

表層混合層と再懸濁層を考慮した化学物質の 堆積物中鉛直分布モデル

山 崎 智 弘*・中 村 由 行**

ダイオキシン類などの有害化学物質は 1970 年代以降の規制等により環境中への排出量が減少しているものが多いが、湖沼や沿岸海域の堆積物には依然として高濃度に残留しており、生態系への影響が懸念されている。本研究では、過去数十年の間に堆積物中に蓄積された有害化学物質の鉛直濃度分布構造を再現するために、堆積物表層における混合層、及び堆積物直上の再懸濁層、さらに河川流域での貯留効果を考慮した解析モデルを構築し、宍道湖・中海水系に適用した。Pb-210 ex および Cs-137 の堆積分布を再現し堆積環境を推定した上で、ダイオキシン類の堆積分布を再現した。解析の結果、混合層および再懸濁層が分布構造を決定する上で重要な役割を果たしていた。

1. はじめに

国土交通省港湾局が実施した、各港湾における有害化学物質の実態把握調査（細川ら, 2001; 中村ら, 2002）や、その他の機関（環境庁, 1999, 2000; 交通エコロジー・モビリティ財団, 2001）の調査により、湖沼や沿岸海域における堆積物中の有害化学物質分布や現存量の実態が明らかになりつつある。一方、最近では工場からの有害化学物質の排出記録調査や、河川流域における農薬の使用量といった環境中への供給に関する研究も進められている（益永, 1999, 2000）。

それらの研究結果によると、例えば、東京湾・大阪湾・琵琶湖・宍道湖など、多くの内湾や湖沼において、1970 年代前後に大量放出されたダイオキシン類が堆積物中に蓄積されており、生態系への影響が懸念されている（酒井ら, 1999; 益永ら, 2001; Masunaga ら, 2001）。

過去数十年にわたる環境中から水域を経て堆積物中へと供給される化学物質の年単位の挙動を明らかにするためには、以下の 3 プロセスを解明する必要がある。（図-1 参照）

- ①環境中へ排出され、流域において一時的に貯留・物質変換を経た後に、対象水域に供給されるプロセス
- ②対象水域での移流・拡散・沈降などの輸送プロセス
- ③堆積物中での堆積・混合・再懸濁などの挙動を含むプロセス

有害化学物質の環境への供給プロセス（対象水域への供給）は、それぞれの物質に関連する工場の稼動状況や農薬の使用状況など、物質によりさまざまな排出形態をとる。流域内での貯留や流出に関しても流域ごとの特性による影響は大きい。また、水域における輸送プロセスにおいても、輸送に関する外力（潮汐、波、風、重力、etc.）によりさまざまなモデルが存在する。これらについては、対象とする物質や、対象とする水域の特徴にあわせ、適宜適切なモデルを用いることが望ましい。

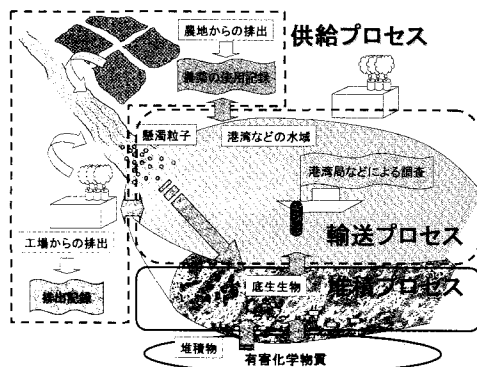


図-1 環境中における挙動を解明する3つのプロセス

これに対して堆積プロセスは、鉛直 1 次元的な特性の強い過程であるため、モデルの構造についても普遍的なモデルを構築できる要素が多いと考えられる。

堆積物表面の物理的挙動については、高波浪時や洪水時など堆積物表層が攪乱されることがや、底生生物の活動による堆積物の混合も無視できない（金井ら, 1995）。さらに、閉鎖性の強い港湾や湖沼では、高含水な浮泥が堆積物直上に溜まることが考えられる。本研究ではこの層を再懸濁層と定義する。有害化学物質の多くは粒子に含まれる有機質に吸着しているとの報告（Nagao ら, 1999）もあり、有機質に富むシルト成分が多い再懸濁層には、多量の有害化学物質が存在していることが想定できる。堆積物表層や再懸濁層には多くの底生生物や底魚などが生息しているため、再懸濁層内の有害化学物質の挙動が生態系に与える影響は大きい。しかし、再懸濁層の形成過程など、その挙動の多くは明らかではない。

Guinasso・Schink（1975）は堆積物の表層混合層の効果について壊変や分解を考慮しないモデルにより検討を行っている。山崎ら（1998）は同様のモデルに放射壊変の効果を加えたモデルにより放射性核種（Cs-137）の鉛直分布を解析した。その結果、表層混合層の存在により放射性核種を堆積速度から予測される深さより深層に鉛直輸送させること、過去に沈積した物質が長期にわたつ

* 正会員 修(工) 東洋建設(株) 技術本部 技術部

** 正会員 工 博 (独法) 港湾空港技術研究所 海洋・水工部

て表層に残存させる効果があることを示している。しかし、このモデルでは再懸濁層が考慮されていない。一方、橋本ら(1998)は再懸濁層を考慮したモデルで東京湾堆積物中のPCB分布を再現しているが、このモデルにおいては堆積物表層混合層が考慮されていない。本研究では、堆積物表層の混合層および再懸濁層で起こる物理プロセスを簡易な形で組み込んだ堆積モデルの作成を行った。

2. 解析モデル

解析モデルは以下の事項を考慮した。

- ・堆積物表層における混合および混合を考慮した堆積速度
- ・再懸濁層
- ・対象地点での供給量
- ・物質の壊変や分解

モデルは鉛直1次元とし、解析対象地点直上に適切に設定した物質供給量 Q を与え、物質はある粒径の粒子に付着した状態で沈降し、再懸濁層を経て一部を巻き上げながら堆積物中に堆積するものとした。

モデルの概要を図-2に示し、水中、再懸濁層および堆積物内の基礎式をそれぞれ式(1)(2)(3)に示す。

$$H \frac{\partial C_w}{\partial t} = -WC_w + \alpha C_{bs} + Q \quad \text{.....(1)}$$

$$\delta \frac{\partial C_{bs}}{\partial t} = WC_w - \alpha C_{bs} - SC_{bs} \quad \text{.....(2)}$$

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - S \frac{\partial C}{\partial z} - \lambda C \quad \text{.....(3)}$$

ここに、 C_w ・ C_{bs} ・ C ：水中・再懸濁層・堆積物の物質濃度、 t ：時刻、 H ：水深 (g/cm^3)、 δ ：再懸濁層厚 (g/cm^2)、 $Q(t)$ ：ある時刻の観測点直上への供給量、 $Q'(t)$ ：ある時刻の環境中に放出された供給量、 F ：河川流域での貯留割合、 M ：河川流域での貯留時間、 W ：沈降速度 ($\text{g}/\text{cm}^2/\text{h}$)、 α ：巻き上げ速度 ($\text{g}/\text{cm}^2/\text{h}$)、 S ：堆積速度 ($\text{g}/\text{cm}^2/\text{h}$)、 L_1 ・ L_2 ：混合層厚 (g/cm^2)、 D_1 ・ D_2 ：混合層の拡散係数 ($\text{g}^2/\text{cm}^4/\text{h}$)、 λ ：物質の壊変および分解定数 (h^{-1})、 z ：堆積物表層からの積算重量深度 (g/cm^2) である。積算重量深度とは、 1 cm^2 あたりの粒子の堆積物表層からの積算重量である。

化学物質は、直接水域に供給される大気由来と、河川流域から河川水とともに水域に供給される河川由来との2つの経緯で観測点に供給される。大気由来分の物質は、比較的短時間に観測点に供給されることに対して、河川由来分の物質は、河川流域の懸濁物質に吸着し、雨水や農業排水とともに河川に流出されるため、河川流域の特徴や物質の発生形態により河川流域に貯留している時間が異なる。河川由来分の物質供給を考慮するため、河川流域に貯留する量の全体供給量 Q' に対する割合を貯留

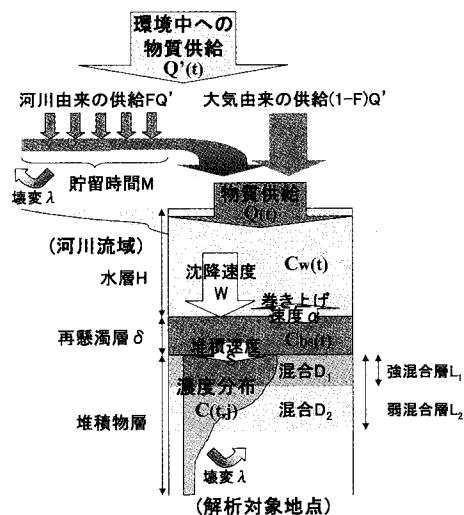


図-2 モデル概要図

割合 $F(<1)$ とし、これらが水域に供給されるまでの貯留時間 $M(\text{yr})$ を設定した(図-2 参照)。そして解析対象地点直上での物質供給量 Q は、以下のように設定した。

河川流域に貯留する物質量は $F \times Q'$ である。ある年からその後 M 年間にわたる1年分の河川由来供給量 q は、ある年の貯留量 $F \times Q'$ を貯留時間 M で等分割した量とし、また、これらの物質は貯留期間中、壊変や分解により一部を消失するものとした。ある計算時刻の河川流域からの水域への物質供給量は、過去 M 年間それぞれの計算時刻該当分の供給量を線形的に足し合わせた量とした。

式(4)(5)に大気由来と河川由来を合わせた観測点における供給量 Q の算定式を示す。

$$Q(t) = (1-F)Q'(t) + \sum_{i=1}^M q(i, t-i) \quad \text{.....(4)}$$

$$q(m, t) = [\exp(-\lambda \Delta t)]^m FQ'(t)/M \quad \text{.....(5)}$$

ここに、 $q(m, t)$ ：ある年のある時刻における河川流域貯留量、 m ： $Q'(t)$ の貯留経過時間 ($0 < m < M$) である。

化学物質の堆積物内での挙動の解析は、以下の手順で行った(図-3 参照)。第一に過去数十年にわたり環境中に放出された放射性核種および対象とする化学物質が、水域内の堆積地点に到達した段階の供給量 Q の経時変化を設定した。第二に本研究で作成した鉛直1次元モデルを用いて、放射性核種の鉛直分布を再現する堆積環境に関するパラメーターを設定した。第三に対象とする化学物質の堆積においても同様な物理現象で堆積物へ貯蓄されていく過程・機構が説明できるとし、対象とする化学物質の供給量 Q を与え鉛直分布を再現した。

3. 宍道湖・中海水系への適用

本モデルを適用する解析場所については、以下の点を

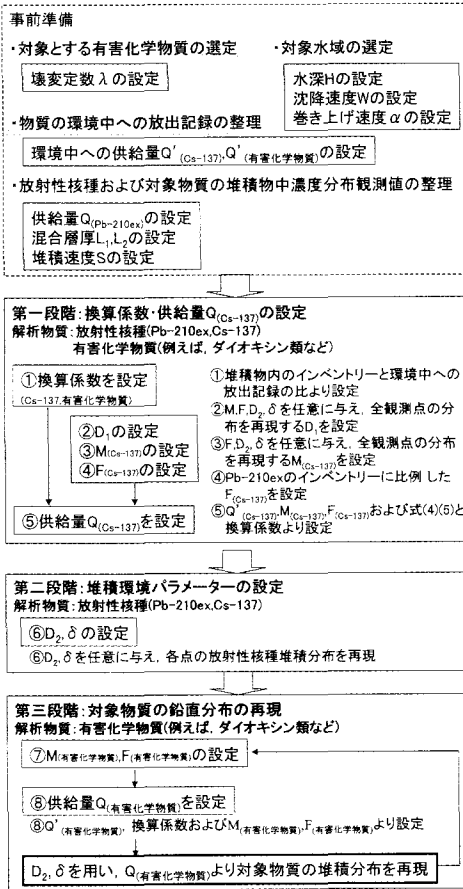


図-3 解析手順

踏まえ、宍道湖・中海水系を選定した。

- ・化学物質の堆積データをはじめ、流況・堆積物のデータが豊富であること
- ・湖底形状が単純であること
- ・主要な流入河川が限定できること

宍道湖・中海水系では、金井ら(1997, 2002)が1994年にPb-210 ex およびCs-137の堆積状況の観測を行い、堆積速度等を推定している。また、大西ら(2002)は同様に宍道湖 St.40 におけるダイオキシン類についての堆積分布の年代推定を行っている。図-4に宍道湖および中海の位置図と観測点のポイント名を示す。

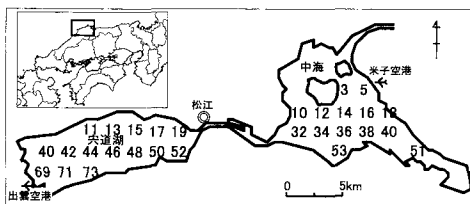


図-4 宍道湖・中海の位置図と観測点ポイント

4. パラメーターの設定

表-1に解析に用いたパラメーターの設定値を示す。

(1) 物質供給量 Q

Pb-210 ex の供給量 Q は、堆積物中の濃度分布観測値

表-1 パラメーター設定値

St.	供給量 Q		インベントリー		換算係数		河川野留割合 F					
	Pb-210 ex (Bq/cm ² /yr)	Pb-210 ex (Bq/cm ²)	Cs-137 (Bq/cm ²)	Diox (ng/cm ²)	Cs-137	Diox	Cs-137	Diox				
宍道湖	11	0.014	1.23	0.094	116.4	0.604	1.23	0.18				
	13	0.072	2.44	0.304		1.953		0.35				
	15	0.054	1.86	0.388		2.493		0.27				
	17	0.032	0.99	0.123		0.790		0.14				
	19	0.026	0.92	0.194		1.246		0.13				
	40	0.094	2.69	0.549		3.527		0.39	0.50			
	42	—	2.16	0.676		4.343		0.31				
	44	0.018	1.07	0.057		0.366		0.15				
	46	0.005	0.48	0.021		0.135		0.07				
	48	0.021	0.91	0.116		0.745		0.13				
	50	0.053	2.25	0.204		1.311		0.32				
	52	0.003	0.23	0.012		0.077		0.03				
	69	0.092	2.63	0.669		4.298		0.38				
	71	0.115	3.40	0.447		2.872		0.49				
73	0.032	1.81	0.093	0.598	0.26							
中海	3	0.032	1.08	0.019	0.122	0.08	0.03					
	5	0.056	1.87	0.093	0.598		0.06					
	10	0.172	5.42	0.219	1.407		0.17					
	12	0.048	1.90	0.031	0.199		0.06					
	14	0.057	2.33	0.067	0.430		0.07					
	16	0.102	3.17	0.149	0.957		0.10					
	32	0.186	5.81	0.582	3.739		0.18					
	34	0.103	3.21	0.121	0.777		0.10					
	36	0.069	2.04	0.093	0.598		0.06					
	38	0.269	4.74	0.490	3.148		0.15					
	40	0.035	0.98	0.022	0.141		0.03					
	51	0.028	0.76	0.031	0.199		0.02					
	53	0.067	2.60	0.152	0.977		0.08					
	St.	貯留時間 M		再懸濁 層厚 δ	堆積速度 S		混合層厚		混合係数			
Cs-137		Diox	Pb-210 ex	Cs-137	平均	L_1	L_2	D_1	D_2			
宍道湖	(yr)		(g/cm ²)	(g/cm ² /yr)		(g/cm ²)		(g ² /cm ² /yr)				
	11	100	1.0	0.04	0.02	0.030	0.07	4.00	1.0	0.010		
	13		1.0	0.13	0.11	0.120	0.25	4.50		0.010		
	15		0.5	0.12	0.07	0.095	0.07	5.00		0.100		
	17		1.0	0.09	0.04	0.065	0.07	4.00		0.010		
	19		0.1	0.09	0.11	0.100	0.07	4.00		0.030		
	40		1.0	0.26	0.25	0.255	1.00	4.50		0.050		
	42		0.5	—	0.18	0.180	0.70	3.00		0.020		
	44		1.3	0.03	0.02	0.025	0.07	4.00		0.010		
	46		1.0	0.03	0.01	0.020	0.07	1.50		0.010		
	48		1.0	0.08	0.03	0.055	0.07	3.00		0.020		
	50		0.7	0.13	0.08	0.105	0.07	5.00		0.005		
	52		1.5	0.03	0.01	0.020	0.07	2.00		0.020		
	69		0.5	0.28	0.22	0.250	2.00	6.00		0.100		
	71		1.5	0.20	0.21	0.205	2.00	6.00		0.001		
	73		2.0	0.14	0.06	0.100	0.70	2.00		0.001		
	3		100	2.0	0.12	0.01	0.065	0.07		5.00	1.0	0.010
	5			1.0	0.20	0.15	0.175	0.07		0.14		0.010
10	2.0			0.23	0.29	0.260	3.00	7.00		0.010		
12	1.0	0.09		0.04	0.065	0.07	2.00	0.010				
14	2.0	0.12		0.02	0.070	0.40	3.00	0.010				
16	0.5	0.16		0.10	0.130	0.70	2.50	0.010				
32	0.3	0.44		0.59	0.515	7.50	14.0	0.010				
34	2.0	0.17		0.13	0.150	0.07	3.50	0.010				
36	1.0	0.07		0.05	0.060	0.07	5.00	0.010				
38	2.0	0.74		0.67	0.705	2.50	10.0	0.010				
40	2.0	0.08		0.00	0.040	0.07	2.00	0.010				
51	2.0	0.04		0.05	0.045	0.07	1.00	0.010				
53	0.7	0.09		0.13	0.110	0.50	3.00	0.010				
壊変・分解定数 λ												
Pb-210 ex		Cs-137	Diox	水深 H	沈降速度 W	巻き上げ速度 α						
		(yr ⁻¹)		(m)	(m/h)	(cm/day)						
0.0311		0.0229	0.010	5.0	1.2	0.05						

において、堆積物表層部の濃度が一定量として対象地点に供給されているものとした。Cs-137の供給量 Q は、東京湾におけるフォールアウト（大気降下）量を、宍道湖および中海の観測点でのインベントリーに応じた換算係数を乗じて用いた。ダイオキシン類の供給量 Q は、益永（1999, 2000）に基づき宍道湖流域での放出量を推定し、観測点である宍道湖 St.40 とのインベントリーに応じた換算係数を乗じた値とした。

(2) 河川流域での貯留割合 F

Cs-137 における F は、Pb-210 ex のインベントリーに比例して設定した。

(3) 堆積速度 S

堆積物表層での混合を考慮した堆積速度 S として、従来の年代測定法である Pb-210 法および Cs-137 法により算出された堆積速度の平均値を用いた。

(4) 混合層厚 L_1 , L_2

混合層厚は、Pb-210 ex の観測結果において表層からの濃度がほぼ均一な深さまでを強混合層の厚さ L_1 とし、一様勾配な深さまでを弱混合層の厚さ L_2 とした。

5. 解析結果

解析結果の一例として宍道湖における放射性核種の結果を図-5 (a) (b) (c) に、中海における放射性核種の結果を図-5 (d) に、宍道湖 St.40 におけるダイオキシン類の結果を図-5 (e) に示す。

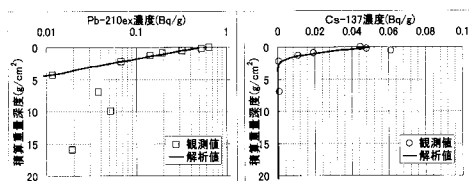


図-5(a) 宍道湖 St.44(堆積速度が遅い地点)

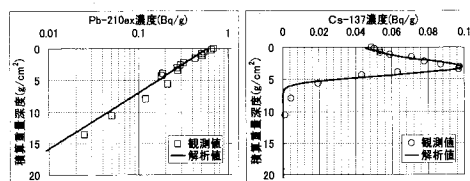


図-5(b) 宍道湖 St.13(堆積速度が普通の地点)

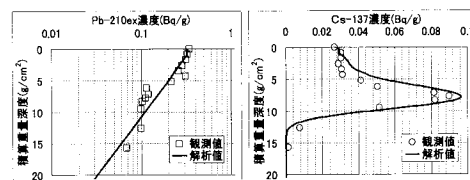


図-5(c) 宍道湖 St.40(堆積速度が速い地点)

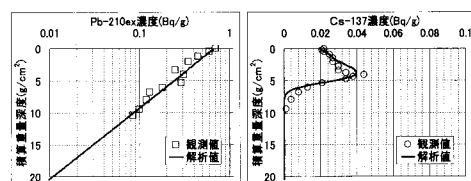


図-5(d) 中海 St.34

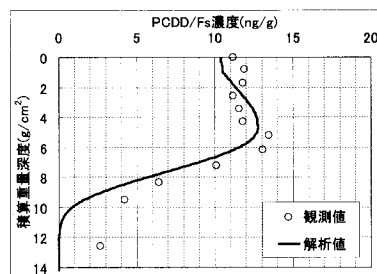


図-5(e) 宍道湖 St.40(ダイオキシン類)

6. 考察

(1) 混合層の効果

混合層厚または混合係数を大きくすると、堆積物内の濃度がより深層に移動する。特に Cs-137 など供給量に時間的な分布がある物質においてその傾向が明確であり、物質がはやく深層へ移動するとともに鉛直方向の濃度勾配を平滑化する効果が確認できた。

(2) 再懸濁層の効果

再懸濁層は、化学物質を高濃度に長期間貯留する効果があり、さらに堆積物内への物質供給量の時間的な変化を平滑化する効果が確認できた。底生生物や底魚などに対する化学物質の影響を考慮する上で、再懸濁層の効果は大きいと考えられる。また再懸濁層厚 δ は、各観測地点のシルト粘土含有率と相関が強いことが確認できた(図-6 参照)。

(3) 堆積速度の推定精度

従来における堆積速度の算出においては、一般に Pb-

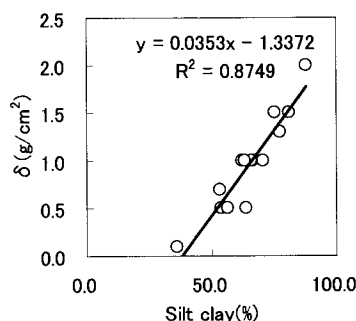


図-6 再懸濁層厚 δ とシルト粘土含有率の相関

210 ex や Cs-137 を用いた年代測定法が用いられている。金井ら (1997) は宍道湖の全 15 点において堆積速度を推定しているが、2 点を除いて Pb-210 法による堆積速度が Cs-137 法によるそれよりも大きな値を示している (表-1 参照)。Pb-210 法においては堆積物中での混合がないものとして、または混合が疑われる層を除外して堆積速度を算出しているため、また Cs-137 法では供給量の特徴がある年代部分の同定が必ずしも明確でない場合があるため、推定誤差が生じていると考えられる。実現象としては混合が存在する環境であり、したがって、堆積環境を精度よく見積もるためには、混合の影響を考慮した堆積速度を新たに設定することが重要となる。

理論上、従来の Pb-210 法による堆積速度は、混合を考慮した堆積速度より大きな値となる。その誤差は $4D\lambda/S^2$ が大きいほど増大し、 $4D\lambda/S^2 \ll 1$ の時に無視し得る (中村・山崎, 2004)。また、Cs-137 法による堆積速度に対する Pb-210 法による堆積速度の比が大きい地点ほど、混合の効果が堆積速度に大きな影響を与える傾向がある。

本研究では、 D を考慮した堆積速度の推定値として、Pb-210 法による堆積速度と Cs-137 法による堆積速度の平均値を用いて解析を行った。本解析においても、堆積速度が遅い地点 (宍道湖 St.11, 44, 46, 52 など)、または非常に大きな混合が想定できる地点 (宍道湖 St.15 など) では、混合係数 D を考慮した堆積速度を設定することが Pb-210 ex および Cs-137 の鉛直分布をとともに再現する上で重要であった。

7. 結 論

堆積物表層での混合を考慮した堆積速度を設定し、解析を行った結果、宍道湖内の全観測点および中海の一部を除く観測点において、Pb-210 ex および Cs-137 の観測結果を精度良く再現できた。また宍道湖 St.40 におけるダイオキシン類の堆積分布も再現することができた。

モデルは 4 つの過程 (混合過程、再懸濁過程、河川流域による貯留過程、物質の壊変や分解) を考慮した。堆積物中の鉛直分布を再現する上で、特に混合層と再懸濁層はそれぞれ重要な役割を果たしていた。また、物質の供給は大気由来・河川由来としてそれぞれ設定することにより、物質由来の相違を反映することができた。

本論文が提案したモデルは、堆積物中に含まれる有害化学物質が底生生物を含む水生生物、および沿岸生態系に及ぼす影響を評価し、沿岸域における化学物質を管理するためのツールとなるものである。生物や生態系への影響を評価する上では、今後、実験的に粒子態と溶解態の分配係数を求め、溶解態成分の挙動についても記述できるようにする必要がある。

謝辞：本研究を進めるにあたり、金井豊氏 (産業技術

総合研究所・海洋資源環境研究部門) には、宍道湖・中海における観測データを提供していただきました。ここに謝意を表します。

参 考 文 献

- 大西健一・姚 元・益永茂樹・吉田喜久雄・中西準子・山室真澄 (2002): 宍道湖におけるダイオキシン類の動態解析, 第 36 回日本水環境学会年会講演集, p. 462.
- 金井 豊・井内美郎・片山 肇・斎藤文紀 (1995): ^{210}Pb , ^{137}Cs 法による長野県諏訪湖底質の堆積速度の見積もり, 地調月報, vol. 46, pp. 225-238.
- 金井 豊・井内美郎・山室真澄・徳岡隆夫 (1997): 島根県宍道湖における堆積速度と堆積環境, 地球化学, vol. 32, pp. 71-85.
- 金井 豊・山室真澄・井内美郎・徳岡隆夫 (2002): 島根・鳥取県中海における堆積速度と堆積環境, 地球化学, vol. 36, pp. 161-178.
- 環境庁 (1999): ダイオキシン類緊急全国一斉調査結果について (平成 10 年度実施).
- 環境庁 (2000): 内分泌攪乱化学物質問題への環境庁の対応方針について—環境ホルモン戦略計画 SPEED'98—, 2000 年 11 月版.
- 交通エコロジー・モビリティ財団 (2001): 港湾におけるダイオキシン類分布調査報告書.
- 酒井伸一・出口晋吾・浦野真弥・高月紘・恵 和子 (1999): 琵琶湖および大阪湾底質中のダイオキシン類に関する歴史トレンド解析, 環境化学, vol. 9, No. 2, pp. 379-390.
- 中村由行・小沼 晋・安井誠人・田中裕作 (2002): 内湾底泥における内分泌攪乱物質の分布について, 第 36 回日本水環境学会年会講演集, p. 21.
- 中村由行・山崎智弘 (2004): 堆積物表層混合層と再懸濁層を考慮した化学物質の鉛直分布構造の解析, 港湾空港技術研究所報告, (印刷中).
- 橋本俊也・柳 哲雄・武岡英隆・高田秀重 (1998): 東京湾の PCB 分布・堆積モデル, 沿岸海洋研究, 第 36 巻, 第 1 号, pp. 77-82.
- 細川恭史・安井誠人・吉川和身・田中裕作・鈴木幹夫 (2001): 港湾における底質中の内分泌攪乱化学物質の全国調査, 海岸工学論文集, 第 48 巻, pp. 1111-1115.
- 益永茂樹 (1999): 日本の環境中ダイオキシンは何に由来しているか, 水情報, No. 12, vol. 19, pp. 4-11.
- 益永茂樹 (2000): ダイオキシン類の流域挙動の総合解析—宍道湖の事例研究—, 第 3 回化学物質のリスク評価・リスク管理に関する国際ワークショップ.
- 益永茂樹・姚 元・高田秀重・桜井健朗・中西準子 (2001): 東京湾のダイオキシン汚染 組成と汚染源の推定, 地球化学, vol. 35, pp. 159-168.
- 山崎秀夫・寺田孝太郎・小川喜弘・横田喜一郎・合田四郎 (1998): 湖沼及び沿岸堆積物中の放射性核種の鉛直分布に対する混合層の効果, 近畿大理工学部研究報告, 第 34 号, pp. 83-90.
- Guinasso, Jr. N. L. and D. R. Schink (1975): Quantitative estimates of biological mixing rates in abyssal sediments, J. Geophys. Res., 80, pp. 3032-3043.
- Masunaga, S., Y. Yao, I. Ogura, S. Nakai, Y. Kanai, M. Yamamuro, J. Nakanishi (2001): Identifying Source and Mass Balance of Dioxin Pollution in Lake Shinji Basin, Japan, Environmental Science & Technology, vol. 35, No. 10, pp. 1967-1973.
- Nagao, S., T. Matsunaga, S. Muraoka (1999): Geochemical association of ^{137}Cs and $^{239,240}\text{Pu}$ in the oligotrophic and mesotrophic lakes sediments, J. Radioanal. Nucl. Chem., vol. 239, No. 3, pp. 555-559.