカウンターで測定した。

一方、コア試料の¹³⁷Cs濃度の測定については、底質試料5-7gを47mm径のアクリル樹脂製容器に封入し測定試料とした。¹³⁷Cs濃度は非破壊ガンマ線計測法により、662 keVのガンマ線をゲルマニウムガンマ線検出器(ORTEC製LOAXとGAMMA-X)で測定することにより求めた。

3. 底質の平均堆積速度の算定について

底質の平均堆積速度を求めるにあたっては、¹³⁷Csは主として1945年以降に実施された核実験により環境中に放出されてきたことから、1945年以降1998年までの年代のサンプルを利用した。

次に、過剰²¹⁰Pb濃度と積算重量深度を片対数グラフに図示し、同濃度の対数値と積算重量深度の相関式を求めることにより、この傾きを活用して平均重量堆積速度を求めた。相関式は、次の対数一次式に近似した。

$$y = r \ln(x) + c \quad \cdots \cdots (1)$$

ここで、 x は過剰²¹⁰Pb濃度($A_{ex}(W)$)、 y は積算重量深度(W : g/cm²)を示している。St-Bについて求められた相関式と使用したデータを図-2に示す。

一方、次の関係式が成立する。

$$A_{ex}(W) = A_{ex}(0) \exp(-\lambda W / \omega) \quad \cdots \cdots (2)$$

ここで、 λ は²¹⁰Pbの放射壊変係数であり、 ω は平均重量堆積速度(g/cm²/年)である。なお、 $\lambda = 0.693/22.2 = 0.0312$ である(日本海洋学会, 1986)。

(1)式と(2)式を比較すると、

$$\omega = r \lambda \quad \cdots \cdots (3)$$

となる。(3)式を使用して、St-B地点の場合、 $r = 6.36$ であることから、平均重量堆積速度(ω)は、0.198 g/cm²/年となる。同様の手法により、計算したSt-D地点についての平均重量堆積速度(ω)は0.255 g/cm²/年となる。

なお、松本ら(1981)は、東京湾における平均重量堆積速度を²¹⁰Pb法により推定しており、この結果では東京湾奥西部の0.5 g/cm²/年を超える値から、湾東及び湾口に向かって同速度は減少しており、観音崎と富津岬を結ぶ内側の東京湾全域を平均した値は0.18 g/cm²/年と報告している。本研究で得られた平均重量堆積速度は、松本らの研究結果と比較しても整合がとれる値となつて

$$y = -6.3592 \ln(x) + 7.9654$$

$$R^2 = 0.9316$$

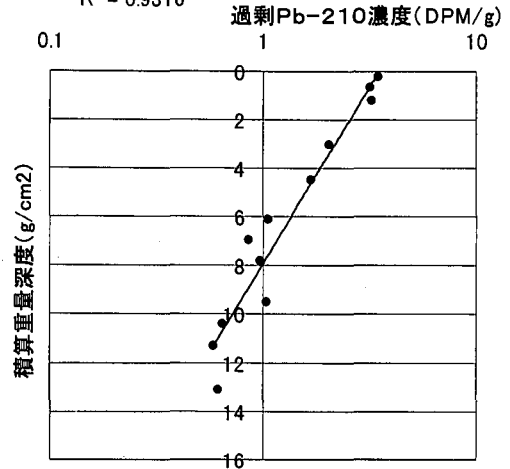


図-2 St-B地点の過剰²¹⁰Pb濃度と積算重量深度の相関式

いる。

また、計算された平均重量堆積速度を基礎として各年代毎の平均堆積速度(cm/年)を求めた。この計算にあたっては、各年代に対応する層毎の間隙率及び泥の密度を用いて、次の式により求めた。

$$\text{平均堆積速度 (cm/年)}$$

$$= \omega / ((1 - \text{間隙率}) \times \text{泥の密度}) \quad \cdots \cdots (4)$$

4. 底質における化学物質の蓄積過程のモデル

沿岸域の底質と水面の境界域における主要な攪乱要因は、生物的擾乱(Bioturbation)であることがこれまで報告されている(Berner, 1980)。この境界域においては、拡散による物質の輸送、波や潮流の攪乱によるものも存在するが、生物的擾乱がより卓越すると報告されている。この生物的擾乱は底質の表層1m以下の深度の範囲で底質のベントスの活動により攪乱されることによるものである(Berner, 1980)。

生物的擾乱は、これに関連する生物が多種に渡っていること、不規則な現象であること、多岐にわたる複雑な過程であることなどから、厳密なモデル化は難しい。このため、生物的擾乱のモデル化については、すべての過程を総括して、ランダム混合過程(random mixing process)として記述する方法がある。このモデルは、底質の表層近くの一定の厚さを完全混合のボックスモデルと仮定して計算するものである(Berner, 1980)。本研究では、このボックスモデルによる方法により検討した。

4.1 基礎方程式

Stolzenbach・Adams (2001) は、ボストン湾における

PAHの底質中の動的な輸送を説明するために、底質の表層近くの一定の厚さを混合層とする非定常モデルを提案している。このモデルでは海水中から底質へ移行する沈降物中のPAHの濃度は毎年変化することから、これを時間の関数として特定し、かつこの濃度が混合層に入ることにより完全混合され、その結果として混合層中の濃度が形成されていくものとしている。また、PAHは混合層から下層に埋没すること及び消失によって底質と水の境界面から除去されることを仮定している。このため、混合層より下部のPAH濃度のプロファイルは、過去の混合層濃度の履歴を反映しているものとされている。このモデルは、Berner (1980) が提案したものに基づいており、基本式は、次のとおりとなる。

$$L \frac{dC}{dt} = W_{\infty} C_d - (K_s + W_{\infty}) C \quad \cdots \cdots \cdots (5)$$

ここで、 L は底質中の混合層の厚さ、 C は底質中の混合層内のPAHの濃度、 W_{∞} は堆積速度、 C_d は沈降物中のPAHの濃度、 K_s は堆積物から水中への損失を反映した堆積物・水間の平衡定数である。ここで、各層の平均堆積速度は底質の下層部ほど底質の自重により圧密が起ることから、見かけ上小さな速度になり、一定の値に収束した速度を W_{∞} と定義している。

本研究では、この基本式を東京湾のSt-B地点及びSt-D地点における137Csの濃度に適用することを試みた。計算にあたっては、基礎式(5)に基づき、沈降物中の137Csの濃度(C_d)を推定した。

本研究においては、堆積物から水中への損失を反映した堆積物・水間の平衡定数(K_s)は考慮しなかった。ただし、137Csは、半減期30年の放射性核種であることから、この崩壊速度を考慮して濃度が減少するものとした。また、PAH濃度の代わりに東京湾St-B地点及びSt-D地点のコアサンプリング結果から得られた各年代毎の堆積物中の137Csの濃度を C とし、また、3で計算された各年代ごとの平均堆積速度(cm/年)から算定した堆積速度を W_{∞} とした。

4.2 計算の前提条件及び計算結果

計算の前提とする各パラメータについては次のとおり選定した。

底質中の混合層の厚さ(L)については、St-B地点の場合、1995年から1998年の沈降物中の過剰210Pb濃度については、ほぼ一定の値を示していたことから、これらの年代に対応する層の中では生物的擾乱により完全混合されていると仮定した。すなわち、1995年の深さに相当する底質表面から5cmの深さまでを混合層と仮定した。

また、St-D地点については、1997年から1998年の沈降物中の過剰210Pb濃度についてはほぼ一定の値を示

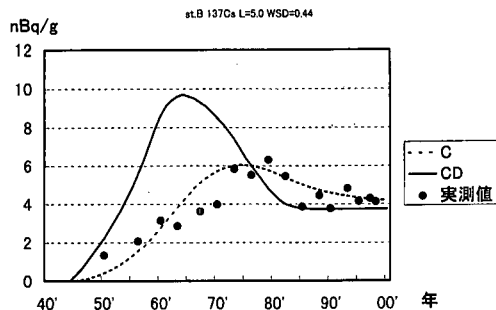
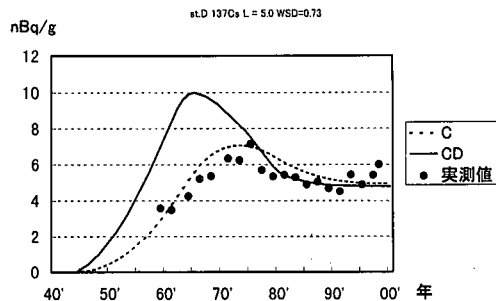
している一方、1989年の濃度は明らかに異なっており、1997年(深さ3cmに相当)と1989年(深さ11cmに相当)の間に相当する深度において混合層が存在することが推定された。ただし、この間はサンプリングデータが欠如していたことから、St-B地点と同様に1995年の深さに相当する底質表面から5cmの深さまでを混合層と仮定した。なお、Stolzenbach・Adams (2001) のポストン湾における解析においても混合層厚さを5cmと仮定して計算を行っている。

堆積速度(W_{∞})については、St-B地点の場合、各年代の平均堆積速度は、1946年から1960年までの値がほぼ一定の値になっていたことから、この間の平均堆積速度の平均値(0.44 cm/年)を堆積速度(W_{∞})として計算した。また、St-D地点の堆積速度(W_{∞})については、ほぼ一定の値に近づいていると考えられる1946年から1954年の平均堆積速度の平均値(0.73 cm/年)を堆積速度(W_{∞})として計算した。

沈降物中の137Csの濃度(C_d)を推定するための数値計算を行うに当たっては、まず任意の C_d 濃度曲線を与え、(5)式に基づき、タイムステップを1年とし、ルンゲクッタ法による数値計算を実施して得られた堆積物中の濃度(C)と堆積物中の137Cs濃度の実測値を比較した。比較した結果に基づき、はじめに与えた C_d 濃度曲線を変化させ、実測値の分布状況を的確に表現できるような C 曲線が得られるまで、同様の手順を繰り返すことにより求めた。

この手法により求められた沈降物中の濃度(C_d)と堆積物中の濃度(C)について、St-B地点及びSt-D地点のそれぞれについて示したものが、図-3及び図-4である。なお、堆積物中の137Cs濃度の実測値は、両図中に併せて示されている。図-4のSt-D地点においては、推定された C 曲線により実測値の値が良好に再現されている。一方、図-3のSt-B地点については、1963年から1973年の間、推定された C 曲線の値より実測値の方が小さな値となっていることが認められる。これは、この間何らかの外的な要因による乱れが発生した可能性があることが推測される。この外的な乱れの要因の一つとしては、データのサンプリングが行われた東京湾St-B地点は、浦安沖に位置しており、浦安地区の埋立の影響を受けた可能性が考えられる。浦安市によれば、1965年から1975年の間と1972年から1980年の間の2回の時期に浦安地域の埋立が実施されている(浦安市, 2001)。最初の埋立の時期と過剰210Pb濃度の濃度の乱れている1963年から1973年の時期はほぼ重なっていることから、この埋立の影響を受けている可能性があるものと考えられる。

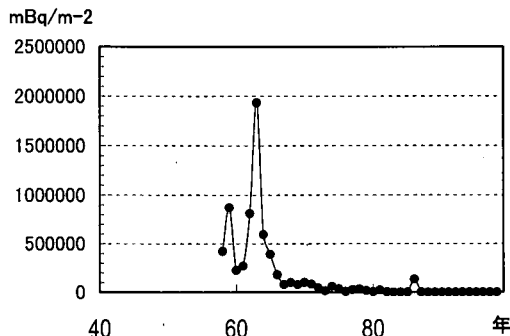
図-3及び図-4から明らかなように、推定された沈降

図-3 St-B地点におけるC曲線(点線)及び C_d 曲線(実線)図-4 St-D地点におけるC曲線(点線)及び C_d 曲線(実線)

物中の ^{137}Cs の濃度(C_d)についてはいずれの地点においても1945年頃から濃度が上昇し、1964年頃をピークにその後は減少に転じている。また、1980年以降はほぼ一定の値で推移している。一方、堆積物中の ^{137}Cs の濃度(C)の近似曲線について見ると、1945年以降上昇し、1975年頃をピークにその後は緩やかに減少する傾向を示している。このため、沈降物中の濃度(C_d)のピークは堆積物中の濃度(C)のピークが発生する時期より約10年前に出現していたことがいずれの地点においても推定された。また、ピーク時の沈降物中の濃度(C_d)は、いずれの地点においても約10 nBq/gとなっていたものと推定される。

一方、Igarashiら(1996)により別途報告されている1957年以降の東京と筑波において観測されている大気降下物中の ^{137}Cs の活動量(activity)の経年変化について見ると、図-5に示すとおり1963年に濃度のピークが出現し、その後1985年まで濃度が減少している。大気降下物中の ^{137}Cs 濃度に影響を与える大気圏核実験は1963年7月の部分的核実験停止条約成立するまでの間、米国、ロシア、英国により行なわれている(日本海洋学会, 1986)。このため、大気降下物中の ^{137}Cs 濃度は1950年代後半から1960年代前半にかけて最も濃度が高くなっており、以後同濃度は減少している(Igarashiら, 1996)。

ここで、図-3及び図-4を見ると、沈降物中の ^{137}Cs

図-5 大気降下物中における ^{137}Cs の活動量(Igarashiら, 1996)

濃度(C_d)のピークが発生した時期と大気降下物中の ^{137}Cs 濃度のピークが発生した時期は、ほぼ同じ時期になっている。両地点における沈降物中の ^{137}Cs 濃度(C_d)の分布がほぼ一致していることを踏まえると両地点とも大気降下物による影響を同様に受けた結果、類似のパターンを示しているものと解釈できる。また、1980年代以降は堆積物中の ^{137}Cs の濃度(C)及び沈降物中の ^{137}Cs の濃度(C_d)が緩やかに減少している。これは大気降下物中の ^{137}Cs 濃度は減少しているが、一定の ^{137}Cs が流域から負荷されつづけていることが示唆される。

5. 今後の課題

本研究においては、 ^{137}Cs の底質内における濃度分布をモデル化することを試みたが、今後、他の化学物質を対象として同様の検討を行うことも可能である。すなわち、底質の堆積物中の化学物質の濃度分布を基礎として、海水中の沈降物中の化学物質の濃度の推移を推定することが可能となるものと考えられる。例えば、Yamashitaら(2000)によれば、東京湾の底質のコアサンプリング中のPCB濃度のピークが発生する時期は、1980年の前半となっており、PCBの生産等が禁止された1972年よりずれていることが報告されている。このようなピーク濃度の出現する時期がずれることについても本研究で開発したモデルを活用することにより説明できる可能性がある。

また、このモデルを活用することにより、将来、海水中の沈降物中の化学物質濃度を低減する対策を講じた場合の堆積物中の濃度分布の変遷についても予測することが可能となるものと考えられる。

参考文献

- 浦安市(2001): http://www.city.urayasu.chiba.jp/konnamati/mukasi/mukashi_banashi/nepyo_kaisetu.html.
- 環境庁(1999): 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, 117 p.

- 日本海洋学会編 (1986): 沿岸環境調査マニュアル, 恒星社厚生閣, pp. 37-39, pp. 117-119.
- 松本英二, 大嶋和雄, 西村 昭, 木下泰正, 斎藤文紀, 村上文敏, 青木市太郎, 富樫茂子, 粕 武 (1981): 赤潮による底質汚染機構に関する研究, 昭和 56 年度環境保全研究成果集(I), 環境庁企画調整局研究調査課編, pp. 62.1-62.15.
- Berner, R.A. (1980): Early Diagenesis, Princeton University Press, pp. 42-45.
- Igarashi, Y., M. Otsuji-Hatori, and K. Hirose (1996): Recent deposition of ^{90}Sr and ^{137}Cs observed in Tsukuba, Journal of Environmental Radioactivity, 31, pp. 157-169.
- Stolzenbach, K. D., and E. Eric Adams Eds (2001): Exchange of contaminants between the sediments and the water column, Contaminated Sediments in Boston Harbor, MIT Sea Grant College Program, pp. 45-73.
- Yamashita, N., K. Kannan, T. Imagawa, D. L. Villeneuve, S. Hashimoto, A. Miyazaki, and J.P. Glesy (2000): Vertical profile of polychlorinated dibenzo-p-dioxins, biphenyls, polycyclic aromatic hydrocarbons, and alkylphenols in a sediment core from Tokyo Bay, Japan, Environmental Science and Technology, Vol. 34, pp. 3560-3567.
-