

独立行政法人港湾空港技術研究所

# 港湾空港技術研究所 報告

---

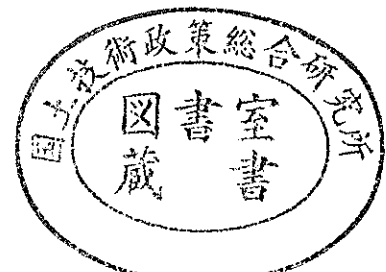
REPORT OF  
THE PORT AND AIRPORT RESEARCH  
INSTITUTE

---

VOL.43    NO.3    September 2004

NAGASE, YOKOSUKA, JAPAN

INDEPENDENT ADMINISTRATIVE INSTITUTION,  
PORT AND AIRPORT RESEARCH INSTITUTE



# 港湾空港技術研究所報告 (REPORT OF PARI)

第 43 卷 第 3 号 (Vol.43, No.3), 2004年9月 (September 2004)

## 目 次 (CONTENTS)

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 .....	中村 由行・山崎 智弘 ..... 1
(A model for predicting vertical distribution of chemicals in sediments: Effects of surface mixed layer and resuspension layer .....)	Yoshiyuki NAKAMURA, Tomohiro YAMASAKI

## 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

中村 由行\*・山崎 智弘\*\*

### 要 旨

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依然として高濃度に残留しており、水生生物や生態系への影響が懸念されている。

本研究では、過去数十年程度の間堆積物中に蓄積されてきた有害化学物質の鉛直濃度分布構造を再現するために、モデルの構築を行うものである。堆積物中の鉛直濃度分布は、過去の汚染負荷の履歴を反映しており、また堆積物表層での物理的・生物的な攪乱、分解や壊変、さらには巻き上げなどによる水中への回帰などの過程の影響を受けている。これらの諸過程の影響を考慮するため、本モデルは、堆積物表層における混合層、及び堆積物直上の再懸濁層を有する鉛直一次元構造とし、さらに、河川流域での貯留効果を考慮した。混合層については、最表層の強混合層と、その直下の弱混合層を与えた。物質の負荷は、大気から対象水域の水面に供給されるもの（大気由来）、及び流域から河川を経て供給されるもの（河川由来）をそれぞれ設定した。

本モデルを、化学物質の堆積分布や堆積物の物理的性状に関する詳細なデータが報告されている宍道湖・中海水系に適用した。

解析においては、まず、大気からの負荷履歴がよく知られている放射性核種、すなわち Pb-210 および Cs-137 の堆積分布観測値を用い、それらの濃度分布を再現することによって、宍道湖・中海両湖内計 29 地点での堆積環境を推定した。観測値より得られる物質負荷量や堆積速度などを各地点での入力条件とし、感度解析などによってモデルパラメーターの最適値を設定した。次に、宍道湖におけるダイオキシン類の堆積分布観測値について、堆積環境に関するパラメータについては放射性核種の場合と同じ値を用いて、鉛直濃度分布を再現した。

解析の結果、中海の一部を除くほとんどの観測点において濃度分布構造を精度良く再現することができた。二つの混合層および再懸濁層の存在はすべての地点における分布構造を再現するためには不可欠であること、再懸濁層は、河川流域での貯留と同様に、物質を長期間貯留する効果があり、濃度分布構造を決める上で重要な役割を果たしている事が見いだされた。また、大気由来・河川由来の供給源を設定することにより、燃焼系や農薬系などダイオキシン類が有する起源の相違の影響を考慮することができた。また、堆積速度を正確に見積もるためには、表層混合層での混合の影響を考慮することが必要であることが分かった。

キーワード：有害化学物質、鉛直分布モデル、表層混合層、再懸濁層、堆積速度、ダイオキシン類、鉛 210、セシウム 137、宍道湖、中海

\* 海洋・水工部沿岸生態研究室長

\*\* 海洋・水工部沿岸生態研究室研修生(東洋建設株式会社)

〒239-0826 横須賀市長瀬3-1-1 独立行政法人港湾空港技術研究所

電話：0468-44-5047 Fax：0468-44-6243 e-mail: nakamura\_y@pari.go.jp

## **A model for predicting vertical distribution of chemicals in sediments: Effects of surface mixed layer and resuspension layer**

**Yoshiyuki NAKAMURA \* · Tomohiro YAMASAKI \*\***

### **Synopsis**

The release of hazardous chemicals, such as dioxins, into the environment has been decreasing since the 1970s, but such chemicals have accumulated in high concentrations in the sediments of lakes and coastal areas. Therefore, evaluation of the biological and ecological risks of chemicals originating from such sediments is urgently needed in the context of management of chemicals in the water environment. In this study, we construct a mathematical model to reproduce the sedimentary processes and vertical distribution of chemicals that have accumulated in the sediment over the past several decades. The vertical distribution of chemicals is a reflection of the historical trend of pollution, and is affected by physical and/or biological disturbances of the surface layer, decomposition or decay, and efflux through resuspension. In order to include the consideration of such processes, we constructed a vertical one-dimensional model which has a resuspension layer, a surface strongly-mixed layer, a moderately mixed layer, and a stagnant layer. Chemical loading in the model is divided into a direct input process from the air and an indirect input through the river basin. The latter component includes the residence time within the river basin after the environmental release.

This model was applied to the basin of Lakes Shinji and Nakaumi where precise measurements of radionuclides and the physical properties of sediments have been reported. In the first step of the analysis, we tried to estimate the sedimentary process of each lake by reproducing the vertical distributions of Pb-210 and Cs-137 at 29 stations on the lakes. Model parameters were calibrated by using the loading rates of chemicals and the sedimentation rate as the input parameters. In the next step, we considered the vertical distribution of dioxins (PCDD/DFs) in the sediment of Lake Shinji with the same values for the model parameters as those for the sedimentary process of radionuclides.

The model gave good reproduction of the vertical distribution of dioxins at a station on Lake Shinji and those of Pb-210 and Cs-137 at almost of all the stations on both lakes, except for a few on Lake Nakaumi. The presence of two mixed layers and a resuspension layer in the model was found to be essential for analyzing the sedimentary process of the whole lakes. The resuspension layer had an effect of temporally accumulating chemicals and therefore played a definitive role in forming the vertical distribution of chemicals. Classification of the loading process into a direct input from the air and an indirect process through the river basin was important to analyze the effect of different sources of dioxins such as herbicides and combustion. In order to estimate the sedimentation rate accurately, it was necessary to take into account the mixing process in the surface mixed layer.

**Key Words:** hazardous chemicals, vertical distribution model, surface mixed layer, resuspension, sedimentation rate, dioxins, Pb-210, Cs-137, Lake Shinji, Lake Nakaumi

---

\* Head of Coastal Ecosystems Division, Marine Environment and Engineering Department, Port and Airport Research Institute

\*\* Toyo Construction Co. Ltd

3-1-1 Nagase, Yokosuka, 239-0826 Japan

Phone : +81-468-44-5047

Fax : +81-468-44-6243

e-mail: nakamura\_y@pari.go.jp

## 目 次

要 旨 .....	1
1. まえがき .....	5
2. 解析モデル .....	6
2.1 モデル概要 .....	6
2.2 宍道湖・中海水系の概要 .....	8
2.3 解析手順とパラメーターの設定 .....	10
3. 解析結果 .....	16
3.1 Pb-210exおよびCs-137 .....	16
3.2 ダイオキシン類 .....	20
4. 考察 .....	20
4.1 堆積速度 .....	20
4.2 再懸濁層の効果 .....	22
4.3 考慮した過程の必要性 .....	23
4.4 パラメーター相関 .....	25
4.5 感度解析 .....	27
4.6 モデルの課題 .....	30
5. 結論 .....	31
6. あとがき .....	31
謝辞 .....	31
参考文献 .....	31

## 1. まえがき

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(国土交通省港湾局, 2003)や、その他の機関(環境庁, 1999; 同, 2000; 運輸省港湾局環境整備課, 2000; 国土交通省港湾局, 2001; 交通エコロジー・モビリティ財団, 2001; 中村ら, 2002)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; 同, 2000)。

それらの研究結果によると、重金属類やダイオキシン類など、多くの有害化学物質は1970年から1990年代にかけての規制等により、現在ではその排出量は減少している。しかし、湖沼や沿岸の堆積物には過去に排出された有害化学物質が依然として多く残留しており、堆積物からの溶出や生物への取り込みなどによる二次的な汚染が懸念されている。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(益永ら, 2001; 酒井ら, 1999; Masunaga et al., 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 対象水域における移流・拡散・沈降などの輸送プロセス
- ③ 堆積物中における堆積・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働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。

これに対して堆積プロセスは、一般的に河川から供給される懸濁粒子が水底面に沈降し、年々層を重ねながら堆積するといった鉛直1次元の特性の強い過程であるため、

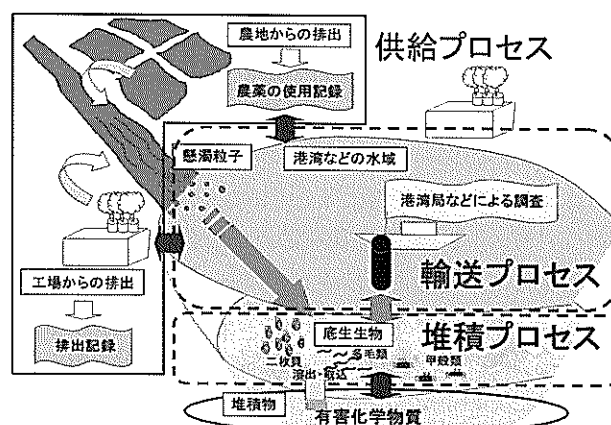


図-1 有害化学物質の環境中における挙動を解明するための3つのプロセス

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。

これまでに堆積物表面における巻き上げや再沈降など粒子の物理的挙動に関する研究は多くなされている。例えば、高波浪時や洪水時など堆積物表層に大きな力が作用する場合には、堆積物表層が攪乱されることが考えられ、また、底生生物の活動による堆積物の混合も無視できないことが分かってきた(金井ら, 1995)。さらに、閉鎖性の強い港湾や湖沼では、粒径の細かなシルトを主体とした土砂が高含水な浮泥として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 et al., 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をはじめとし、その挙動の多くは明らかではない。

Guinasso and 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鉛直1次元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、過去に沈降した物質が長期にわたっ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)は東京湾堆積物中のPCB分布を対象として再懸濁層を考慮したモデルで再現しているが、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。

さらに志々目ら(2002)は、東京湾堆積物中のCs-137濃度分布を、堆積物表層における混合層を1boxとしたモデルにより再現している。この中で、堆積物直上に与えるCs-137の供給量の時間変化は、堆積物中の濃度分布が再現できるように試行錯誤的に任意に与えている。その結果、堆積物へのCs-137の供給は、大気由来のみでなく、一定量が流域から負荷していることを示唆している。

本研究では、堆積物表層の混合層および再懸濁層に着目し、これら両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。ここで、混合層は強混合層と弱混合層の二層を設定した。物質供給量についても供給源別(大気由来・河川由来)に設定できるものとした。

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-2参照)。第一に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(本稿では、宍道湖堆積物中のダイオキシン類を対象とした)が、水域内の堆積地点に到達した段階の過去数十年にわたる供給量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ために必要な堆積環境パラメーターを設定した。最後に対象とする化学物質の堆積においても同様な堆積速度や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(堆積環境パラメーターは同様とし)、対象とする化学物質の供給量を与え鉛直分布を再現した。

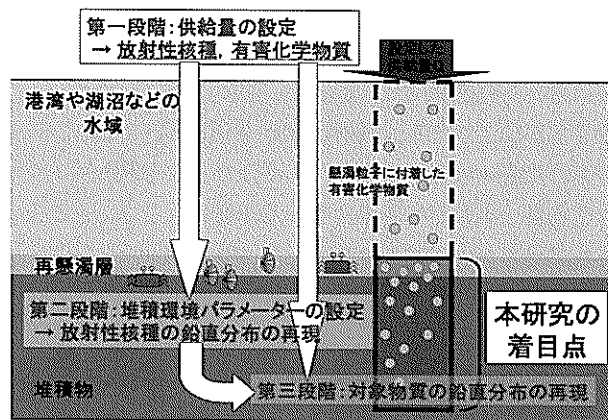


図-2 本研究の着目点と解析手順

実用面においては、本解析手法を用いれば、堆積物中の化学物質の分布から、過去の汚染履歴を逆推定することが可能である。同様の試みは益永ら(2000)により行われており、放射性核種の分布から堆積年代を推定(金井ら, 1997)し、その年代層のダイオキシン類濃度から流域に放出されたダイオキシン類が水域に流達する割合や流域内で残留している量を議論している。しかしながら、彼らの解析に

おいては堆積物表層の混合層や再懸濁層の存在は考慮されておらず、年代の推定精度や物質の堆積物への供給速度を推定する上で誤差を生じる可能性がある。

益永らの解析を含め、従来の一般的な堆積速度推定法は、二種類の放射性核種、すなわちPb-210exとCs-137の両方を用いた方法であるが、両者の推定値に大きな差が生じることがある。その原因のひとつは堆積物内の粒子の混合であると考えられるが、その影響を考慮したモデルは少ない。

## 2. 解析モデル

### 2.1 モデル概要

湖沼や沿岸海域に供給される化学物質は、一般に大気由来と河川由来に大別される。たとえば、焼却炉などで燃焼されたダイオキシン類は、一度大気中に放出され地上に降下する。このとき湖沼や海域に直接降下するものが大気由来である。陸地部に降下したのものについては、土砂粒子や有機質に吸着した粒子態、もしくは雨水などに溶け込んだ溶存態として、河川を経由して対象水域に供給される。これが河川由来である。田畑に散布された農薬などが排水とともに河川を通じて水域に供給されるものも河川由来といえる。この水域に供給される大気由来と河川由来の割合については、それぞれの物質の使用状況などの放出環境(発生源)により、物質ごとに異なることは容易に想像できるところであり、再現やシミュレーションを行う際には注意しなければならない点である。

大気由来および河川由来により対象水域に到達した化学物質は、波や潮汐、温度差や密度差などを外力とした流れや乱流拡散により水域内を移流分散する。一部は沖合の海域に達するものもあるがその割合または量については、物質ごとにまた水域の条件ごとに異なり、明らかではない。

しかし、堆積物のコアをサンプリングし分析することにより、対象水域の堆積物内に供給された物質量の履歴を知ることが可能である。また、対象水域およびその水域に注ぎ込む河川流域に放出された物質量の経時変化を調査することも可能である。したがって、本モデルでは過去数十年にわたる環境中への放出全量のうち、対象地点にどの程度の割合で到達してきたかを、これらの物質質量比をもって設定している。

また、堆積物直上にシルトや粘土粒子を主材料として形成された含水率の高い浮泥層が存在している場合がある。浮泥層には、有機物と相関の高い微細粒子が多く含まれている。化学物質の多くは、有機物に吸着しているとも言われており、したがって、浮泥層に多くの化学物質が貯留される可能性がある。また浮泥層は、流れによる巻上げの影

響を受けやすい。本研究では、この浮泥層を再懸濁層と呼ぶ。

さらに、水域の堆積物表層にはさまざまな生物が生息しており、波や流れの影響とあわせ、堆積物を乱す要因となっている。一般的に、大部分の底生生物は表層数センチに生息しているが、一部、穴ジャコなどの生物は表層より数十センチから1メートル程度と比較的深い範囲に生息している。これらの影響で、堆積物の表層部分は深層部に比べ土粒子の混合の割合が大きく、堆積物表層部では堆積物内に供給された物質濃度が均一または一様な勾配となることが考えられる。

また、物質の数十年にわたる挙動を把握するためには、物質自体の壊変や分解を考慮する必要がある。ここで壊変とは、ある物質が時間経過とともに安定な物質へ変わることである。

したがって、解析モデルは以下の事項を考慮した。

- ・対象地点での供給量
- ・再懸濁層
- ・堆積物表層における生物および流れに起因する混合
- ・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つつ堆積物中に堆積するものとした。堆積物は、年代の古い順から表層に降り積もり、表層混合の影響を受けつつ、時間を経ることにより堆積速度 $S$ の割合で堆積物下層へ押し込まれる。ここに、再懸濁層と混合層の界面の深さ、および厚さは一定としている。

金井ら(1997)によると、放射性核種などは細かな粒子に吸着しているとの記載がある。また、Megumi(1978)は、諏訪湖底質のPb-210が土壌粒子と鉄・マンガン水酸化物に捕捉されることを指摘している。Nagao et al. (1999)らもCs-137は主に有機物フラクションとアルシノケイ酸塩フラクションに存在しており、堆積物の有機物含有量が放射性核種の存在形態に違いを与えているとの報告を行っている。さらに長屋(2001)は、同じ重量であれば粗粒子より表面積の大きな微細粒子が多く放射性核種を吸着していること、また水中の生物を起源とする粒子も放射性物質を堆積物に供給する要因となっていること、すなわち堆積物内の有機炭素量と放射性核種の濃度に相関があることを述べている。また福嶋(2004)は、有機酸として知られている腐植物質が有害重金属などの化学物質を移動・拡散させるキャリアーとなることを述べている。したがって、本研究では、対象となる化学物質は粒子に付着あるいは吸着して沈降し、堆積物中に存在するものとする。

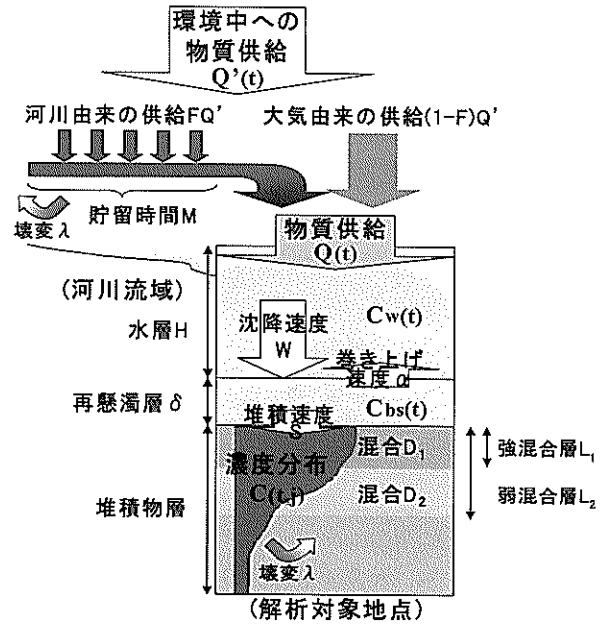


図-3 モデル概要図

モデルの概要を図-3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。

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

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

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

ここに、 $C_w \cdot C_{bs} \cdot C$  : 水中・再懸濁層・堆積物の物質濃度 (Bq/gもしくはng/gなど)、 $t$  : 時刻、 $H$  : 水深 (g/cm<sup>2</sup>)、 $\delta$  : 再懸濁層厚 (g/cm<sup>2</sup>)、 $Q(t)$  : ある時刻の観測点直上への供給量、 $Q'(t)$  : ある時刻の大気由来分と河川由来分をあわせた全供給量(環境中への供給量)、 $F$  : 河川流域貯留割合 (<1)、 $M$  : 河川流域での最大貯留時間、 $W$  : 沈降速度 (g/cm<sup>2</sup>/h)、 $\alpha$  : 巻き上げ速度 (g/cm<sup>2</sup>/h)、 $S$  : 堆積速度 (g/cm<sup>2</sup>/h)、 $L_1 \cdot L_2$  : 混合層厚 (g/cm<sup>2</sup>)、 $D_1 \cdot D_2$  : 混合層の拡散係数 (g<sup>2</sup>/cm<sup>4</sup>/h)、 $\lambda$  : 物質の壊変および分解定数 (h<sup>-1</sup>)、 $z$  : 堆積物表面からの積算重量深度 (g/cm<sup>2</sup>) である。

ここで簡単のために、水層および再懸濁層においては、深さ方向に一様としている。また、強混合層および弱混合層においては、それぞれの混合係数を $D_1$ 、 $D_2$ とし、さらに弱混合層以深においては混合がない( $D=0$ )としている。

積算重量深度とは、1cm<sup>2</sup>あたりの堆積粒子の積算重量であり、式(4)により換算する。(図-4参照)



$$z = \int_0^{z'} (1 - \phi) \rho dz' \dots (4)$$

ここに、 $z'$  : 堆積物表面から鉛直下方への距離 (cm),  $\phi$  : 間隙率,  $\rho$  : 粒子の密度 (g/cm<sup>3</sup>) である。

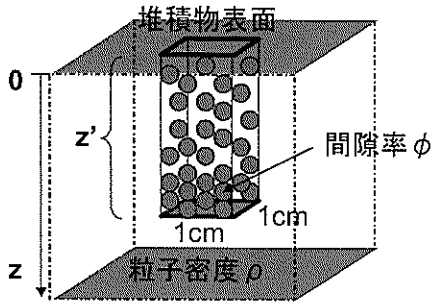


図-4 積算重量深度の概念図

化学物質は、直接湖に供給される大気由来と、河川流域から河川水とともに湖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。

大気由来以外の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に対する割合を貯留割合 $F$ ( $<1$ )とし、これらが水域に供給されるまでの貯留時間 $M$ (yr)を設定した。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。(図-3参照)

$Q'(t)$ をある時刻の大気由来分と河川由来分をあわせた全供給量とすると、河川流域に貯留する対象物質量は $F \times Q'$ 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(5)(6)に大気由来と河川由来を併せた観測点における供給量 $Q$ の算定式を示す。

$$Q(t) = (1 - F)Q'(t) + \sum_{i=1}^M q(i, t-i) \dots (5)$$

$$q(m, t) = [\exp(-\lambda \Delta t)]^m FQ'(t) / M \dots (6)$$

ここに、 $q(m, t)$  : ある年の供給量 $Q'(t)$ の計算該当時刻における河川流域からの水域への供給量,  $m$  :  $Q'(t)$ の貯留

経過時間 ( $0 < m < M$ ) である。

## 2.2 宍道湖・中海水系の概要

本モデルを適用する解析場所については、以下の点を踏まえ、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

### (1) 地形・地理的特徴

宍道湖・中海は島根県東部に位置している。宍道湖は湖面積約81km<sup>2</sup>(東西約16km, 南北約6.2km, 流域面積約1063km<sup>2</sup>), 平均水深約4.5mの浅い汽水湖沼である。また湖底は単純な盆状の形状である。東部の大橋川が中海に通じており、日本海からの海水が中海・大橋川を經由して間欠的に流入する。そのため平均的な塩分は海水の約10分の1程度(0.5~2.4%)となっている。主要河川としては西部の斐伊川が全淡水供給量の約7割を占めている。また山室ら(1997)によると、ヤマトシジミが沿岸部に集中して生息しているとしている。宍道湖の東岸に位置する松江气象台(緯度:北緯35度27.4分/経度:東経133度03.9分)での風の観測データを気象庁のホームページより引用し、図-5に示す。このように宍道湖ではほぼ毎年、西風から南西風が卓越しており、通年にわたり平均的な吹送流は、斐伊川河口側から北東岸に向けて卓越すると考えられる。

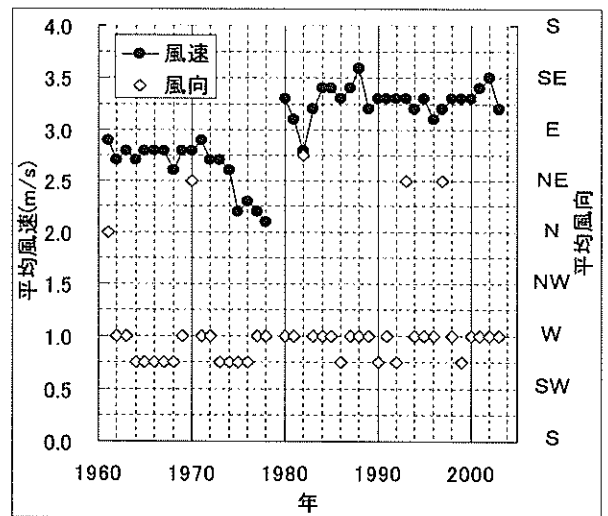


図-5 松江气象台における風観測値(1961~2003年)  
(気象庁のホームページより引用)

また、中村ら(2001)によると、湖内の温度成層や水面からの熱収支に起因する恒常流が湖内を時計回りで流れているとの報告がなされている。写真-1に宍道湖における

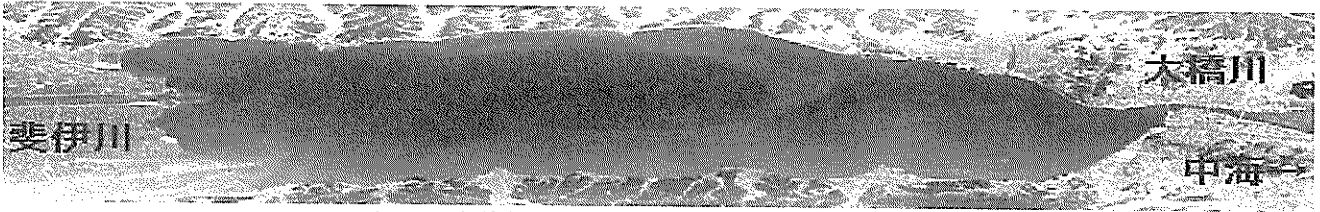


写真-1 宍道湖の航空写真(アジア航測㈱, 1998より引用)

航空写真を示す(アジア航測㈱, 1998). 写真からもそのような水平還流の存在が確認できる.

中海は湖面積約89km<sup>2</sup>(東西約18.3km, 南北約11.4km, 流域面積約661km<sup>2</sup>), 平均水深5.4mの汽水湖沼であり, 北東部の境水道により日本海に通じている. 塩分は, 表層で16psu程度, 底層で25~30psu程度である. 主要な淡水流入としては宍道湖から通じている大橋川と南東部の飯梨川が挙げられる. 二枚貝ではホトトギスガイが高密度に生息している. かつては大根島北方を反時計回りで海水が流入していたが, 1981年の堤防完成以来, 東側の中浦水門からのみ海水が流入するようになっている. 北西部の干拓事業は1963年に始まり1988年に中断, 2000年に中止となったが, 堤防内は中海と異なった挙動を示す水塊となっている. また, 1979年から中海浄化浚渫事業が行われ, 1985年から1993年にかけて浚渫工事が行われ, 約40万m<sup>3</sup>の底泥を浚渫している. これらのため, 湖内の流れや堆積環境がこの50年以内に大きく変化していることが考えられる. 図-6(a)(b)に河川位置図を, また表-1に河川流量を示す.

表-1 河川流量(市川, 2003より引用)

No.	流域名	集水面積 (km <sup>2</sup> )	流量比 (対斐伊川)	流量比 (対湖全体)
1	伊野川	24.16	0.033	0.023
2	船川	62.41	0.085	0.059
3	五右衛門川	38.97	0.053	0.037
4	新建川	33.73	0.046	0.032
5	佐々布川	33.73	0.046	0.032
6	斐伊川	732.40	1.000	0.689
7	大野川	9.65	0.013	0.009
8	秋鹿川	12.21	0.017	0.011
9	東長江川	6.97	0.010	0.007
10	来待川	28.08	0.038	0.026
11	佐陀川	32.15	0.044	0.030
12	玉湯川	24.13	0.033	0.023
13	尾部川	24.39	0.033	0.023
宍道湖流域		1062.98	1.45	1.00
14	松江市橋北地区	11.91	0.016	0.018
15	松江市橋南地区	3.90	0.005	0.006
16	朝酌川	34.19	0.047	0.052
17	馬橋川	12.82	0.018	0.019
18	大橋川下流	3.93	0.005	0.006
19	意宇川・揖保干拓	74.73	0.102	0.113
20	揖保地区	7.17	0.010	0.011
21	大井・大海崎地区	4.57	0.006	0.007
22	意東川・羽入川	15.20	0.021	0.023
23	自白川・久白川	5.15	0.007	0.008
24	加茂川・旧加茂川	25.58	0.035	0.039
25	島田・安来干拓地	13.23	0.018	0.020
26	伯太川・吉田川	156.06	0.213	0.236
27	彦名地区	7.64	0.010	0.012
28	霞津周辺	5.90	0.008	0.009
29	波入地区	1.35	0.002	0.002
30	田瀬川	11.73	0.016	0.018
31	飯梨川	210.40	0.287	0.318
32	中浜港周辺	4.58	0.006	0.007
33	渡辺	1.83	0.002	0.003
34	馬渡・廻江地区	0.63	0.001	0.001
35	江島地区	0.71	0.001	0.001
36	森山地区	9.55	0.012	0.013
37	境港市街	11.90	0.015	0.017
38	江島工業団地	0.54	0.001	0.001
39	上宇部尾地区	2.93	0.004	0.004
40	本庄川	11.59	0.016	0.018
41	長海川	6.20	0.008	0.009
42	入江地区	1.23	0.002	0.002
43	野原地区	1.50	0.002	0.002
44	二子・寺津・鶴尻地区	1.35	0.002	0.002
45	下宇部尾地区	3.20	0.004	0.005
中海流域		661.30	0.90	1.00

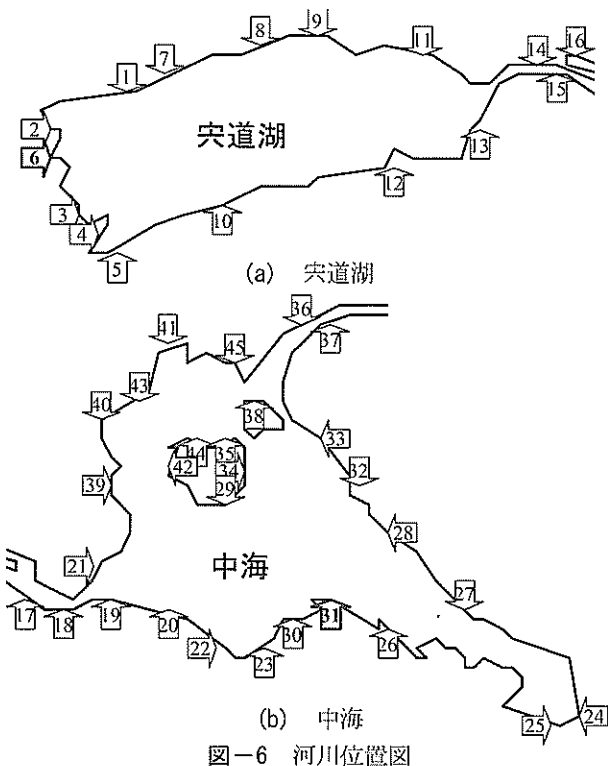


図-6 河川位置図

(2) 観測点

宍道湖・中海水系では, 金井ら(1997, 2002)が堆積環境を多面的に調査する研究の一環として, 1994年にPb-210exおよびCs-137の堆積状況の観測を行い, 堆積物中のインベントリーや堆積速度等を推定している.

また益永ら(1999, 2000)は, 金井ら(1997)が採取した宍道湖のコアの一部を用いて, ダイオキシン類濃度分布と発生源の推定を行っている.

さらに山室ら(1996)は宍道湖における含砂率や堆積物中の有機物炭素量や重金属などの堆積状況を面的に調査している.

図-7に宍道湖および中海の位置図と観測点のポイント(Stn.)を示す。

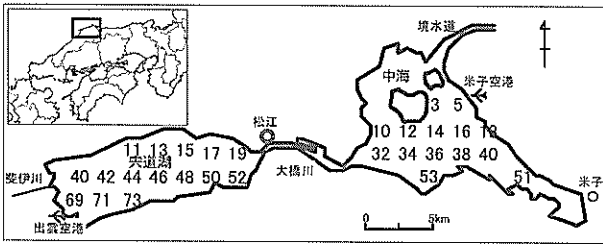


図-7 宍道湖・中海の位置図と観測点ポイント  
(地点番号Stn. は金井ら(1997, 2002)による)

## 2.3 解析手順とパラメーターの設定

### (1) 解析手順

解析手順を図-8に示し、以下に解説する。

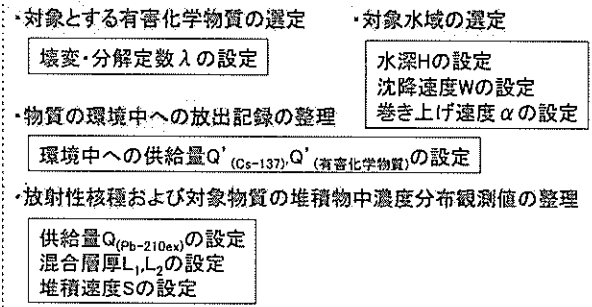
解析の事前準備として、まず対象とする有害化学物質を選定し、物質の壊変定数または分解定数 $\lambda$ を設定する。また過去に環境中に放出された対象物質質量についての記録または研究結果を入手の上、解析対象期間における供給量 $Q'$ の時間変化を設定する。 $Cs-137$ の環境中への供給量 $Q'$ については日本海洋学会(1986)などを参照し設定する。さらに対象水域での放射性核種(Pb-210exおよび $Cs-137$ )の堆積濃度分布を調査し、Pb-210exの堆積濃度分布より、Pb-210exの供給量 $Q$ および混合層厚 $L_1, L_2$ を設定する。またPb-210年代測定法および $Cs-137$ 年代測定法を用いて堆積速度 $S$ を推定する。さらに対象水域の水深 $H$ や、堆積物の粒径から沈降速度 $W$ を算出する。また、流況を考慮して適切に巻き上げ速度 $\alpha$ を設定する。

第一段階として、まず観測された堆積物中の濃度分布より対象物質および $Cs-137$ のインベントリーを算出し、環境中に放出された量 $Q'$ から堆積物直上に供給する量 $Q$ への換算係数を決定する。さらに式(1)(2)(3)を基礎式としたプログラムを作成した上で、Pb-210exおよび $Cs-137$ の表層部の濃度勾配のみに注目し、これを再現できる $D_1$ を設定する。次に $Cs-137$ の濃度分布において、 $M$ を仮設定し、 $F, D_2$ および $\delta$ を任意に変化させ、全ての観測点を再現できる最小の $M$ を設定する。次に比較的大きなPb-210exのインベントリーのある地点および数点を用い、 $D_2$ および $\delta$ を任意に変化させ、濃度分布を再現する $F$ 値を設定する。他の地点については、Pb-210exのインベントリー比に応じて設定する。

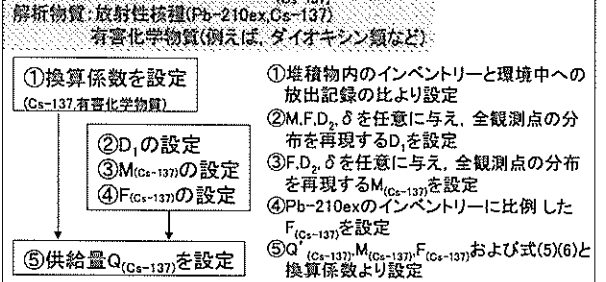
第二段階として、各地点において堆積環境パラメーターとして $D_2, \delta$ 以外のパラメーターを固定値として、Pb-210exおよび $Cs-137$ の濃度分布を再現する $D_2, \delta$ を設定する。

第三段階として、第一段階および第二段階で設定した各

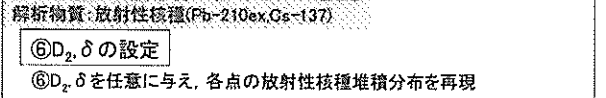
### 事前準備



### 第一段階：換算係数・供給量 $Q$ ( $Cs-137$ )の設定



### 第二段階：堆積環境パラメーターの設定



### 第三段階：対象物質の鉛直分布の再現

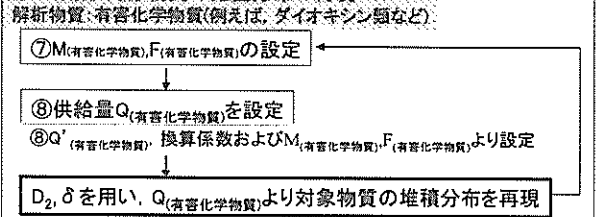


図-8 解析手順

パラメーターおよび対象とする有害化学物質の環境中への供給量 $Q'$ を用い、対象有害化学物質の濃度分布を再現する新たな $M$ および $F$ を設定する。

第一段階および第二段階での試行錯誤的な計算において、各パラメーターを設定する際の $M, F, \delta$ の関係について以下の記述する。

河川流域での貯留過程と再懸濁過程はともに貯留効果を持つ過程であり、再現計算において貯留時間 $M$ を変化させた場合、貯留割合 $F$ と再懸濁層厚 $\delta$ によりその影響をある程度補うことができる。 $Cs-137$ の堆積分布の再現において、 $M, F, \delta$ の関係を図示すると図-9のとおりであり、堆積分布は3つのパターンに分類できた。1つ目のパターンは、 $M$ を大きくするにつれ $F$ を小さくし $\delta$ が極小値をとったのちに増加するパターンである。2つ目のパターンは、再懸濁層厚が一定値以上必要であり、 $M$ の増加にともない $F$

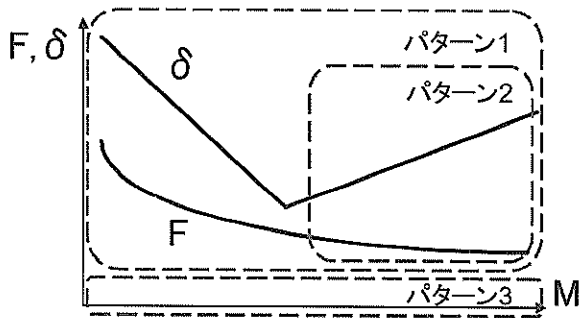


図-9 貯留効果パラメーターM, F,  $\delta$ の関係

が減少し $\delta$ が増加するといったパターンである。3つ目のパターンは、河川による貯留過程が必要なく、再懸濁層の貯留効果のみで観測値の鉛直分布を再現できるパターンであり、河川の影響が少ないと思われる。

貯留時間Mを短く設定した上で、観測値を再現できる貯留割合Fおよび再懸濁層厚 $\delta$ が存在するとする(図-9においてMが小さな場合)。すなわち河川流域に貯留された物質も壊変や分解により多く消滅することなく短時間で解析対象水域に供給される。この場合、観測値を再現するために必要な貯留効果は再懸濁層に期待される。もし、貯留時間を少し長くすると、その貯留効果の分担が再懸濁層から河川流域での貯留に移る。この際、再懸濁層を薄くすると同時に、河川流域での貯留時に壊変や分解により消滅する物質の堆積物内への影響を少なくするために貯留割合Fを小さくし、供給を大気由来にシフトすることにより供給量を確保する必要がある。再懸濁層厚 $\delta$ が最も薄くなるケースまでこのようなM, F,  $\delta$ の関係となる。この場合、再懸濁層が河川流域での貯留効果と同じ役割を果たしていると考えられる。さらに、再懸濁層厚 $\delta$ が最も薄くなるケースより貯留時間Mを長くすると、河川流域での壊変や分解による消滅分の影響が大きくなり、解析対象領域への供給量が少なくなる。この場合も同様に、堆積物内の物質を確保するために、貯留割合Fをさらに小さくし、大気由来の影響を大きくすることが必要となる。Cs-137のように時間経過とともに分布をもって供給される物質を想定すると、 $\delta$ が薄い状態で大気由来の供給量が増加すると、ピーク時の高濃度がそのまま堆積物内に移行するため、これを平滑化するために再懸濁層での貯留効果を高める必要がある。つまり再懸濁層厚 $\delta$ を大きくする必要がある。

度で供給されるものとした(図-10参照)。したがって、Pb-210exの再現計算においては式(5)(6)による供給量Qの算定は不要であり、貯留割合Fおよび貯留時間Mについても設定する必要はない。金井ら(1997, 2002)が行った年代測定の結果より図-11(a)(b)に示す値とした。

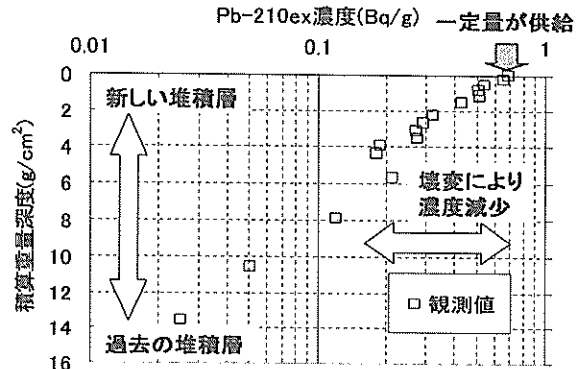
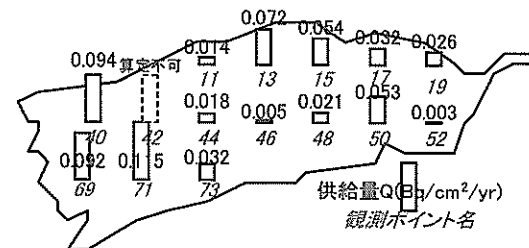
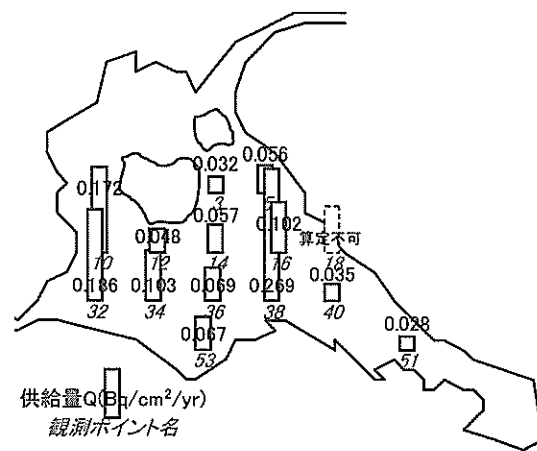


図-10 Pb-210exの鉛直分布(突道湖Stn. 13)



(a) 突道湖



(b) 中海

図-11 Pb-210ex供給量  
(金井ら(1997, 2002)より引用)

(2) 供給量に関するパラメーター

a) 物質供給量Q

ここではPb-210ex, Cs-137およびダイオキシン類の各観測点における供給量を設定する。

Pb-210exは、対象地点の堆積物において、常に一定の濃

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、突道湖および中海の観測点でのインベントリー比に応じた換算係数を乗じて用いた。東京湾にお

るCs-137のフォールアウト量(日本海洋学会, 1986)を図-12に示す。宍道湖および中海でのCs-137のインベントリを図-13(a)(b)に示す。宍道湖・中海でのCs-137の供給量Qは、東京湾のフォールアウト量に表-2に示す換算係数を乗じた値とした。

ダイオキシン類の供給量Qは、宍道湖へ供給された量が部分的に明らかでないため、仮定を設け、以下の手順で設定した。

[仮定]

- ・ダイオキシン類は、Co-PCBは換算に必要なデータが不足のため本研究の再現対象外とし、PCDD/Fsを対象とする。
- ・PCDD/Fsの発生源は、農薬由来と燃焼由来とする。
- ・農薬由来の構成は、PCP由来とCNP由来とする。
- ・農薬由来と燃焼由来の比は、全国と宍道湖で同程度とする。
- ・農薬由来と燃焼由来の放出毒性等量と放出重量の換算比は同程度とする。

[手順]

以下に示す放出毒性等量および放出重量の単位はそれぞれ、(g-TEQ/yr)および(kg/yr)である。

- ① 既知データである全国のPCDD/Fs放出毒性等量(農薬由来・燃焼由来)を整理する。
- ② 既知データである宍道湖のPCDD/Fs放出毒性等量(農薬由来)を整理する。燃焼由来の放出毒性等量は未知量である。
- ③ 全国と宍道湖における農薬由来(PCP由来とCNP由来)の平均放出毒性等量比を用い、宍道湖における燃焼由来の放出毒性等量を設定する。
- ④ 既知データである宍道湖における放出重量(農薬由来)を整理する。
- ⑤ 全国における農薬由来(PCP由来とCNP由来)の放出毒性等量と放出重量比の平均を用い、宍道湖の燃焼由来の放出重量を設定する。
- ⑥ 宍道湖における農薬由来と燃焼由来の放出重量を供給量とする。

図-14, 15に全国のPCDD/Fs放出毒性等量、宍道湖のPCDD/Fs放出毒性等量を、図-16に宍道湖におけるPCDD/Fs放出重量を示す。(図中の既知量は、益永ら, 1999; 同, 2000より)

ダイオキシン類の観測点は、宍道湖におけるStn. 40である。観測結果から得られたPCDD/Fsのインベントリは116.4(ng/cm<sup>2</sup>)である。したがって、宍道湖Stn. 40でのダイオキシン類(PCDD/Fs)の供給量Qは、宍道湖湖面を含む流域の単位面積あたりの放出重量に対するStn. 40におけるインベントリ比1.23を乗じた値とした。

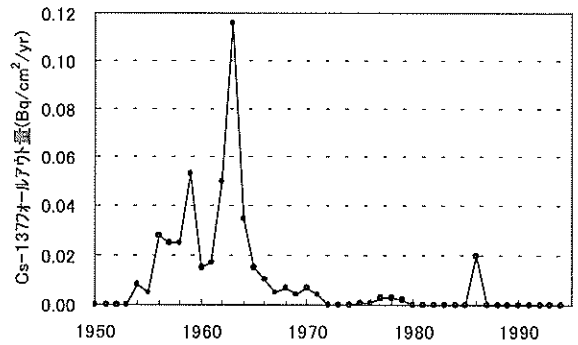
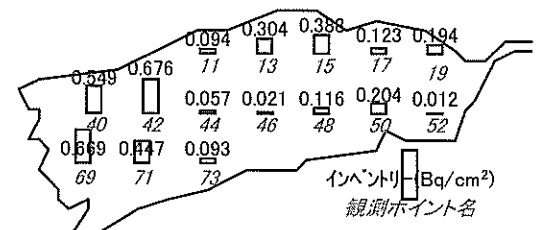
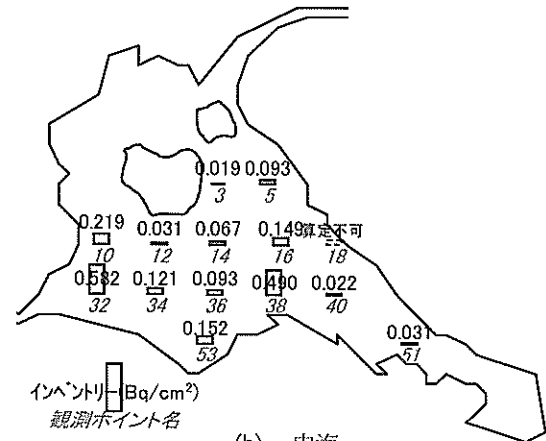


図-12 東京湾でのCs-137フォールアウト量 (Bq/cm<sup>2</sup>/yr) (日本海洋学会(1986)より引用)



(a) 宍道湖



(b) 中海

図-13 Cs-137インベントリ (金井ら(1997, 2002)より引用)

表-2 Cs-137供給量換算係数

	Stn.	換算係数		Stn.	換算係数
	宍道湖	11		0.604	中海
13		1.953	5	0.598	
15		2.493	10	1.407	
17		0.790	12	0.199	
19		1.246	14	0.430	
40		3.527	16	0.957	
42		4.343	18	-	
44		0.366	32	3.739	
46		0.135	34	0.777	
48		0.745	36	0.598	
50		1.311	38	3.148	
52		0.077	40	0.141	
69		4.298	51	0.199	
71		2.872	53	0.977	
73	0.598				

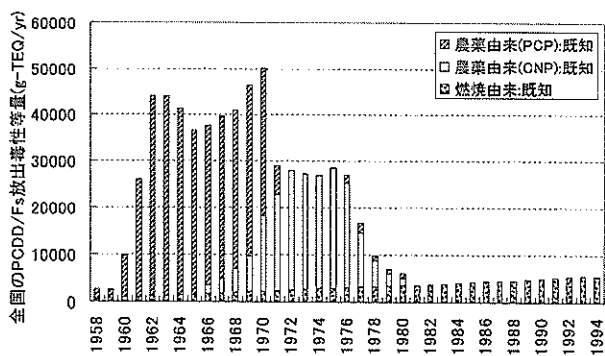


図-14 全国のPCDD/Fs放出毒性等量  
(既知量は益永ら(1999)より引用)

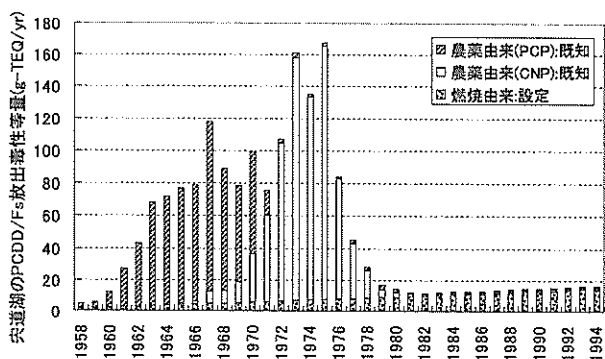


図-15 宍道湖のPCDD/Fs放出毒性等量  
(既知量は益永ら(2000)より引用)

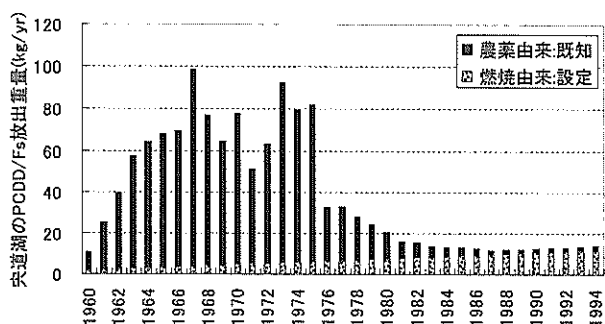


図-16 宍道湖の放出重量  
(既知量は益永ら(2000)より引用)

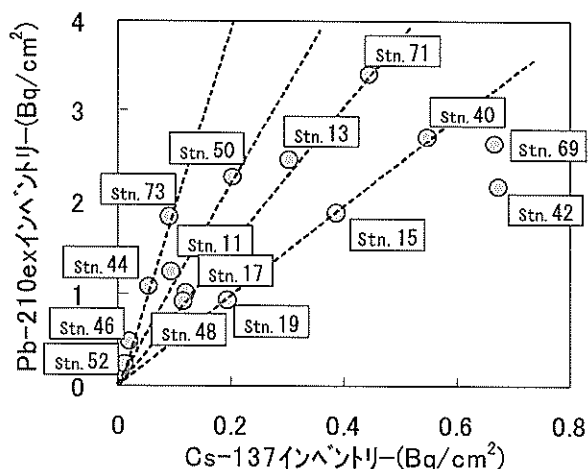
b) 河川流域での貯留割合F

Cs-137における河川由来としての貯留割合Fは、以下のよう設定した。

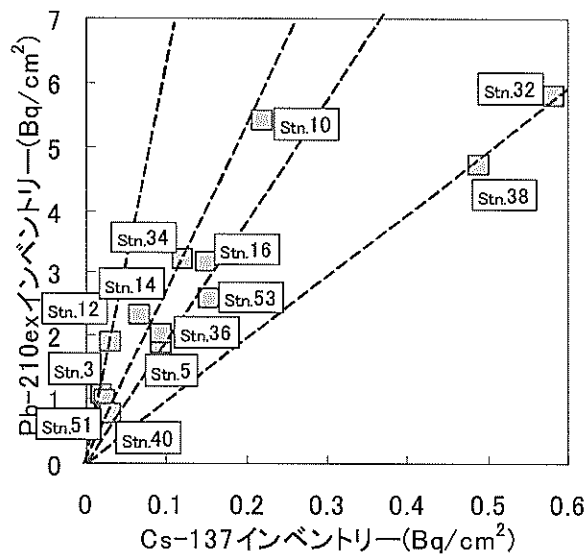
以下の仮定から、Cs-137の再現計算におけるFはPb-210exのインベントリーに比例して設定した。

【仮定】

- ・大気由来の供給量は各観測地において一定であり、全供給量の大小の差は河川由来の供給量に依存する。
- ・Pb-210exとCs-137は、河川の影響を同程度受ける。
- ・Cs-137は淡水には溶解せず集積するが、海水には溶解



(a) 宍道湖



(b) 中海

図-17 Pb-210exとCs-137のインベントリーの関係

表-3 Pb-210exのインベントリー(金井ら(1997, 2002)より引用)と貯留割合F

宍道湖			中海		
Stn.	Inv <sub>(Pb-210ex)</sub> (Bq/cm <sup>2</sup> )	F	Stn.	Inv <sub>(Pb-210ex)</sub> (Bq/cm <sup>2</sup> )	F
11	1.23	0.18	3	1.08	0.03
13	2.44	0.35	5	1.87	0.06
15	1.86	0.27	10	5.42	0.17
17	0.99	0.14	12	1.90	0.06
19	0.92	0.13	14	2.33	0.07
40	2.69	0.39	16	3.17	0.10
42	2.16	0.31	18		
44	1.07	0.15	32	5.81	0.18
46	0.48	0.07	34	3.21	0.10
48	0.91	0.13	36	2.04	0.06
50	2.25	0.32	38	4.74	0.15
52	0.23	0.03	40	0.98	0.03
69	2.63	0.38	51	0.76	0.02
71	3.4	0.49	53	2.60	0.08
73	1.81	0.26			

および分解する。

- ・Pb-210exは、ほとんど溶解しない。
- ・宍道湖および中海は汽水湖であり、海水の影響を受けるため、河川からの流下時間により溶解または分解が起こる。

図-17(a) (b)にPb-210exとCs-137のインベントリーの関係を示す。

全観測点における河川流域での貯留割合Fは以下の手順で求めた。

[手順]

- ①宍道湖および中海でのPb-210exのインベントリーが平均的なStn. 13(宍道湖)およびStn. 34(中海)でフィッティングにより最適なF値を求めた。
- ②Stn. 13(宍道湖)およびStn. 34(中海)でのF値と、原点(Pb-210exのインベントリーが0の場合は、F=0)を結ぶ式(7)を導出する。

$$F = a \times \text{Inv}_{(Pb-210ex)} \quad \dots (7)$$

ここに、a：比例定数(宍道湖の場合0.143、中海の場合0.031)、 $\text{Inv}_{(Pb-210ex)}$ ：Pb-210exのインベントリー(Bq/cm<sup>2</sup>)である。表-3にPb-210exのインベントリーとFの値を、図-18にF値の分布を示す。ダイオキシン類における河川由来としての貯留割合Fは、フィッティングパラメーターとした。

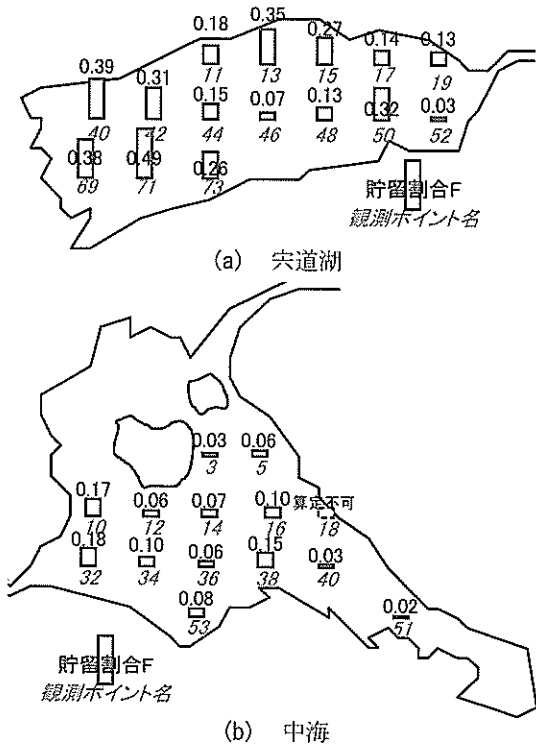


図-18 貯留割合F

c) 河川流域での貯留時間M

宍道湖・中海水系におけるCs-137の貯留時間Mは100年とし、一定とした。ダイオキシン類の貯留時間Mは、フィッティングパラメーターとした。

(3) 再懸濁層に関するパラメーター

a) 再懸濁層厚δ

再懸濁層厚δは、フィッティングパラメーターとした。

b) 堆積速度S

本解析では混合を考慮した堆積速度Sとして、従来のPb-210法およびCs-137法により算出された値の平均を用いるものとした。

宍道湖および中海における従来のPb-210法およびCs-137法により算出された堆積速度(金井ら, 1997; 同, 2002)を表-4(a) (b)に、本解析で用いた堆積速度を表-4(a) (b)および図-19(a) (b)に示す。

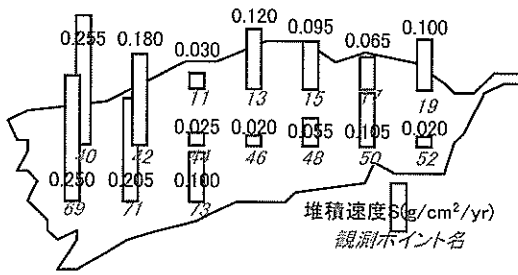
表-4 堆積速度S(Pb-210法およびCs-137法は金井ら(1977, 2002)より引用)

(a) 宍道湖

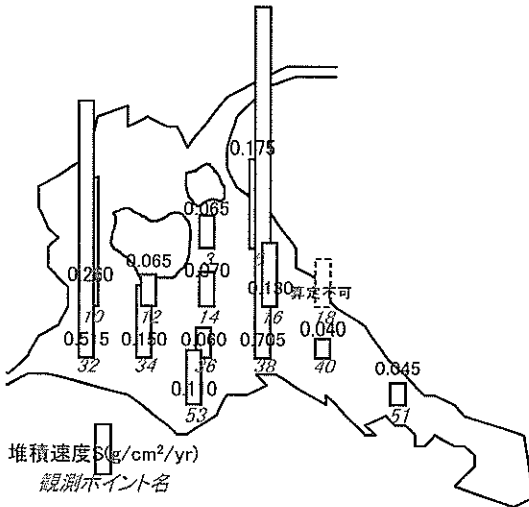
Stn.	堆積速度S(g/cm <sup>2</sup> /yr)		
	年代測定法		平均値
	Pb-210法	Cs-137法	
11	0.04	0.02	0.030
13	0.13	0.11	0.120
15	0.12	0.07	0.095
17	0.09	0.04	0.065
19	0.09	0.11	0.100
40	0.26	0.25	0.255
42	-	0.18	0.180
44	0.03	0.02	0.025
46	0.03	0.01	0.020
48	0.08	0.03	0.055
50	0.13	0.08	0.105
52	0.03	0.01	0.020
69	0.28	0.22	0.250
71	0.20	0.21	0.205
73	0.14	0.06	0.100

(b) 中海

Stn.	堆積速度S(g/cm <sup>2</sup> /yr)		
	年代測定法		平均値
	Pb-210法	Cs-137法	
3	0.12	0.01	0.065
5	0.2	0.15	0.175
10	0.23	0.29	0.26
12	0.09	0.04	0.065
14	0.12	0.02	0.07
16	0.16	0.10	0.13
18	-	-	-
32	0.44	0.59	0.515
34	0.17	0.13	0.15
36	0.07	0.05	0.06
38	0.74	0.67	0.705
40	0.08	0.00	0.04
51	0.04	0.05	0.045
53	0.09	0.13	0.11



(a) 宍道湖



(b) 中海

図-19 堆積速度S(解析採用値)

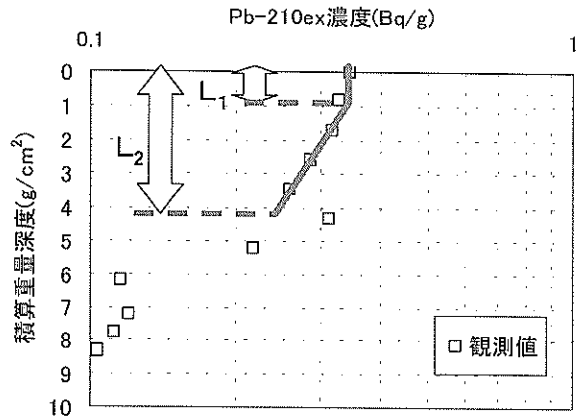


図-20 混合層厚さの設定(宍道湖Stn. 40のPb-210ex)

表-5(a) 混合層厚L<sub>1</sub>およびL<sub>2</sub>の設定値(宍道湖)



値を再現するフィッティングパラメーターとした。

(5) その他のパラメーター

a) 壊変および分解定数λ

壊変および分解定数λは、Pb-210exは0.0311yr<sup>-1</sup>(半減期22.3年)、Cs-137は0.0229yr<sup>-1</sup>(半減期30.17年)とした。ダイオキシン類については益永(2000)が宍道湖湖底のコアサンプリングより0.009~0.014yr<sup>-1</sup>(半減期55~70年)と推算している。したがって、ここでは0.01 yr<sup>-1</sup>とした。図-21にそれぞれの物質の時間経過に伴う残存率を示す。

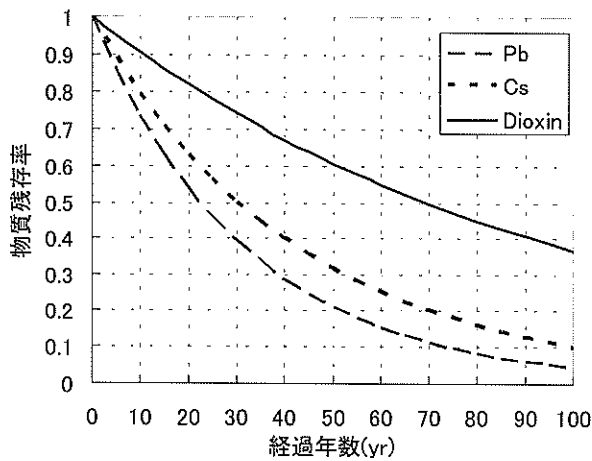


図-21 壊変および分解による物質残存率

b) 水深H

宍道湖および中海の各観測点における水深を表-6に示す。本解析ではH=5.0mで一定とした。積算重量深度の単位に換算するために粒子の密度ρ<sub>s</sub>を乗じてH=1250(g/cm<sup>2</sup>)を解析に用いる。

表-6 宍道湖および中海の水深

	Stn.	水深H (m)		Stn.	水深H (m)
	宍道湖	11		4.9	中海
13		5.0	5	不明	
15		4.9	10	5.1	
17		4.5	12	6.9	
19		3.8	14	7.4	
40		不明	16	7.9	
42		5.2	18	不明	
44		5.5	32	4.2	
46		5.5	34	不明	
48		5.2	36	6.9	
50		4.8	38	6.2	
52		4.2	40	7.2	
69		4.6	51	不明	
71		5.1	53	5.5	
73	5.2				

c) 沈降速度W

対象となる化学物質は粒子に付着あるいは吸着して沈降するものとする。宍道湖における堆積物の中央粒径d<sub>50</sub>は4.5~62.5μmであり、式(8)に示すStokesの式より沈降速度Wを算出すると、W=6~1150(cm/h)となる。

$$W = \frac{g(\rho - \rho_w)d^2}{18\mu} \dots (8)$$

ここに、W：単粒子の終末沈降速度(m/s)、g：重力加速度(m/s<sup>2</sup>)、ρ：粒子の密度(=2500kg/m<sup>3</sup>)、ρ<sub>w</sub>：媒体の密度(=1000kg/m<sup>3</sup>)、d：粒子の直径(m)、μ：媒体の粘性係数(=0.001kg/m/s20℃)である。

本研究では、代表的な値としてW=120(cm/h)として、積算重量深度の単位に換算するために粒子の密度ρ<sub>s</sub>を乗じてW=300(g/cm<sup>2</sup>/h)を解析に用いる。これは、粒径約20μmの粒子の沈降速度に相当する。

d) 巻き上げ速度α

巻き上げ速度αは、0.05cm/day程度を想定し、積算重量深度の単位に換算するために粒子の密度ρ<sub>s</sub>を乗じてα=0.005(g/cm<sup>2</sup>/h)を一定値として解析に用いる。

e) 解析再現期間

再現期間は、Pb-210exは200年(1795-1994)、Cs-137およびダイオキシン類は45年(1950-1994)とした。

f) 解析格子間隔

計算格子間隔Δzは0.07g/cm<sup>2</sup>とした。これは含水比100%、土粒子密度2.5(g/cm<sup>3</sup>)、海水密度1.03(g/cm<sup>3</sup>)の場合の堆積物において1mm程度に相当する。また、計算時間間隔Δtは1hとした。

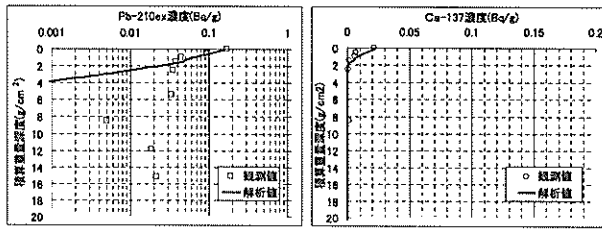
3. 解析結果

3.1 Pb-210ex および Cs-137

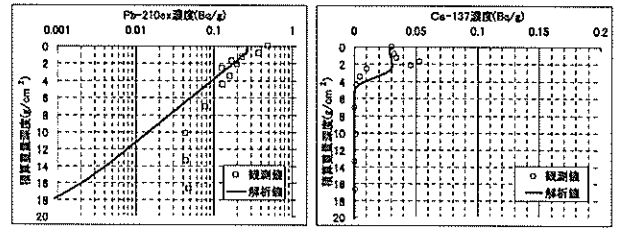
(1) 宍道湖

各観測点において、固定パラメーターとしてQ, λ, S, L<sub>1</sub>, L<sub>2</sub>, D<sub>1</sub>, W, α, F, Mを設定し、フィッティングパラメーターのD<sub>2</sub>およびδを変化させながら、観測結果を再現した。表-7および図-22, 23に最も観測結果を再現したD<sub>2</sub>およびδの結果を示し、図-24にフィッティング結果を示す。(Stn. 42のPb-210exにおいてはQが不明なため再現計算ができなかった。)



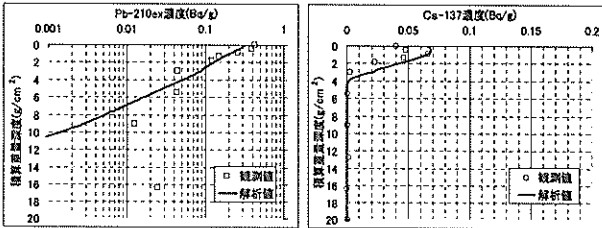


Stn. 46

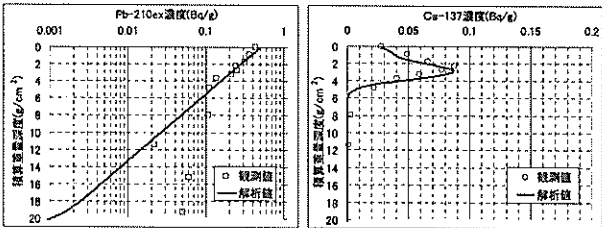


Stn. 73

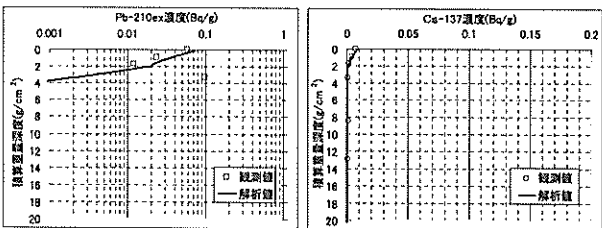
図-24 宍道湖での解析結果(左図Pb-210ex, 右図Cs-137)  
(つづき)



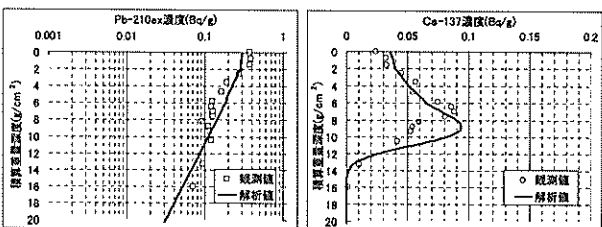
Stn. 48



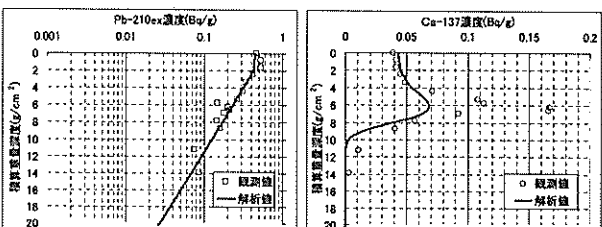
Stn. 50



Stn. 52



Stn. 69



Stn. 71

(2) 中海

各観測点において、固定パラメーターとして $Q$ ,  $\lambda$ ,  $S$ ,  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $D_1$ ,  $W$ ,  $\alpha$ ,  $F$ ,  $M$ を設定した。また宍道湖での検討ではフィッティングパラメーターとしていた $D_2$ については、ここでは宍道湖での解析結果から平均的な $D_2=0.01$  ( $g^2/cm^4/yr$ )とした。フィッティングパラメーターの $\delta$ を変化させながら、観測結果を再現した。表-8および図-25に最も観測結果を再現した $\delta$ の結果を示し、図-26にフィッティング結果を示す。(Stn. 18においては $Q$ および $S$ が不明なため再現計算の対象から除外した。)

Stn. 12, 14, 16, 34, 36, 40, 51, 53では、インベントリーを含め、観測値の堆積分布をよく再現できている。しかし、堆積物内でのインベントリーについては、河川より距離の離れたStn. 3およびStn. 5で解析値は観測値より少なく、一方、河川に比較的近いStn. 36では多くなっている。また、Stn. 10では堆積物中層での再現ができていない。堆積速度が速いStn. 32, 38では表層での再現ができていない。

表-8 再懸濁層厚 $\delta$ の最適値(中海)

Stn.	$\delta$ ( $g/cm^2$ )	
	観測値	解析値
3	2.0	2.0
5	1.0	1.0
10	2.0	2.0
12	1.0	1.0
14	2.0	2.0
16	0.5	0.5
18	-	-
32	0.3	0.3
34	2.0	2.0
36	1.0	1.0
38	2.0	2.0
40	2.0	2.0
51	2.0	2.0
53	0.7	0.7

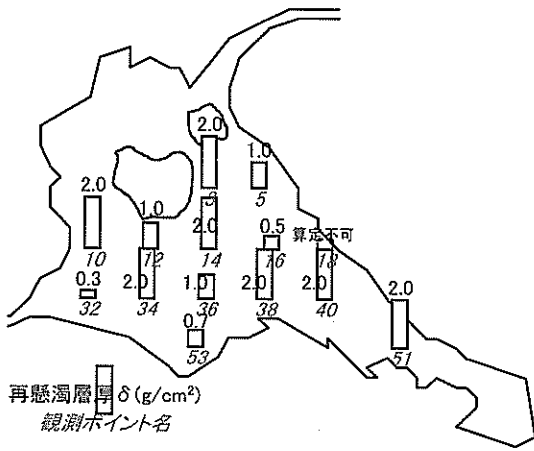


図-25 再懸濁層厚  $\delta$  の最適値(中海)

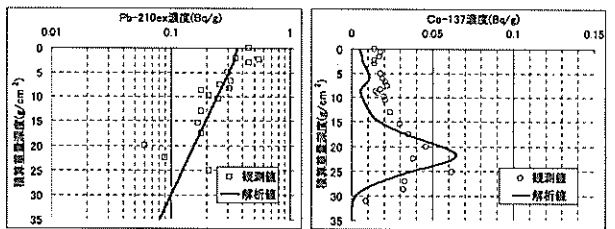
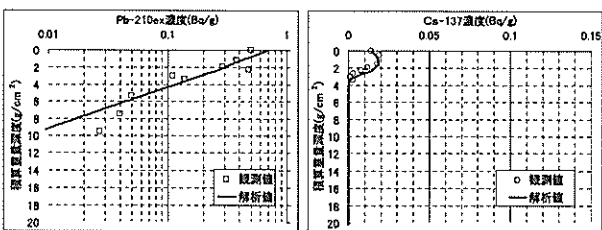
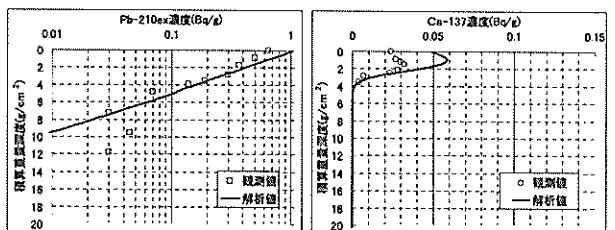
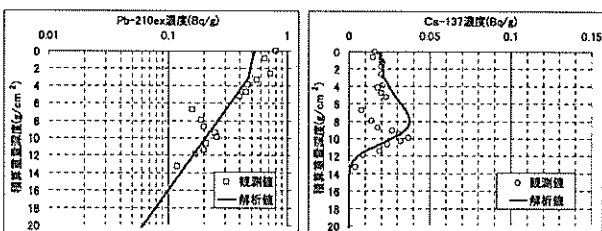
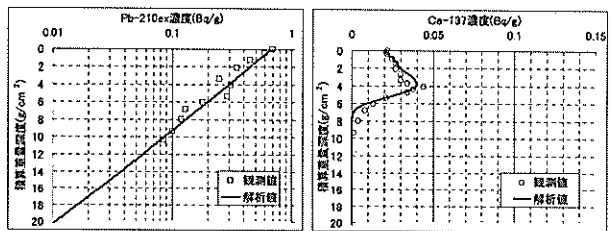
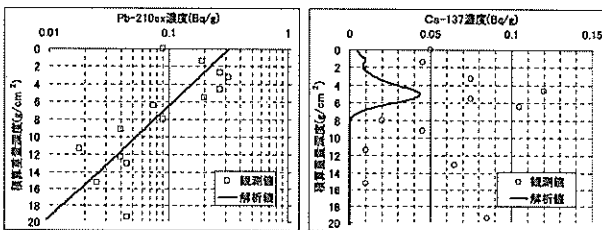
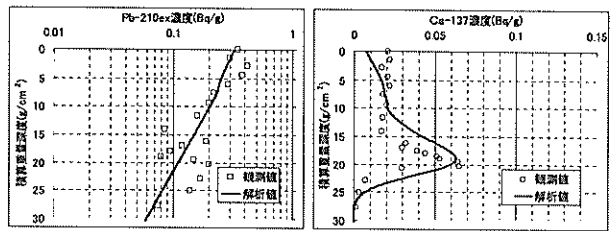
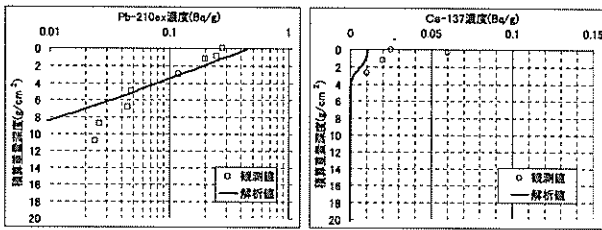
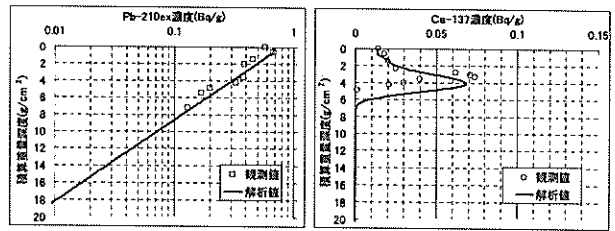
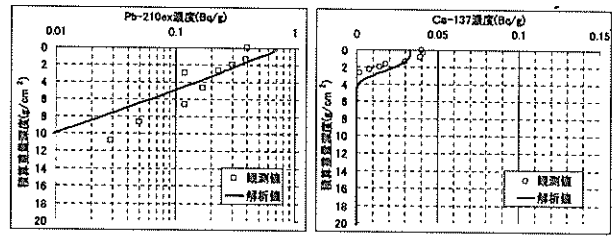


図-26 中海での解析結果(左図Pb-210ex, 右図Cs-137)

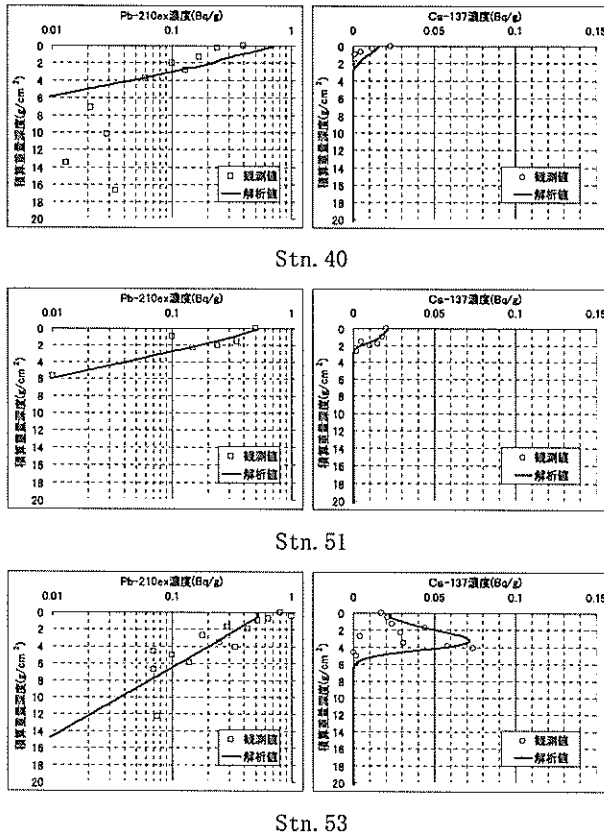


図-26 地中海での解析結果(左図Pb-210ex, 右図Cs-137)  
(つづき)

### 3.2 ダイオキシン類

宍道湖Stn. 40において、固定パラメーターとして $Q, \lambda, S, L_1, L_2, D_1, D_2, \delta, W, \alpha$ を設定した。混合係数 $D_1, D_2$ および再懸濁層厚 $\delta$ は、宍道湖のPb-210exおよびCs-137の検討と同様に $D_1=1.0(g^2/cm^4/yr), D_2=0.05(g^2/cm^4/yr), \delta=1.0(g/cm^2)$ とした。フィッティングパラメーターの $M$ および $F$ を変化させながら、観測結果を再現した。その結果、 $M=25(yr), F=0.5$ において最も観測結果を再現した。図-27にフィッティング結果を示す。

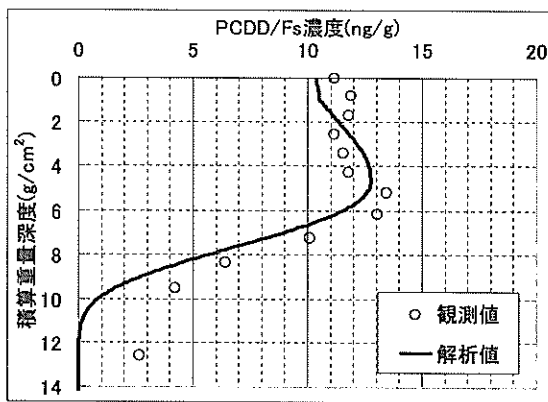


図-27 解析結果(宍道湖Stn. 40, ダイオキシン類)

## 4. 考察

### 4.1 堆積速度

#### (1) 年代測定

堆積速度は一般に年代測定法により算出される。ここで、年代測定法について以下にまとめる。

物質が堆積物のどの深さに堆積しているか、また物質の最大濃度がどの深さに存在するかなど、堆積物内の濃度分布を推定する上では、その場所で過去にどのような履歴で懸濁物や河川からの土砂供給がなされ、堆積層を形成してきたかを知ることが重要となる。数十年から百年程度の期間における堆積物の履歴を調べる方法として、放射性核種である鉛-210(Pb-210: 半減期22.3年)やセシウム-137(Cs-137: 半減期30.17年)が用いられており、それぞれ鉛-210法、セシウム-137法といわれている。

鉛-210法は、Goldbergによりアウトラインが示され、Krishnaswami et al. (1971)で詳細が紹介されている。

Pb-210は、Ra-226(ウラン系列の放射性核種)から派生したRn-222(気体)が大気中に拡散し、このRn-222が放射壊変したPb-210が地上に降り積もりながら堆積物層に供給され、その後は、壊変(不安定な原子核が放射線を放出し、または自発的に核分裂を起こして、別種の原子核に変化すること)を伴いながら半減期22.3年の割合で減少していく。堆積物内から測定されたPb-210放射能は、大気から降下したPb-210と、堆積物粒子自体に含まれているRa-226(放射平衡状態ではPb-214放射能と同量)から生じるPb-210との合計である。そのため、大気からの供給量は、全Pb-210放射能からPb-214放射能を差し引くことにより、過剰Pb-210(Pb-210ex)として求められる。大気からのPb-210(すなわちPb-210ex)の供給量が過去の堆積期間において一定であること、Pb-210の水中での貯留時間が短いこと、堆積後のPb-210の移動がないことなどを仮定し、コアのPb-210ex濃度勾配より堆積速度が算出できる。この方法を用いて各層の年代を推定する方法が鉛-210法である。詳細は金井ほか(1995)を参照のこと。

Cs-137は、大気圏内で行われた核実験や原子力発電所の事故などにより大気中に放出された後、地上にフォールアウト(降下)し、堆積物に供給・蓄積される。Cs-137のフォールアウト量は、過去の核実験記録やフォールアウトの観測結果から、1954年を検出開始年とし(検出限界が約 $0.002Bq/g$ であり、1954年から同量以上の値を観測)、1963年にピークをもつといった時間経過とともに値が変化の特徴がある。また、Katsuragi (1983)やKatsuragi and Aoyama(1986)によると、観測地によりその量は相似的に異なる。また、赤田ら(2003)や五十嵐ら(2003)によると、近

年のフォールアウト量は減少傾向にあり、その大きさは一度地表面に沈着したものが再浮遊し、黄砂などの風送ダストより供給されたものであると考えられている。セシウム-137法は、このようなフォールアウト量の特徴をもとにして、堆積物内のCs-137の濃度値から各層の年代および堆積速度を推定する方法である。

これらの方法は、堆積物中での混合がないことを前提として、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。しかし実現象では、主に堆積物表層において生物活動や波浪などに起因した混合が発生することが考えられる。金井ら(1995)では、新潟沖でのコアにおいてPb-210exの表層濃度が一定値となっていることに対して、生物攪乱等による堆積物の混合や乱泥流による外来堆積物との混合を示唆している。また、Pb-210法とCs-137法による堆積速度の推定結果に差がある場合がある。

(2) 混合層の堆積速度に与える影響

より正確な堆積環境を見積もるためには、混合を考慮した堆積速度を求めることが重要となる。すなわち実現象としては混合が存在する環境で堆積が行われているため、混合の影響を考慮した堆積速度 S の算定が合理的に行えれば、堆積物中の Pb-210ex および Cs-137 の鉛直分布が同じ堆積速度を用いて矛盾なく説明できると考えられる。

混合層の存在を考えることで、そうでない一般的な Pb-210 法と比べて、推定される堆積速度にどの程度差が生じるのだろうか。

一般的な Pb-210 法による年代測定において、定常状態かつ混合がないものとしているので、式(3)より、ある深度 z での濃度変化の基礎式は式(9)で表される。

$$-S \frac{\partial C}{\partial z} - \lambda C = 0 \quad \dots (9)$$

一方、Pb-210ex の堆積物濃度分布は、多くの観測によって式(10)に従うことが知られている。

$$C = C_0 \exp^{\beta z} \quad \dots (10)$$

ここに、β：観測結果の鉛直濃度分布より算出される深さ方向への濃度減衰係数である。

式(10)を式(9)に代入して整理すると、式(11)となる。

$$\beta = -\frac{\lambda}{S} \quad \dots (11)$$

すなわち、観測値の β、既知量の λ より堆積速度 S が算出される。このように D を考慮しない場合の堆積速度推定値を S=S<sub>1</sub> と定義する。

$$S_1 = -\frac{\lambda}{\beta} \quad \dots (12)$$

一方、混合を考慮した、ある深度での濃度変化の基礎式は、式(13)で与えられる。

$$D \frac{\partial^2 C}{\partial z^2} - S \frac{\partial C}{\partial z} - \lambda C = 0 \quad \dots (13)$$

式(10)を式(13)に代入して整理すると、以下の関係式が得られる。

$$D\beta^2 - S\beta - \lambda = 0 \quad \dots (14)$$

D を考慮した場合の堆積速度を S=S<sub>2</sub> とすると、

$$D\beta^2 - S_2\beta - \lambda = 0 \quad \dots (14')$$

式(14')に式(12)を代入すると、

$$D \left( \frac{\lambda}{S_1} \right)^2 + S_2 \left( \frac{\lambda}{S_1} \right) - \lambda = 0$$

となる。S<sub>1</sub>, S<sub>2</sub>, D, λ > 0 を考慮すると、S<sub>1</sub> と S<sub>2</sub> の間には式(15)の関係が成り立つ。

$$\frac{S_1}{S_2} = \frac{1 + \sqrt{1 + \frac{4D\lambda}{S_2^2}}}{2} \quad \dots (15)$$

したがって、4Dλ/S<sub>2</sub><sup>2</sup> << 1 の場合に S<sub>1</sub> ≒ S<sub>2</sub> となる。また、理論上、常に S<sub>1</sub> > S<sub>2</sub> となることが分かる。

A ≡  $\frac{4D\lambda}{S_2^2}$  を無次元パラメーターとして、各地点にお

ける S<sub>1</sub> と S<sub>2</sub> の比を求め、表-9 に示す。ここで、金井らが年代測定より算出した Pb-210ex の堆積速度を S<sub>1</sub>、本解析に用いた堆積速度を S<sub>2</sub> としている。さらに、解析対象となる領域は、本モデルの弱混合層に相当するため、D の

表-9 混合係数と堆積速度

Stn.	堆積速度 S (g/cm <sup>2</sup> /yr)				混合係数 D <sub>2</sub> (g <sup>2</sup> /cm <sup>4</sup> /yr)	A 4Dλ/S <sub>2</sub> <sup>2</sup>	S <sub>1</sub> /S <sub>2</sub> $\frac{1+\sqrt{1+A}}{2}$
	Cs-137	Pb-210ex (S <sub>1</sub> )	$\frac{S_{Pb-210ex}}{S_{Cs-137}}$	平均 (S <sub>2</sub> )			
11	0.02	0.04	2.00	0.030	0.010	1.382	1.272
13	0.11	0.13	1.18	0.120	0.010	0.086	1.021
15	0.07	0.12	1.71	0.095	0.100	1.378	1.271
17	0.04	0.09	2.25	0.065	0.010	0.294	1.069
19	0.11	0.09	0.82	0.100	0.030	0.373	1.086
40	0.25	0.26	1.04	0.255	0.050	0.096	1.023
42	0.18	-	-	0.180	0.020	0.077	1.019
44	0.02	0.03	1.50	0.025	0.010	1.990	1.365
46	0.01	0.03	3.00	0.020	0.010	3.110	1.514
48	0.03	0.08	2.67	0.055	0.020	0.822	1.175
50	0.08	0.13	1.63	0.105	0.005	0.056	1.014
52	0.01	0.03	3.00	0.020	0.020	6.220	1.844
69	0.22	0.28	1.27	0.250	0.100	0.199	1.048
71	0.21	0.20	0.95	0.205	0.001	0.003	1.001
73	0.06	0.14	2.33	0.100	0.001	0.012	1.003

代表値として  $D_2$  を用いた。

$S_1$  と  $S_2$  の比において、仮に 1.1 以上が有意な差とすると、Stn. 11, 15, 44, 46, 48, 52 が該当する。これらの観測点の特徴は、 $S_2$  が比較的小さく、年代測定による Pb-210ex と Cs-137 それぞれの堆積速度の比が大きい。また Stn. 15 については  $D_2$  が大きい。

したがって、堆積速度が大きな地点では、 $S_1 \approx S_2$  となり、混合係数  $D$  の  $S$  に対する影響はほぼないといえるが、堆積速度が遅い地点、または非常に大きな混合が想定できる地点では、混合係数  $D$  を考慮した堆積速度を設定することにより、堆積環境をより正確に見積もることができると考えられる。本来、 $D$  を考慮した堆積速度は試行錯誤的に設定する必要があり、特に上記のように影響が大きいと想定される地点においてはこの検討が重要となる。

金井ら(1997)は、宍道湖の 15 地点において、Pb-210 法と Cs-137 法の両方により堆積速度を推定している。表-9 に示すように、15 地点のうち 2 地点を除いて Pb-210 法による推定値が Cs-137 による推定値より大きい。もし、宍道湖において堆積物中の混合の影響が無視できず、かつ Cs-137 法から求めた値の方がより堆積速度の真値に近いとすれば、式(15)の関係を考えると、Pb-210 法による値 ( $S_1$ ) の方が大きくなる理由が少なくとも定性的には説明できることになる。Cs-137 法においても、混合の影響を受けて 1959 年や 1963 年の同定が必ずしも明確に行えないなどの推定誤差が生じる。

そのため、本研究においては、金井らによって求められた Pb-210 法と Cs-137 法の両方の推定値の平均値を堆積速度の推定値と仮定して解析に用いることにした。図-8 の解析手順において、本来、堆積速度は濃度分布の計算値と実測値のずれを修正しながら、試行錯誤的に求めるべきものである。しかしながら、通常法の平均値と仮定して解析した濃度分布形状は十分合理的な誤差範囲内に収まったと判断し、本解析においては繰り返し計算を行わなかった。

#### 4.2 再懸濁層の効果

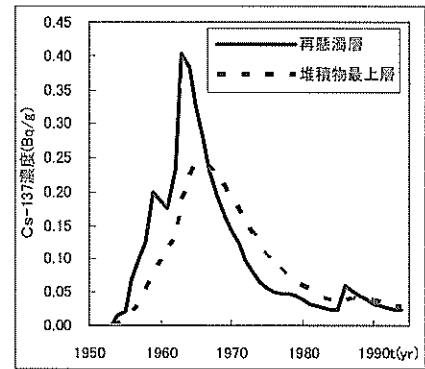
##### (1) 貯留効果

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、高濃度の有害化学物質を含む有機質を摂食しやすい。そのため、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。

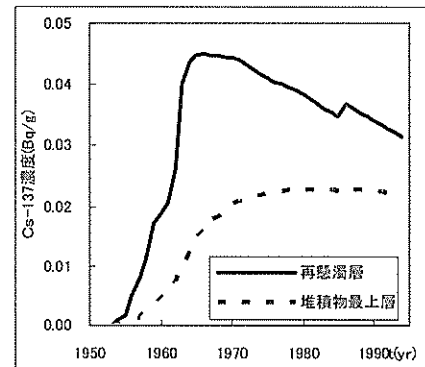
Cs-137 のように時間経過に伴い分布を持って供給されるような物質では、再懸濁層による貯留効果について、挙動が把握しやすい。例えば、再懸濁層が薄く、堆積速度が速い場合は、再懸濁層に移行した物質は、すみやかに堆積物内に堆積される。逆に、再懸濁層が厚く、堆積速度が小

さければ、多くの物質は再懸濁層に長期間貯留しながら、一定量を堆積物に供給しつづける。このとき堆積物内の物質が壊変や分解により消滅するため深層の濃度が小さくなる。したがって、堆積物内の堆積分布は下層から表層にかけて一様勾配となる分布形状を示す。

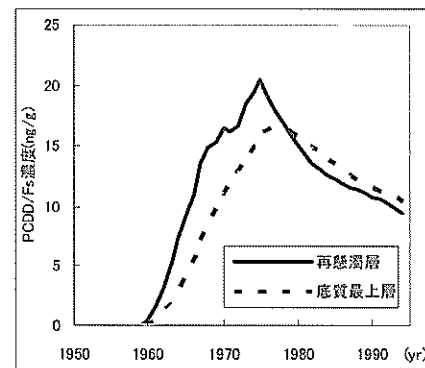
これらの濃度分布形状は、Cs-137 の観測値においても確認できる。例えば、宍道湖の Stn. 13, 15, 17, 19, 40, 42, 48, 50, 69, 71, 73 などが前者にあたる。特に斐伊川河口近傍の Stn. 42, 69 や大橋川河口近傍の Stn. 19 では、堆積速度が速く、再懸濁層が薄い解析結果となっている。また、Stn. 46 や Stn. 52 などが後者にあたり、供給量も小さいが、再懸濁



(a) Stn. 40 (再懸濁層が薄く、堆積速度が速い場合)



(b) Stn. 46 (再懸濁層が厚く、堆積速度が遅い場合)



(c) Stn. 40 (ダイオキシン類)

図-28 再懸濁層および堆積物最上層濃度の時間変化

層厚が相対的に大きな解析結果となっており、堆積速度が小さいことが影響しているものと考えられる。

例として、Stn. 40およびStn. 46におけるCs-137、およびStn. 40におけるダイオキシン類の観測値を最もよく再現できたフィッティング結果について、再懸濁層および堆積物最上層濃度の時間変化を図-28(a)(b)(c)に示す。

島根県水産試験場(1984)の調査による宍道湖における漁獲量の推移を図-29に示す。1965年以降に漁獲量が減少している傾向がみられ、ダイオキシン類の再懸濁層内濃度との関連性がうかがえる。

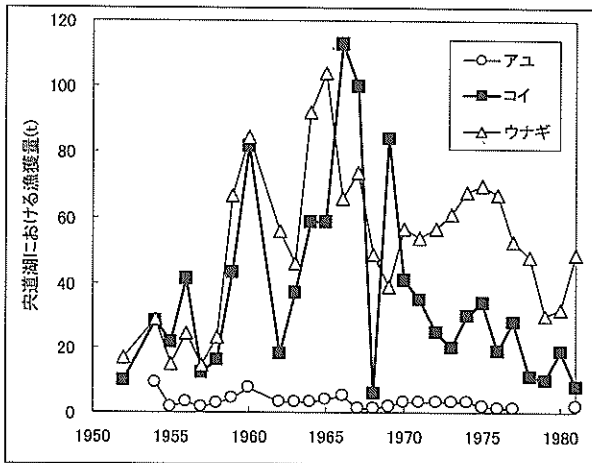


図-29 宍道湖における漁獲量

## (2) 地理的な特徴

再懸濁層厚 $\delta$ については、現地で観測をすることにより得ることができるが、再懸濁層の多くは高含水比の浮泥層である場合が多く、正確に観測することは困難である。

そこで、ここでは解析により得られた再懸濁層厚 $\delta$ の平面分布(図-23参照)の特徴を述べる。

解析により得られた再懸濁層厚 $\delta$ の平面分布の特徴として、以下のことが挙げられる。

- ・湖北部(Stn. 11, 13, 15, 17)での $\delta$ が比較的小さい。
- ・湖中央部(Stn. 44, 46, 48)および湖南部(Stn. 52, 71, 73)での $\delta$ が大きい。
- ・斐伊川河口周辺(Stn. 40, 42, 69)および大橋川河口周辺(Stn. 19)での $\delta$ が小さい。

斐伊川から供給された河川由来の物質は、斐伊川河口部(Stn. 40, 42)から流れにより宍道湖北岸を東進し(Stn. 11, 13, 15, 17, 19)、大橋川から中海へと流出していたとすると、流れや乱れのあるところでは浮泥層は溜まりにくく、再懸濁層厚 $\delta$ が小さかったと考えられる。特にStn. 15やStn. 19付近では西風により発達した風波が砕波しやすいことが現地で確認されていることから、このよう

な砕波などにより堆積物上の水が乱され、再懸濁層厚 $\delta$ が小さくなっていることが考えられる。逆に、流れの少ないと思われる湖中央部や湖南部では、浮泥層が溜まりやすく、再懸濁層厚 $\delta$ が大きくなっていると考えられる。

## 4.3 考慮した過程の必要性

### (1) 過程の組み合わせ

本解析では、4つの過程(①強混合過程、②弱混合過程、③再懸濁過程、④河川流域による貯留過程)を考慮している。ここでは、それぞれの必要性和観測値の再現に対する影響を考察する。

まず、①強混合過程、②弱混合過程、④河川流域による貯留過程の組み合わせによる宍道湖Stn. 13におけるCs-137の再現計算結果を図-30に示す。 $D_2$ ,  $\delta$ ,  $M$ ,  $F$ の各パラメータは、観測値を最も良く再現できる値として試行錯誤的に任意に与えた。

フィッティング具合を比較するポイントを以下に示し、以降、記号で説明する。

- a : 表層濃度値(図-30, 31において $z=0\sim 1\text{g}/\text{cm}^2$ )
- b : ピーク濃度値(図-30, 31において $c=0.1\text{Bq}/\text{g}$ )
- c : 表層部からピーク部までの勾配(図-30, 31において $z=1\sim 3\text{g}/\text{cm}^2$ )
- d : ピーク部深さと以深の勾配(図-30, 31において $z=3\sim 8\text{g}/\text{cm}^2$ )

第一に、①強混合過程のみでは上記a~dのいずれのフィッティングポイントも再現できなかった。

次に、①強混合過程、②弱混合過程を導入した結果、bについては再現できたが、a c dについてはフィッティングできなかった。

また、①強混合過程、④河川流域による貯留過程を組み合わせた結果、a bについては再現できたが、c dについてはフィッティングできなかった。

さらに、①強混合過程、②弱混合過程、④河川流域による貯留過程を組み合わせた結果では、a b cについては再現でき、最も観測値に近い分布を示しているものの、dについてはフィッティングできなかった。

以上より、再懸濁過程を考慮しない組み合わせでは、観測値の鉛直分布の再現性が向上しないことが分かった。

したがって、再懸濁過程を導入した組み合わせにより観測値を再現する。例として、同様に宍道湖Stn. 13におけるCs-137の再現計算結果を図-31に示す。

まず、①強混合過程、③再懸濁過程を組み合わせた結果、a cを同時にフィッティングすることはできなかった。しかし、dについてはこれまで以上の再現性があった。

次に、①強混合過程、②弱混合過程、③再懸濁過程を組



み合わせた結果、a bを同時に再現できたものの、ピーク値を合わせるため $D_2$ を大きくしたことにより濃度が平滑化されている。すなわちc dがフィッティングできていない。

最後に、①強混合過程、②弱混合過程、③再懸濁過程、④河川流域による貯留過程を組み合わせた結果、a b c dとも最も再現性がよくフィッティングできた。

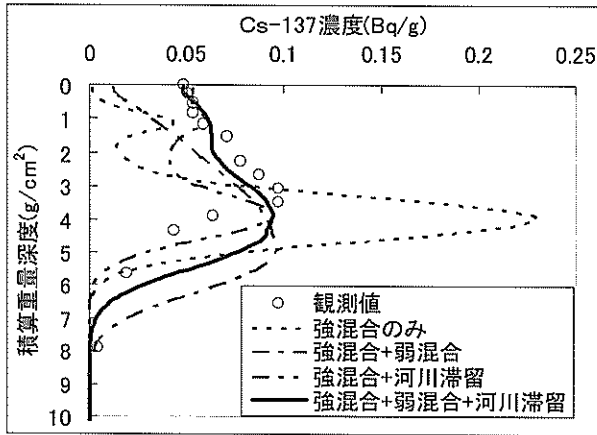


図-30 過程の組み合わせ1

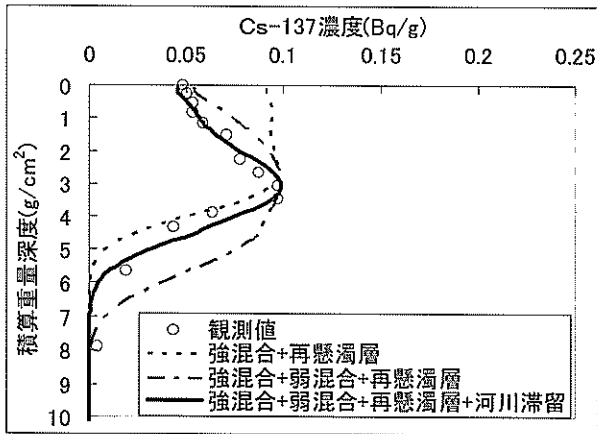


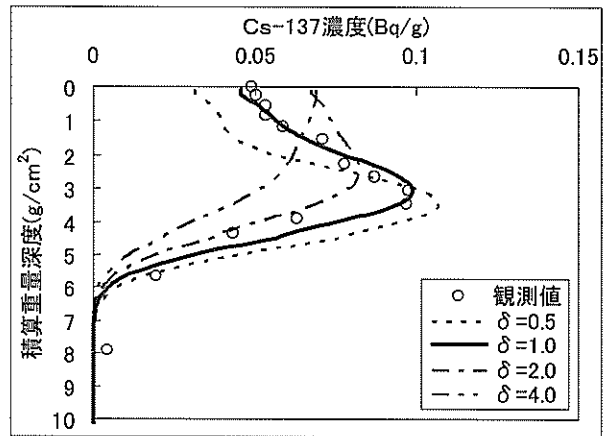
図-31 過程の組み合わせ2

これら4つの過程では、③再懸濁過程と④河川流域による貯留過程の2つの過程が対象物質を貯留する効果がある。これらの効果について、他のパラメーターを一定値とした感度解析により考察する。解析結果を図-32に示す。

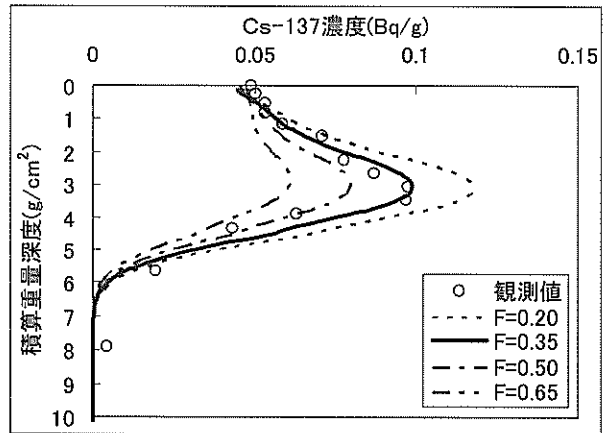
③再懸濁過程は、主に表層部の濃度に大きな影響を与える効果がある。供給量に時間的な変化があっても、再懸濁層厚が大きいと貯留効果が大きくなり、再懸濁層から一定割合で物質を堆積物内に供給することとなる。しかし、供給量が多い時期においても、その多くを再懸濁層に貯留するため、ピーク部の濃度が小さくなる効果もある(図-32(a))。

また、④河川流域による貯留過程は、ピーク部を形成する時期の堆積物内への物質供給量に影響し、Fが大きいほど河川由来の割合が大きくなり、つまり河川における貯留効果が大きい。したがって、堆積物内への物質供給量が小さくなる効果がある(図-32(b))。

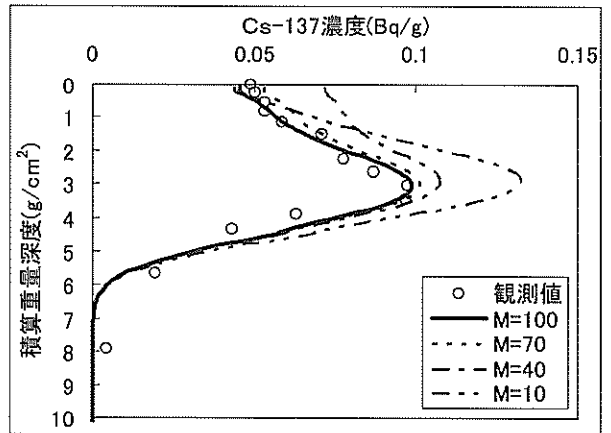
さらに、Fが一定として比較した場合、貯留時間Mが十分長い場合(図-32(c)中のM=70, 100)、河川由来分の供給量



(a) ③再懸濁過程 (M=100yr, F=0.35)



(b) ④河川での貯留過程 ( $\delta=1.0\text{g/cm}^2$ , M=100yr)



(c) ④河川での貯留過程 ( $\delta=1.0\text{g/cm}^2$ , F=0.35)

図-32 過程効果 ( $D_1=1.0$ ,  $D_2=0.01\text{g}^2/\text{cm}^4/\text{yr}$ )

は長い期間を通じて壊変や分解を伴いながらほぼ均された量で水域に供給される。この場合、ピーク部の濃度値は大気由来の量に大きく依存する。貯留時間Mが短くなると(図-32(c)中のM=40)、河川流域での壊変や分解による消滅量が少なくなるため、堆積物内に供給される量が増加する。対象地点への供給量に対し時間当たりの堆積速度Sが小さい場合、ピーク部供給時期から貯留時間Mの期間にわたり再懸濁層内に物質は貯留されるため、ピーク部より浅い部分で濃度が比較的高くなる。さらに貯留時間Mが小さくなると(図-32(c)中のM=10)、大気由来分はもとより、河川由来分もピーク部供給時期に短期間で供給されるため、ピーク部およびピーク部近くの濃度値が大きくなる。このとき再懸濁層内の濃度も極時的に高濃度となり、時間経過とともに堆積が進むにつれ次第に再懸濁層内の濃度が薄くなり、堆積物内最上層との濃度差が小さくなる。

#### 4.4 パラメーター相関

本研究では、観測値などから得られるパラメーター(Q,  $\lambda$ , S, L<sub>1</sub>, L<sub>2</sub>, H, W,  $\alpha$ )と、導入したモデルのパラメーター(D<sub>1</sub>, D<sub>2</sub>,  $\delta$ , M, F)とあわせ、13個のパラメーターを設定した。これらのパラメーターは、対象物質の発生源や観測値の流況などの影響を受け、観測値それぞれの特徴を表している。ここでは、関連が深いと思われるパラメーター間の相関を示す。

##### (1) 再懸濁層 $\delta$ との相関

再懸濁層厚  $\delta$  が流況の影響を受けていることを考察として指摘した。再懸濁層は微細粒子が高含水の状態で堆積物上に存在している。金井ら(1997)によると、宍道湖では西部と湖周部の浅瀬には粗粒分が多く、湖中央部はシルト分が多いとの報告もされている。再懸濁層厚  $\delta$  を具体的に見積もるためには、現地観測を行うか、もしくは流況を考慮し河川水に含まれる様々な粒径の懸濁粒子を考慮し、水域内での移流や拡散の効果を考慮し、対象地点それぞれの堆積分布および構成粒子を推定することが望ましい。しかし、本研究のモデルは鉛直1次元であり、再懸濁層厚  $\delta$  はフィッティングパラメーターとして与えている。再懸濁層は微細粒子により形成されているとすると、その地点における堆積物においても微細粒子の含有率が多いことが考えられる。図-33に再懸濁層厚  $\delta$  の解析結果と各観測点での堆積物内のシルト粘土含有率の観測値の関係を示す。このように非常に良い相関があることが確認できた。

再懸濁層厚  $\delta$  については、含水比wや堆積物の中央粒径d<sub>50</sub>などにも関連性があると考えられたが、図-34に示すとおり、あまり良い相関は得られなかった。

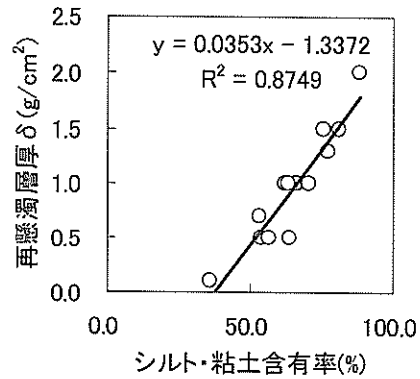


図-33  $\delta$  の解析値とシルト粘土含有率の観測値の相関

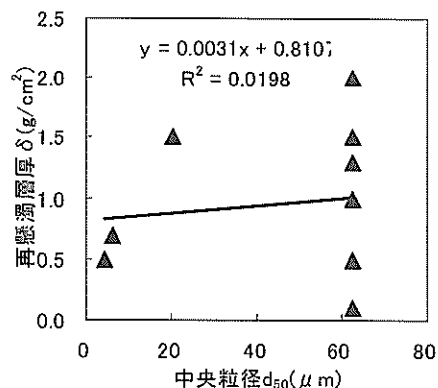
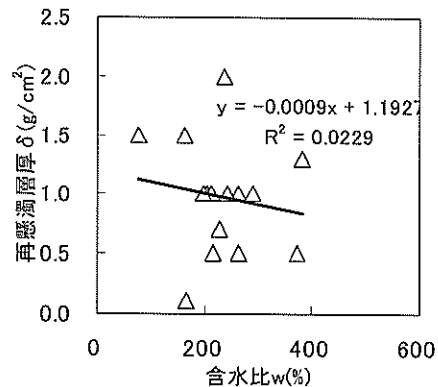


図-34 再懸濁層厚  $\delta$  と含水比および堆積物粒径の相関

##### (2) 水深Hとの相関

再懸濁層厚  $\delta$  や混合層厚Lおよび混合係数Dなどを決定する上で、海底面近傍での現象が設定値に大きな影響を与えると考えられる。流れが速い場所、すなわち底面せん断力が大きな場所では、再懸濁層厚  $\delta$  は薄く、堆積物中の混合の程度は大きいと想像できる。底面せん断力が大きな場所では堆積物の粒径が大きくなり、粒径は底生生物の生息環境を決定する一因となる。その上、底生生物の生息密度は混合層厚や混合強度に影響を与えると考えられる。底生

生物の生息分布と関連性の強いD0(溶存酸素量)や、底面せん断力は、水深Hの影響を大きく受ける可能性が高い(図-35参照)。宍道湖における1983年のヤマトシジミの生息分布(島根県水産試験場,1984)と各観測点の水深Hを図-36に示す。このように、この年におけるヤマトシジミの生息分布は水深4.5m程度を下限境界とし水深の影響を受けていることが読み取れる。また、ヤマトシジミの生息分布と

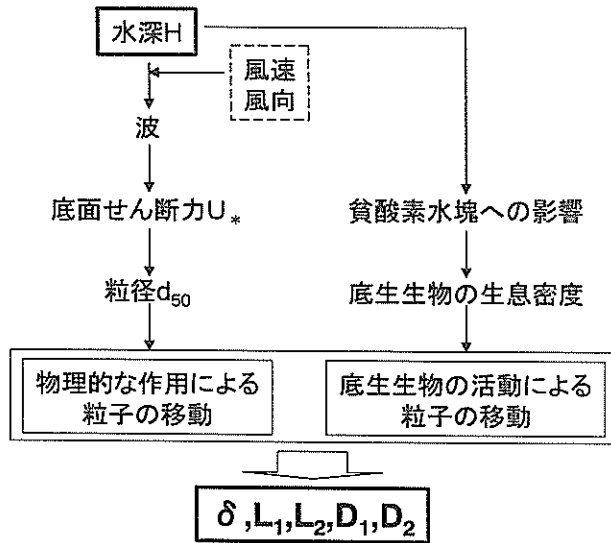


図-35 水深Hとパラメーターの関係

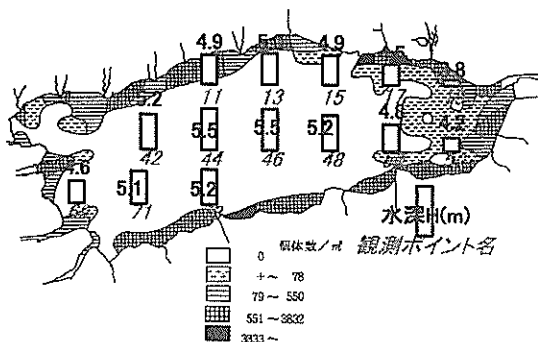


図-36 ヤマトシジミの生息分布(島根県水産試験場(1984)より引用)と水深H

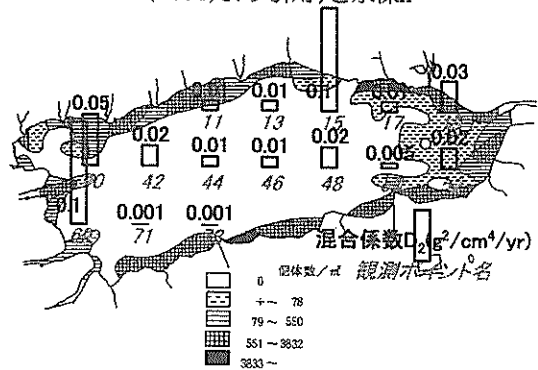
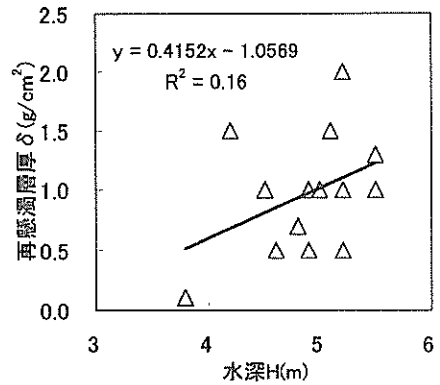
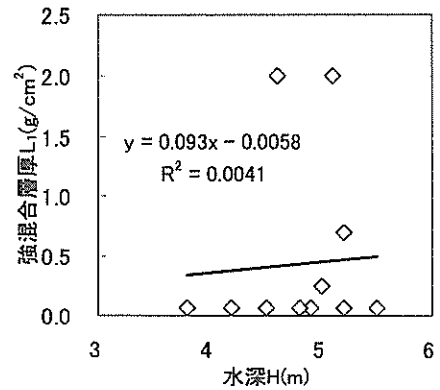


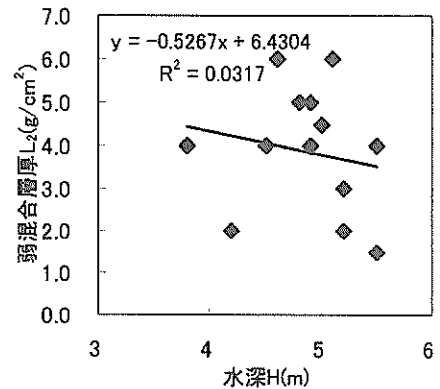
図-37 ヤマサシジミの生息分布(島根県水産試験場(1984)より引用)と弱混合係数D2



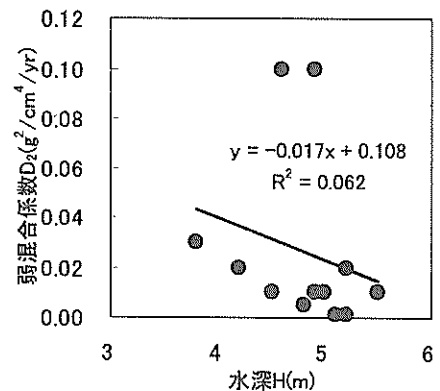
(a) 再懸濁層厚 $\delta$ との相関



(b) 強混合層厚 $L_1$ との相関



(c) 弱混合層厚 $L_2$ との相関



(d) 弱混合係数 $D_2$ との相関

図-38 水深Hと各パラメーターの相関

弱混合係数 $D_2$ の分布を図-37に示す。このように、Stn. 15, 69を除いてヤマトシジミが高密度に生息している観測点での弱混合係数 $D_2$ の値は比較的大きくなっている傾向がある。

ここでは、水深 $H$ と $\delta$ ,  $L_1$ ,  $L_2$ ,  $D_2$ の相関について考察する。水深 $H$ との相関を図-38に示す。 $\delta$ および $L_1$ ,  $L_2$ については、相関が弱く、パラメーター値の設定に関しては水深の影響より堆積速度や流れの影響が強いと考えられる。これに対して水深 $H$ と弱混合係数 $D_2$ との相関は、水深 $H$ が深くなるにつれ混合係数 $D_2$ が小さくなる傾向がうかがえる。

### (3) 堆積速度 $S$ との相関

金井ら(1995)によると、Pb-210exやCs-137などの放射性核種は、懸濁性粒子に吸着して沈降していくことを推察している。この場合、堆積速度が速いほど、堆積物内の物質のインベントリーは大きいと考えられる。また、鈴木(1993)は、Pb-210exとCs-137のインベントリーには正の相関があることとしている。

図-39に宍道湖におけるPb-210exとCs-137のインベントリーと堆積速度 $S$ の関係を示す。非常に良い相関を持っていることが分かる。

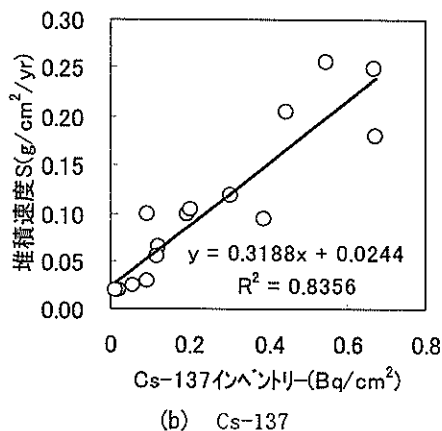
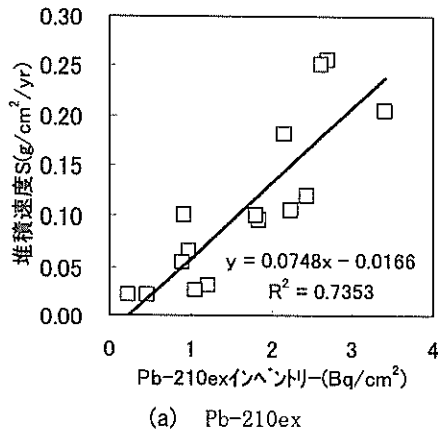


図-39 インベントリーと堆積速度 $S$ の相関

また、河川からの懸濁物質の供給が多いほど、堆積速度は大きくなると考えられる。河川からの懸濁物質の供給が多いということは、すなわち対象物質の供給においても河川由来の割合 $F$ が大きいこととなる。図-40に堆積速度 $S$ と河川流域での貯留割合 $F$ の関係を示す。非常に良い相関を持っており、対象物質が懸濁粒子に吸着して堆積していることを裏付けている。

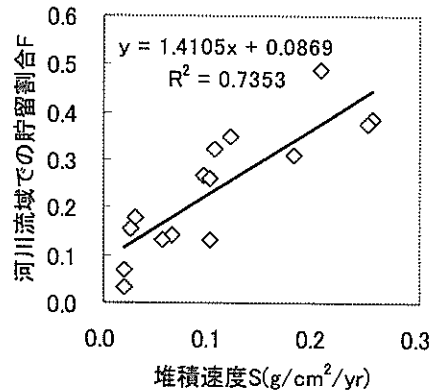


図-40 堆積速度 $S$ と貯留割合 $F$ の相関

以上では、インベントリーと堆積速度 $S$ 、堆積速度 $S$ と貯留割合 $F$ の相関が良いことを示した。参考までにCs-137のインベントリーと河川流域での貯留割合 $F$ の関係を図-41に示す。同様に良い相関を得ている。

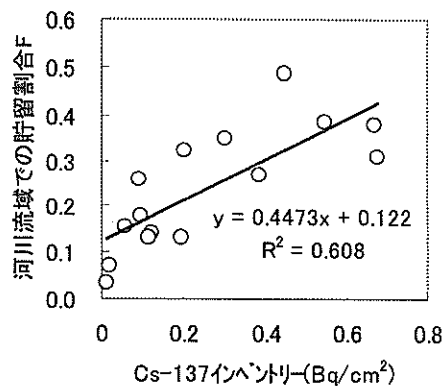


図-41 インベントリーと貯留割合 $F$ の相関

## 4.5 感度解析

### (1) 堆積物表層混合層の効果

#### a) 強混合層 $D_1$

混合係数 $D_1$ は、強混合層に着目して試行錯誤的に解析した結果、 $1.0(\text{g}^2/\text{cm}^4/\text{yr})$ とし、一定値として設定した。 $D_1$ が解析結果に与える影響について、例として宍道湖Stn. 69における $D_1$ についての感度解析結果を図-42に示す。感度

解析の条件は、Qおよび他のパラメーターについてはこれまでと同様とした。 $(S=0.25(g/cm^2/yr), L_1=2.0(g/cm^2), L_2=6.0(g/cm^2), D_2=0.1(g^2/cm^4/yr), \delta=0.5(g/cm^2), W=300(g/cm^2/h), \alpha=0.05(g/cm^2/h), F=0.38, M=100(yr))$ .  $D_1=0.1\sim 10.0(g^2/cm^4/yr)$ で変化させた結果、Pb-210exの表層部での勾配を最も良く表したのが $D_1=1.0(g^2/cm^4/yr)$ のオーダーであり、さらにCs-137については $D_1=0.1\sim 1.0(g^2/cm^4/yr)$ の間で最も良く観測値を再現した。他観測地点においても同傾向であった。

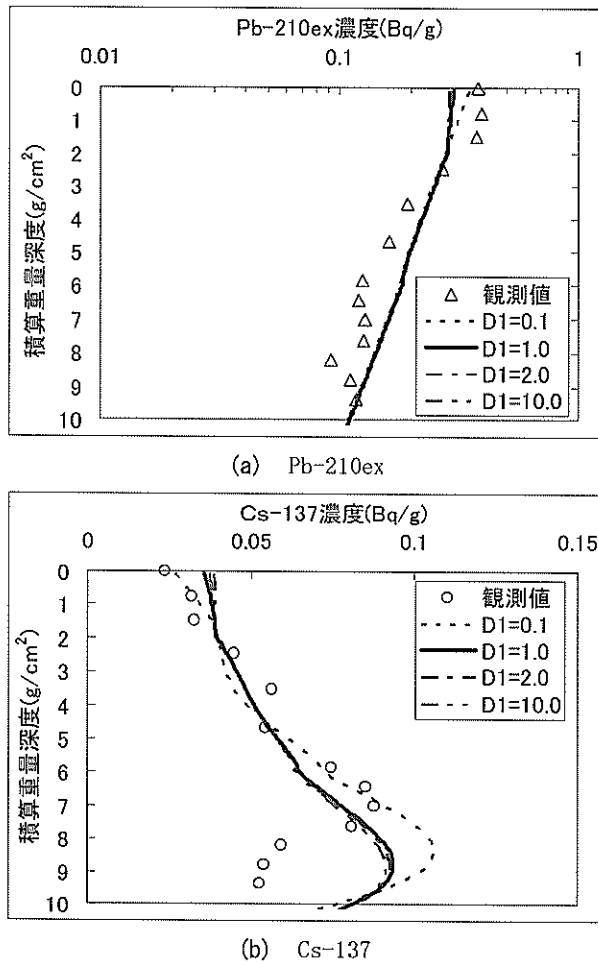


図-42  $D_1$ についての感度解析(宍道湖Stn. 69)

b) 弱混合層 $D_2$

$D_2$ は $0.001\sim 0.1(g^2/cm^4/yr)$ の範囲とし、観測値を再現するフィッティングパラメーターとした。 $D_2$ が解析結果に与える影響について、例として宍道湖Stn. 69の場合を図-43に示す。感度解析の条件は、上記と同様とし、 $D_1=1.0(g^2/cm^4/yr)$ とし、 $D_2=0.001\sim 1.0(g^2/cm^4/yr)$ で変化させた。Pb-210exでは、 $D_2$ が0.1から1.0へとワンオーダー大きくなると弱混合層(図-43では $z=2.0\sim 6.0g/cm^2$ )の混合程度が強くなり濃度勾配が大きくなったが、 $D_2$ が0.1以

下についての差はなかった。Cs-137においては、 $D_2$ を大きくすると、弱混合層内の混合度合いが強まり、ピーク部分が平滑化されるとともに、ピーク部深さが深層へ移動する。このことから $D_2$ の混合の効果により比較的速く堆積物下層へ物質濃度が供給される効果がある。 $D_2$ によるフィッティングの際には、ピーク部分の濃度値および深さ、および表層からピーク部にかけての再現性に留意して最適値を求める必要がある。さらに、 $D_2$ が小さいとCs-137の供給分布を比較的乱すことなく堆積物に反映することとなり、観測値の平滑程度に合わせた $D_2$ の値とすることが必要である。

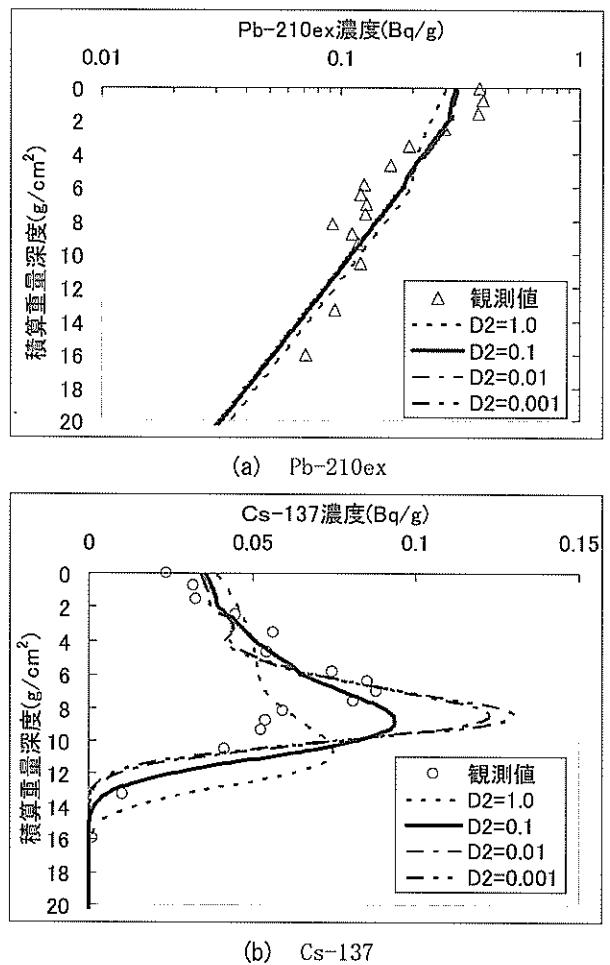
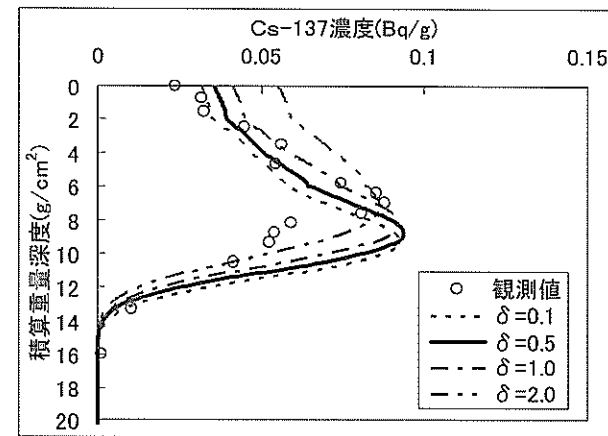


図-43  $D_2$ についての感度解析(宍道湖Stn. 69)

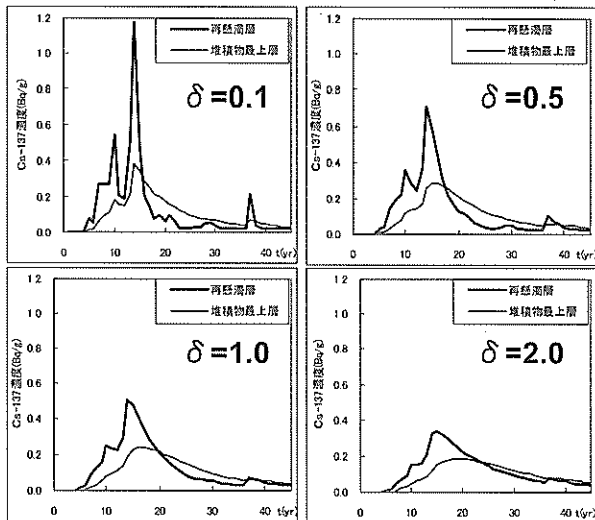
(2) 再懸濁層の効果

再懸濁層厚 $\delta$ が堆積物中の鉛直分布に与える影響について、例として宍道湖Stn. 69の場合を図-44に示す。感度解析の条件は、前出と同様とし、 $D_1=1.0(g^2/cm^4/yr)$ 、 $D_2=0.1(g^2/cm^4/yr)$ とし、 $\delta=0.1\sim 2.0(g/cm^2)$ で変化させた。Pb-210exでは、計算時間中にわたり供給量が一定であるため、水中および再懸濁層内の濃度も多少の時間差があるも

の計算開始直後に一定(定常)となる。したがって、一定濃度の再懸濁層から堆積物内への移行は、堆積速度一定であることから、再懸濁層の影響を受けずに、堆積物内の濃度分布にはほとんど差がなかった。Cs-137については、供給量が時間とともに増減するため、再懸濁層の効果が明確であった。水中から再懸濁層へのフラックスが、再懸濁層から堆積物へのフラックスより大きな場合、 $\delta$ を大きくすると、再懸濁層での貯留量が大きくなり、ピーク部の濃度を平滑化するとともに、ピーク時から時間が経過しても再懸濁層内に貯留された物質を高濃度で堆積物内に供給することから、表層近傍での濃度が上昇する。逆に $\delta$ を小さくすると、再懸濁層内に入ってきた濃度が比較的にやく堆積物内に移行するため、ピーク部の濃度値が大きく、物質供給の時間変化を反映した分布形状となった。また、Cs-137の供給量が計算時間の後半部で少ないことから、堆積物表層部での濃度が小さくなっていった。



(a) 堆積物内鉛直分布



(b) 再懸濁層中および堆積物最上層におけるCs-137濃度の時間変化

図-44  $\delta$  についての感度解析(宍道湖Stn. 69)

再懸濁層内と堆積物最上層の濃度の時間変化においても、再懸濁層厚 $\delta$ が小さくなると、再懸濁層内の濃度が物質供給の時間変化に似た形状で推移しており、堆積物最上層での濃度もこれに伴って変化していることが分かった。また、再懸濁層内の濃度が同じでも、再懸濁層厚 $\delta$ が大きければ貯留される物質量は多くなる。そのため、堆積速度Sが相対的に小さい場合、再懸濁層内の濃度が低くならず一定濃度の堆積フラックスが堆積物に供給されつづける。堆積速度が相対的に大きい場合、再懸濁層内の濃度が次第に低くなり、堆積物内にはやく供給される。フィッティングを行う際には、これらの傾向に配慮する必要がある。

(3) 貯留効果のパラメーターの効果

再懸濁過程と河川流域での貯留過程は、物質を長期間貯留する効果があり、この過程のパラメーター $\delta, M, F$ は解析結果に対してそれぞれ以下の影響を与える。

$\delta$  : 表層部およびピーク部濃度と深層濃度勾配

$M$  : ピーク部濃度と総供給量

$F$  : 総供給量と表層濃度勾配

図-45に宍道湖Stn. 50における再現計算結果を示す。この再現計算における他のパラメーターは上述のとおりであり、フィッティングパラメーターの $D_2$ は $0.01 \text{ (g}^2/\text{cm}^2/\text{yr)}$ で一定とした。図中の解析結果がそれぞれの $M$ に対して最も良く観測値を再現した結果である。

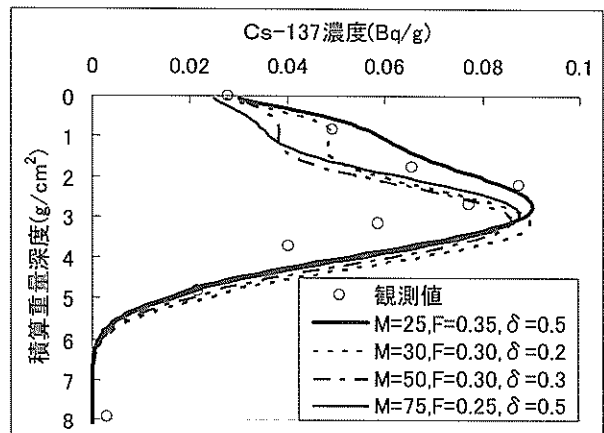


図-45 貯留効果パラメーターの影響(宍道湖Stn. 50)

したがってStn. 50においては、図-9におけるパターン1に該当する関係をもつ。

このように全観測点で貯留効果に関するパラメーター $M, F, \delta$ を関連づけながら調整することにより、それぞれの観測地における鉛直分布を再現した。その結果、宍道湖の各観測点において、最も小さな再懸濁層 $\delta$  ( $0.1 \text{ g/cm}^2$ を下限とした)で観測値を再現できた貯留時間 $M$ と貯留割合 $F$ の

検討結果を表-10に示す。同じ物質(ここではCs-137を対象に説明を進めている)が、同じ河川流域(ここでは主に斐伊川流域)から供給される貯留時間は同じであるはずである。したがって、全ての観測点が再現できる貯留時間が、対象水域(ここでは宍道湖)での適切な値と考えられる。ここでは、およそ100年程度が妥当な値として考えられる。

表-10  $\delta$  minとなるM, F

Stn.	M	F	$\delta$
11	50	0.25	0.1
13	55	0.45	0.5
15	90	0.65	0.4
17	30	0.15	0.6
19	70	0.4	0.1
40	80	0.55	0.1
42	70	0.4	0.1
44	-	-	0.15
46	-	-	1.2
48	40	0.3	0.2
50	25	0.35	0.2
52	-	-	2.5
69	100	0.55	0.1
71	25	0.25	0.4
73	-	-	1.0

"-"は河川流域での貯留仮定が必要ないことを示す。すなわち、期待される貯留効果は $\delta$ で再現可能。

貯留時間Mは、対象物質や河川流域の特性に影響されるパラメーターである。中海の検討において、対象物質は宍道湖での検討と同じPb-210exおよびCs-137である。しかし、中海の流域面積は宍道湖の流域面積の約半分であり、同じ物質であれば、妥当な貯留時間は宍道湖に比べ短くなることが考えられる。宍道湖の場合と同様に妥当な貯留時間Mを設定するためには、観測点全点を再現できるMを検討する必要がある。しかし、中海は宍道湖に比べ地形変化が富んでいるため流況が複雑であり、さらに干拓などの人為的な介入も行われた経緯がある。したがって、全ての観測地における物質の堆積物内鉛直分布が河川の影響を直接的に反映していない場合がある。例えば、Stn. 5およびStn. 53のCs-137の分布を見るように、観測値が鉛直方向に大小を繰り返しており、過去に流況の変化や人為的な堆積物の攪乱など、大きな擾乱を受けていることが見受けられる。

したがって、ここでは宍道湖の場合と同様にM=100年として再現計算を行った。M=100年は中海にとっては十分長い期間である可能性があるが、貯留時間が短すぎて観測値を再現できないことを懸念した。M=100年とするこの影響は、河川での壊変や分解により河川由来量が減少するため、堆積物内への全物質供給量も減少するが、中海では宍道湖に比べ貯留割合Fが相対的に小さな設定となっているため、その影響は比較的少ないと思われる。中海

における貯留割合Fの妥当性について、式(7)での中海の比例係数は宍道湖の比例係数の4倍程度となっている。その結果、貯留割合は宍道湖のF=0~0.5に比べ、中海ではF=0~0.2の範囲と相対的に小さい条件設定となった。これは、大気由来として宍道湖内に供給された物質が、大橋川を通じて比較的速い時間で中海に擬似的な大気由来として供給されることを想定すると、中海の湖面積が宍道湖に比べ小さいが、大気由来(擬似大気由来も含め)としての供給量は大きくなることが考えられる。したがって、中海での貯留割合Fの条件設定としては、妥当であったと考ええる。

#### 4.6 モデルの課題

本モデルにより観測値を再現する上で以下に示すいくつかの仮定を設けている。

- ・堆積速度は解析期間中一定としている。流況に変化がある場合、年代に応じた堆積速度を設定することにより、堆積濃度分布の再現性向上が期待できる。
- ・化学物質は沈降性の粒子に付着または吸着しているものとしている。水中や堆積物内での間隙水における溶存態と粒子態との分配を考慮したモデルに改良することで精度向上が期待できる。
- ・沈降速度Wおよび巻き上げ速度 $\alpha$ について、本研究では対象粒径を想定し、一定値として設定している。しかし河川から供給される懸濁物質は、粒径が大きく重量が重たいものは河口近傍に沈降し、また粒径の小さな粒子は河口から遠くまで流れにより運搬される。また粒子重量や流況により巻き上げの程度も異なる。これらの平面的要素を取り込むモデルに改良することで精度向上が期待できる。
- ・水中および再懸濁層内での基礎式に壊変および分解の項が入っていない。現状は沈降速度が比較的速いため、壊変や分解による消失は無視できる程度と考えられ、解析結果に影響は与えない。しかし、溶存態などを考慮する場合は水中および再懸濁層内での壊変および分解の項が、精度向上のために必要となる可能性がある。
- ・表層混合層の混合係数 $D_1$ および $D_2$ について、これらは流れによる乱れや底生生物の活動に起因したパラメーターとして設定した。流れの解析や生物量の観測結果と照合し関連付けることで、混合係数の設定の助力となることが考えられる。
- ・ダイオキシン類については、毒性等量より放出量に一義的に換算し概略計算を行った。しかし、全国の毒性等量の成分構成と宍道湖における成分構成は異なっていることが考えられる。したがって、全国および宍道湖での

ダイオキシン類の成分構成比について調査することにより、換算の精度向上が期待できる。

## 5. 結論

解析の結果、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-210exおよびCs-137の現地観測結果を精度良く再現できた。また宍道湖Stn. 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。

堆積物中の濃度分布観測値を再現する上で、モデルには4つの過程(①強混合過程, ②弱混合過程, ③再懸濁過程, ④河川流域による貯留過程)を組み合わせる必要があった。特に再懸濁層は、河川流域での貯留と同様に、物質を長期間貯留する効果があり、重要な役割を果たしていた。さらに再懸濁層厚 $\delta$ は流況に影響され、流れのある場所では再懸濁層厚が薄く、止水域で厚い可能性があった。また再懸濁層厚は含水比や堆積物粒径との相関は弱かったが、シルト粘土含有率と強い相関があった。

物質の供給は大气由来・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。さらに、物質は河川からの懸濁物質に吸着し供給され、堆積物に堆積することが考えられ、宍道湖においては西部の斐伊川近傍で供給量および河川由来の割合が大きい結果であった。

また、同じ堆積速度でPb-210exおよびCs-137の濃度分布を合理的に再現するためには、堆積物表層の混合層を考慮した堆積速度を用いることが重要であった。

宍道湖において観測値を精度良く再現した本モデルが、中海において適用可能であることが確認でき、本モデルの汎用性が確認できた。また、Pb-210exやCs-137の再現計算で最適値であった $\delta$ や $D_2$ を用い、ダイオキシン類のM、Fのパラメーターを適切に与えることでダイオキシン類の観測値を再現することができた。したがって、Pb-210exやCs-137の観測結果があれば、対象物質である有害化学物質の再現計算が可能であることが確認できた。

## 6. あとがき

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管理の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存態の分配係数を求め、溶存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。また粒子態成分の挙動についても、巻き上げ速

度を明らかにするとともに、再懸濁層の形成過程やそこで有害化学物質の蓄積過程についても実験的研究成果を取り入れながら、より精緻なモデル化を行う必要がある。

本研究の成果は、港湾や湖沼などにおいて、汚染の将来予測、堆積物除去・改良などを行う際の汚染範囲の推定、浮泥層の有害化学物質の含有量の推定などに活用されることが期待される。

(2004年5月30日受付)

## 謝辞

本研究を行うにあたって、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・中海における放射性核種の観測データを、また益永茂樹教授(横浜国立大学大学院環境情報学府)には宍道湖におけるダイオキシン類の観測データを提供していただき、また岡田知也主任研究官(国土交通省国土技術政策総合研究所・沿岸海洋研究部・海洋環境研究室)には、モデル作成の当初の段階でご教示いただきました。ここに記し、感謝の意を表します。

## 参考文献

- 赤田尚史, 川端一史, 長谷川英尚, 大塚良仁, 佐藤忠広, 近藤邦男, 稲葉次郎, 矢吹貞代(2003): Cs-137, nssCaおよびA1降下量の季節変動と風速ダスト, 地球惑星科学関連学会。
- アジア航測株式会社(1998): 宍道湖・中海MSS調査(その2)報告書。
- 五十嵐康人, 青山道夫, 広瀬勝己, 根本和宏(2003): 降下物中に含まれるSr-90およびCs-137, 第3回「環境放射能研究会」要旨論文集, pp. 141-149。
- 市川哲也(2003): 宍道湖・中海への流入負荷量-原単位法とLQ式からの積み上げ法の比較, 総合レビュー宍道湖中海班第4回検討会資料, 29p。
- 運輸省港湾局環境整備課・(財)港湾空間高度化センター(2000): 平成11年度港湾における内分泌攪乱化学物質に関する調査報告書。
- 大西, 中西, 益永, 中井: 宍道湖におけるダイオキシン類の動態解析(2002): 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):  $^{210}\text{Pb}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ 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.
- 気象庁: <http://www.data.kishou.go.jp/>
- 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.
- 国土交通省港湾局環境整備計画室・(財)港湾空間高度化環境研究センター(2001):平成12年度港湾における内分泌攪乱化学物質に関する調査報告書.
- 国土交通省港湾局環境整備計画室・(社)底質浄化協会(2003):平成14年度港湾における底質ダイオキシン類の処理・処分等に関する技術的評価検討調査報告書.
- 国土交通省港湾局環境整備計画室・(財)港湾空間高度化環境研究センター(2003):平成14年度港湾底質環境の保全に関する調査—港湾底質及び海洋環境保全に関する総合的検討—報告書.
- 鈴木穎介(1993):近海海底堆積物中の<sup>207</sup>Biおよび<sup>137</sup>Cs I. 日本海沿岸で採取した海底堆積物における分布, *Radioisotopes*, vol. 42, pp. 503-510.
- 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.
- 志々目友博, 渡辺正孝, 土井妙子(2002):堆積物コア中の<sup>137</sup>Cs濃度分布のモデル化に関する研究, 海岸工学論文集, 第49巻, pp. 966-970.
- 島根県水産試験場(1984):昭和58年度赤潮対策技術開発試験報告書, 5. 内水面赤潮対策技術開発試験, 87p.
- 中村由行, 奥宮英治, 中山恵介(2001):湖沼の平面的な水塊分布構造に及ぼす水表面熱収支の影響, 海岸工学論文集, 第48巻, pp. 1051-1055.
- 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.
- 長屋 裕(2001):海底に溜まる人工放射性物質—原子力発電所等海洋放射能調査から:海生研ニュース, (財)海洋生物環境研究所, No. 69, pp. 5-7.
- 日本海洋学会(1986):沿岸環境調査マニュアル(底質・生物編), p. 266.
- 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.
- 福岡正巳(2004):有害化学物質キャリアーおよびプールとしての腐植物質の機能, 水環境学会誌, 第27巻, 第2号, pp. 82-85.
- 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, 近畿大学理工学部研究報告, 第34号, pp. 83-90.
- 山室真澄ほか14名(1996):富栄養化湖沼における食物連鎖を利用した水質浄化技術に関する研究, 平成7年度国立機関公害防止等試験研究成果報告書, pp. 47-1-11.
- 山室真澄(1997):汽水域での高次生産者を通じた窒素・リンの収支, 沿岸海洋研究, 第35巻, 第1号, pp. 69-73.
- Davis, R. B., Hess, C. T., Nordin, S. A., Hanson, D. W., Hoagland, K. D. and Anderson, D. S. (1984): <sup>137</sup>Cs and <sup>210</sup>Pb dating of sediments from soft-water lakes in New England (U. S. A.) and Scandinavia, a failure of <sup>137</sup>Cs dating, *Chem. Geol.*, vol. 44, pp. 151-185.
- Guinasso, Jr. N. L. and Schink, D. R. (1975): *J. Geophys. Res.*, 80, pp. 3032-3043.
- Katsuragi, Y. (1983): A study of <sup>90</sup>Sr fallout in Japan, *Pap. Met. Geophys.*, vol. 33, pp. 277-291.
- Katsuragi, Y. and Aoyama, M. (1986): Seasonal variation of Sr-90 fallout in Japan through the end of 1983, *Pap. Met. Geophys.*, vol. 37, pp. 15-36.
- Krishnaswami, S., Lal, D., Martin, J. and Meybeck, M. (1971): Geochronology of lake sediments, *Earth Planet. Sci. Lett.*, vol. 11, pp. 407-414.
- Masunaga, S., Yao, Y., Ogura, I., Nakai, S., Kanai, Y., Yamamuro, M. and Nakanishi, J. (2001): Identifying Source and Mass Balance of Dioxin Pollution in Lake Shinji Basin, Japan, *Environmental Science & Technology*, vol. 35, No. 10, pp. 1967-1973.
- Megumi, K. (1978): A problem in <sup>210</sup>Pb geochronologies of sediments, *Nature*, vol. 274, pp. 885-887.

Nagao, S., Matsunaga, T. and Muraoka, S. (1999) :

Geochemical association of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{239,240}\text{Pu}$  in the oligotrophic and mesotrophic lakes sediments, *J. Radioanal. Nucl. Chem.*, vol.239, No.3, pp.555-559.

Santoschi, P.H., Li, Y., Adler, D.M., Amdurer, M., Bell, J. and Nyffeler, U.P. (1983) : The relative mobility of natural (Th, Pb and Po) and fallout (Pu, Am, Cs) radionuclides in the coastal marine environment ; results from model ecosystems (MERL) and Narragansett Bay, *Geochim. Cosmochim. Acta*, vol.47, pp.201-210.

港湾空港技術研究所報告 第42号第3巻

2004.9

編集兼発行人 独立行政法人港湾空港技術研究所

発行所 独立行政法人港湾空港技術研究所  
横須賀市長瀬3丁目1番1号  
TEL. 046(844)5040 URL. <http://www.pari.go.jp/>

印刷所 株式会社 あんざい

Copyright © (2004) by PARI

All rights reserved. No part of this book must be reproduced by any means without the written permission of the President of PARI.

この資料は、港湾空港技術研究所理事長の承認を得て刊行したものである。したがって、本報告書の全部または一部の転載、複写は港湾空港技術研究所理事長の文書による承認を得ずしてこれを行ってはならない。