

東京大学大学院新領域創成科学研究科  
環境学専攻社会文化環境コース

平成 17 年度

修士論文

東京湾における底泥輸送に関する研究

2006 年 1 月提出  
指導教員 磯部 雅彦 教授

46822 加藤 佑介

## 論文要旨

陸域からの負荷が大きく閉鎖性の強い内湾域においては、シルト・粘土等の泥質物の輸送・堆積現象が海域環境の変動に深く関与する。このような、粒径の細かな泥分粒子の輸送現象の把握は、沿岸域環境の維持・管理においてもきわめて重要な課題となる。たとえば、海水中の微細粒子は有機物や化学物質を吸着して沈降・堆積するため、底質中の泥分の含有率が高いほど底質の汚濁化が進行しやすい。また、底生生物の生息条件について底質粒径は重要な因子とされており、泥の堆積に伴う底質の粒径組成の変化は定性生物の生息環境に大きな影響を及ぼす。さらに、一度堆積した泥でも流れなどの外力により容易に巻き上がりやすく、浮遊した泥粒子による濁りの発生は、水中での太陽光の透明度を減少させ、植物プランクトンや階層などの生育環境に大きな影響を及ぼす。このように底泥の輸送現象は、生態系を含めた沿岸域環境の形成に密接に関わっている。

そこで本研究では、東京湾全体における底泥輸送現象を平面的に解明することを目的として、まずダイオキシンをトレーサとして底泥の移動傾向を調べた。そして、底泥に付着したダイオキシンの挙動を検証データとして数値解析を用いり底泥の移動を再現することを試みた。

統計的手法である主成分分析法を用いて、ダイオキシン類を主要な 6 種類の汚染起源毎に別け、GIS を用いて東京湾の平面的汚染毎による分布を作成した。その結果より、汚染ごとに平面分布は異なるが、多くの場合、千葉港周辺、京葉工業地帯、多摩川河口域周辺が汚染されていることがわかった。拡がり傾向は水深 20m に沿っていることがわかった。

次に底泥輸送モデルを構築して評価を試みた。算定したせん断力が小さく底泥の巻上げについては考慮することができなかったが、SS 濃度が湾奥に関して任意の点におけば湾の西側へ移動することがわかった。

また、現地観測でコアサンプルを採取し、年代測定、CN 比等を測定し、過去の履歴や現状把握を行った。

<b>論文要旨</b> .....	<b>1</b>
<b>1 序論</b> .....	<b>8</b>
1-1 研究の背景及び目的.....	8
1-2 既往の研究.....	9
1-3 本研究の目的.....	10
<b>2 東京湾における現地調査</b> .....	<b>11</b>
2-1 目的.....	11
2-2 観測概要 .....	12
2-2-1 サンプリング地点.....	12
2-2-2 サンプリング方法.....	12
2-2-2-1 柱状採泥器.....	12
2-2-3 採取後の処理方法.....	15
2-2-4 切断間隔と分析項目 .....	16
2-3 分析項目 .....	17
2-3-1 含水率 .....	17
2-3-2 粒度組成.....	18
2-3-3 年代測定.....	19
2-3-3-1 自然放射線強度測定の概要 .....	19
2-3-3-2 放射線強度の計算法.....	19
2-3-3-3 鉛-210 法の原理.....	22
2-3-3-4 セシウム-137 法の原理 .....	25
2-3-4 CN 比 .....	26
2-4 分析結果 .....	28
2-4-1 含水比 .....	28
2-4-2 粒度組成.....	28
2-4-3 年代測定.....	28
2-4-4 CN 比 .....	29
2-5 結語.....	33
<b>3 ダイオキシン類から見る東京湾底泥輸送形態</b> .....	<b>34</b>

<b>3-1 ダイオキシン類について</b> .....	<b>34</b>
3-1-1 ダイオキシン類とは.....	34
3-1-2 ダイオキシン類のコンジェナー .....	35
3-1-3 発生源と生成.....	39
<b>3-2 ダイオキシン類のトレーサとしての有用性</b> .....	<b>40</b>
3-2-1 環境中で安定する性質 .....	40
3-2-2 水域・底質中での挙動.....	40
3-2-3 多様な同族異性体.....	41
<b>3-3 試料の採取, 分析方法</b> .....	<b>41</b>
3-3-1 試料の採取方法, 地点, 時期 .....	42
3-3-2 試料の分析 .....	42
<b>3-4 データ解析(多変量解析によらない方法)</b> .....	<b>46</b>
3-4-1 総濃度について.....	46
3-4-2 同族体組成について.....	47
3-4-3 各成分組成について.....	50
3-4-4 化合物組成について.....	51
3-4-5 まとめと問題点.....	53
<b>3-5 データ解析(主成分分析)</b> .....	<b>54</b>
3-5-1 多変量解析の適用について .....	54
3-5-2 主成分分析法の説明 .....	55
3-5-3 主成分分析の適法方法.....	57
3-5-3-1 変数の選択.....	57
3-5-3-2 データの変数変換.....	58
3-5-3-3 試料についての規準化.....	58
3-5-3-4 変数についての規準化.....	58
3-5-3-5 主成分の解釈・・・因子軸の回転について .....	59
3-5-3-6 主成分スコアについて .....	60
3-5-4 データの主成分分析.....	60
3-5-4-1 入力条件 .....	60
3-5-4-2 主成分数の決定.....	61
3-5-4-3 因子軸の回転の検討.....	61
3-5-5 主成分の解釈.....	64
<b>3-6 本章まとめ</b> .....	<b>65</b>
 <b>4 数値モデルの構築</b> .....	 <b>73</b>

<b>4-1 目的</b> .....	<b>73</b>
<b>4-2 流動モデルの基礎式導出</b> .....	<b>73</b>
4-2-1 交座標系における NAVIE-STOKES 方程式の簡略化.....	74
4-2-2 座標系変換.....	76
4-2-3 NAVIE-STOKES 方程式の移流項を 座標系に変換する .....	78
4-2-4 NAVIE-STOKES 方程式の圧力勾配項を 座標系に変換する .....	80
<b>4-3 底泥輸送に関する基礎式導出</b> .....	<b>82</b>
4-3-1 基礎方程式.....	82
4-3-2 渦動粘性係数および渦動拡散係数の設定 .....	82
4-3-3 底面せん断応力の計算.....	83
4-3-4 底泥の浸食および堆積量の定式化.....	84
<b>4-4 方程式の離散化</b> .....	<b>85</b>
<b>4-5 境界条件</b> .....	<b>85</b>
<b>4-6 計算条件</b> .....	<b>86</b>
4-6-1 諸パラメータ .....	88
<b>4-7 計算結果</b> .....	<b>89</b>
4-7-1 残差流 .....	89
4-7-2 底泥輸送モデルの結果.....	92
4-7-2-1 せん断力図.....	92
4-7-2-2 初期条件 SS を 0.....	93
4-7-2-3 初期条件 一様に SS 濃度 .....	94
4-7-2-4 初期条件 SS 濃度を任意の地点.....	96
<b>4-8 まとめ</b> .....	<b>99</b>
 <b>5 結論と今後の課題</b> .....	 <b>100</b>
 5-1 結論.....	 100
5-2 今後の課題.....	100
 <b>参考文献</b> .....	 <b>101</b>
 <b>謝辞</b> .....	 <b>102</b>

## 図・表目次

図 1-1 沿岸域における懸濁物の挙動.....	8
図 1-2 東京湾の底泥.....	9
図 1-3 鉛-210 法により測定された東京湾における体積速度( $\text{g}/\text{cm}^2/\text{year}$ ).....	9
図 1-4 本研究の位置づけ.....	10
図 2-1 サンプルング地点(主要なランドマークである東京灯標, 風の塔, 千葉灯標もプロット) .....	13
図 2-2 柱状採泥器仕組み.....	14
図 2-3 解折式粒度分布測定装置 SALD-3000S 及び粒径による分類 (JIS A1204) .....	18
図 2-4 解折式粒度分布測定装置 SALD-3000S 及び粒径による分類 (JIS A1204) .....	20
図 2-5 SEIKO 製 EMCA の計算手法の概要.....	21
図 2-6 ウラン - 238 の放射壊変系列.....	22
図 2-7 放射線強度測定器(米国 ORTEC 社製 GMX29PHP-Ge 検出器).....	24
図 2-8 測定用のアクリル製の容器と試料.....	24
図 2-9 東京湾における $^{137}\text{Cs}$ の年間降下量の変化.....	25
図 2-10 MT700 型 CN コーダ.....	27
図 2-11 St.98 (10/5).....	30
図 2-12 St.7(10/21) .....	30
図 2-13 St.99(11/2).....	30
図 2-14 St.98(11/22).....	31
図 2-15 St.97(11/22).....	31
図 2-16 St.98(7/13) .....	32
図 2-17 St.7(8/2) .....	32
図 3-1 ダイオキシン類の構造図.....	34
図 3-2 底質・水域での挙動 (環境省).....	41
図 3-3 サンプルング採取地点.....	45
図 3-4 多変量解析によらない解析の仕方の概念図.....	46
図 3-5 総濃度 .....	47
図 3-6 総濃度(3 地点を外す) .....	47
図 3-7 同族体プロファイル.....	48
図 3-8 同族体プロファイル, 西側詳細.....	48
図 3-9 同族体プロファイル, 東側周辺.....	48
図 3-10 同族体プロファイル(100%積み立て縦棒グラフ), 番号は, 表 3-4 に対応 .....	49
図 3-11 図 3-6,7,8,9 の凡例.....	49
図 3-12 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD .....	50
図 3-13 2,3,4,7,8-PeCDF .....	51

図 3-14 CNP および PCP の日本における原体生産量の経年変化 .....	52
図 3-15 1,3,6,8-TeCDD.....	52
図 3-16 第 1 主成分スコアの地理的分布.....	66
図 3-17 第 2 主成分スコアの地理的分布.....	67
図 3-18 第 3 主成分スコアの地理的分布.....	68
図 3-19 第 4 主成分スコアの地理的分布.....	69
図 3-20 第 5 主成分スコアの地理的分布.....	70
図 3-21 第 6 主成分スコアの地理的分布.....	71
図 4-1 デカルト座標系と 座標系.....	76
図 4-2 浮泥層と SS についての概要.....	85
図 4-3 計算に用いた水深分布.....	87
図 4-4 東京湾における残差流,上図は流速のベクトル図であり,下図は流線である.....	90
図 4-5 残差流の流速ベクトルよりもとめた Divergence .....	91
図 4-6 東京湾におけるせん断力図.....	92
図 4-7 浮泥層の初期条件.....	93
図 4-8 SS 濃度の時系列による拡がり方(SS 濃度一様) .....	95
図 4-9 SS 濃度の時系列による拡がりかた(市原港周辺に SS 濃度がある場合) .....	97
図 4-10 SS 濃度の時系列による拡がり方(袖ヶ浦周辺に SS 濃度がある場合) .....	98
表 2-1 サンプリング地点の緯度経度(GIS での実測値)とサンプリング日 .....	13
表 2-2 切断間隔と分析項目.....	16
表 3-1 ダイオキシン類のコンジェナー数 .....	35
表 3-2 PCDDs の構造式及び毒性等価係数(環境省) .....	36
表 3-3 PCDFs の構造式及び毒性等価係数(環境省) .....	37
表 3-4 Co-PCBs の構造式及び毒性等価係数(環境省) .....	38
表 3-5 サンプリング地点緯度経度と採取日 (1/2).....	43
表 3-6 主成分分析への入力.....	60
表 3-7 相関行列の固有値.....	61
表 3-8 因子負荷量(1/2).....	62
表 3-9 主成分分析結果 .....	72
表 4-1 パラメータの一覧.....	88

# 1 序論

## 1-1 研究の背景及び目的

東京湾のように、陸域からの負荷が大きく閉鎖性の強い内湾域においては、シルト・粘土等の泥質物の輸送・堆積現象が海域環境の変動に深く関与する。このような、粒径の細かな泥分粒子の輸送現象の把握は、沿岸域環境の維持・管理においてもきわめて重要な課題となる。たとえば、海水中の微細粒子は有機物や化学物質を吸着して沈降・堆積するため、底質中の泥分の含有率が高いほど底質の汚濁化が進行しやすい(図 1-1)。また、底生生物の生息条件について底質粒径は重要な因子とされており、泥の堆積に伴う底質の粒径組成の変化は定性生物の生息環境に大きな影響を及ぼす。さらに、一度堆積した泥でも波浪、流れなどの外力により容易に巻き上がり現象を起こしやすく、浮遊した泥粒子による濁りの発生は、水中での太陽光の透明度を減少させ、植物プランクトンや階層などの生育環境に大きな影響を及ぼす。このように底泥の輸送現象は、生態系を含めた沿岸域環境の形成に密接に関わっている。

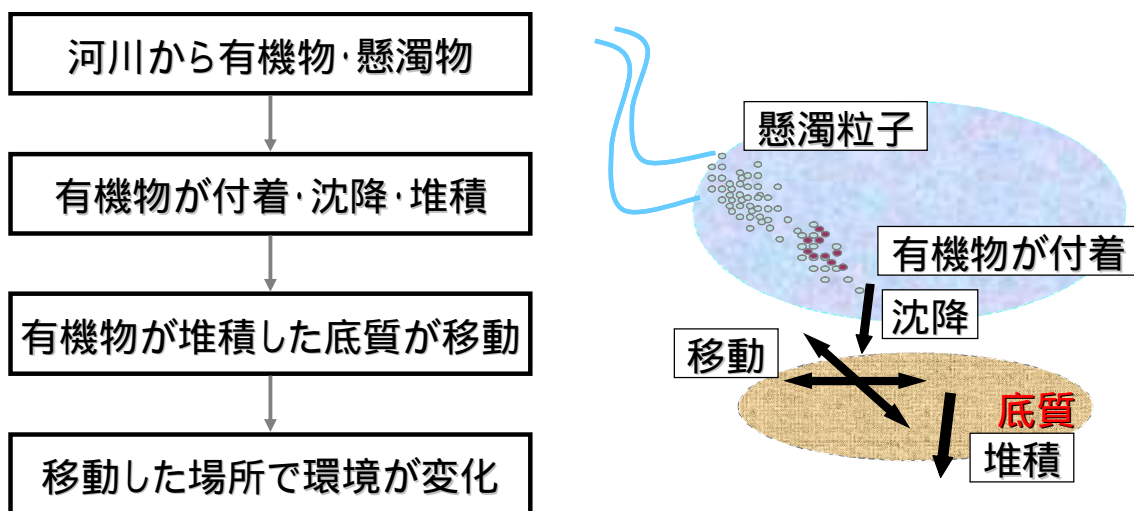


図 1-1 沿岸域における懸濁物の挙動



## 1-2 既往の研究

これまでも、沿岸域における海底面付近での懸濁粒子の挙動に関する研究や、底泥の巻き上げに関する現地調査がいくつかなされている。しかしながら、細粒懸濁物の挙動は海域毎に異なる外力条件や懸濁物の供給過程などに強く依存することから、懸濁物輸送に関連する沿岸環境の改善策等を検討する際には、対象とする海域毎に外力と懸濁物の輸送特性について把握する必要がある。

東京湾に関しては、従来、東京湾における底泥・浮泥の堆積に関する研究はいくつか行われており、松本(1983)は鉛 210 法による底質コアの年代推定より東京湾全域の底泥堆積速度図を作成し、五明ら(1990)は東京湾底泥の堆積特性を現地観測より明らかにしている。また、底泥の巻き上げや輸送に関する研究も行われており、中川(2002)は東京湾奥部において現地観測を行い、巻き上げ限界せん断応力等を明らかにしている。また、五十嵐ら(2004)は、音波探査装置を用いて、東京湾奥部における浮泥堆積層に関する知見を示している。

しかしながら、測定方法の困難さより実態については不明な点が多く、平面的な拡がり方を示す研究はあまり行われていない。



図 1-2 東京湾の底泥

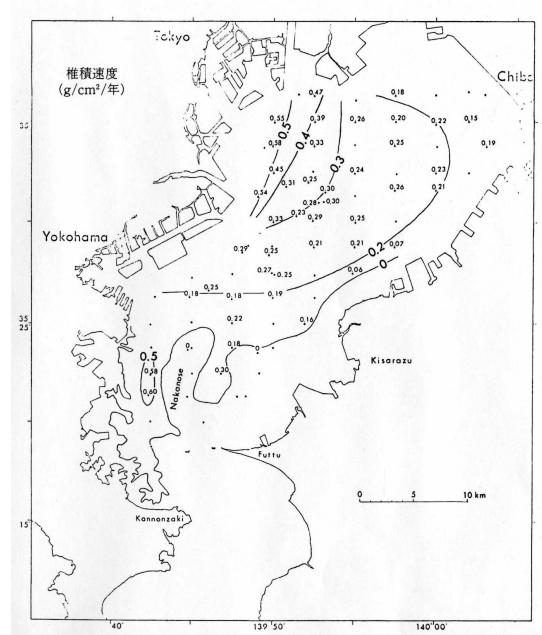


図 1-3 鉛-210 法により測定された東京湾における体積速度( $\text{g}/\text{cm}^2/\text{year}$ )

### 1-3 本研究の目的

既往の研究で述べた通り、測定困難なため、輸送過程についてははっきりしたことがいえな  
いというのが現状である。そこで本研究では、東京湾全体における底泥輸送現象を平面的に解  
明することを目的として、まずダイオキシンをトレーサとして底泥の輸送傾向を調べる。そして、  
底泥に付着したダイオキシンの挙動を検証データとして数値解析を用いり底泥輸送を再現する。  
この底泥輸送が解明することは、有機物の富む底泥においての環境の流入負荷が解明するこ  
とと等しい(図 1-4)。さらに、底泥の環境履歴を解明できるとともに、将来予測も可能と考えてい  
る。

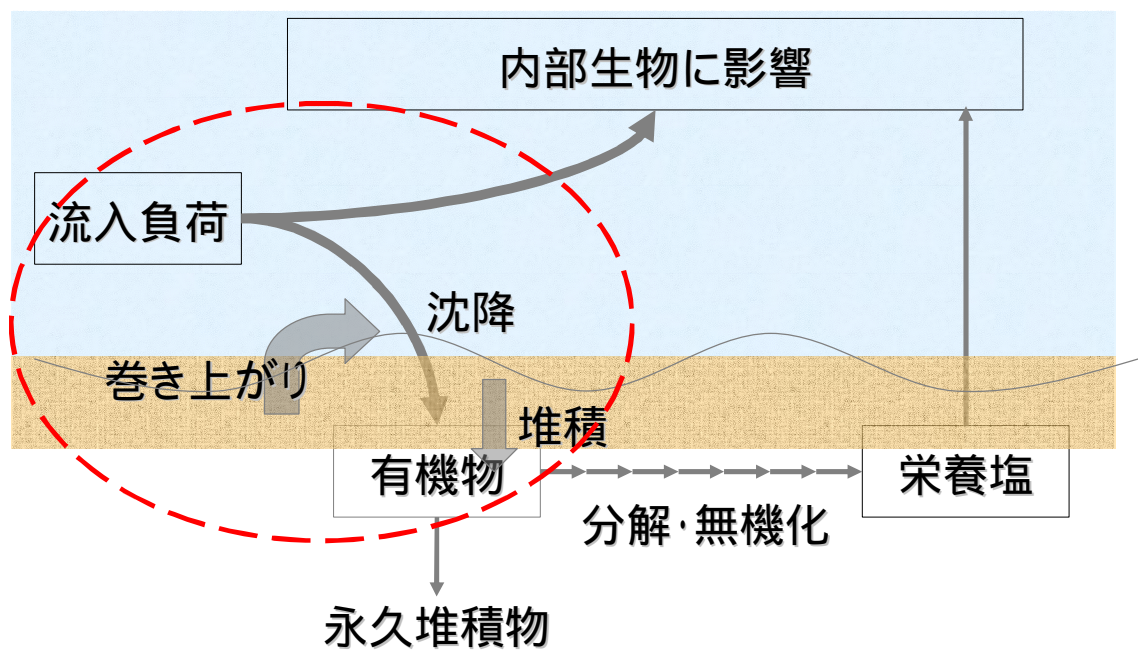


図 1-4 本研究の位置づけ

## 2 東京湾における現地調査

本章では東京湾における現地調査について述べる。2-1 では、現地調査の目的を述べる。次に 2-2 では、観測概要として、サンプ地点、サンプル方法、サンプル採取後の処理について述べる。2-3 では分析項目について説明を行い、2-4 においては分析結果を述べる。最後に 2-5 において本章で得られたデータの議論を行う。

### 2-1 目的

東京湾は人間活動による影響によってその水質が大きく変化しているが、水質は天候、河川流入、外洋水との交換等により、時刻、場所によって大きく変動する。

一方、海底の堆積物は時々の平均的な水質を半反映・保存しているため、長時間の変化を追跡するのに適しているといえる。しかし、堆積物は湾内に水平的に一様に堆積するわけではない。堆積速度は堆積粒子の海底への供給量と供給された粒子の再移動量の差として与えられる。供給量が大きくとも再移動量が同様に大きければ無堆積となる。このような底質の時間的変遷を解明するためには、汚染底質の厚層調査、堆積速度の決定などの堆積物の柱状断面調査が必要となる。

そこで、東京湾においてコアサンプルを採取して、年代測定、粒径、CN 比等を計測して、時間的変遷を単に年代測定だけではなく他の分析項目を利用して解明する。さらに、富栄養化の履歴や現状を示すことも出来る。

## 2-2 観測概要

この節では採取地点、採取方法、また採取後の処理について示す。本研究の対象とするものは、東京湾内における底泥のコアサンプルである。このサンプル採取において、千葉県環境センターが定期的に行う調査船「きよすみ」に同船して行った。

### 2-2-1 サンプリング地点

本研究のサンプリング地点は、**図 2-1** に示した合計 9 点である。また、それらのサンプリング地点の緯度経度とサンプリング日については**表 2-1** にまとめた。サンプリング地点の緯度経度に関しては、2005 年 8 月 2 日に GPS を用いて得たデータを使用している。

### 2-2-2 サンプリング方法

本研究で用いたサンプルの採取方法について述べる。サンプル採取には、柱状採泥器を用いた。この採泥器はパイプが鉄製で、鉛の錘(15kg)がついており、パイプを内装するようになっている。インナは長さ 1m の円形の塩ビ製パイプ(内径 73mm)を使用した。船上のウインチから本体の上部にロープをつけ、水面近くまでおろし、制御落下型方式で行った。着泥後自重でさらにつきささると思え、1 分間放置してから引き上げた。**写真 2-1** は、サンプルを採取している風景である。左は、採泥器を引き上げている様子である。右は引き上げたあとサンプルをパイプから取り出している風景である。

次にパイプを通じて海底の垂直方向の試料を柱状に採取する柱状採泥器についての機構を説明する。

#### 2-2-2-1 柱状採泥器

柱状採泥器は、パイプを地層中に貫入させることにより、底質をパイプ中に捕獲し、落下させないで引き上げる器具である。貫入機構として、重力形を採用した。重力型とは、柱状試料(コア)の収納するコアチューブと、荷重用の錘とからなり、ワイヤロープに吊り下げられながら、自重によって落下してゆくコアサンプルの運動エネルギーと位置エネルギーを利用して貫入させる方法である。

落下の仕方は、制動落下型を用いた。これは、ワイヤロープにつながれたまま、ウインチの巻下ろしのみによって制御される。この速度は、通常、1 ~ 3 m/s 程度である。貫入の原動力はそのほとんどがコアの運動エネルギーに負い、また、この運動エネルギーはコアの平均質量と落下速度との積として得られるが、この程度の速度から大きな運動エネルギーを得るには、重量を大きくしなければならない。**図 2-2** は採泥器の機構についての概略図である。





図 2-1 サンプリング地点(主要なランドマークである東京灯標, 風の塔, 千葉灯標もプロット)

表 2-1 サンプリング地点の緯度経度(GIS での実測値)とサンプリング日

2005 年実施

地点名	緯度	経度	サンプリング日		
st.99	35 ° 37 34	140 ° 00 16	11/2		
st.1	35 ° 32 12	140 ° 01 08	10/21		
st.8	35 ° 36 38	139 ° 53 49	9/15		
st.98	35 ° 33 06	139 ° 54 34	7/13	10/5	11/22
st.97	35 ° 33 59	139 ° 51 23	8/2	10/5	11/22
st.13	35 ° 29 21	139 ° 49 09	10/21		
st.9	35 ° 29 58	139 ° 54 30	11/2		
st.7	35 ° 33 52	140 ° 04 36	8/2	10/21	



採泥器を海面へ入れる



引き上げた採泥器からサンプルを外す



写真 2-1 サンプリング状況

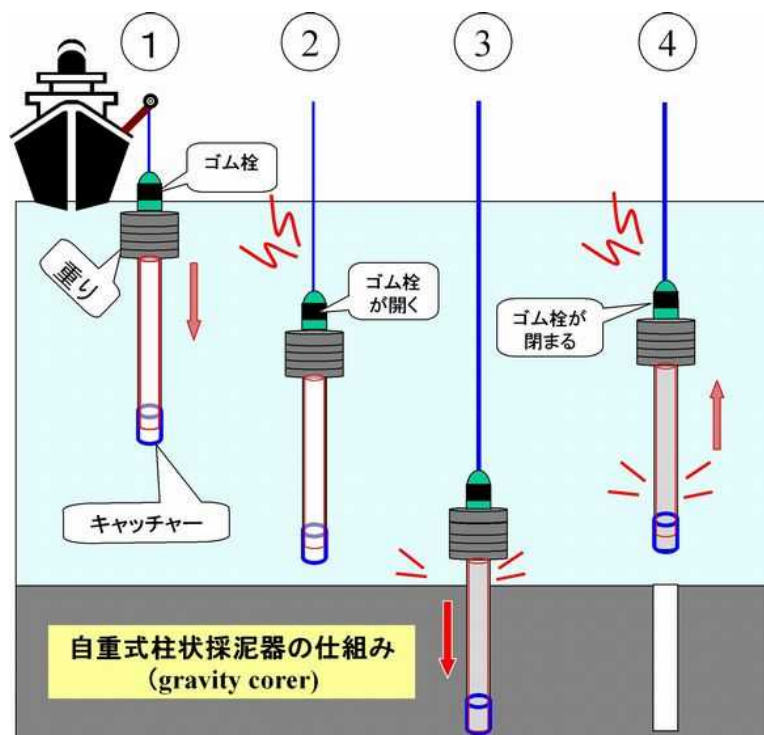


図 2-2 柱状採泥器仕組み

### 2-2-3 採取後の処理方法

採取したコアサンプルの処理方法について説明する。船上でサンプル採取を行い、写真 2-2 に示すように、下船するまで鉛直を保つためビニールテープで固定して保管した。乗船中、ブリージングは行っていない。下船後は、0.5～5cm 間隔で、固いプラスチックの板を用いてサンプルを切断した。切断したサンプルを密封可能な袋にいれて(写真 2-3)、クーラボックスに入れて実験室へ運び、冷蔵庫に冷凍保管した。切断間隔については、次の節において説明する。



写真 2-2 サンプル保管 コアたてにサンプルを垂直に保つためビニールテープで固定



写真 2-3 切断の様子

採取したサンプルはその場で切断を行い、ポリエチレンのジーパー式の袋に空気を抜いて保管する。

#### 2-2-4 切断間隔と分析項目

コアサンプルの切断間隔と分析項目を表 2-2 に示したとおり、切断し各分析を行った。切断に関しては、多くの場合は、表層付近は細かく、そしてそれ以後は 5cm ごとに切断した。

表 2-2 切断間隔と分析項目

分析項目： a:含水率, b:粒度組成, c:年代測定, d:CN 比 を示す。

地点名	サンプリング日	全長	切断	分析項目
st.99	11月2日	100cm	全て5cm	a,b,c,d
st.1	10月21日	100cm	1-6cmは1cm 6-10cmは2cm その後は5cm	a,d
st.8	9月15日	100cm	1-10cmは1cm その後は3cm	b,d
st.98	7月13日	35cm	1-10cmは1cm その後は5cm	a,b,d
	10月5日	60cm	1-6cmは1cm 6-10cmは2cm その後は5cm	a,b,c,d
	11月22日	100cm	全て5cm	a,b,c
st.97	8月2日	60cm	1-10cmは1cm その後は3cm	a,d
	10月5日	60cm	1-2cmは0.5cm 2-6cmは1cm 6-10cmは2cm その後は5cm	a,b
	11月22日	100cm	全て5cm	a,c
st.13	10月21日	55cm	1-2cmは0.5cm 2-6cmは1cm 6-10cmは2cm その後は5cm	a,b,d
st.9	11月2日	70cm	全て5cm	a,d
st.7	8月2日	53cm	1-10cmは1cm その後は3cm	a,b,d
	10月21日	55cm	1-2cmは0.5cm 2-6cmは1cm 6-10cmは2cm その後は5cm	a,b,c,d



## 2-3 分析項目

この節では今回行った分析について説明する。分析を行うにあたり、底泥サンプルを乾燥させる必要がある。その器具として凍結乾燥機(東京理化器製 FDU-1200)を使用した。凍結乾燥とは、気圧を下げることにより、沸点を下げて物体を乾燥させることであり、蒸発とは異なり昇華で水分を除去する手法である。組成変化もなく、多孔質に乾燥させるので、内部からも乾燥させる。そして、復元性は、多孔質の部分に水が入り、溶解性が高いという特徴がある。写真 2-3 は凍結乾燥である。乾燥させるサンプルは前もって十分凍結させないといけない。



凍結乾燥機



凍結させたサンプルを試料テーブルの上に置く

写真 2-3 凍結乾燥機(東京理化器製 FDU-1200)

### 2-3-1 含水率

含水率は湿泥を容器に載せて乾燥させ、乾燥前後の差より求める。本研究では、上述したとおり乾燥は凍結乾燥器を用いた。試料を、写真 2-3 のように 220ml 入るプラスチックコップを用いて乾燥させた。この容器を使用したのは、年代測定において十分な量の確保が必要なためである。乾燥時間はプラスチックカップを使用した時は 72 時間連続で乾燥させた。付属のヒータは運転を開始後、2 時間経過したら稼働させた。プラスチックカップ以外にもバイアルピンを使用した。バイアルピンを使用する際には、運転時間は 24 時間で乾燥させた。なお、付属のヒータを使用したのは乾燥を促進させるためである。

### 2-3-2 粒度組成

粒度組成を把握することは底質研究にとっていわば基本的事項である。寒川喜三郎ら(1996)により粒子の侵食・運搬・堆積過程で重要な因子となつて示されている。そこで、本研究では堆積物の粒子の大きさを特徴づけるため、粒子を直径に応じて分類される種類、すなわち砂、シルトおよび粘土に分けることにする。

本研究では、中央粒径  $D_{50}$  分布の表現を JIS 規格による分類を用いることにする(A1204, 日本規格協会)。また、分析については、島津製作所(株)製 SALD-3000 型レーザー回折式粒度分布測定装置を使用した(図 2-3)。

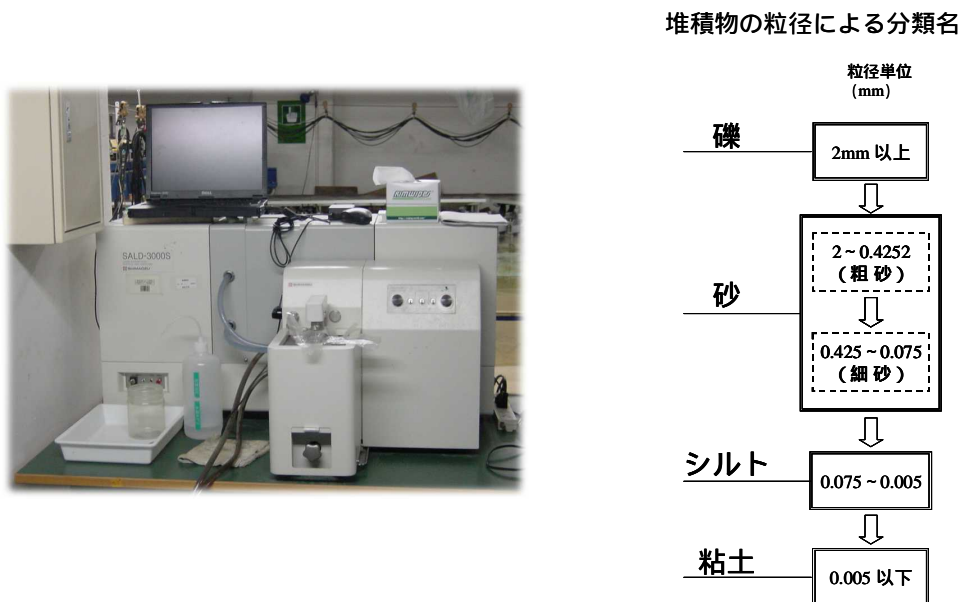


図 2-3 解折式粒度分布測定装置 SALD-3000S 及び粒径による分類 (JIS A1204)

### 2-3-3 年代測定

年代測定を行うために、46.5keV(鉛-210)と放射率 84%の 661.6keV( $^{137}\text{Cs}$ )の線を検出することにより放射線強度を測定した。鉛-210(以下 $^{210}\text{Pb}$ という)は、半減期 22.3 年であり、自然の大気中に一定の割合で存在するため、攪乱が起らずに堆積傾向が続けば減衰することになる。また、 $^{137}\text{Cs}$ (以下、 $^{137}\text{Cs}$  という)は、半減期 30 年の放射性核種であり、核実験の影響で 1986 年と 1963 年に降下量のピークがあったことがわかっており、鉛直分布のピークにより年代測定を利用できる。測定器は、線検出器(米国 ORTEC 社製、GMX29 HP-Ge)と SEIKO EG & G 社製の Spectrum Navigator を用いた。

測定手順としては、各試料の質量を計測し、その後アクリル製の容器に整形し、1 サンプル 24 時間の測定を行った。今回は、試料を 40g とした(図 2-8)。

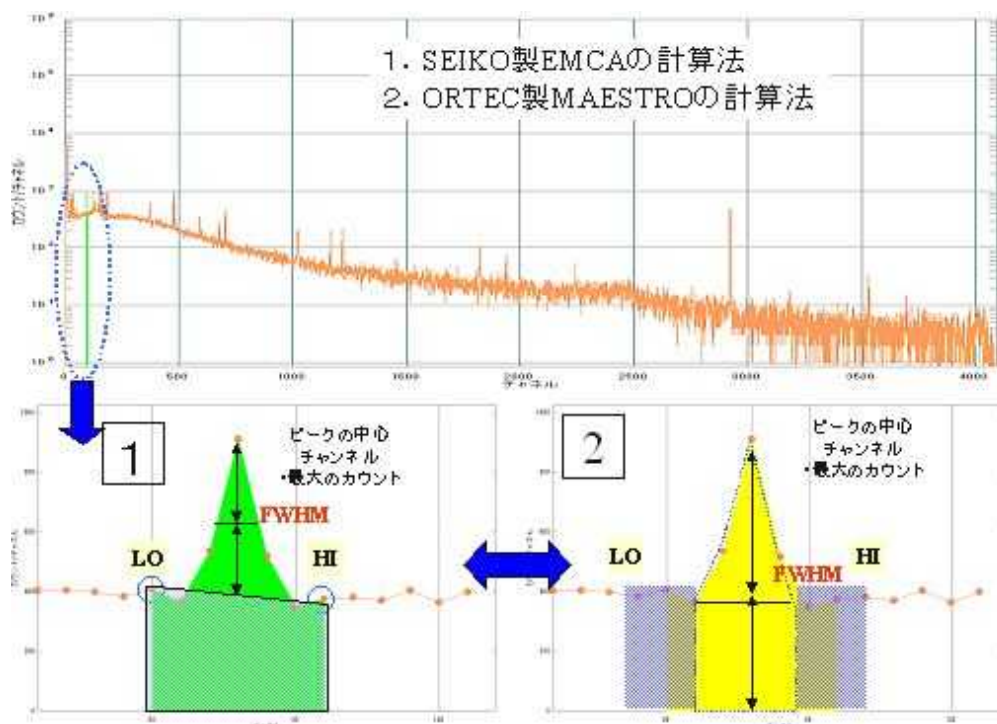
ここでは、自然放射線強度の測定方法、また鉛-210 法、セシウム-137 法について述べる。

#### 2-3-3-1 自然放射線強度測定の概要

年代測定では、得られた年代数値と実際の現象として知りたい年代との対応を的確に行うことが、最も重要な点である。しかし、人為的な改変がある場所では、堆積物の攪乱が激しく、知りたい年代推定までにいたらないこともある。特に、100 年以下の年代測定において一般的に用いられるのは、鉛-210( $\text{Pb-210}$ )法である。本研究の対象海域では、かく乱している場所もあるので、セシウム-137( $^{137}\text{Cs}$ )法の特定年代にも着目した。通常セシウムが検出される最深の深さは核実験が始まった 1954 年、ピークは 1963 年、さらに最近のピークはチェルノブイリ原子力発電所の事故により  $^{137}\text{Cs}$  が放出された 1986 年となるという原理である。さらに、放射線強度測定にとどまらず、物理・化学的要素の項目も測定を加えることで、総合的に判断することができる。これにより、最近 30 ~ 50 年間の堆積過程の推定が可能となる。

#### 2-3-3-2 放射線強度の計算法

計算は、ピークサーチを行い発見したピーク中心を計算するとともに、ピーク面積を計算する。その計算法には、ROI の開始・終了チャンネルを挟んで3点を使ったネット評価を行い、そのネットピークカウントに対する FWHM(半値幅)を計算する SEIKO 製 EMCA 計算法を用いた。次に、その計算法を記述する。



(注)ROI(Region of Interest):着目(関心)領域では,マルチチャンネル波高分析器では開始チャンネルから終了チャンネルにわたって指定されたチャンネル領域をいう.

図 2-4 解折式粒度分布測定装置 SALD-3000S 及び粒径による分類 (JIS A1204)

SN 測定器による自動計算法をまとめると,次の通りである。ピークの低チャンネル側のバックグラウンド領域は,ROI の開始チャンネルを挟み両側に1チャンネルずつ取った3チャンネルである。ピークの高チャンネル側のバックグラウンド領域は,ROI の開始チャンネルを挟み両側に1チャンネルずつ取った3チャンネルである((株)SEIKO EG&G, 2002)。(図 2-5)

＊用語解説

➤ B = バックグラウンド面積

$l$  = ROI の開始チャンネル

$h$  = ROI の終了チャンネル

$C_i$  =  $i$  チャンネルのカウント

$6$  = 使用するデータチャンネル数(高側、低側共3チャンネル)

➤  $A_g$  = ROI のグロス面積

(ROI が設定されている全チャンネルの合計)

➤  $A_n$  = ネット面積

(グロス面積からバックグラウンド面積を引いたもの)

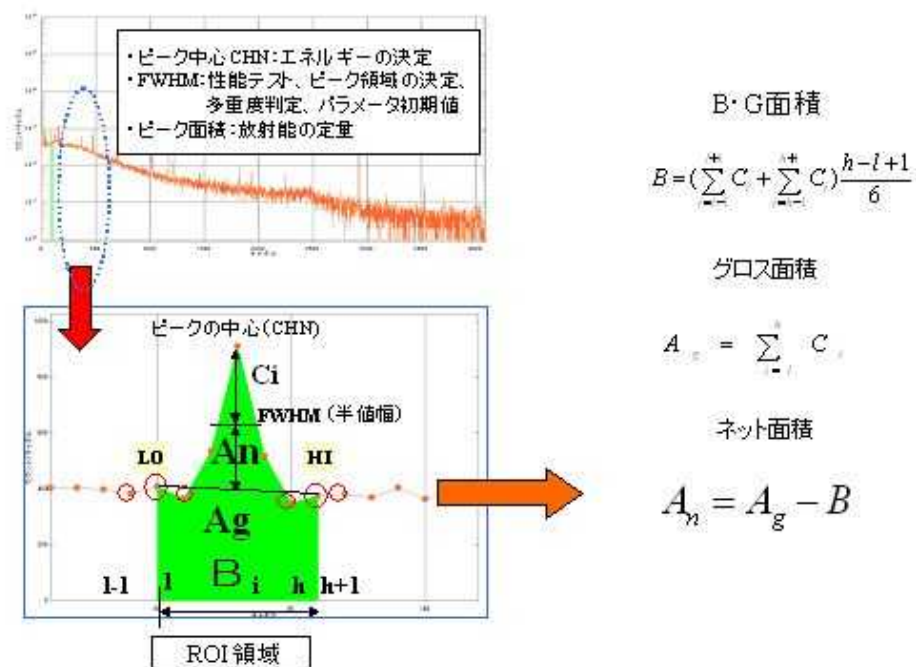


図 2-5 SEIKO 製 EMCA の計算手法の概要

上記の SN 測定計算によるネット面積から BGで検出された値を引いたものが、定量測定の総カウントである。定量総カウントを測定時間で割ると測定試料の全量(g)が 1 秒間に出すカウント数になる。また、その値(測定試料(g)・s)を測定試料の全質量で割ると、堆積物の粒子 1g が 1 秒間に放出する放射線強度(count/s・g)を求めることが出来る。

### 2-3-3-3 鉛-210 法の原理

鉛-210 法による年代測定は、「日本海洋会,1986」に定める原理に準ずるものである。地殻中に含まれるウラン-238( $^{238}\text{U}$ )から放射壊変で生成される  $^{222}\text{Rn}$  は気体であるため大気中に逃散される。大気中の  $^{222}\text{Rn}$  の大部分は壊変して、 $^{210}\text{Pb}$  となり、エアロゾルとして降水に取り込まれて、再び地表に戻ってくる。降水となり湖水や海水に導入された  $^{210}\text{Pb}$  は、水中の  $^{226}\text{Ra}$  から生成してくる  $^{210}\text{Pb}$  とともに、水中の懸濁粒子に吸着され、水中の懸濁粒子は雪のように水底につぎつぎに積もっていく。 $^{210}\text{Pb}$  および堆積粒子の底泥表面への沈降速度が一定で、かつ堆積後再移動しなければ、その底泥が表面にあたって時期を、図 2-6 のようにもとめることが出来る。図 2-6 は、 $^{238}\text{U}$  の放射壊変系列である。

$t$  年後代表面にあった底泥が、現在ある深さになるまでの  $t$  年代に、 $^{210}\text{Pb}$  が外部から加えられることはなかったと考えられるので、 $t$  年代に減少するのみである。

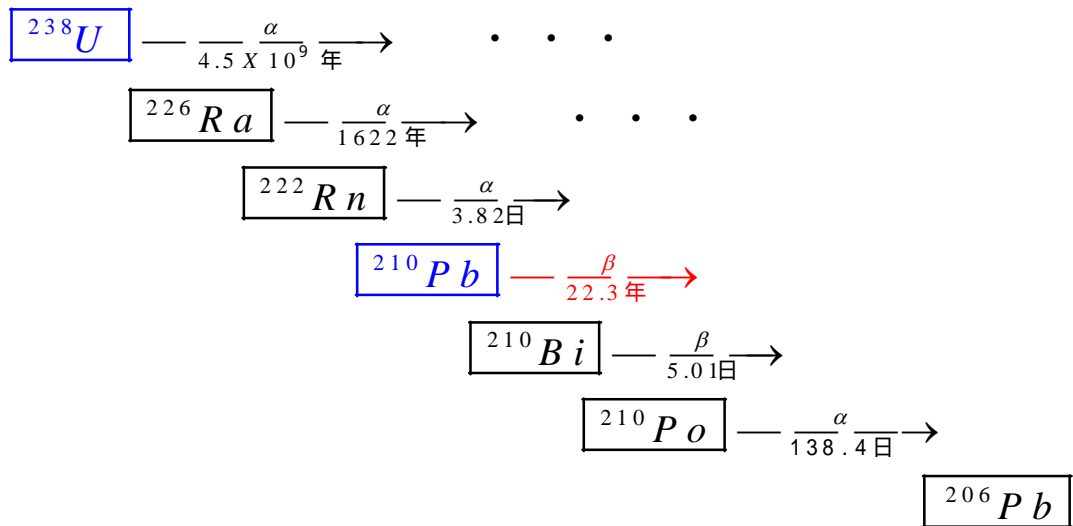


図 2-6 ウラン - 238 の放射壊変系列

この底泥が  $t$  年後に表面にあったときの  $^{210}\text{Pb}$  濃度は、現在表面の底泥中の  $^{210}\text{Pb}$  濃度と同じであったはずである。式で表すと

$$\frac{A(t)}{A(0)} = \exp(-\lambda t) \quad (2-1)$$

となる。ここで  $A(0)$  は底泥表面での  $^{210}\text{Pb}$  濃度、 $A(t)$  は  $t$  年前に表面にあった、ある深さ  $z(\text{cm})$  の底泥中の現在の  $^{210}\text{Pb}$  濃度である。  $^{210}\text{Pb}$  の壊変定数で半減期 22.2 年を用いれば

$$\lambda = \frac{0.693}{22.2} (\text{year}^{-1}) \quad (2-2)$$

となる。

ただし  $t$  は現在から数えた年数である。式(2-1)の右辺を測定して求めれば実際には  $^{210}\text{Pb}$  および堆積粒子の底泥表面への沈降速度には多少の変動が考えられるので、底泥中での  $^{210}\text{Pb}$  の詳細な鉛直分布を測定して平均的な堆積速度を求め、堆積年数を決定する。

平均堆積速度  $s(\text{cm year}^{-1})$  とすれば式(2-2)は、

$$\frac{A(t)}{A(0)} = \exp\left(\frac{-\lambda t}{s}\right) \quad (2-3)$$

で表されえる。

ところで、ある深さの堆積物は、上に降り積もった堆積物により、間隙水が絞り出されて圧縮される。堆積速度  $s$  は深くなると減少することになる。この堆積速度の値に対する圧密の影響は、単位面積あたりの堆積粒子の平均重量堆積速度  $w(\text{g cm}^{-2} \text{ year}^{-1})$  を考えることにより除かれる。底泥表面から深さ  $z(\text{cm})$  までの単位面積あたりの堆積粒子の堆積重量深度を  $W(\text{g cm}^{-2})$  とすれば、深さ  $z$  における  $^{210}\text{Pb}$  濃度  $A(w)$  は式(2-3)より、

$$A(W) - A(\infty) = \{A(0) - A(\infty)\} \exp\left(\frac{-\lambda t}{s}\right) \quad (2-4)$$

$$W = \int_0^z (1 - \phi) \rho_s dz \quad (2-5)$$

となる。

ここでは  $\phi$  は底泥の間隙率、 $\rho_s$  は堆積粒子の密度、 $A(\quad)$  は堆積物粒子の高山粒子中に含まれる  $^{210}\text{Pb}$  濃度であり、通常  $^{210}\text{Pb}$  濃度が一定値に達する深さでの値をとる。

$A_{ex}(W) - A_0(\infty)$  の値を過剰  $^{210}\text{Pb}$  と呼び、 $A_{ex}(W)$  をプロットし、直線の傾きより平均堆積速度  $w$  が求められる。 $W/w$  より堆積年数  $t$  が決定される。 $w$  と  $s$  の間には

$$w = s(1 - \phi) \quad (2-6)$$

の関係がある。

本研究では、上記の原理の理解の上で測定を行う。 $^{210}\text{Pb}$  は崩壊に伴って、放出率4%で46.5keVの線を放出する。線は物質への透過力が強いので、堆積物を容器に入れたまま非破壊で測定できる。ただ、低エネルギーまで測定可能で、十分な遮蔽体をもった特別の線検出器が必要である。



図 2-7 放射線強度測定器(米国 ORTEC 社製 GMX29PHP-Ge 検出器)  
手前にある灰色の容器は測定時に必要な液体窒素を入れるものである。



図 2-8 測定用のアクリル製の容器と試料



#### 2-3-3-4 セシウム-137 法の原理

セシウム-137 法は、大気圏原子水爆実験により地球上に放出された半減期 30 年の人工放射性核種である。1954 年のアメリカによるビキニ環礁での水爆実験に始まり、1963 年 7 月に米英ソ 3 カ国の部分的核実験停止条約が成立するまで、大気圏内の核実験が続行され、大量の放射性物質が地表に降下してきた。

図 2-9 に東京における  $^{137}\text{Cs}$  の年間降下量の変化を示した。図から明かのように、1956 年の水爆の高空爆発実験から降下量が増大し、1963 年にピークとなり、1967 年まで減少を続けた。1986 年には、チェルノブイリ原子炉事故の影響を受けて、 $^{137}\text{Cs}$  の大きいピークが見られたが、翌年には事故前の平常レベルにまで激減した。地表に降下した  $^{137}\text{Cs}$  は、 $^{210}\text{Pb}$  と同様に海底に次々に積もり、堆積物の年代尺度となる。降下放射性核種のうち、 $^{137}\text{Cs}$  は量が一番多く、線を放出するため測定も容易である。

$^{137}\text{Cs}$  測定は、試料を乾燥して粉末にした後、プラスチック容器に密封する。プラスチック容器を線検出器に密着し、放出率 84% の 622keV の線をスペクトロメータにより測定する。 $^{137}\text{Cs}$  は試料の化学処理を行わず、容易に測定でき、 $^{210}\text{Pb}$  と同時測定も出来る。

通常  $^{137}\text{Cs}$  が検出される最深の深さは核実験が始まった 1954 年、ピークは 1963 年とする。すなわち、この方法は、1954 年以降の堆積物、すなわち堆積物の表層にのみ適用が可能である。ところが、堆積物の表層はしばしば底生生物によって上下混合され、 $^{137}\text{Cs}$  の鉛直分布の形から表層混合の有無を見極め、適用することが必要である。

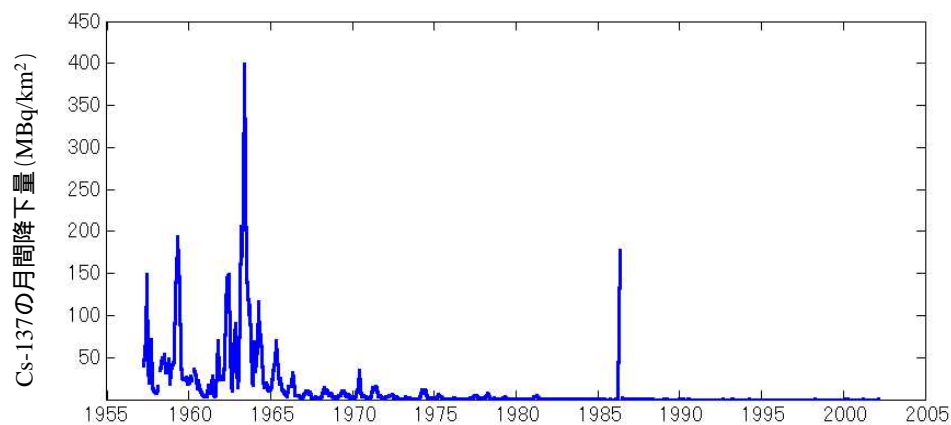


図 2-9 東京湾における  $^{137}\text{Cs}$  の年間降下量の変化

## 2-3-4 CN 比

本研究では、堆積物から汚濁負荷などの流入などによる様々な影響を調べるため、炭素、窒素、CN 比を測定した。測定方法は有機物の燃焼によって生じる二酸化炭素を測定する CN 分析が一般的である。

海洋堆積物中の有機物総量を知る方法として、有機物の燃焼によって生じる二酸化炭素を測定する CN 分析が一般的である。堆積物中の有機物総量を、燃焼によって生じる炭素と窒素量を測定することによって求められる。

この測定値は、有機炭素と窒素の比 (CN 比)、ゆえに堆積物に残存する有機物の起源を論ずる場合に使われる (日本海洋学会編, 1986)。水中生物ではその比がほぼ 5 ~ 6 であるのに対して、陸上の生物 (高等植物) では約 40 になることもある。水中生物の有機物が微生物分解を受けると CN 比は増加し、陸上物質の場合は C/N 比は低下するが、陸起源有機物と海起源有機物を区別するのに大体は使用できる。しかし堆積物中では、交換態や結合態の無機窒素が吸着して、CN 比が著しく低い値を示すものもあるので、結果の解釈には注意しなければならない。

本研究では、MT 型 CN コーダ (ヤナコ製) を用い (図 2-10)、全有機炭素量を測定した。この装置は、試料内に含まれる炭素・窒素含有量および C/N 比を求めることができる装置で、1 回の運転につき 50 サンプルを分析できる。分析に使用する試料量も 0.2g と少ない。

その原理は、CN コーダは試料を燃焼し、燃焼ガスを完全酸化還元する燃焼部、燃焼により生成された二酸化炭素、窒素ガスを採取する定量ポンプ部、二酸化炭素、窒素を測定することである。使用する機械は、それらを測定する熱伝導度検出器 (TCD) 部およびこれらを自動的に制御する制御部より構成されている。分析は掃引、燃焼、混合、記録シーケンスの繰り返しにより進める。

燃焼シーケンスに資料をフラッシュ・ヒーターで 950℃ まで加熱して分解させ、試料の分解により生成した燃焼ガスを約 850℃ に加熱した銅還元層との接触により、水、二酸化炭素、窒素酸化物、窒素などにする。試料中のハロゲン、イオウと水分はそれぞれサルフィックスと水吸収管により除去される。記録シーケンスに燃焼ガスが一定速度で還元炉を経て TCD に送り込まれる。この時、燃焼ガスは 550℃ に加熱された還元銅は過剰な酸素の除去および窒素酸化物の窒素還元され、二酸化炭素、窒素になる。TCD の検出素子はホイートストンブリッジを構成しており、二酸化炭素と窒素それぞれの濃度に比例した不平衡電圧が得られる。この不平衡電圧がインターフェスを介してシグナルとして出力される。



図 2-10 MT700 型CNコーダ

## 2-4 分析結果

4つの分析項目を行った以下の3地点(図 2-11 図 2-12 図 2-13)について示したものは中央粒径, 含水率, 有機物含有量, 放射線強度( $^{137}\text{Cs}$ ,  $^{210}\text{Pb}$ )の鉛直プロファイルである。また, 他に年代測定を行った2地点の結果図 2-14 図 2-15に示す。そして, CN比について図 2-16 図 2-17も示す。全てのサンプルにおいて, 表泥を0としている。

### 2-4-1 含水比

図 2-13, 図 2-17 は, ばらつきが多くかく乱している様子がわかるが, 他の部分は深さに伴って含水率が減っている様子がわかる。これは, 一般的には泥と水分の密度の違いによる沈降や圧力の影響で, 深いほうが, 泥分が多くなり, 含水率が低くなるからである。

### 2-4-2 粒度組成

st.7 は表泥付近は中央粒径は大きく, 深度に比例して細くなる。同様なことが, st.98 でもいえるが, 図 2-16 のように, 表泥 ~ 25cm までかく乱している様子がわかる。図 2-13 も表泥 ~ 30m までかく乱していて, それから堆積していると考えられる。st.98 とst.7 を比べると, st.98 も方が細かい。

### 2-4-3 年代測定

図 2-11 図 2-14 は, 同じ地点の st.98 である。年代測定の結果を見てみると, 値のばらつきがあり, また測定しているコアの部分が異なるために比較は出来ないが, 結果だけを見れば,  $^{137}\text{Cs}$ の放射線量(図 2-9)が2度ピークあると仮定すれば, 図 2-11 が示しているのは1963年のピークであり, 図 2-14 が示しているのは1986年である。約25年で15から20cm堆積すると推察できる。しかし, 表泥からのピーク時までの値を見ると, 図 2-14 の方は, 1.5 ~ 1.75cm/year で, 図 2-11 の方は, 1.13 ~ 1.25cm/yearと計算できる。これは堆積する層が下の層になると圧縮されていることであることがわかる。

同様に図 2-13 に関しては, 表泥からのピーク値を見れば, 第1のピークと, 第2のピークがそのまま1986年と1963年だと値としては1.0 ~ 1.25 cm/yearとわかる。

$^{137}\text{Cs}$ のピーク値だけを見れば, st.99 は, 1.0 ~ 1.25 cm/year, st.98 は, 1.1 ~ 1.75 cm/year, st.97, が1.1 ~ 1.25 cm/year, st.7 が1.1 ~ 1.25 cm/yearと考えられる。もちろん, ここで考慮しなければいけないのは, 測定した部分が全部ではないため, 必ずしも示したものがピーク値とは限らない。

$^{210}\text{Pb}$  は, かなりのばらつきがあるが, 図 2-14 の分布は減少している傾向がわかりやすく表れている。

#### 2-4-4 CN 比

底泥の CN 比を決める重要な変数は(懸濁物質の)沈降フラックス  $F_{sed}$  および沈降フラックス中の各物質の濃度である。また底泥の攪乱係数もプロファイルに影響する。炭素は分解すると最終的に  $CO_2$  になるので測定された炭素のほとんどは(生物起源の)有機炭素であり、また窒素も無機態窒素の主要部分を占めるアンモニア態窒素  $NH_4-N$  も底泥と結合あるいは吸着する部分は有機態窒素と比較すると少ないので大部分は有機態窒素であると考えてよい。(リンについては無機態の割合を無視できない。)なお、有機態の炭素や窒素は分解のしやすさによって易分解性、難分解性を分けることによって現象をよく表現できるとされる。

沈降フラックスおよびその中に含まれる各物質の濃度が一定であれば時間の経過と共に易分解性、難分解性の部分が分解されるので深くなるにしたがって含有率は減少するはずである。今回のサンプルに関しては表層 10cm ではそうした傾向は見られず、ほぼ一定のもの、逆に深層に向かうにつれて増加しているものもある。

表層数 cm で濃度がほぼ不変であることについては、底泥の攪乱の影響が沈降フラックスの影響を上回っているために一様になっているか、または沈降フラックスが小さく易分解性、難分解性の炭素窒素がごく表層で分解されてしまっていること、フラックス中に占める炭素窒素の割合が減少傾向にあることなどが考えられるが、採泥の過程で表層の泥が海水中に失われてしまっている可能性もある。全体としては St.7 が炭素、窒素とも含有率が低い。そして St.98 炭素、窒素とも含有率が高い(図 2-16 図 2-17)。

次に CN 比について述べる。海域起源の植物プランクトンの場合分子量的にはレッドフィールド比から炭素と窒素の存在比は 5.68:1 である。結果より、炭素の量が全体的に多い。このことより CN 比が大きい陸域起源の有機物も底泥中に混入しているかもしれないが、炭素と窒素の分解特性の違いが明らかに影響している。

炭素と比較して窒素のほうが易分解性部分の割合が大きく、また難分解性部分と非分解性部分を比較しても窒素の方が分解可能な部分の割合が大きい。結果として分解が進めば進むほど CN 比が高くなると考えられる。実験結果より、深くなるにしたがって炭素、窒素の含有量が減少しているサンプルに関しては、大体において CN 比も増加している。ただし、図 2-13 が示すように、明確な増加傾向が見えないものもある。図 2-17 で示したように、深層のほうが炭素、窒素が多くなっているサンプルでは CN 比も深層でなっている。表層で既にレッドフィールド比から推測されるよりは CN 比は高くなっているが、これは易分解性の有機物が沈降する前にすでにかなりの部分分解されていることと表層の泥が攪乱によりより深い層の泥と混合することによる。

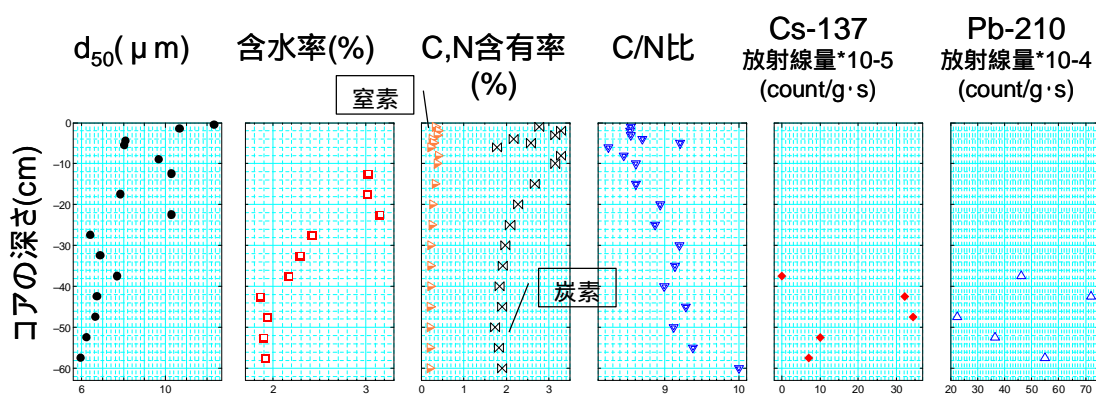


図 2-11 St.98 (10/5)

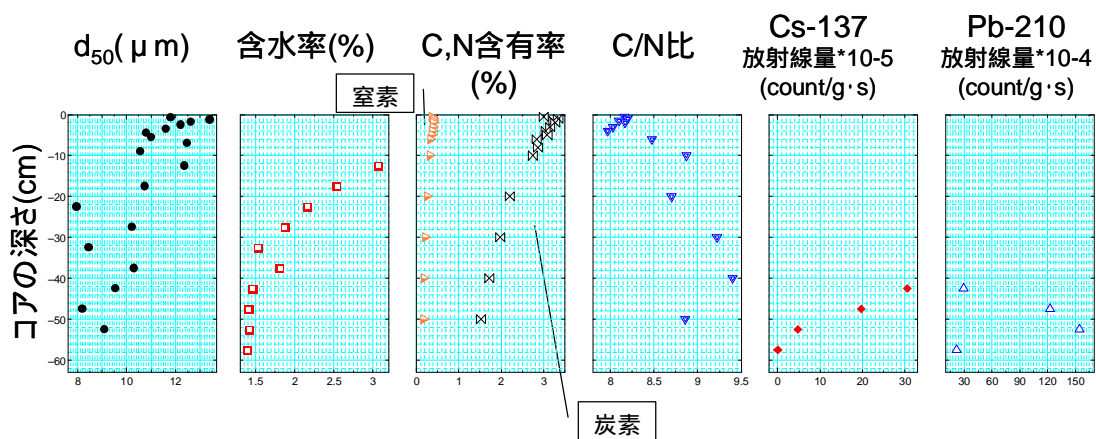


図 2-12 St.7 (10/21)

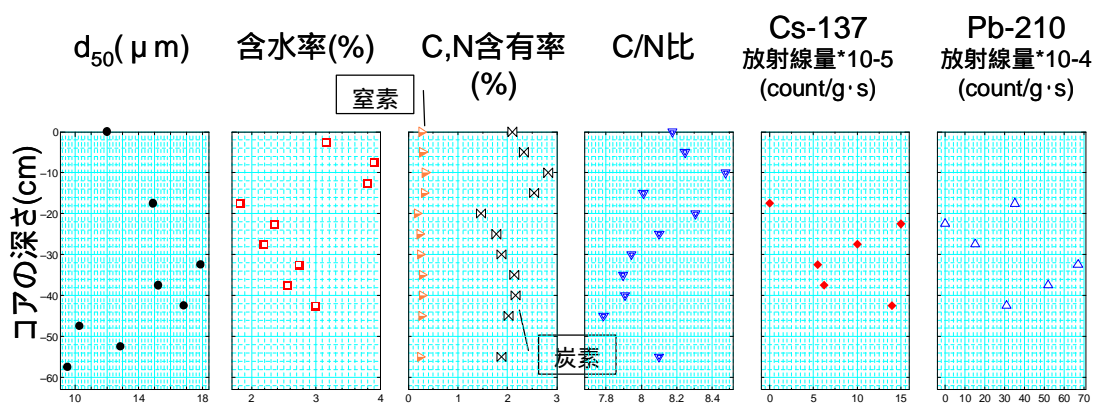


図 2-13 St.99 (11/2)

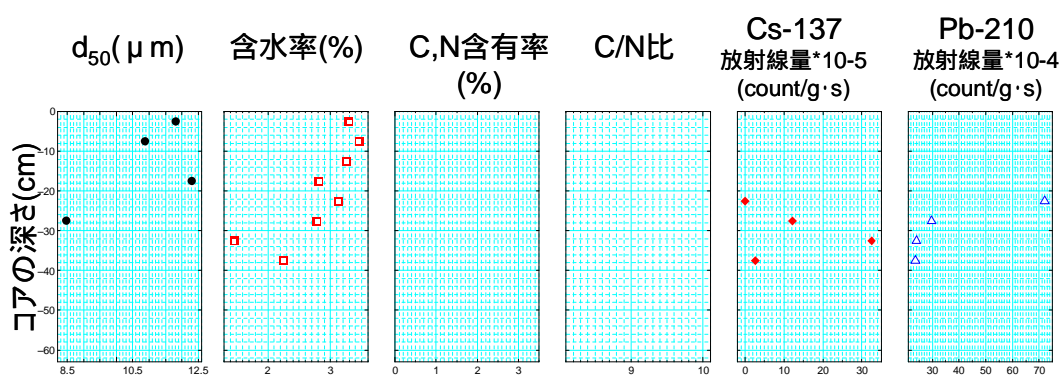


図 2-14 St.98(11/22)

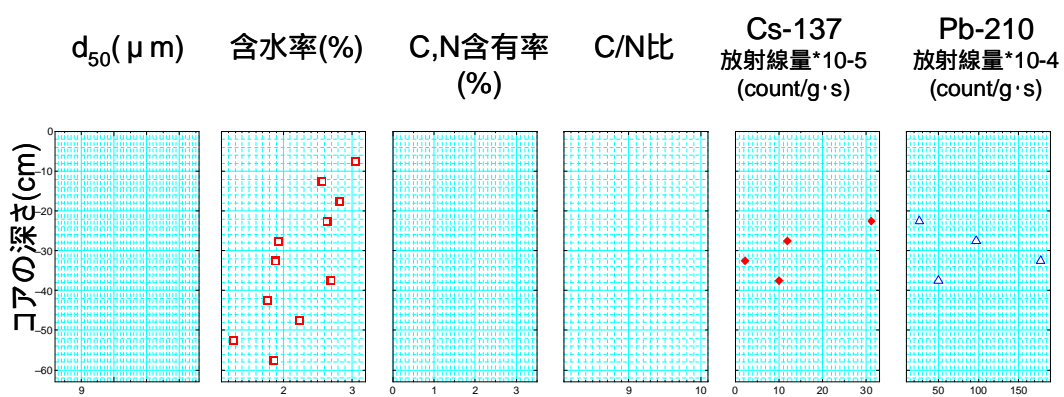


図 2-15 St.97(11/22)

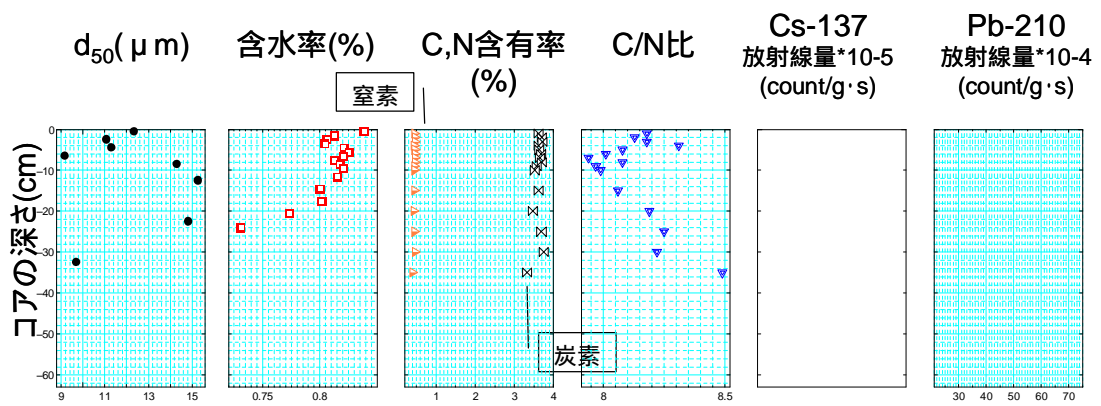


図 2-16 St.98(7/13)

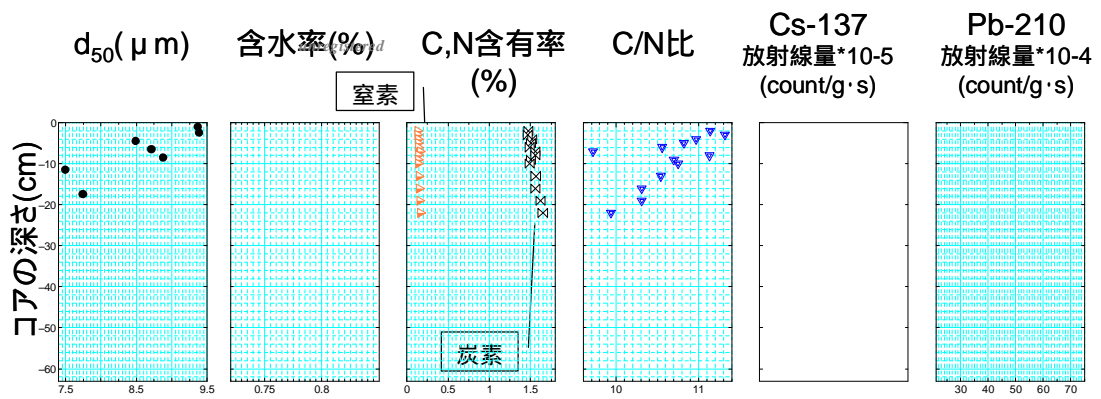


図 2-17 St.7(8/2)



## 2-5 結語

粒度組成に関して、水深の浅い st.7 が、st.98 より粒径が大きいと考えるのは、st.7 の方は水深が浅く、その分底泥が移動しやすいからである。また移動し難い砂、すなわち粗い砂が堆積しやすいと考えられる。同様なことが、他の地点でも確認できた。

含水率などの結果より、そのサンプル地点がどのぐらいの深さで堆積しているのか、またかく乱しているのかは推察できる。年代測定に関しては、図 2-11 図 2-12 図 2-14 が有意である。st.98 においては、ピーク間を考えれば、0.5cm/year、であり、各ピークから表泥を考えれば上層のほうは、1.5～1.75cm/year となっており、下層は 1.0～1.1cm/year となる。これは溜まる量が常に一定という仮定のもとなので、表層付近の層が厚く堆積速度が速い結果は有意である。st.7 においては、1.0～1.1cm/year と考えられる。

CN 比に関しては、図 2-16 図 2-17 が小さいが他は同じ範囲内で示されている。

### 3 ダイオキシン類から見る東京湾底泥輸送形態

本章では、底泥がダイオキシン類に付着する性質を利用し底泥の輸送状況、拡がり方とその堆積傾向についての知見を得ることを目的とする。3-1 ではダイオキシン類の対象物質の性質を述べる。その後、ダイオキシン類の発生源、そして環境汚染の現状を述べる。次に3-2において、なぜダイオキシン類をトレーサとして取り上げたかを述べる。3-3 では、試料採取方法、分析について説明を簡単に行う。そして以下の節ではデータ解析を行う。3-4 においては多変量解析によらない方法でデータを整理し、濃度や同族体組成、そして化学物組成について検討する。3-5 では主成分分析について説明を行い、主成分分析の適用より得られた結果について議論する。最後に3-6 において、本章の議論をまとめる。

なお、本研究の目的は、底泥輸送を解明することであり、ダイオキシン類の汚染状況や汚染経緯を解明することは対象としない。

#### 3-1 ダイオキシン類について

この節ではダイオキシン類の性質を示す。はじめに物性を示し、次に発生源について簡単に示す。

##### 3-1-1 ダイオキシン類とは

本研究の対象とするダイオキシン類について説明する。ダイオキシン類とは PCDDs(ポリ塩化ジベンゾ-パラ-ジオキシン)、PCDFs(ポリ塩化ジベンゾフルラン)、Co-PCBs(コプラナーポリ塩化ビフェニル)の総称である。PCDDs、PCDFs は、ベンゼン環 2 つが酸素で結合しており、そこに塩素が付いた構造をしている。Co-PCBs は、ベンゼン環が 2 つ結合し、そこに塩素がついているポリ塩化ビフェニル(PCBs)のなかでも、PCDDs、PCDFs と同様に 2 つのベンゼン環が同一平面上にあって扁平構造を、比較的取りやすいとされている化合物である。構造図を図 3-1 に示す。

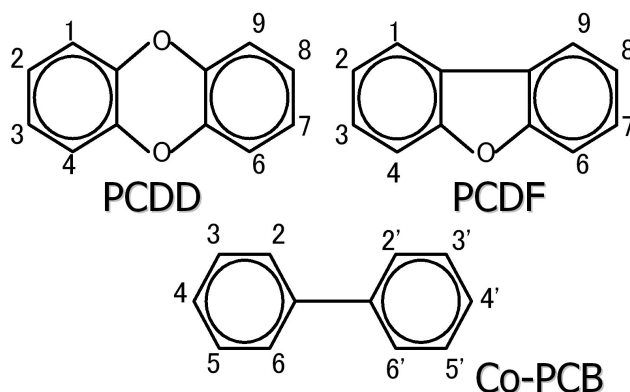


図 3-1 ダイオキシン類の構造図

### 3-1-2 ダイオキシン類のコンジェナー

ダイオキシン類はベンゼン環に置換した塩素元素の数と位置の違いによって、それぞれが多くの同族体と異性体を有する。「同族体(homologue)」と同一骨格構造を有し、塩素置換数の異なる化合物で、「異性体(isomer)」とは骨格構造と塩素置換数が同じで、塩素置換位置が異なる化合物のことである。骨格構造が同じ同族体と異性体を合わせた化合物を「同族異性体」、あるいは「コンジェナー(congener)」と呼ぶ。まとめたもの表 3-1 に示す。

具体的に示せば PCDDs, PCDFs では, 1 ~ 4, 6 ~ 9 の位置に, Co-PCBs では, 2 ~ 6, 2' ~ 6' 位置に塩素や水素が付いており, 塩素が付く場所, 数によってその種類が変わる。これにより, PCDDs は 75 種類, PCDFs は 135 種類, Co-PCBs は十数種類が存在する。この中で, 毒性があると見なされているのは, PCDDs, PCDFs では, 2,3,7,8 の位置に塩素があるもの, そしていくつかの Co-PCBs である。毒性の強さはそれぞれ異なっており, 2,3,7,8 位に塩素が存在する PCDD (2,3,7,8-TeCDD) がダイオキシン類の仲間の中で最も毒性が強いことが知られている。塩素の置換数が同じで, 置換位置が異なる化合物の一群である PCDDs, PCDFs の同族体の物質名を表 3-2 表 3-3 に示す。また, Co-PCBs については塩素が, オルト位 (2,2',6,6' 位) に置換されていないノンオルト体の物質名を

表 3-4 に示す。また, 各表には毒性等価係数 (TEF) が存在する異性体物質名, 化学構造及び毒性等価係数 (TEF) を示すが, 本研究では毒性についてはメインではないので補足的に説明する。

表 3-1 ダイオキシン類のコンジェナー数

No. of Cl 塩素数	Dioxins	No. of congeners コンジェナーの数				No. of 2378-	Furans	No. of congeners コンジェナーの数				No. of 2378-
1	M <sub>1</sub> CDD	2	26		0		M <sub>1</sub> CDF	4	48		0	
2	D <sub>2</sub> CDD	10					D <sub>2</sub> CDF	16				
3	T <sub>3</sub> CDD	14					T <sub>3</sub> CDF	28				
4	T <sub>4</sub> CDD	22	49	75	1	7	T <sub>4</sub> CDF	38	87	135	1	10
5	P <sub>5</sub> CDD	14			1		P <sub>5</sub> CDF	28			2	
6	H <sub>6</sub> CDD	10			3		H <sub>6</sub> CDF	16			4	
7	H <sub>7</sub> CDD	2			1		H <sub>7</sub> CDF	4			2	
8	O <sub>8</sub> CDD	1			1		O <sub>8</sub> CDF	1			1	

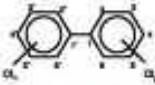
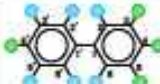
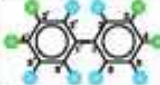
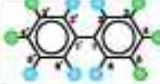
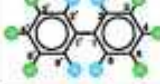




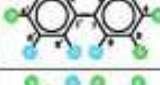



表 3-2 PCDDs の構造式及び毒性等価係数( 環境省 )

PCDDs	同族体			2,3,7,8-位塩素置換異性体		
	塩素(Cl) 数	同族体名	異性体 数	化合物名	化学構造 <sup>*1</sup>	TEF 値 <sup>*2</sup>
 $(x+y=1\sim8)$ 1~4,6~9 位 に塩素が置換して いる	1 (mono)	MoCDDs	2	—	—	—
	2 (di)	DiCDDs	10	—	—	—
	3 (tri)	TrCDDs	14	—	—	—
	4 (tetra)	TeCDDs	22	2,3,7,8-TeCDD		1
	5 (penta)	PeCDDs	14	1,2,3,7,8-PeCDD		1
	6 (hexa)	HxCDDs	10	1,2,3,4,7,8-HxCDD		0.1
				1,2,3,6,7,8-HxCDD		0.1
				1,2,3,7,8,9-HxCDD		0.1
	7 (hepta)	HpCDDs	2	1,2,3,4,6,7,8-HpCDD		0.01
	8 (octa)	OCDD	1	OCDD		0.0001

\*1  水素(H)  酸素(O)  塩素(Cl)

\*2 1997 年に WHO より提案され、1998 年に正式に決定されたもの(Van den Berg et al., 1998)


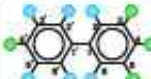

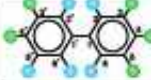









表 3-3 PCDFs の構造式及び毒性等価係数( 環境省 )

PCBs	異性体数	Co-PCBs				
		オルト位 (2,2',6,6') 塩素置換数	化合物名	IUPAC No.	化学構造*	TEF 値*
 <p>(x+y=1~10) 2~6、2'~6'位 に塩素が置換して いる</p>	209	0 (non)	3,4,4',5-TeCB	81		0.0001
			3,3',4,4'-TeCB	77		0.0001
			3,3',4,4',5-PeCB	126		0.1
			3,3',4,4',5,5'-HxCB	169		0.01
		1 (mono)	2,3,3',4,4'-PeCB	105		0.0001
			2,3,4,4',5-PeCB	114		0.0005
			2,3',4,4',5-PeCB	118		0.0001
			2',3,4,4',5-PeCB	123		0.0001
			2,3,3',4,4',5-HxCB	156		0.0005
			2,3,3',4,4',5'-HxCB	157		0.0005
			2,3',4,4',5,5'-HxCB	167		0.00001
			2,3,3',4,4',5,5'-HpCB	189		0.0001

\*1  水素(H)  塩素(Cl)

\*2 1997 年に WHO より提案され、1998 年に正式に決定されたもの(Van den Berg et al., 1998)

表 3-4 Co-PCBs の構造式及び毒性等価係数( 環境省 )

PCBs	異性体数	Co-PCBs				
		オルト位 (2,2',6,6') 塩素置換数	化合物名	IUPAC No.	化学構造 <sup>*1</sup>	TEF 値 <sup>*2</sup>
 (x+y=1~10) 2~6, 2'~6'位 に塩素が置換して いる	209	0 (non)	3,4,4',5'-TeCB	81		0.0001
			3,3',4,4'-TeCB	77		0.0001
			3,3',4,4',5'-PeCB	126		0.1
			3,3',4,4',5,5'-HxCB	169		0.01
		1 (mono)	2,3,3',4,4'-PeCB	105		0.0001
			2,3,4,4',5'-PeCB	114		0.0005
			2,3',4,4',5'-PeCB	118		0.0001
			2',3,4,4',5'-PeCB	123		0.0001
			2,3,3',4,4',5'-HxCB	156		0.0005
			2,3,3',4,4',5'-HxCB	157		0.0005
			2,3',4,4',5,5'-HxCB	167		0.00001
			2,3,3',4,4',5,5'-HpCB	189		0.0001

\*1  水素(H)  塩素(Cl)

\*2 1997 年に WHO より提案され、1998 年に正式に決定されたもの(Van den Berg et al., 1998)

### 3-1-3 発生源と生成

ダイオキシン類の発生源について述べる。ダイオキシン類の現在の主な発生源は、ごみ燃却による燃焼である。その他に、製鉄用電気炉、たばこの煙、自動車排出ガスなどの様々な発生源がある。

ダイオキシン類の生成について述べる。ダイオキシン類のうち、PCDD/PCDFs の生成プロセスは大別して2通りある。

第1の生成プロセスは、塩素が関与する化学反応であり、有機塩素化合物の合成の際にダイオキシン類が副生することが古くから知られていた。ベトナム戦争で使用された枯れ葉剤の成分であった、2,4,5-T には 2,3,7,8-TeCDD が含まれていた。また、紙パルプ工業における塩素漂白工程でも樹木成分と塩素の反応でダイオキシンが生じる。

第2の生成プロセスは燃焼である。有機物の燃焼に際して塩素が共存すれば比較的容易にダイオキシンが生じる。都市ゴミ・産業廃棄物の燃却から石炭や石油の燃焼に至るまで、種々の燃焼プロセスにおいて、触媒性を有する金属などの共存や酸素・温度条件などにより程度の違いはあるが、ダイオキシンが生成する。

他に、光化学反応や生物の関与によりダイオキシンが生成する場合もあるようである。また、鉱物によってはダイオキシンを含有することが知られ、自然界でも生成している可能性が指摘されている。

な日本における PCB に関しては 1950 年代から絶縁材として広範にしようされていたが、カネミ油症事件により人体への有害性が明らかになり、1972 年には日本国内での生産が禁止された。

最後に、東京湾の底泥において考慮しなくてはならない汚染由来は、PCB をはじめとする農薬がある。PCP(ペンタクロロフェノール)、CNP(クロロニトロフェン)の2種類の農薬がある。前者は 1960 年代、後者は 1970 年代に、魚介類に対する毒性回避のため 1986 年に出荷を禁止した。禁止される前に使用されていたものが東京湾の底泥内で今現在でも堆積していると考えられる。製造禁止後の後もそれまでに使用されていたものが徐々に陸上から海に流出し、海底に堆積したり、外洋に流出したりしている(益永(2004))。

## 3-2 ダイオキシン類のトレーサとしての有用性

この節では底泥輸送を考える上で、なぜダイオキシン類をトレーサとして用いたのかを示す。本研究は、東京湾の底泥輸送を解明することが目的であるが、底泥の拡がり方はいまだに不明な点が多い。理由としては、測定方法がまだ確立されておらず、現地調査でもその拡がり方を示す知見はないからだ。そこで、本研究はダイオキシン類に着目した。ダイオキシン類は、他の化学物質とは異なり、3つの性質を同時に持っている。私はこの3つの性質を利用すれば底泥輸送についての知見が得られると考えている。この節では、ダイオキシン類の持つ、その3つの性質を示すことでトレーサとして十分活用できることを示す。挙げる3つの性質は、

- 環境中で安定していること
- 水中において底泥に付着して移動すること
- 多様な同族異性体を持ちそれらが発生源に異なること

である。これを順に説明する。

### 3-2-1 環境中で安定する性質

ダイオキシン類は、水に溶けにくく、蒸発しにくい性質を持っている。また、ダイオキシン類は他の化学物質や酸、アルカリにも簡単に反応せず、安定した状態を保つ。ただ、太陽の紫外線で徐々に分解されることがあるが、微小である。

### 3-2-2 水域・底質中での挙動

水域中のダイオキシン類は、懸濁物質に吸着した懸濁態及び水中に溶けた状態の溶存態に存在するが、大半は懸濁態が占める。また、水域と底質中のダイオキシン類の挙動は、巻き上げと沈降である。水に解けたダイオキシン類の溶出が考えられるが、水には溶け難い性質を考えれば微小である(前項 3-2-1)。図 3-2 に、水域と底質中ダイオキシン類の代表的な挙動について示す。東京湾全体で考える際に、生物拡散は微小として捉えてもよいと考えている。

底質中のダイオキシン類は、底質粒子に吸着したものと、底質間隙の水中に分配されている。それぞれの形態で存在するダイオキシン類の媒体外への移動は、水域への底質の巻き上げと溶出が挙げられる。また、他の媒体からの底質への移動は水域中懸濁物の沈降が挙げられる。

底泥中におけるダイオキシン類の代表的な挙動は、巻き上げによるものとする。



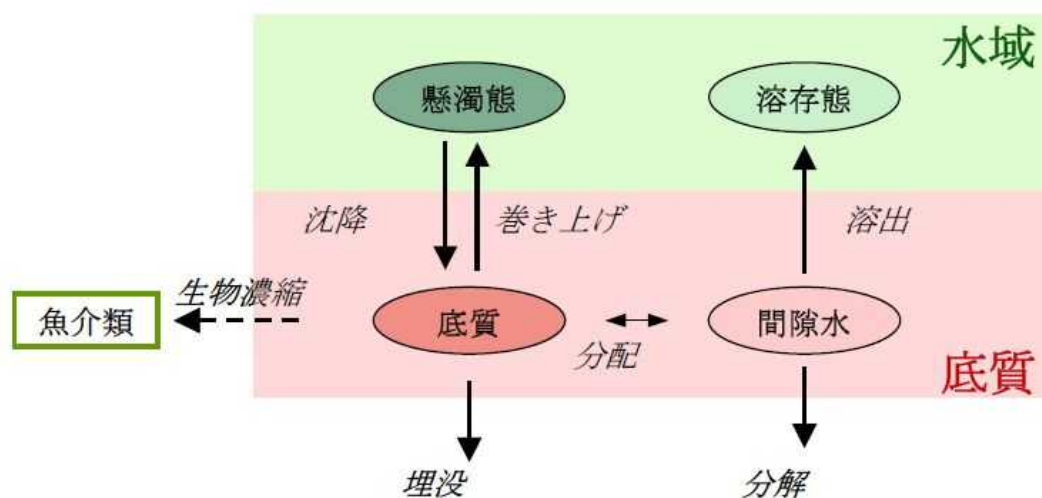


図 3-2 底質・水域での挙動 (環境省)

### 3-2-3 多様な同族異性体

ダイオキシン類は、発生源毎に異なる同族異性体を環境に排出される(前項 3-1-3)。そして、この同族異性体の割合は異なるので、環境中に安定している性質(前項 3-2-1)を利用すれば容易に発生源毎に分けることが可能である。

## 3-3 試料の採取、分析方法

本研究で使用したデータは全て千葉県環境研究センターから頂いたものである。同センターがダイオキシン類調査を開始したのは、2000 年度にダイオキシン類対策特別措置法が執行されてからである。その年にダイオキシン汚染に関する調査が全国で行われた。千葉県八幡地区(以後、市原港という)のダイオキシン汚染が、これまでの調査(吉澤ら(2005))によりTEQ、面積、汚染度量のいずれの面からも海域における国内でも最大規模の汚染であることが判明した。そこで、千葉県と市原市は 2002 年度の調査で環境基準値を超過した五井南海岸沖及び千種泊地沖の底質のダイオキシン類汚染分布についてその実態を把握するために調査を実施した。本研究において、そこで得られたデータを拝借して解析を行った。試料について簡単に採取方法、分析方法を簡単に述べる。

### 3-3-1 試料の採取方法, 地点, 時期

調査地点及び使用データについて説明する。採泥は千葉県の調査船「きよすみ」で 2003 年 10 月, 11 月に港研式採泥器で表層泥を採取した。また, 千葉港沿岸域のデータとして市原市の環境調査と千葉市の 2001, 2002 年度の常時監視データを使用した。また今回は他の地方自治体(東京都, 神奈川県, 川崎市)が実施した調査のデータも拝借した。全体のデータとして採取日は数年の幅を持つが, 輸送は長期的な移動なのでそれらのデータを同じ重さで議論した。それらをまとめて, 図 3-3 表 3-5 に示す。なお, 複数年度の測定値がある場合は平均値で示した。

### 3-3-2 試料の分析

採取した底質は 1mm メッシュのフルイを通したのち, 遠心分離して, ダイオキシン類分析試料とした。分析底質のダイオキシン類分析は環境庁「底質マニュアル」(2000)に強熱減量(Ig,loss)と含水率は環水官 127 号に準拠して行った。粘土分布は HORIBALA-500 を用い, 遠心分離前の試料を純粋中で測定した。また, 微採泥率(53  $\mu$ m 以下の粒子重量比率)は湿泥状態で測定した。

表 3-5 サンプルング地点緯度経度と採取日 (1/2)

ID	地点名	緯度	経度	自治体
1	東京湾 1	139 ° 53 42	35 ° 36 42	千葉
2	東京湾 2	139 ° 56 42	35 ° 40 35	千葉
3	東京湾 3	139 ° 59 24	35 ° 38 50	千葉
4	東京湾 4	139 ° 57 46	35 ° 36 27	千葉
5	東京湾 5	140 ° 03 39	35 ° 36 18	千葉
6	東京湾 6	140 ° 03 06	35 ° 35 04	千葉
7	東京湾 7	140 ° 04 24	35 ° 33 54	千葉
8	東京湾 8	139 ° 54 20	35 ° 33 16	千葉
9	東京湾 9	140 ° 01 09	35 ° 32 26	千葉
10	東京湾 10	139 ° 56 48	35 ° 32 06	千葉
11	東京湾 11	139 ° 58 54	35 ° 30 06	千葉
12	東京湾 12	140 ° 00 48	35 ° 30 29	千葉
13	東京湾 13	139 ° 54 24	35 ° 29 18	千葉
14	東京湾 14	139 ° 51 43	35 ° 25 24	千葉
15	東京湾 16	139 ° 52 42	35 ° 22 27	千葉
16	東京湾 17	139 ° 51 14	35 ° 21 12	千葉
17	東京湾 20	139 ° 49 48	35 ° 14 42	千葉
18	追加1	139 ° 54 21	35 ° 27 26	千葉
19	追加2	139 ° 56 42	35 ° 28 21	千葉
20	追加3	139 ° 57 59	35 ° 34 27	千葉

表 3-5 サンプリング地点緯度経度と採取日 (2/2)

ID	地点名	緯度	経度	自治体
21	追加4	139 ° 59 59	35 ° 36 41	千葉
22	追加5	140 ° 00 57	35 ° 34 31	千葉
23	千葉 1	140 ° 04 55	35 ° 34 50	千葉
24	千葉 2	140 ° 06 42	35 ° 34 52	千葉
25	千葉 3	140 ° 05 21	35 ° 36 12	千葉
26	千葉 4	140 ° 02 04	35 ° 37 25	千葉
27	千種8	140 ° 02 01	35 ° 30 60	千葉
28	姉崎海岸	140 ° 01 06	35 ° 30 08	千葉
29	千種海岸	140 ° 01 33	35 ° 31 10	千葉
30	五井南海岸沖	140 ° 02 46	35 ° 32 10	千葉
31	五井南海岸沖 2	140 ° 03 13	35 ° 32 59	千葉
32	五井海岸沖	140 ° 04 14	35 ° 33 46	千葉
33	海釣り施設付近	140 ° 03 33	35 ° 32 41	千葉
34	st5	139 ° 46 03	35 ° 36 60	東京
35	st6	139 ° 48 02	35 ° 36 51	東京
36	st8	139 ° 50 46	35 ° 36 51	東京
37	st2 2	139 ° 53 20	35 ° 34 50	東京
38	st2 3	139 ° 46 57	35 ° 34 22	東京
39	st2 5	139 ° 49 16	35 ° 33 48	東京
40	st3 2	139 ° 47 58	35 ° 31 26	東京
41	st3 5	139 ° 50 46	35 ° 30 31	東京
42	浮島沖	139 ° 48 30	35 ° 30 16	川崎
43	東扇島沖	139 ° 47 44	35 ° 29 02	川崎
44	東扇島防波堤西	139 ° 44 45	35 ° 28 45	川崎
45	扇島沖	139 ° 44 53	35 ° 27 39	川崎
46	中の瀬北	139 ° 44 44	35 ° 25 16	神奈川
47	中の瀬南	139 ° 43 18	35 ° 21 02	神奈川
48	第 3 海保東	139 ° 45 28	35 ° 17 08	神奈川
49	浦賀沖	139 ° 45 48	35 ° 13 40	神奈川

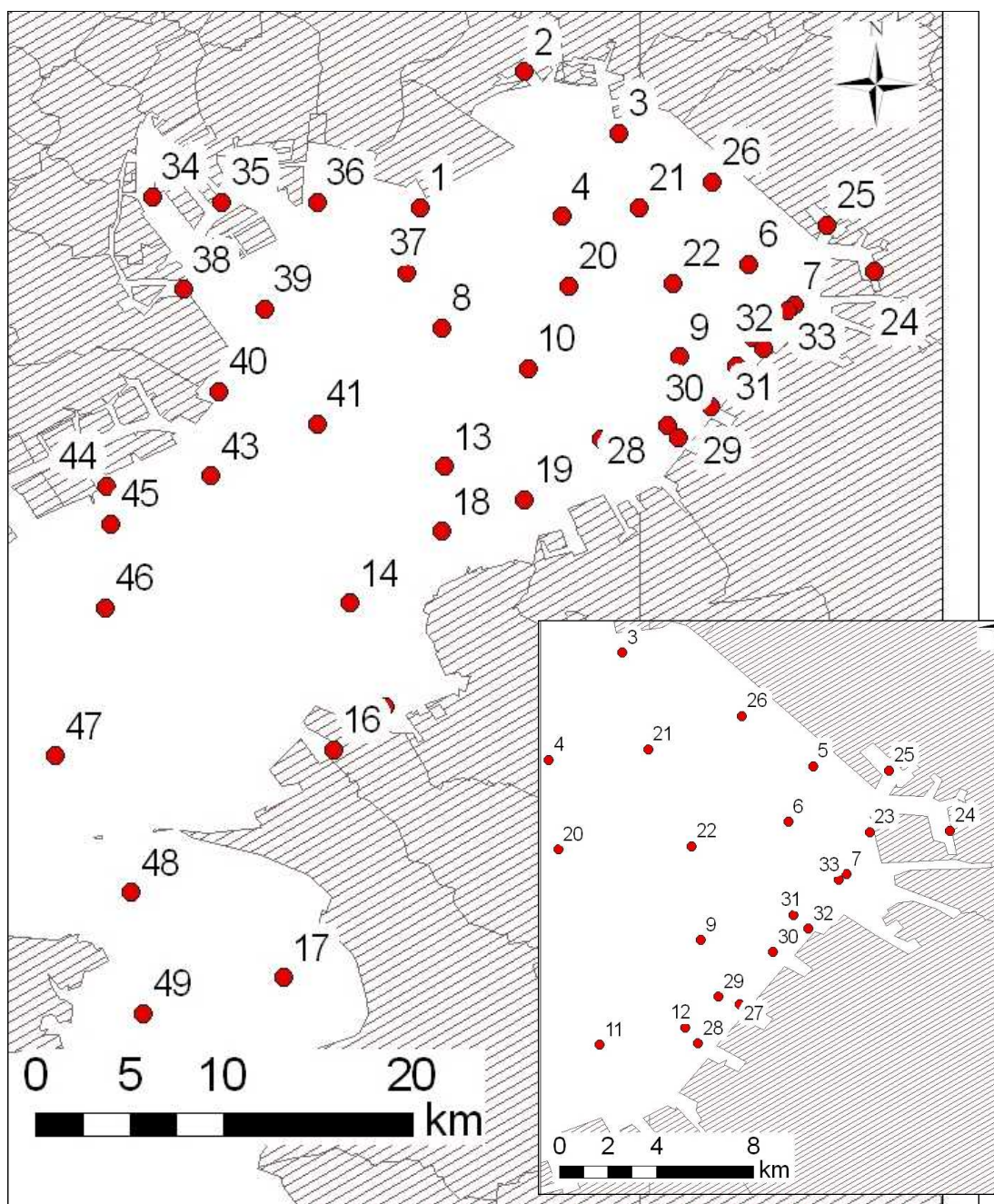


図 3-3 サンプル採取地点

### 3-4 データ解析(多変量解析によらない方法)

前節で得られたデータの解析を行う。はじめに、多変量解析によらない方法で、データを整理し、濃度や同族体組成の地理的分布を検討するとともに、化合物組成に注目した解析を行う。図 3-4 に示したのはこの節で行ったデータ解析の概念図である。

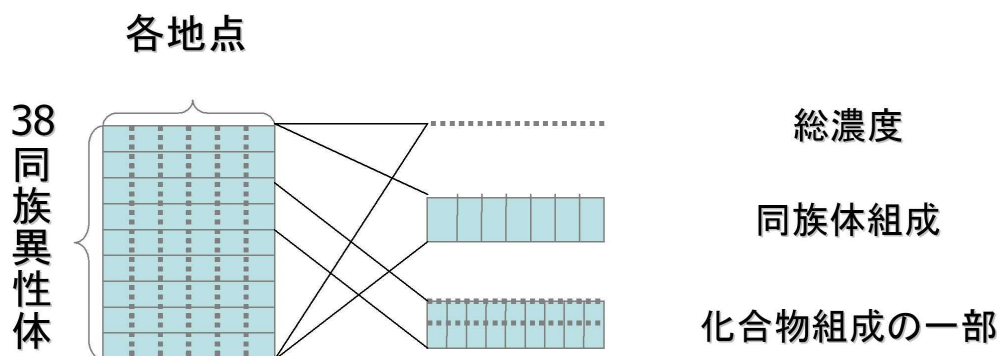


図 3-4 多変量解析によらない解析の仕方の概念図

#### 3-4-1 総濃度について

各試料中のダイオキシン類の総濃度の地理的分布を図 3-5 に示した。

総濃度の範囲は、40 ~ 2,350,000[pg/g] である。使用しているデータは、湾全体における観測値を用いた。ただ、千葉港付近の地点が他の地点と比べて濃度が高いので(平均と比べて最大で 40 倍)、それらの地点(No.24, No.27, No.31)を含まないで考えてみる。図 3-6 は、3 地点を含まないで求めた図である。市原港周辺を含めていない総濃度の図である。最大が 70,000[pg/g]となっているが、濃度分布の地理的なものがわかる。東京湾西側に関しては、沿岸方向にそって広がっている様子がわかる。また、東側に関しては、隅田川河口付近から湾奥へ広がっている様子がわかる。しかし、湾奥に関しては、東側か、西側か、それとも両方からの汚染かどうかは判断できない。



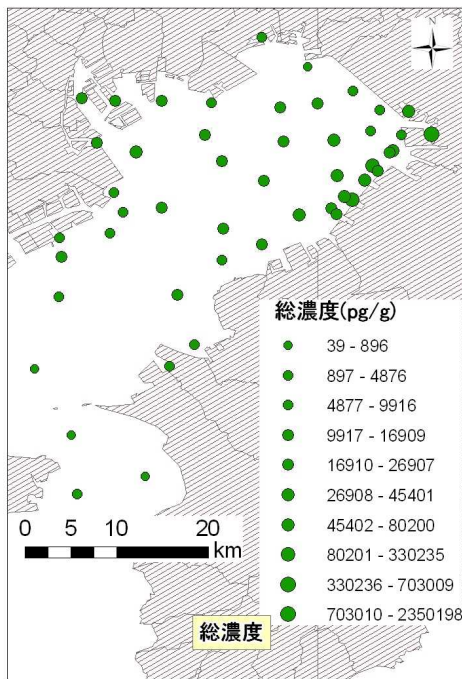


図 3-5 総濃度

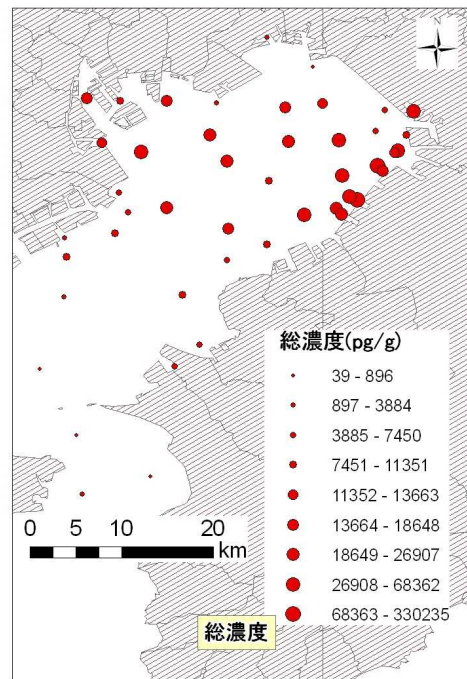


図 3-6 総濃度(3地点を外す)

### 3-4-2 同族体組成について

次に同族体組成について検討した。図 3-7 図 3-8 図 3-9 図 3-10 と同族体プロフィールを示す。凡例は共通で、図 3-11 に示す。まず、図 3-7 図 3-8 図 3-9 において地理的分布を示す。そして、各地点の割合を詳細に見るために図 3-10 においてグラフ化した。x 軸の番号は、表 3-5 に対応している。今回分析した試料の同族体プロフィールは、OCDD と PeCB が全体の割合を多く占めている。OCDD に関しては、(No.24)以外は、割合は多いが、PeCB との比が場所によってことなっていることがわかる。地点間の同族体組成の差は、起源の寄与の度合いの差を反映していると考えられるが、ここに示した同族体プロフィールについて、多変量解析の手法を用いずに整理するのは困難である。

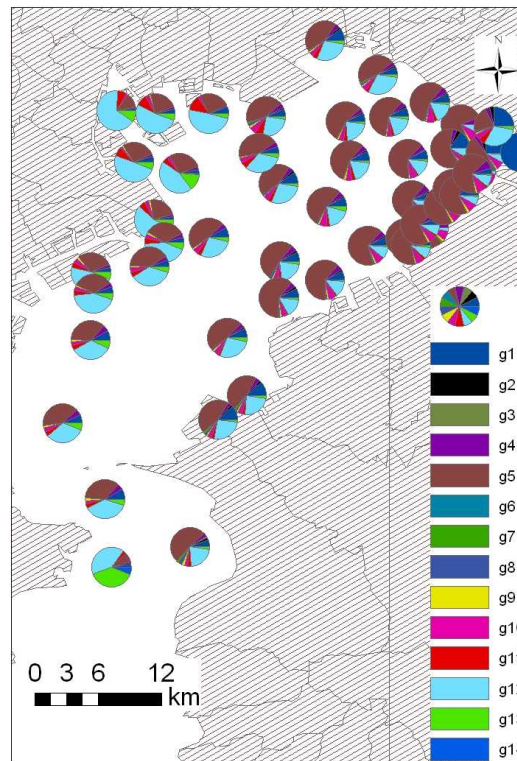


図 3-7 同族体プロフィール



図 3-8 同族体プロフィール, 西側詳細

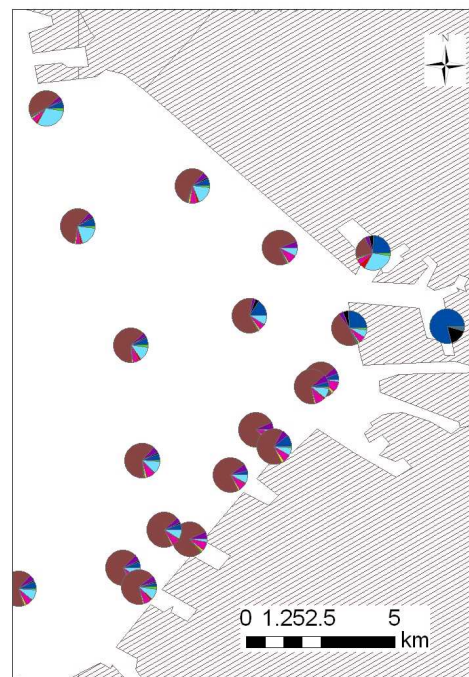


図 3-9 同族体プロフィール, 東側周辺  
凡例は共通で, 図 3-11



同族体のプロフィール

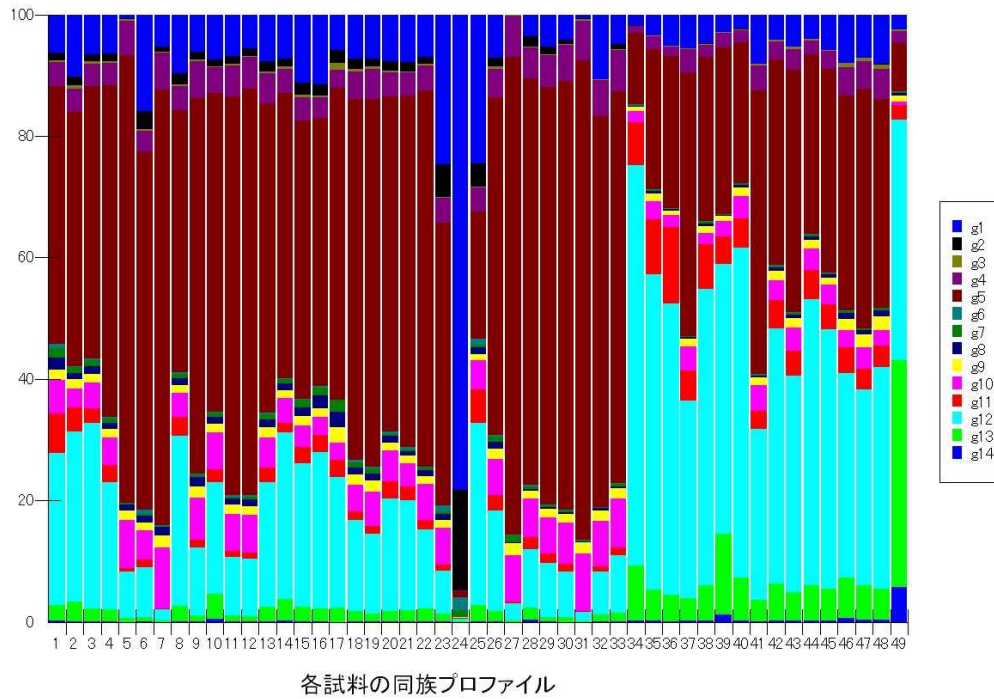


図 3-10 同族体プロフィール(100%積み立て縦棒グラフ),番号は,表 3-4 に対応

g1	TeCDD	g8	HxCDF
g2	PeCDD	g9	HpCDF
g3	HxCDD	g10	OCDF
g4	HpCDD	g11	TeCDB
g5	OCDD	g12	PeCB
g6	TeCDF	g13	HxCB
g7	PeCDF	g14	HpCB

図 3-11 図 3-6,7,8,9 の凡例

### 3-4-3 各成分組成について

各成分毎について平面的分布をしてみる。ここに示した図 3-12 図 3-13 は、濃度分布が顕著に表れている成分を示す。

図 3-12 は、1,2,3,4,6,7,8-HpCDD 濃度分布図を示している。千葉港で高い値を示している。1,2,3,4,6,7,8-HpCDD 濃度分布は水田に散布した PCP に由来する 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD が流入河川の河口から東京湾に広がったような分布を示しているわけではなく、特定の地区から拡がるような分布を示している。そのため、東京湾におけるこのコンジェナー分布は PCP に由来した分布を表しているものではなく、特定の発生源の影響を表していると推察される。

図 3-13 は、2,3,4,7,8-PeCDF 濃度分布図を示している。2,3,4,7,8-PeCDF 濃度の高い水域は東京側と京葉工業地帯側の両方から湾中央に広がり、湾中央で最も高い濃度分布を示している。千葉港の泊地(No.24)が高濃度であるが、突出したものではない。このように千葉県側の一部に高い地点があるものの、このような形の分布を示すのは燃焼由来の発生源が東京湾周辺に多く、東京都側と京葉工業地帯側から流入した負荷が湾中央に集まって、堆積している様子が表れていると考えられる。

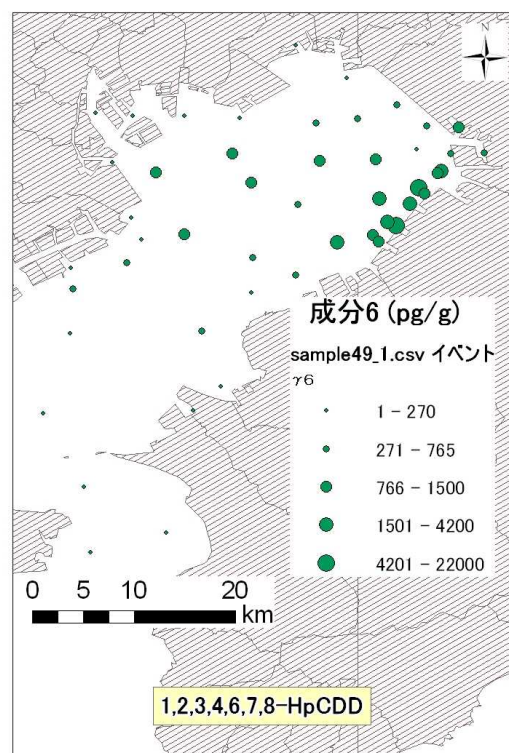


図 3-12 1,2,3,4,6,7,8-HpCDD

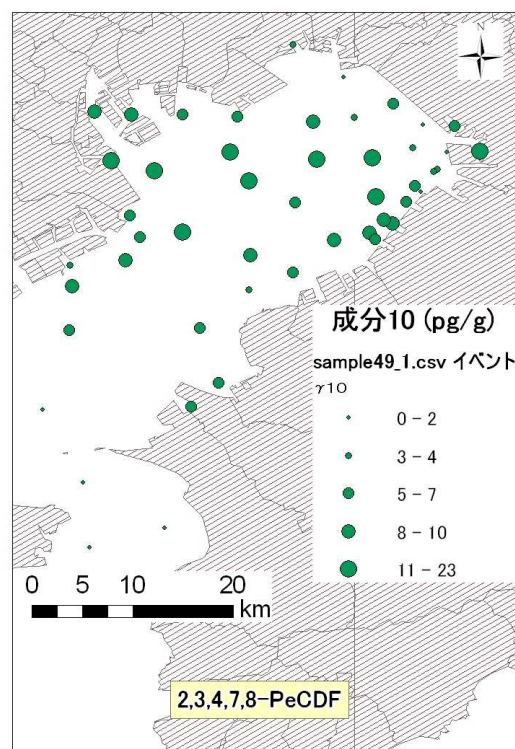


図 3-13 2,3,4,7,8-PeCDF

#### 3-4-4 化合物組成について

さらに、化合物組成の一部を検討した結果を示す。TCDF 異性体組成を検討した結果、除草剤 CNP が東京湾地域におけるダイオキシン類の起源の 1 つと考えられ、2,4,6,8-TCDF の比率が CNP の影響を反映していると考えられること、および 2,4,6,8-TCDF を除いたときに共通した異性体パターンが見られ、これが CNP とは別の何らかのダイオキシン類起源の存在を示唆することがわかった。

水田除草剤として使用されていた CNP は、日本におけるダイオキシン類の主要な起源の 1 つとしてあげている。特に 1970 年代初頭から水田除草剤の 1 つの主力として用いられ、1994 年に実用が実質上禁止となるまでに、全国 70000 トン以上が用いられた(石田, 1994; 植村ら, 1988)(図 3-14) CNP は 1,3,6,8-TeCDD の寄与が多い(吉澤ら(2004))ことより、図 3-15 に、1,3,6,8-TeCDD 濃度分布図を示す。千葉港の泊地(No.24)が 360,000pg/g と非常に高濃度であり、隣接泊地及び、その沿岸でも高い値であったため、北側から高濃度水域が湾中央に広がっているとわかる。この泊地付近に発生源があり、沿岸を南下したのち、湾中央に広がっていたような分布である。

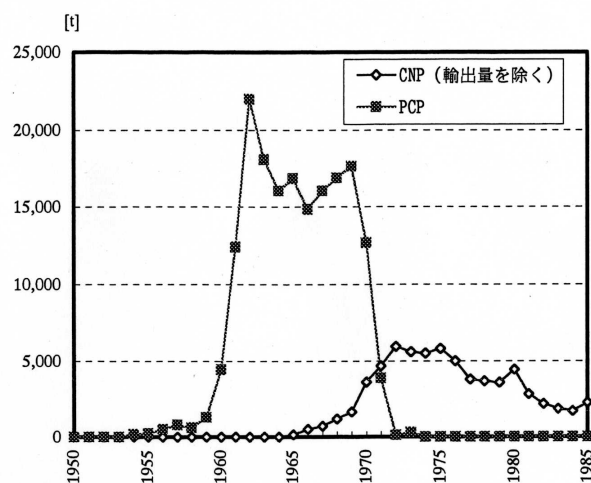


図 3-14 CNP および PCP の日本における原体生産量の経年変化

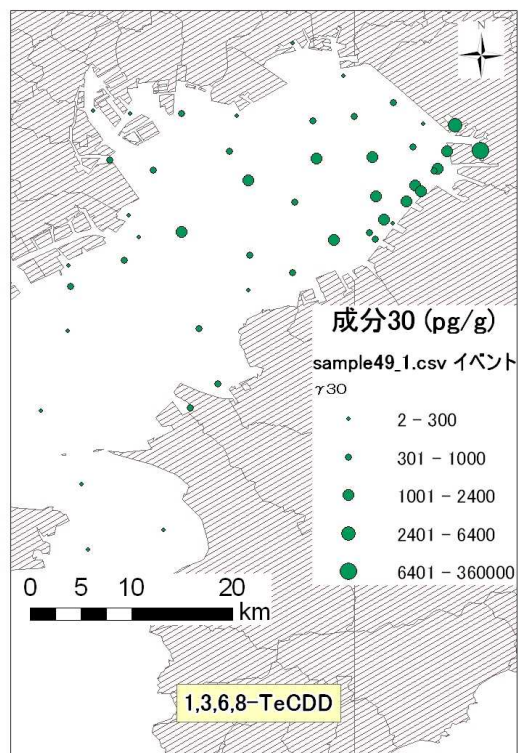


図 3-15 1,3,6,8-TeCDD

### 3-4-5 まとめと問題点

ここで、本研究目的である「底泥輸送傾向、特に拡がり方に関しての知見を得る」ことを念頭に置き、これまでの議論を振り返る。

ダイオキシン類総濃度や PCDDs, PCDFs 総濃度は、ダイオキシン類汚染の全体的な傾向を把握するには優れた指標である一方で、多くの化合物を集約してしまうため、情報量の損失が非常に大きく、起源についての情報はわずかしき与えてくれない。

同族体プロファイルは、試料中のダイオキシン類濃度の組成の特徴を視覚的に表現する一つの手段である。しかし、起源との対応付けを定量的に議論するという観点から見ると、中途半端な情報要約法である。10 変数というのは、特に試料がある程度多くなると、人間が直感的に把握できる次元数を超えており、詳細な解析には多変量解析の手法を必要とする。同時に、これまでに同族体濃度によって行われてきた多くの解析は、10 の同族体濃度による情報は、試料間の区別を行うには十分であるが起源との対応付けを行うことは不十分であることを示唆している。また、ダイオキシン類の起源についての情報の大気は、特定の化合物組成として与えられていることを考えると、同族体濃度の解釈には曖昧さがつきまとう。

一方、化合物組成の一部に着目した解析では、ある一点が高濃度のため、それより拡がっていると解釈も出来るが、測定誤差としても考えられる。ただ、他の地点と比較して濃度が高いという判断で結論付けるのは難しい。試料中ダイオキシン類の化合物組成からその起源についての十分な情報を得るためには、全化合物の情報を最大限に活かして解析する必要がある。そのため、多変量解析法の適用が必要である。

### 3-5 データ解析(主成分分析)

データに対し、多変量解析の手法を適用して解析を行う。まず、適用する多変量解析の手法を検討する。そして、主成分分析法の適用方法について検討する。そして、主成分分析の適用で得られた結果について議論をする。

#### 3-5-1 多変量解析の適用について

前節で示したとおり、ダイオキシン類の汚染はさまざまな起源に由来し、場合によっては変成過程を経たものが重ね合わさったものと考えることが出来る。この重ね合わせを定量的に表現することにより、拡がりかたの知見を得ることを目的としているので、ここで適用する多変量回解析法はこの目的に適うものでなければならない。本研究は、多くの地点におけるデータに対して解析を行う。しかし、発生源の代表的なデータを得ることが出来ないと同時に、何を主要な発生源として解析に含めれば良いのかわからないので、重回帰積分、因子分析、判別関数は行わなかった。また、汚染ごとにグループ分けを行うときに、重ね合わさった汚染のときに判別が難しいのでクラスター解析は行わなかった。そこで本研究は主成分分析を行う。主成分分析は、データ構造についての知識を要求しないこと、データの分散・共分散関係を定量的に記述する手法であることから、本研究において適切な手法であると考えられる。本研究ではデータ構造の解析に主成分分析法を用いることとし、次節で主成分分析の方法を説明する。

### 3-5-2 主成分分析法の説明

ここでは、奥野ら(1988)に基き、本研究で適用する主成分分析法の原理について簡単にまとめる。

主成分分析法は、互いに相関のある多種類の変数に対して適用する。主成分分析の結果、変数の分散・共分散構造を、これら変数の互いに無相関な一次結合(=主成分)によって説明することになる。ここから、データ次元の削除と解釈に関する情報が得られる。

いま、 $n(1, \dots, n)$ 個のサンプルについて  $p(1, \dots, i, \dots, p)$ 個の特性値  $x_k$  が測定されているとき、 $m$  個( $m \leq p$ )の主成分を、 $i$  番目のサンプルについて  $k$  番目( $k=1, 2, \dots, m$ )の主成分  $z_k$  が以下の条件 a), b) を満たすようにして次のように考える。

$$\begin{aligned} Z_{\alpha 1} &= l_{11}x_{\alpha 1} + l_{12}x_{\alpha 2} + \dots + l_{1p}x_{\alpha p} = \sum_{i=1}^p l_{1i}x_{\alpha i} \\ &\vdots \\ Z_{\alpha k} &= l_{k1}x_{\alpha 1} + l_{k2}x_{\alpha 2} + \dots + l_{kp}x_{\alpha p} = \sum_{i=1}^p l_{ki}x_{\alpha i} \\ &\vdots \\ Z_{\alpha m} &= l_{m1}x_{\alpha 1} + l_{m2}x_{\alpha 2} + \dots + l_{mp}x_{\alpha p} = \sum_{i=1}^p l_{mi}x_{\alpha i} \end{aligned} \quad (3-1)$$

あるいは

$$Z_m = X L_m \quad (\text{ここで } L_m = \{l_1, l_2, \dots, l_m\}) \quad (3-1a)$$

但し

$$l_{k1}^2 + l_{k2}^2 + \dots + l_{kp}^2 = \sum_{i=1}^p l_{ki}^2 = |l_k|^2 = 1 \quad (k = 1, 2, \dots, m) \quad (3-2)$$

[条件]

- a) 第 1 主成分  $z_1$  の係数  $\{l_{1i}\}$  は、式 3-2 の条件の下で  $z_1$  の分散が最大になるよう定める。
- b) 第  $k$  成分  $z_k$  係数  $\{l_{ki}\}$  は、式 3-2 を満足し、かつ  $z_k$  が  $z_1, \dots, z_{k-1}$  と無相関になるという条件の下で  $z_k$  の分散が最大になるよう定める。

このとき、この主成分には以下の性質がある。ここでは相関行列  $R$  から出発する場合にはついて述べる。この場合(平均 0, 分散 1)に基準化したデータ  $x_i'$  について解析を行うことを意味する。

いま  $R$  の固有値を大きいほうから  $\lambda_1, \lambda_2, \dots, \lambda_p, 0$  においても一般性は失われない。

- 1) 第  $k$  主成分  $z_k$  の係数  $\{l_{ki}\}$  は  $\lambda_k$  に対応する  $R$  の固有ベクトル  $l_k$  として与えられる。
- 2) 主成分  $z_k$  の分散は  $\lambda_k$  に等しい。
- 3) 主成分  $z_k$  の総分散に対する割合を寄与率と呼び、 $\lambda_k/p$  で表せる。 $x_i'$  の分散は 1 なので、その総和は  $p$  となるからである。
- 4) 主成分  $z_k$  ともとの変数  $x_i'$  の相関を因子負荷量 (factor loading) と呼ぶ。因子負荷量は次式で与えられる。

$$r(z_k, x_i') = \sqrt{\lambda_k l_{ki}^2} \quad (3-3)$$

このとき、因子付加量の二乗の和を  $i$  についてとると、 $\lambda_k$  になる。

$$\sum_{k=1}^p r^2(z_k, x_i') = \lambda_k \quad (3-4)$$

- 5)  $m$  個の主成分によるもとの変数  $x_i'$  の説明率  $v_i$  は次のように与えられる。 $m=p$  までとれば 1 である。

$$v_i = \sum_{k=1}^m r^2(z_k, x_i') = \sum_{k=1}^m \lambda_k l_{ki}^2 \quad (3-5)$$

- 6)  $m$  個の主成分によるもとの変数  $x_i'$  の重回帰式は次のようになる。 $X_i$  は  $x_i'$  の回帰推定値を表すとする。

$$\begin{aligned} X_{\alpha 1} &= l_{11}z_{\alpha 1} + l_{21}z_{\alpha 2} + \dots + l_{m1}z_{\alpha m} \\ &\vdots \\ X_{\alpha i} &= l_{1i}z_{\alpha 1} + l_{2i}z_{\alpha 2} + \dots + l_{pi}z_{\alpha m} \\ &\vdots \end{aligned} \quad (3-6)$$

$$X_{\alpha p} = l_{1p}z_{\alpha 1} + l_{2p}z_{\alpha 2} + \dots + l_{mp}z_{\alpha m}$$

あるいは、 $\hat{X} = z_m' \overset{n \times p}{\wedge} \overset{n \times m}{L} \overset{m \times p}{m}$  (3-6a)

- 7) データを  $p$  次元空間に分布する点と考えたとき、これらの点の散布を最も良く近似する(超)平面は、平均  $\bar{x}$  を通り、ベクトル  $l_1, l_2, \dots, l_k$  で張られる(超)平面によって与えられる。式(3-6)で述べた回帰推定値は、各点からこの(超)平面上に垂らした垂線の足と考えることができる。



以上で述べた主成分分析の原理および性質は、本研究の目的にとって以下の点で好都合である。

- 1 データ行列の分散の主要な部分を説明するのは、今回の試料にとって主要なダイオキシン類の入力(input)と考えられる。これが抽出されることは、対象地域における主要なダイオキシン類の推定を行えることを意味する。
- 2 各変数がピーク(化合物)濃度を表す場合には、主成分がその一次結合で表現されるのは自然である。すなわち、主成分分析は線形モデルを仮定するが、それが自然に解釈でき得る。
- 3 各主成分は他と独立(無相関)である。このことは 1. で述べた主要起源が、他とは独立なものとして抽出されると期待して良い意味をする。
- 4 入力データの回帰推定値を得ることができ、さらにこの回帰推定値に対する各主成分の寄与を得ることができる(式 3-6)。このことは、各資料における主要な起源からの寄与を定量的に議論する手段を与えることになる。

### 3-5-3 主成分分析の適法方法

本項では主成分分析の適用方法について検討する。変数の選択、データの変数変換、規準化、主成分の解釈、主成分スコアについて順に触れる。

#### 3-5-3-1 変数の選択

本研究においては、すべての変数が試料中のダイオキシン類濃度として等価であり、出来るだけ多くの変数を解析に含めることが好ましいと考えた。だから、毒性がある、ないに関わらずデータとして存在する計 38 からなる組成データとして、主成分分析の入力とした。

### 3-5-3-2 データの変数変換

一般に、変数変換は、変数の分布の形を対称分布に近づけることを目的とし、対数変換や平方根変換などが行われる。多変量解析の手法によっては変数が多変量正規分布と見なせることを議論の展開において要求する場合がある。また一般に、分散による分析法では、極端に他の値から離れた値の影響を非常に強く受けるため、このような値の影響を弱めるために、対称分布に近づけるような変数変換を行うことがある。これとは別に、手法のモデルにおいて妥当な解釈を与えるような変数変換を行う場合もある。

主成分分析は、データの分散・共分散の解析構造の解析手法であり、次式に示すように、分散・共分散行列あるいは相関行列のスペクトル分解において、その大部分を説明するはじめのいくつかの項によってもととの行列を禁じる作業とも考えられる。

$$\begin{aligned} X_{\alpha i} &= \lambda_1 l_{i1} l'_1 + \lambda_2 l_{i2} l'_2 + \cdots + \lambda_m l_{im} l'_m + \cdots + \lambda_p l_{ip} l'_p \\ &\cong \lambda_1 l_{i1} l'_1 + \lambda_2 l_{i2} l'_2 + \cdots + \lambda_m l_{im} l'_m \end{aligned} \quad (3-7)$$

ただし、分散・共分散行列  $V$  あるいは相関行列  $R$  の固有値を大きい方から、 $\lambda_1 \geq \lambda_2 \geq \cdots \geq \lambda_p \geq 0$ 、対応する固有ベクトルを  $l_1, l_2, \dots, l_p$  とする。

この等式あるいは、先ほど述べた原理において多変量正規性は必要とされない。また、主成分分析が線形モデルを仮定していることを考えると、変数変換をしない生データを入力することは最も単純かつ自然な解釈を与える。変数変換を行わなければ主成分成分はそのまま各ピーク(化合物)濃度の線形和であり、これは濃度和として自然に解釈できる。一方で、たとえば変数変換を行ったデータの線形和は、実測値と対応付けての解釈が難しい。本研究では、自然な解釈を与える点と(何もしないという)単純さを評価し、変数変換を行わないことが望ましいと考えた。

### 3-5-3-3 試料についての規準化

特に試料間の濃度差が大きいようなデータに主成分分析を適用する場合、濃度の絶対的な大きさの影響を除いて相対的な変動に着目するために、試料についてのデータの規準化を行う場合がある。ダイオキシン類のデータについての主成分分析の適用では、このような規準化を行っている場合が多い。そこで、本件研究についても規準化を行った。濃度差の情報を無視した形になるが、非常に濃度の高い 1~2 個の試料が存在する場合、値の影響を受けてしまうからである。

### 3-5-3-4 変数についての規準化

主成分分析は変数の分散・共分散行列から出発する場合と、相関行列から出発する場合がある。後者は(平均 0, 分散 1)に規準化したデータについての分散・共分散行列から出発することと同じである。本研究で解析する変数は、同一試料についてのダイオキシン類の測定値であ

り、すべて同じ単位 (pg/g dry matter) を持っている。つまり、値の絶対値を比較することに意味がある (変数間で pg/g と g/ml のような単位が異なると、絶対値を比較することに意味はない)。このような場合、分散・共分散行列および相関行列のどちらを用いても解析を行うことが出来る。値の絶対的な大小が情報量の大小に対応すると考える場合は、分散・共分散行列によって解析するほうが良い。大きな分散を持つ変数は情報量が多いと考えられ、結果を大きく支配する。一方、絶対的な大小ではなく、各変数における相対的な大小を重視する場合には相関行列によって解析するのがよい。分散 1 に規準化された各変数は、すべて同じ情報量を持つことになる。

本研究では、各変数における相対的な変動が等しく意味を持つと考え、相関行列による解析を行うことにした。変数間の分散は 10 桁の差があり、分散・共分散行列による分析を行うと、結果は分散が小さいからといって、ダイオキシン類の由来を検討する場合、ある変数=ピーク (化合物) の分散が小さいからといって、ダイオキシン類の由来に関する情報が少ないと考えるのは不適当だろう。一方、前節で示したように濃度の低いピークでは分析値の精度が悪くなるが、同等に扱うことになる。このことは、主成分分析の結果の精度に影響を及ぼすと考えられるが、この程度については主成分スコアの解釈の箇所でも議論する。

### 3-5-3-5 主成分の解釈…因子軸の回転について

主成分の解釈は因子負荷量 (その主成分と各変数の相関係数) あるいは因子負荷量行列による。このときに解釈をより鮮明にするために、因子分析法に用いられる手法を適用し、係数ベクトルの回転を行うことが多い。

最も一般的なのは基準化バリマックス (normal varimax) 法 (以下単にバリマックス法あるいは、バリマックス回転と呼ぶ) である。この方法では、各主成分についての因子負荷量の 2 乗の分散を最大にするような直交変換を施す。これは、それぞれの主成分は比較的少数の変数とだけ強い相関関係を示し、残りの変数とはできるだけ弱い相関関係を示すようにすることと同義である。

各主成分をダイオキシン類の由来と対応づけて解釈することを考える場合、その由来から影響のある変数=ピーク (化合物) では相関が高く、それ以外の変数では相関は非常に小さいことが自然であろう。しかし、その回転を行わない場合、本研究では、解釈が困難だったためバリマックス法を適用し検討した。

### 3-5-3-6 主成分スコアについて

一般に、式(3-1)で与えられる主成分  $z_k$  を試料についての分散 1 に規準化したものを主成分スコア(あるいは単にスコア)と呼ぶ。

$$\tilde{z}_{\alpha k} = \frac{z_{\alpha k}}{\sqrt{\lambda_k}} \quad (3.8)$$

このスコアは、ある主成分について、各試料が平均よりどの程度小さいかあるいは大きいかを示す指標となる(平均からの比較になるのは、相関あるいは分散・共分散は平均からの変動に注目するからである。)と同時に、各サンプル(の回帰推定値)に対する主成分 1, 2, ... の寄与をも示している式(3-6)。主成分がダイオキシン類の由来と対応づけて解釈されている場合、各試料へのその由来の影響の度合いを示す指標として解釈できる。

### 3-5-4 データの主成分分析

今回分析した試料中のダイオキシン類の起源を推定し、また各起源の寄与を定量的に見積もるために、主成分分析を適用した。本項では、主成分分析法の適用により得られた結果について議論する。

#### 3-5-4-1 入力条件

前項での議論に基づいて主成分分析への入力条件を定めた。その内容を表 3-6 にまとめた。入力は実測濃度を用い変数変換は行わなかった。前述したように、変数変換を行わないことは主成分分析の前提となる線形モデルにおいて自然な解釈を与える。試料間の濃度の規準化は行う。そして、各変数の情報量を揃えるために相関行列による解析を行う。変数は、不検出あるいは 0、定量下限未満はその定量の敷居値をあてた。解析にしようとした変数は次の通りである。

表 3-6 主成分分析への入力

変数	38 同族異性体
ケース	47 箇所
変数変換	行わない
規準化	ケース間の濃度差について基準化を行う 変数は全て分散 1 に規準化する(相関行列を用いた解析を行う)

### 3-5-4-2 主成分数の決定

まず、主成分の数を決定を行う。主成分数の決定に絶対的な基準はないが、奥野ら(1981)に基づき、以下のような原則を適用する。

1. 累積寄与率(主成分の分散が全分散に占める割合)が 60～80%以上となる主成分まで取る。ただし、第 1 成分の固有値が非常に大きい(およそ 80%以上)場合はこの限りではない。
2. 固有値が 1 以上の主成分を取る(相関行列の場合)
3. 固有値を大きい順に並べたとき、 $\lambda_m, \lambda_{m+1}$  の差が大きければ  $m$  番目の主成分まで取る。
4. 各変数に対する主成分の説明率  $v_i$ (式 3-5)がすべての変数について 50%以上となるようにとる。
5. 1.～4.の原則に基づいて改めた数の付近( $\pm 1$ )で、妥当な解釈の得られる主成分数とする。

原則に基づき、主成分の数は 6 とした。結果を表 3-7 に示す。

表 3-7 相関行列の固有値

	第 1 成分	第 2 成分	第 3 成分	第 4 成分	第 5 成分	第 6 成分
固有値	17.39	8.98	4.12	2.25	1.52	1.07

寄与率(%)	22.34	20.00	16.70	15.73	13.49	4.70
累積寄与率(%)	22.34	42.35	59.05	74.78	88.26	92.96

### 3-5-4-3 因子軸の回転の検討

主成分の解釈は因子負荷量ベクトルに基づいて行う。因子負荷量は、その主成分とある変数の相関を表す。バリマックス回転を施した結果を表 3-8 に示す。因子負荷量の絶対値が 0.7 以上を赤字にして示した。赤字に示したものが、各成分のなかで主要な成分である。説明は次の項で行う。

表 3-8 因子負荷量(1/2)

	第 1 成分	第 2 成分	第 3 成分	第 4 成分	第 5 成分	第 6 成分
固有値	17.393	8.975	4.120	2.249	1.518	1.070

2,3,7,8-TeCDD	-0.011	-0.098	0.484	0.601	0.052	0.103
1,2,3,7,8-PeCDD	0.302	0.342	0.279	0.782	0.141	0.213
1,2,3,4,7,8-HxCDD	0.465	0.303	0.197	0.755	0.170	0.049
1,2,3,6,7,8-HxCDD	0.830	0.410	0.060	0.318	0.065	0.112
1,2,3,7,8,9-HxCDD	0.478	0.313	0.087	0.722	0.156	0.057
1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	0.899	0.334	0.005	0.153	0.037	0.204
OCDD	0.899	0.249	-0.071	0.203	0.036	0.231
2,3,7,8-TeCDF	0.080	-0.155	0.576	0.571	0.259	-0.041
1,2,3,7,8-PeCDF	0.303	0.016	0.094	0.186	0.041	0.885
2,3,4,7,8-PeCDF	0.114	-0.019	0.371	0.878	0.199	0.096
1,2,3,4,7,8-HxCDF	0.739	0.273	0.160	0.542	0.091	0.117
1,2,3,6,7,8-HxCDF	0.489	0.116	0.190	0.479	0.102	0.656
1,2,3,7,8,9-HxCDF	0.599	0.201	-0.051	0.472	-0.054	-0.345
2,3,4,6,7,8-HxCDF	0.433	0.079	0.195	0.799	0.132	0.085
1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	0.926	0.283	0.045	0.187	0.041	0.124
1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	0.934	0.247	0.036	0.069	0.008	0.111
OCDF	0.947	0.280	0.005	0.061	0.001	0.093

赤字は値が0.7以上

表 3-8 因子負荷量(2/2)

	第 1 成分	第 2 成分	第 3 成分	第 4 成分	第 5 成分	第 6 成分
固有値	17.393	8.975	4.120	2.249	1.518	1.070
3,4,4',5'-TeCB(#81)	-0.020	0.541	<b>0.788</b>	0.117	0.159	0.007
3,3',4,4'-TeCB(#77)	0.025	0.227	<b>0.828</b>	0.168	0.331	0.125
3,3',4,4',5'-PeCB(#126)	0.068	0.097	<b>0.727</b>	0.473	0.440	0.104
3,3',4,4',5,5'-HxCB(#169)	-0.059	-0.029	0.216	0.508	0.611	0.136
2',3,4,4',5'-PeCB(#123)	0.000	0.263	<b>0.875</b>	0.192	0.265	0.024
2,3',4,4',5'-PeCB(#118)	0.065	0.061	<b>0.754</b>	0.269	0.569	0.061
2,3,3',4,4'-PeCB(#105)	0.038	0.259	<b>0.752</b>	0.253	0.526	0.047
2,3,4,4',5'-PeCB(#114)	-0.003	0.213	<b>0.805</b>	0.130	0.520	0.019
2,3',4,4',5,5'-HxCB(#167)	0.060	-0.062	0.370	0.118	<b>0.901</b>	0.016
2,3,3',4,4',5'-HxCB(#156)	0.038	-0.069	0.402	0.073	<b>0.894</b>	0.009
2,3,3',4,4',5'-HxCB(#157)	0.003	-0.046	0.490	0.165	<b>0.820</b>	0.025
2,3,3',4,4',5,5'-HpCB(#189)	0.031	-0.064	0.153	0.039	<b>0.969</b>	0.003
1,3,6,8-TeCDD	0.341	<b>0.834</b>	0.360	0.038	0.015	0.052
1,3,7,9-TeCDD	0.381	<b>0.827</b>	0.344	0.032	0.005	0.030
1,2,3,6,8-PeCDD	0.312	<b>0.931</b>	0.157	0.022	-0.030	-0.008
1,2,3,7,9-PeCDD	0.347	<b>0.918</b>	0.099	0.098	-0.034	-0.016
1,2,4,6,8-PeCDD	0.366	<b>0.898</b>	0.011	0.185	-0.046	0.024
2,4,6,8-TeCDF	0.172	<b>0.949</b>	0.218	-0.032	-0.016	0.019
1,2,4,6,8-PeCDF	0.423	0.543	-0.265	0.530	-0.106	-0.013
2,3,4,6,8-PeCDF	0.370	<b>0.864</b>	-0.009	0.280	-0.057	0.002
1,2,4,6,8,9-HxCDF	<b>0.775</b>	0.413	0.015	0.135	-0.085	-0.397

赤字は値が0.7以上

### 3-5-5 主成分の解釈

主成分の解釈においては、まず因子負荷量に高い(>0.7)変数に対応する化合物名を、文献の情報と対応させ、さらに主成分を実測濃度に対応させた化合物パターンを、文献の情報と対応させて確認する方法を採った。具体的には、まず因子負荷量の高い(>0.7)変数に対応する化合物名と、文献で報告されている特徴的な化合物が一致するような発生源・過程等を探し、一致する場合に両者が対応付けられると考えた。相関係数 0.7 は分散の説明力がおおよそ 50% ( $0.7^2=0.49$ )であることを意味する。このように、相関係数という、変数の変動の大きさに対して規準化された数値を用いて解釈を行うのは、本研究の方法としてとるところである。

得られた主成分が、これまでに報告された起源あるいは媒体中のダイオキシン類とどのように対応付けられるのかを検討した。その結果を以下に述べるとともに、表 3-9 に示した。固有値を 1 以上のものを主成分として評価した。6 つの主要な主成分(第 1 から第 6 主成分)が抽出され、それらの累積寄与率は 93%となった。すなわち、これらの 6 主成分により試料全体の変動がほぼ説明できることがわかった。

因子負荷量とは、この場合、各コンジェナーと各主成分との間の相関係数のことであり、-1 から+1の値をとる。表 3-9 には各主成分について因子負荷量が 0.7 以上を持つコンジェナーとして抜き出してある。これらの特徴を既往の研究から各汚染原因を解釈した。PCP,CNP は日本で過去に大量に使用された水田除草剤である。以上の結果より、東京湾のダイオキシン汚染が 4 つの主要な要因によって説明できることが出来た。

主成分スコアをコンター図で描いたものを図 3-16 図 3-17 図 3-18 図 3-19 図 3-20 図 3-21 示す。主成分スコアとは、因子負荷量と実際の値を掛け合わせて算出した値である。ある主成分について、各試料が平均よりどの程度小さいか、あるいは大きいかを示す指標となると同時に、各成分の寄与をも示している。主成分がダイオキシン由来と対応づけて解釈される場合、各試料へのその由来の影響の度合いを示している。

次に各成分毎に説明する。

第 1 主成分は、23%の寄与率があり、高塩化のダイオキシン類が特徴であることから、PCP の不純物由来(益永 2004)と解釈できる。湾全体に高濃度としてあった OCDD との相関が高い( $r>0.7$ )。地理的分布は図 3-16 に示した。千葉港から湾中央まで広がっていくが、そこで南北へ広がっている様子がわかる。また、東京港から沖に行った場所である、東京灯標付記に濃度がたまっている様子がわかる。木更津市から、川崎市を結ぶ線より南にはあまり広がっていない。

第 2 主成分は、20%の寄与率があり、1,3,6,8-や 1,3,7,9-TeCDD が特徴であり、CNP の不純物由来と解釈できる。地理的分布は図 3-17 に示した。第 1 主成分とほぼ似た分布を示している。汚染ソースが異なるけど、拡がり方はほぼ同じといえるが、東京港付近からの拡がり方は、第 1 種主成分よりも勾配が緩やかである。

第 3 主成分は、17%の寄与率があり、Co-PCB の不純物由来と解釈出来る。地理的分布は図 3-18 に示した。東京都に近い水域に高濃度の部分がある。これは、溜まっているのか、それとも汚染事態が新しくまだ広がっていないのか、のどちらかに考えられる。東京都や川崎市付近のウォータフロントでは PCBs の高濃度水域があると指摘されているので、その影響が考えられる(益永ら 2001)。



第4主成分は、16%の寄与率があり、特徴的な同族異性体として TeCDFs, PeCDFs があるので、燃焼由来と解釈できる。地理的分布は図 3-19 に示した。第1主成分と第2主成分同様、東京川と京葉工業地帯側の両方から湾中央に広がり、そのまま南北に広がっている。

第5主成分は、寄与率が13.5%と、第4主成分とあまり変わらないが、特に主だった原因がわからない。地理的分布は図 3-20 に示した。今で示した分布と明らかに異なる。市川市周辺の海域から南下している様子がわかる。同様に、千葉港付近、東京港付近にも溜まっている様子がわかる。そして、君津の小糸川河口付近から広がっている。

第6主成分は、寄与率が5.0%であるので全体的に得点が高い。地理的分布は図 3-21 に示した。千葉港付近、東京港付近に溜まって様子がわかる。千葉港からの広がりが湾中央において、広がり方が南北と別れている様子がわかる。

### 3-6 本章まとめ

底泥がダイオキシン類に付着する性質を利用し底泥の輸送状況、広がり方とその堆積傾向についての知見を得ることを目的としたが、汚染状況が重なり合っている東京湾においては、単純に濃度をみるだけでは解釈が困難である。そこで、多変量解析である主成分分析を用いて、各主成分の主成分スコア図を図 3-16 図 3-17 図 3-18 図 3-19 図 3-20 図 3-21 に示した。

図を素直に見れば、千葉泊地、千葉港、京葉工業地帯、そして東京港から沖に出たところがほとんどの主成分においてスコアが高いことがわかった。これは、表泥に対しての分析なので、水域に入ってきた量が比較的に新しく、まだ輸送されていないのか、と考えられる。一方、多くの主成分がそこにあるということは、そもそもそれらの地点は輸送し難くて長期的にみてそこに溜まりやすいと考えるほうが妥当なのかもしれない。また、主成分5の図 3-20 のように、寄与率が高いが、汚染原因がわからないものは、河川からの流入ではなくて、沿岸域に直接汚染物質が流入したと考えることも出来る。

また、広がりぐらいが水深 20m に沿って広がっている。拡がる外力はもちろん波や流れなので、その付近に限界水深があるのかもしれない。

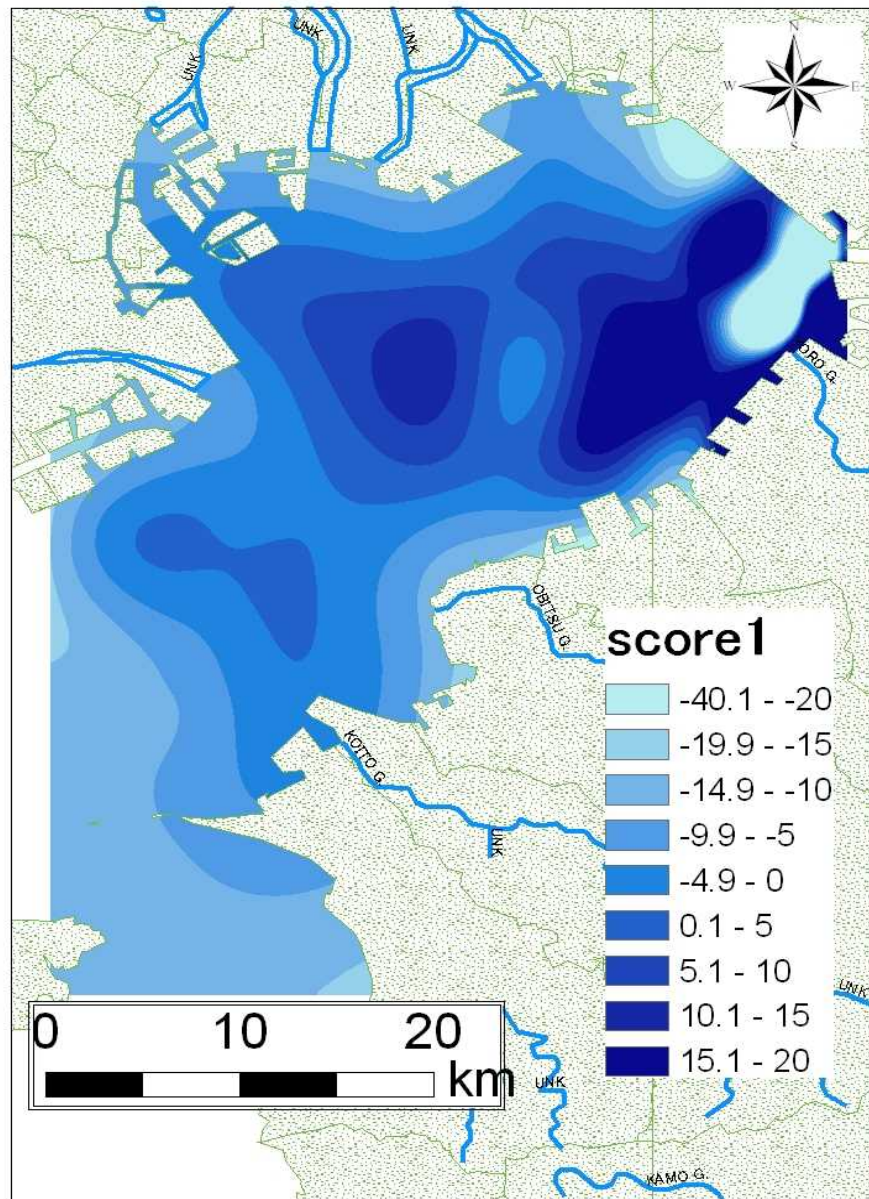


図 3-16 第 1 主成分スコアの地理的分布

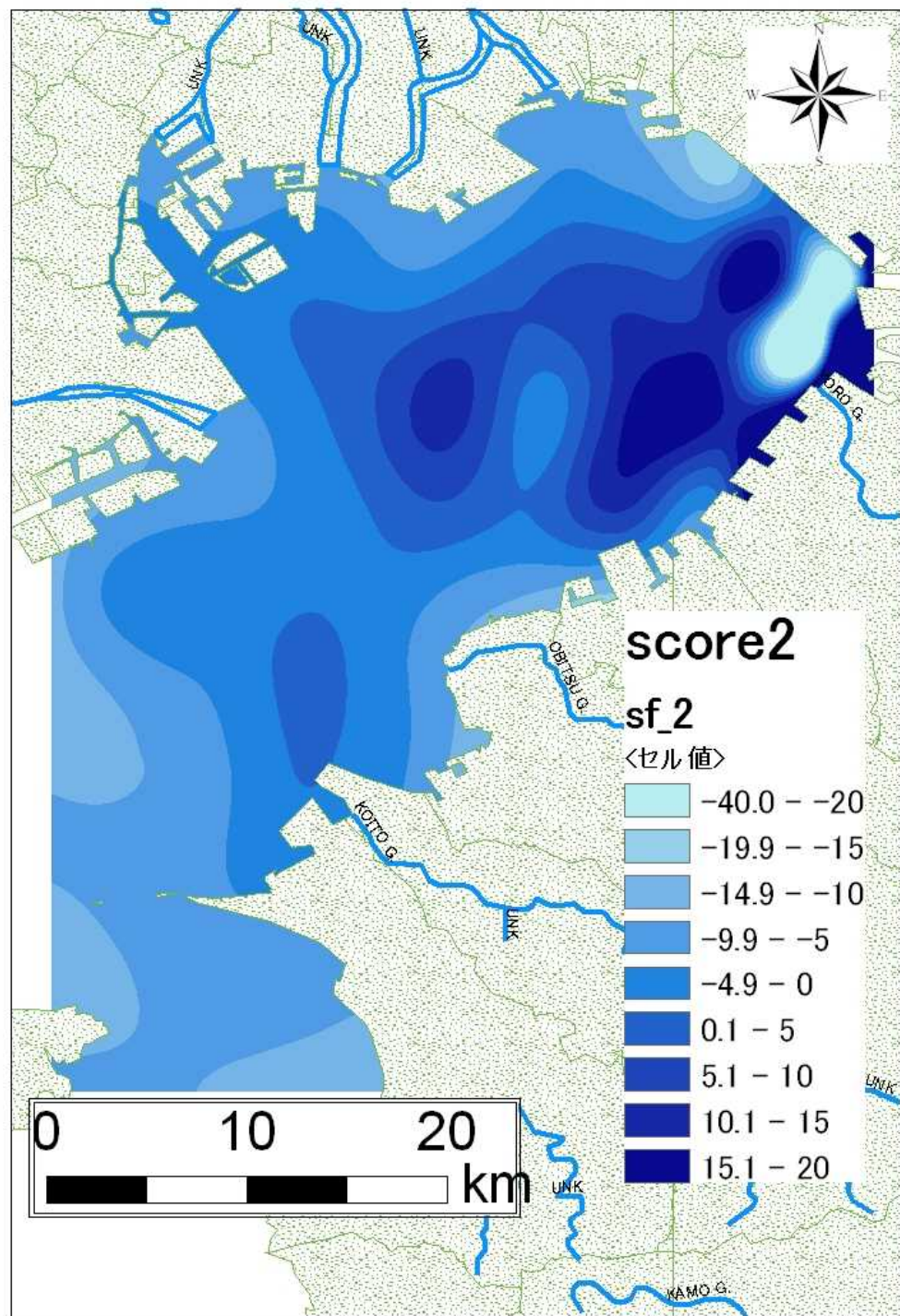


図 3-17 第 2 主成分スコアの地理的分布



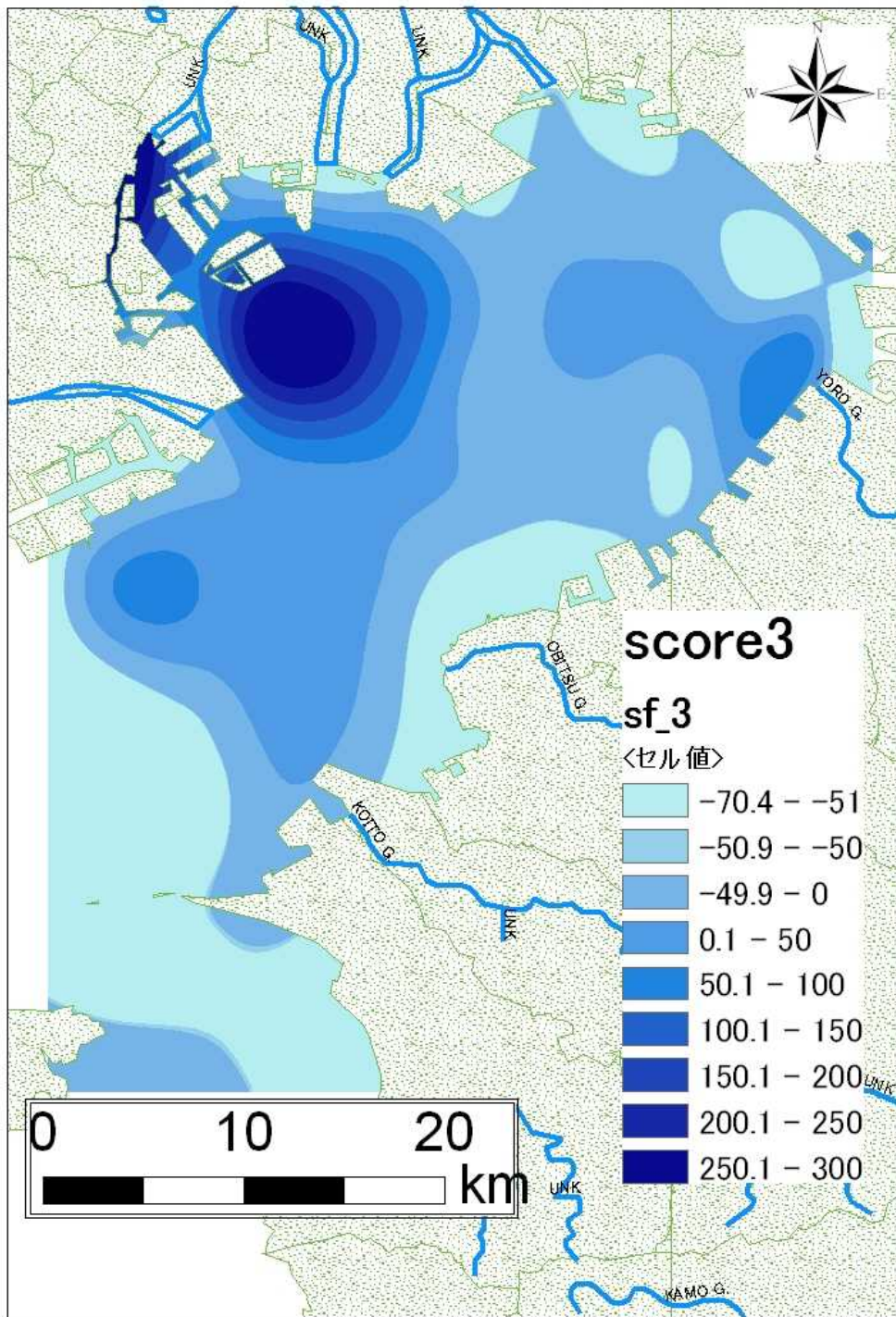


図 3-18 第3主成分スコアの地理的分布

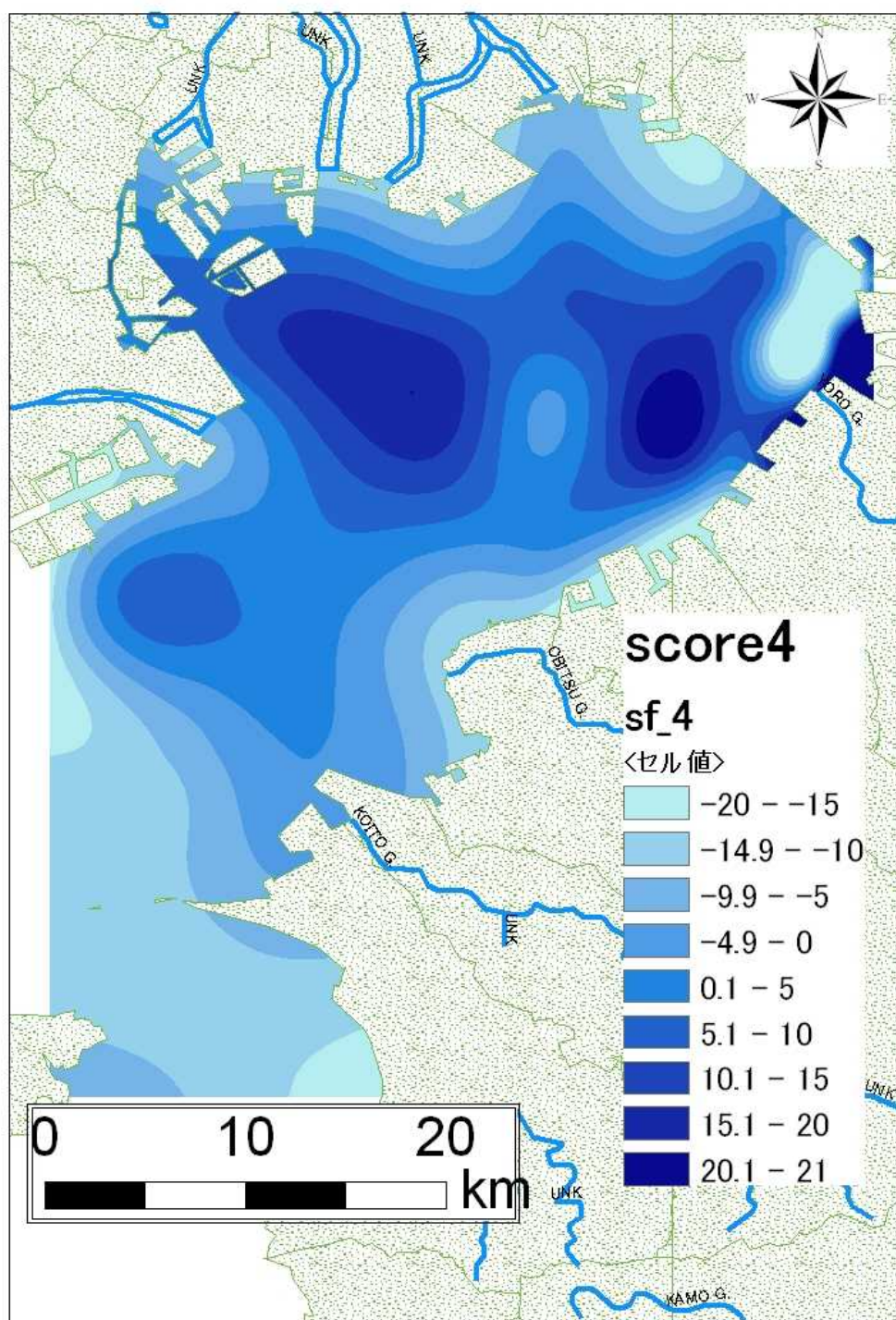


図 3-19 第 4 主成分スコアの地理的分布



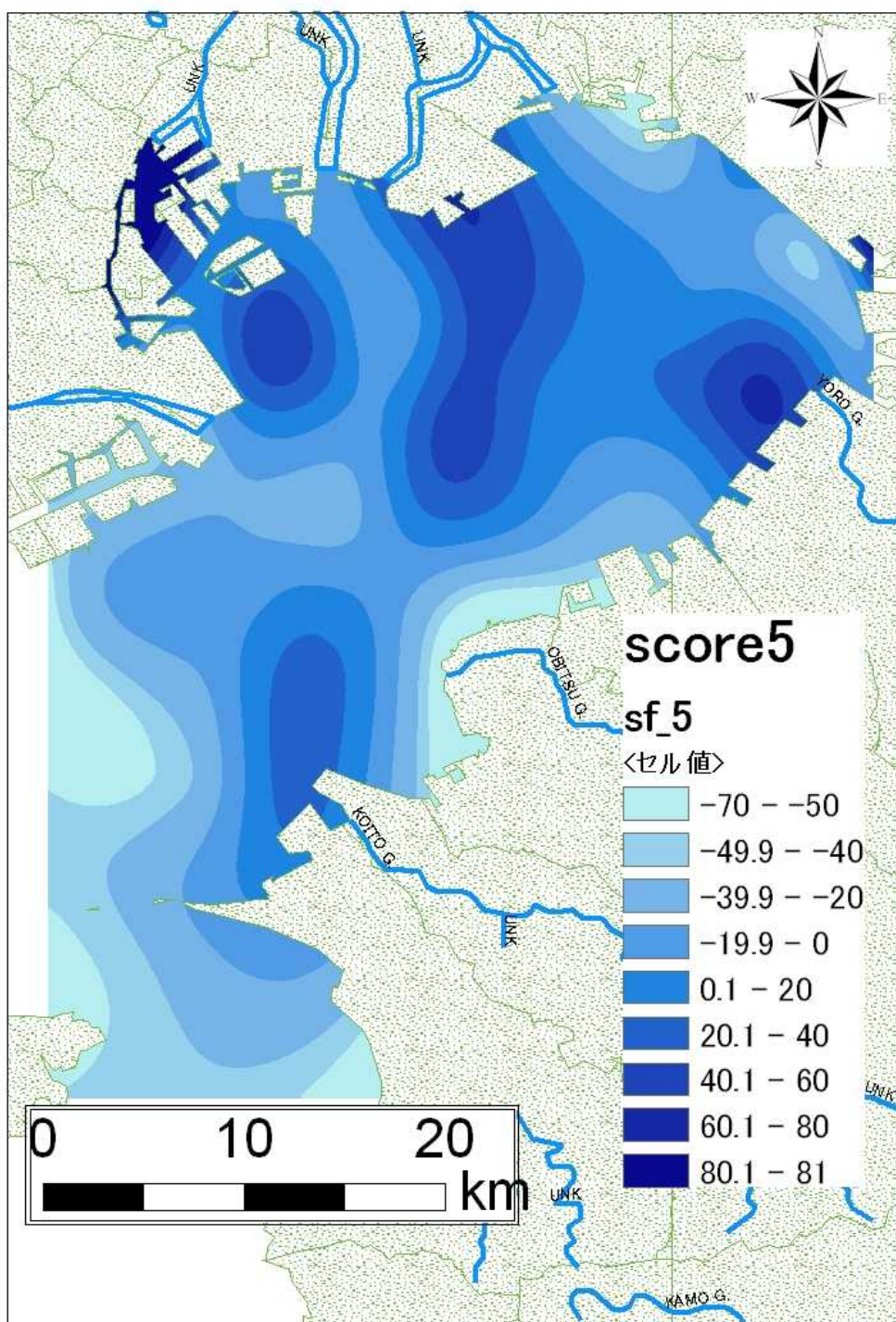


図 3-20 第 5 主成分スコアの地理的分布

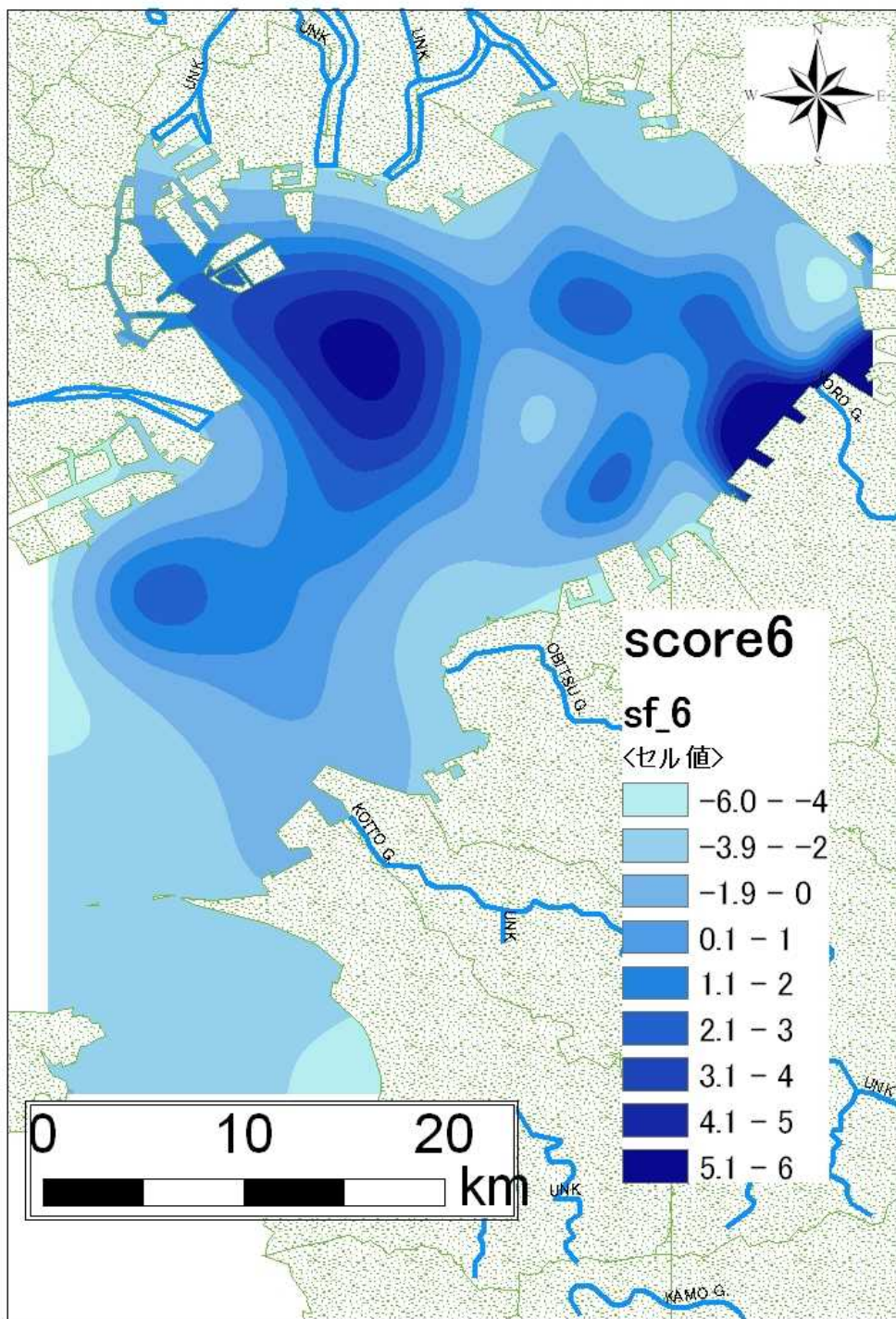


図 3-21 第 6 主成分スコアの地理的分布

表 3-9 主成分分析結果

	第 1 成分	第 2 成分	第 3 成分
固有値	17.39	8.98	4.12
寄与率(累積寄与率) [%]	23.34(22.34)	20.00(42.35)	16.70(59.05)
r>0.7	8	7	7
	1,2,3,6,7,8-HxCDD	1,3,6,8-TeCDD	3,4,4',5'-TeCB(#81)
	1,2,3,4,6,7,8-HpCDD	1,3,7,9-TeCDD	3,3',4,4'-TeCB(#77)
	OCDD	1,2,3,6,8-PeCDD	3,3',4,4',5'-PeCB(#126)
	1,2,3,4,7,8-HxCDF	1,2,3,7,9-PeCDD	2',3,4,4',5'-PeCB(#123)
	1,2,3,4,6,7,8-HpCDF	1,2,4,6,8-PeCDD	2,3',4,4',5'-PeCB(#118)
	1,2,3,4,7,8,9-HpCDF	2,4,6,8-TeCDF	2,3,3',4,4'-PeCB(#105)
	OCDF	2,3,4,6,8-PeCDF	2,3,4,4',5'-PeCB(#114)
	1,2,4,6,8,9-HxCDF		
0.7 r>0.5	1	2	1
0.5 r>0.0	25	21	26
-0.5 r<0.0	4	8	4
-0.7 r>-5.0	0	0	0
r -7.0	0	0	0
解釈	PCP	CNP	PCB 製品
	第 4 成分	第 5 成分	第 6 成分
固有値	2.25	1.52	1.07
寄与率(累積寄与率) [%]	15.73(74.78)	13.49(88.26)	4.7(92.26)
r>0.7	5	4	1
	1,2,3,7,8-PeCDD	2,3',4,4',5,5'-HxCB(#167)	1,2,3,7,8-PeCDF
	1,2,3,4,7,8-HxCDD	2,3,3',4,4',5'-HxCB(#156)	
	1,2,3,7,8,9-HxCDD	2,3,3',4,4',5'-HxCB(#157)	
	2,3,4,7,8-PeCDF	2,3,3',4,4',5,5'-HpCB(#189)	
	2,3,4,6,7,8-HxCDF		
0.7 r>0.5	5	4	1
0.5 r>0.0	27	22	30
-0.5 r<0.0	1	8	6
-0.7 r>-5.0	0	0	0
r -7.0	0	0	0
解釈	燃烧		



## 4 数値モデルの構築

本章では、数値計算について述べる。4-1 では、数値モデルを構築の背景と目的を示す。次に 4-2 では流動モデルについて簡単に説明する。これは、鯉淵ら(2001)により開発された 3 次元流動モデルに基づいているものである。4-3 においては、底泥輸送に関するモデルについて示す。そして、4-4 4-5 に離散化と境界条件を示し、4-6 , 4-7 では計算条件とその結果を示す。最後に、4-8 において、本章の結果をまとめる。

### 4-1 目的

東京湾底泥輸送に関して、その物理的な挙動を再現・予想するモデルを開発することを目的とする。モデルを構築し、さまざまな状況を再現、予測することは、過去の底泥はどのような経由を経てそこに堆積するのか、今後底泥がどのように拡がるのかなどの解明につながる。さらに、ダイオキシン類などの底泥に付着する化学汚染がどのようなスケールで広がるのかを議論することも出来る。

### 4-2 流動モデルの基礎式導出

この節では流速場計算に用いる基礎式の導出を行う。手順は以下の通りである。

座標系における Navie-Stokes 方程式に対し、いくつかの過程を課すことで簡略化し計算可能にする。

連続式を 座標系に変換する。

Navie-Stokes 方程式の移流項を 座標系に変換する。その際、差分によっても運動量が保存されるようにする。

Navie-Stokes 方程式の圧力勾配項を 座標系に変換する。

#### 4-2-1 交座標系における Navie-Stokes 方程式の簡略化

直交座標系における 3 次元の Navie-Stokes 方程式は次のようになる。

$$\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} + w \frac{\partial u}{\partial z} = fv - \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial x} + \frac{\partial}{\partial x} (A_x \frac{\partial u}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (A_y \frac{\partial u}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (A_z \frac{\partial u}{\partial z}) \quad (4.1)$$

$$\frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} + w \frac{\partial v}{\partial z} = fu - \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial y} + \frac{\partial}{\partial x} (A_x \frac{\partial v}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (A_y \frac{\partial v}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (A_z \frac{\partial v}{\partial z}) \quad (4.2)$$

$$\frac{\partial w}{\partial t} + u \frac{\partial w}{\partial x} + v \frac{\partial w}{\partial y} + w \frac{\partial w}{\partial z} = -g - \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} + \frac{\partial}{\partial x} (A_x \frac{\partial w}{\partial x}) + \frac{\partial}{\partial y} (A_y \frac{\partial w}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (A_z \frac{\partial w}{\partial z}) \quad (4.3)$$

ここに,  $u, v, w$ : それぞれ  $x, y, z$  方向の流速,  $f$ : コリオリ係数,  $p$ : 圧力,  $\rho$ : 密度,  $g$ : 重力加速度,  $A_x, A_y, A_z$ : それぞれ,  $x, y, z$  方向の渦動粘性係数。

$z$  方向の運動方程式のうち, 加速項である左辺と右辺の粘性項は重力加速度に比べて無視できると過程すると(動静水圧近似),

$$0 = -g - \frac{1}{\rho} \frac{\partial p}{\partial z} \quad (4.4)$$

と変形できる。さらに, 任意の  $z$  から水面  $\eta$  まで積分すると,

$$\begin{aligned} \int_z^\eta \frac{\partial p}{\partial z} dz &= \int_z^\eta \rho g dz \\ p(\eta) - p(z) &= \int_z^\eta \rho g dz \end{aligned} \quad (4.5)$$

ここで  $\rho$  を全水深平均密度  $\rho_0$  とそれからの偏差  $\rho'(z)$  で表現すると

$\rho = \rho_0 + \rho'(z)$  となり, 式(4.5)は,  $p(\eta) = 0$  より, 以下のようになる。

$$\begin{aligned} -p(z) &= -\rho_0 g \int_z^\eta dz - \int_z^\eta \rho' g dz \\ p(z) &= \rho_0 g \int_z^\eta dz + \int_z^\eta \rho' g dz \end{aligned} \quad (4.6)$$

圧力  $p$  に関しても同様に  $p = p_0 + p'(z)$  とすると次式を得る。

$$p_0 = \rho_0 g (\eta - z) \quad (4.7)$$

$$p'(z) = \int_z^\eta \rho' g dz \quad (4.8)$$

式(4. 8)を式(4. 1),(4. 2)に代入し, Boussines 近似(運動方程式中の, 慣性項において密度は加速度を含む項のみ密度変化を考慮する)を適用すると, 最終的には次式が得られる.

$$\begin{aligned} \frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} + w \frac{\partial u}{\partial z} = f v - g \frac{\partial \eta}{\partial x} - \frac{g}{\rho_0} \frac{\partial}{\partial x} \int_z^\eta \rho' g dz + \frac{\partial}{\partial x} (A_x \frac{\partial u}{\partial x}) \\ + \frac{\partial}{\partial y} (A_y \frac{\partial u}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (A_z \frac{\partial u}{\partial z}) \end{aligned} \quad (4.9)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial v}{\partial t} + u \frac{\partial v}{\partial x} + v \frac{\partial v}{\partial y} + w \frac{\partial v}{\partial z} = f u - g \frac{\partial \eta}{\partial y} - \frac{g}{\rho_0} \frac{\partial}{\partial y} \int_z^\eta \rho' g dz + \frac{\partial}{\partial x} (A_x \frac{\partial v}{\partial x}) \\ + \frac{\partial}{\partial y} (A_y \frac{\partial v}{\partial y}) + \frac{\partial}{\partial z} (A_z \frac{\partial v}{\partial z}) \end{aligned} \quad (4.10)$$

また連続式は次式である.

$$\frac{\partial u}{\partial x} + \frac{\partial v}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial z} = 0 \quad (4.11)$$

以上が直交座標系における基礎式である.

#### 4-2-2 座標系変換

座標系とは, 式(4.12)で表され, 内湾に特徴的な複雑な海底地形をモデルに反映する上で極めて有用であることが知られており, 図 4-1 に示すように, デカルト座標で水面  $z=\eta$ , 海底面  $z=-h$  であったものを, 水面で  $\sigma=1$ , 海底で  $\sigma=0$  となるよう変換するものである.

$$\sigma = \frac{z + h}{h + \eta} \quad (4.12)$$

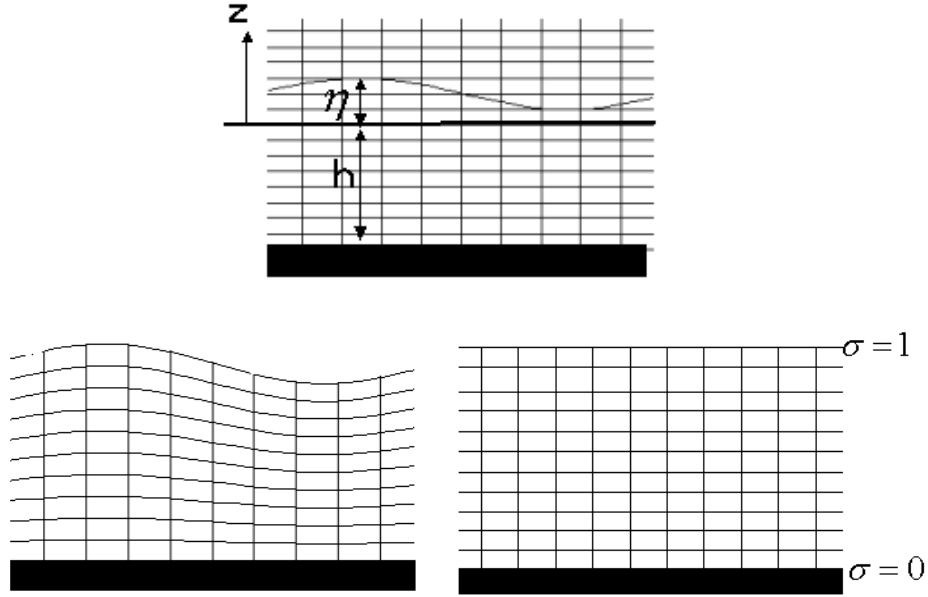


図 4-1 デカルト座標系と  $\sigma$  座標系

変換する際, 次のような関係を使う.  $\Phi$  をあるスカラー量としたとき,

$$\left[ \frac{\partial \Phi}{\partial x} \right]_z = \left[ \frac{\partial \Phi}{\partial x} \right]_\sigma + \frac{\partial \Phi}{\partial \sigma} \left[ \frac{\partial \sigma}{\partial x} \right]_z \quad (4.13)$$

$$\left[ \frac{\partial \Phi}{\partial y} \right]_z = \left[ \frac{\partial \Phi}{\partial y} \right]_\sigma + \frac{\partial \Phi}{\partial \sigma} \left[ \frac{\partial \sigma}{\partial y} \right]_z \quad (4.14)$$

$$\frac{\partial w}{\partial z} = \frac{\partial \sigma}{\partial z} \frac{\partial w}{\partial \sigma} \quad (4.15)$$

ここで,  $H = h(x,y) + \eta(t,x,y)$  とおくと式(4.12)より

$$\sigma = \frac{z + h}{H} \quad (4.16)$$

$$\begin{aligned}
\left[ \frac{\partial \sigma}{\partial x} \right]_z &= -\frac{1}{H} \left[ \frac{\partial z}{\partial x} \right]_\sigma \\
&= -\frac{1}{H} \left[ \frac{\partial}{\partial x} (\sigma H - h) \right]_\sigma \\
&= \frac{1}{H} \left[ \frac{\partial h}{\partial x} - \sigma \frac{\partial H}{\partial x} \right]_\sigma
\end{aligned} \tag{4.17}$$

同様に,

$$\left[ \frac{\partial \sigma}{\partial y} \right]_z = \frac{1}{H} \left[ \frac{\partial h}{\partial y} - \sigma \frac{\partial H}{\partial y} \right]_\sigma \tag{4.18}$$

式(4.13)と式(4.17)より,

$$\left[ \frac{\partial \Phi}{\partial x} \right]_z = \left[ \frac{\partial \Phi}{\partial x} \right]_\sigma + \frac{\partial \Phi}{\partial \sigma} \frac{1}{H} \left[ \frac{\partial h}{\partial x} - \sigma \frac{\partial H}{\partial x} \right]_\sigma \tag{4.19}$$

式(4.14)と式(4.18)より

$$\left[ \frac{\partial \Phi}{\partial y} \right]_z = \left[ \frac{\partial \Phi}{\partial y} \right]_\sigma + \frac{\partial \Phi}{\partial \sigma} \frac{1}{H} \left[ \frac{\partial h}{\partial y} - \sigma \frac{\partial H}{\partial y} \right]_\sigma \tag{4.20}$$

式(4.15)は, 次式のようになる.

$$\frac{\partial w}{\partial z} = \frac{1}{H} \frac{\partial w}{\partial \sigma} \tag{4.21}$$

直交座標系の連続式(4.11)を 座標へ変換する.

式(4.19),(4.20),(4.21)を代入すると,

$$\begin{aligned}
0 &= \left[ \frac{\partial u}{\partial x} \right]_\sigma + \frac{\partial u}{\partial \sigma} \frac{1}{H} \left[ \frac{\partial h}{\partial x} - \sigma \frac{\partial H}{\partial x} \right]_\sigma + \left[ \frac{\partial v}{\partial y} \right]_\sigma + \frac{\partial v}{\partial \sigma} \frac{1}{H} \left[ \frac{\partial h}{\partial y} - \sigma \frac{\partial H}{\partial y} \right]_\sigma + \frac{1}{H} \frac{\partial w}{\partial \sigma} \\
0 &= \frac{1}{H} \left\{ H \left[ \frac{\partial u}{\partial x} \right]_\sigma + \frac{\partial u}{\partial \sigma} \left[ \frac{\partial h}{\partial x} - \sigma \frac{\partial H}{\partial x} \right]_\sigma + H \left[ \frac{\partial v}{\partial y} \right]_\sigma + \frac{\partial v}{\partial \sigma} \left[ \frac{\partial h}{\partial y} - \sigma \frac{\partial H}{\partial y} \right]_\sigma + \frac{\partial w}{\partial \sigma} \right\}
\end{aligned} \tag{4.22}$$

また  $\frac{D\sigma}{Dt} = \dot{\sigma}$  についても同様に展開すると,

$$\begin{aligned}\dot{\sigma} &= \frac{\partial \sigma}{\partial t} + u \frac{\partial \sigma}{\partial x} + v \frac{\partial \sigma}{\partial y} + w \frac{\partial \sigma}{\partial z} \\ &= -\sigma \frac{1}{H} \frac{\partial \eta}{\partial t} + u \frac{1}{H} \left[ \frac{\partial h}{\partial x} - \sigma \frac{\partial H}{\partial x} \right]_{\sigma} + v \frac{1}{H} \left[ \frac{\partial h}{\partial y} - \sigma \frac{\partial H}{\partial y} \right]_{\sigma} + \frac{w}{H}\end{aligned}\quad (4.23)$$

上式を で微分し次式を得る.

$$\frac{\partial \dot{\sigma}}{\partial \sigma} = -\frac{1}{H} \left[ \frac{\partial \eta}{\partial t} + \frac{\partial u}{\partial \sigma} \left[ \frac{\partial h}{\partial x} - \sigma \frac{\partial H}{\partial x} \right]_{\sigma} + \frac{\partial v}{\partial \sigma} \left[ \frac{\partial h}{\partial y} - \sigma \frac{\partial H}{\partial y} \right]_{\sigma} - u \frac{\partial H}{\partial x} - v \frac{\partial H}{\partial y} + \frac{\partial w}{\partial \sigma} \right] \quad (4.24)$$

式(4.22)に H を掛け, 式(4.24)との差をとると, 次式が得られる.

$$\begin{aligned}0 &= \frac{\partial \eta}{\partial t} + u \frac{\partial H}{\partial x} + v \frac{\partial H}{\partial y} + H \frac{\partial u}{\partial x} + H \frac{\partial v}{\partial y} + H \frac{\partial \dot{\sigma}}{\partial \sigma} \\ 0 &= \frac{\partial \eta}{\partial t} + \frac{\partial(Hu)}{\partial x} + v \frac{\partial(Hv)}{\partial y} + \frac{\partial(H\dot{\sigma})}{\partial \sigma}\end{aligned}\quad (4.25)$$

これが 座標系における連続式である.

#### 4-2-3 Navie-Stokes 方程式の移流項を 座標系に変換する.

直交座標系における移流項は式(4.19),(4.20),(4.21)より

$$\begin{aligned}\frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} + w \frac{\partial u}{\partial z} &= \left| \frac{\partial u}{\partial t} \right|_{\sigma} + \frac{\partial u}{\partial \sigma} \left| \frac{\partial \sigma}{\partial t} \right|_z + u \left\{ \left| \frac{\partial u}{\partial x} \right|_{\sigma} + \frac{\partial u}{\partial \sigma} \left| \frac{\partial \sigma}{\partial x} \right|_z \right\} \\ &\quad + v \left\{ \left| \frac{\partial u}{\partial y} \right|_{\sigma} + \frac{\partial u}{\partial \sigma} \left| \frac{\partial \sigma}{\partial y} \right|_z \right\} + w \frac{\partial \sigma}{\partial z} \frac{\partial u}{\partial \sigma}\end{aligned}\quad (4.26)$$

さらに,

$$\dot{\sigma} = \frac{\partial \sigma}{\partial t} + u \frac{\partial \sigma}{\partial x} + v \frac{\partial \sigma}{\partial y} + w \frac{\partial \sigma}{\partial z} = \left| \frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} + \dot{\sigma} \frac{\partial u}{\partial \sigma} \right|_{\sigma} \quad (4.27)$$

差分によっても運動量が保存されるように,

式(4.27)に H を掛け, 連続式 式(4.25)に u を掛けたものを加えると,

$$H \left\{ \frac{\partial u}{\partial t} + u \frac{\partial u}{\partial x} + v \frac{\partial u}{\partial y} + \dot{\sigma} \frac{\partial u}{\partial \sigma} \right\} + u \left\{ \frac{\partial \eta}{\partial t} + \frac{\partial(Hu)}{\partial x} + \frac{\partial(Hv)}{\partial y} + \frac{\partial(H\dot{\sigma})}{\partial \sigma} \right\}$$

$$\begin{aligned}
&= H \frac{\partial u}{\partial t} + Hu \frac{\partial u}{\partial x} + Hv \frac{\partial u}{\partial y} + H\dot{\sigma} \frac{\partial u}{\partial \sigma} + u \frac{\partial H}{\partial t} + u \frac{\partial(Hu)}{\partial x} + u \frac{\partial(Hv)}{\partial y} + u \frac{\partial(H\dot{\sigma})}{\partial \dot{\sigma}} \\
&= \frac{\partial(Hu)}{\partial t} + \frac{\partial(Huu)}{\partial x} + \frac{\partial(Hvu)}{\partial y} + \frac{\partial(H\dot{\sigma}u)}{\partial \dot{\sigma}}
\end{aligned} \tag{4.28}$$

同様に ,

$$= \frac{\partial(Hv)}{\partial t} + \frac{\partial(Hvu)}{\partial x} + \frac{\partial(Hvv)}{\partial y} + \frac{\partial(H\dot{\sigma}v)}{\partial \dot{\sigma}} \tag{4.29}$$

となり , 移流項が保存型に変換された .

#### 4-2-4 Navie-Stokes 方程式の圧力勾配項を 座標系に変換する

水平方向の微分演算子  $\nabla \equiv \left( \frac{\partial}{\partial x}, \frac{\partial}{\partial y} \right)$  を使い, デカルト座標系を添え字  $z$ , 座標系を添え

字 で表すと次のように変換される.

$$\nabla_z p = \nabla_\sigma p - \frac{\partial \sigma}{\partial z} (\nabla_\sigma z) \frac{\partial p}{\partial \sigma} \quad (4.30)$$

静水圧近時における圧力勾配を 座標系に変換すると,

$$\frac{\partial p}{\partial z} = -\rho g \quad (4.31)$$

と表せる.

$$\frac{\partial p}{\partial \sigma} = -\rho g \frac{\partial z}{\partial \sigma} \quad (4.32)$$

上式を式(4.30)に代入して整理すると

$$-\frac{1}{\rho} \nabla_z p = -\frac{1}{\rho} \left\{ \nabla_\sigma p - \frac{\partial \sigma}{\partial z} (\nabla_\sigma z) \left( -\rho g \frac{\partial z}{\partial \sigma} \right) \right\} = -\frac{1}{\rho} \nabla_\sigma p - g \nabla_\sigma z \quad (4.33)$$

なる. 続いて再び密度 と圧力  $p$  を平均と偏差に分けると,

$$\begin{aligned} \nabla_\sigma p &= \nabla_\sigma p_0 + \nabla_\sigma p' \\ &= \nabla_\sigma (\rho_0 g (\eta - z)) + \nabla_\sigma p' \\ &= \rho_0 g (\nabla_\sigma \eta - \nabla_\sigma z) + \nabla_\sigma p' \end{aligned} \quad (4.34)$$

$$\rho \nabla_\sigma z = \rho_0 \nabla_\sigma z + \rho' \nabla_\sigma z$$

となるので結局圧力勾配項は,

$$\begin{aligned} -\frac{1}{\rho} \nabla_z p &= -\frac{1}{\rho} \left[ \{ \rho_0 g (\nabla_\sigma \eta - \nabla_\sigma z) + \nabla_\sigma p' \} - g (\rho_0 \nabla_\sigma z + \rho' \nabla_\sigma z) \right] \\ &= -\frac{1}{\rho} \left[ \rho_0 g \nabla_\sigma \eta + \nabla_\sigma p' - \rho' g \nabla_\sigma z \right] \\ &= -\frac{1}{\rho} \left[ \rho_0 g \nabla_\sigma \eta + \rho' g \{ \sigma (\nabla_\sigma h + \nabla_\sigma \eta) - \nabla_\sigma h \} + \nabla_\sigma \left[ H \int_\sigma^l \rho' g d\sigma \right] \right] \\ &= -\frac{1}{\rho} \left[ (\rho_0 + \rho' \sigma) g \nabla_\sigma \eta + \rho' g (\sigma - 1) \nabla_\sigma h + \nabla_\sigma \left[ H \int_\sigma^l \rho' g d\sigma \right] \right] \end{aligned} \quad (4.35)$$



以上より，座標系における運動方程式は次式のようになる．

$$\begin{aligned} \frac{\partial(Hu)}{\partial t} + \frac{\partial(Huu)}{\partial x} + \frac{\partial(Hvu)}{\partial y} + \frac{\partial(H\dot{\sigma}u)}{\partial \sigma} = Hf_v - \frac{H}{\rho} \frac{\partial p}{\partial x} \\ + \frac{1}{H} \frac{\partial}{\partial \sigma} \left( A_v \frac{\partial u}{\partial \sigma} \right) + HA_h \left( \frac{\partial^2 u}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 u}{\partial y^2} \right) \end{aligned} \quad (4.36)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial(Hv)}{\partial t} + \frac{\partial(Huv)}{\partial x} + \frac{\partial(Hvv)}{\partial y} + \frac{\partial(H\dot{\sigma}v)}{\partial \sigma} = Hf(-u) - \frac{H}{\rho} \frac{\partial p}{\partial y} \\ + \frac{1}{H} \frac{\partial}{\partial \sigma} \left( A_v \frac{\partial v}{\partial \sigma} \right) + HA_h \left( \frac{\partial^2 v}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 v}{\partial y^2} \right) \end{aligned} \quad (4.37)$$

ただし

$$-\frac{1}{\rho} \nabla p = -\frac{1}{\rho} \left[ (\rho_0 + \rho' \sigma) g \nabla_{\sigma} \eta + \rho' g (\sigma - 1) \nabla_{\sigma} h + \nabla_{\sigma} \left[ H \int_{\sigma}^1 \rho' g d\sigma \right] \right] \quad (4.38)$$

$$\dot{\sigma} = \frac{\partial \sigma}{\partial t} + u \frac{\partial \sigma}{\partial x} + v \frac{\partial \sigma}{\partial y} + w \frac{\partial \sigma}{\partial z} \quad (4.39)$$

ここに， $h$ ， $\eta$ ：静水面を基準とする水深および水位， $H = \eta + h$ ， $\nabla \equiv \left( \frac{\partial}{\partial x}, \frac{\partial}{\partial y} \right)$

$f$ ：コリオリ係数， $A_h, A_{\sigma}$ ：水平，鉛直方向の渦動粘性係数である． $\dot{\sigma}$  は座標系における鉛直流速に相当するもので，式(4.39)のように表される．

### 4-3 底泥輸送に関する基礎式導出

底泥輸送は、基本的に底面での巻き上げ・沈降項を含んだ浮遊泥の移流拡散方程式を解くことにより求める。流動モデルで求めた流速よりせん断力を求め土砂の輸送・堆積・再浮上を考慮した浮泥モデルとした。

なお、波浪は底泥を巻き上げることのみに寄与し、流体層に巻き上げられた浮泥は流れによってのみ運ばれると仮定する。

#### 4-3-1 基礎方程式

浮遊懸濁物の移流・拡散に関する基礎方程式は式(4.40)になる。

$$\frac{\partial S}{\partial t} + \frac{\partial(Su)}{\partial x} + \frac{\partial(Sv)}{\partial y} = A_{x,y} \left( \frac{\partial^2 S}{\partial x^2} + \frac{\partial^2 S}{\partial y^2} \right) + E - D \quad (4.40)$$

ここに、 $S$ : 浮遊物質濃度、 $E$ : 侵食による移動量、 $D$ : 堆積による移動量、 $A_x, A_y$ :  $x, y$  方向の渦動拡散係数。

#### 4-3-2 渦動粘性係数および渦動拡散係数の設定

水平方向の渦動粘性係数、渦動拡散係数の設定には、水平方向の計算メッシュサイズと速度勾配の関数として表されるヲ考えて、スマゴリンスキー・モデル式(4.41)と用いた。

$$\begin{aligned} A_{x,y} &= K_{x,y} \\ &= C_{dif} \Delta x \Delta y \left[ \left( \frac{\partial u}{\partial x} \right)^2 + \frac{1}{2} \left( \frac{\partial v}{\partial x} + \frac{\partial u}{\partial y} \right) + \left( \frac{\partial v}{\partial y} \right)^2 \right]^{0.5} \end{aligned} \quad (4.41)$$

式中の無次元係数  $C_{dif}$  は、沿岸域の海水流動を対象とした場合には、通常 0.1 ~ 0.2 程度とされているので、0.2 とした(中川(2003))。

### 4-3-3 底面せん断応力の計算

せん断応力の計算には、既往の研究に多く見られるように、底面せん断応力  $\tau_b$  を流動によるもの  $\tau_c$  と波浪によるもの  $\tau_w$  の足し合わせたものとした。また、 $\tau_c$  は KimLee(2003) と  $\tau_w$  は 稲垣ら(2001)より、

$$\tau_c = \frac{\rho g (u^2 + v^2)}{C_h} \quad (4.42)$$

$$\tau_w = \frac{1}{2} \rho f_w \left| \hat{U}_\delta \right|^2 \quad (4.43)$$

とした。ここに、 $C_h$ :Chezy 係数、 $\rho$ :海水密度、 $f_w$ :波による底面摩擦係数、 $\hat{U}_\delta$ :海底付近水粒子の波による運動最大速度振幅。

$C_h$  において、水深が水平距離より十分大きいと考えて

$$C_h = \frac{R^{\frac{1}{6}}}{n} = \frac{h^{\frac{1}{6}}}{n} \quad (4.44)$$

とした。ここに、 $n$ :マニング係数、 $R$ :径深、 $h$ :水深。

$\hat{U}_\delta$  はポテンシャル理論により

$$\hat{U}_\delta = \frac{\pi H}{T \sinh\left(\frac{2\pi h}{L}\right)} \quad (4.44)$$

とした。ここに、 $H$ :波高、 $T$ :周期。

#### 4-3-4 底泥の浸食および堆積量の定式化

潮汐流等の外力作用による海底から泥の巻上げ量の算定には、主に粘着性を有する底質堆積物を対象に広く用いられる式(4.45)を使用した。

$$\begin{aligned} E &= M \left( \frac{\tau_b}{\tau_e} - 1 \right) & (\tau_b \geq \tau_e) \\ E &= 0 & (\tau_b < \tau_e) \end{aligned} \quad (4.45)$$

ここに、 $\tau_b$ :底面せん断応力、 $\tau_e$ :堆積泥の浸食に関する限界せん断応力、 $M$ :浸食速度係数。

底泥の浸食特性を示す $\tau_e$ や $M$ の値は、底泥を構成する鉱物組成や粒子構造のほか、含泥率(底質中のシルトおよび粘土分の割合)あるいは含水比等の堆積状態にも依存するため、対象とする海域の泥の特性を反映させたパラメータを用いる必要がある。中川(2002)は東京湾奥部において現地観測を行い、巻き上げ限界せん断応力等を明らかにしており、本研究におけるパラメータはそれを参考にした。

一方、海水中に浮遊した泥の沈降過程については、やはり泥の輸送モデルと同様に以下の式(4.46)を用いた。

$$\begin{aligned} D &= w_f \left( 1 - \frac{\tau_b}{\tau_d} \right) C_0 & (\tau_b \leq \tau_d) \\ D &= 0 & (\tau_b > \tau_d) \end{aligned} \quad (4.46)$$

ここに、 $\tau_d$ :泥の沈降に関する限界せん断応力、 $C_0$ :底面直上層での浮遊泥濃度。右辺第2

項の括弧内は、底面付近の乱れが粒子の沈降を妨げる程度を示す堆積確率に相当し、 $\tau_d$

の値はここでは浸食に対する限界せん断応力と同じ値とした。

## 4-4 方程式の離散化

流動モデルは差分法を用いた。これは、小野澤(2005)に倣って行う。

同様に、底泥輸送に関しても差分法を用いた。2次元の移流拡散方程式を解くが、移流項に関しては、風上法の一つである Donor Cell Scheme を用いた。また空間の離散化は、現在の時刻の値を用いる陽解法を適応させた。

## 4-5 境界条件

底泥輸送モデルに関しては、SS 濃度を水域から陸域にかけて勾配 0 とする。また、浮泥層を設けて、侵食されるように制限をかけた。これは、図 4-2 に示したとおり、浮泥層があるときまで侵食され、浮泥層がない場合は堆積するまで侵食されないということである。また、それに伴い、浮泥層と侵食、堆積の関係を式(4.47)に示す。浮泥層の変化は、侵食と堆積によるものである。

$$\frac{\partial h}{\partial t} = [D + E] \div \rho_{FM} \quad (4.47)$$

$$\rho_{FM} = \frac{W_s}{V_s + V_w} = \rho_t \left( \frac{1}{1 + w} \right) \quad (4.48)$$

ここに、D, E: せん断力によって生じた堆積と侵食の量、 $\rho_{FM}$ : 浮泥層に粒子の密度、 $\rho_t$ : 湿潤密度、w: 含水比。

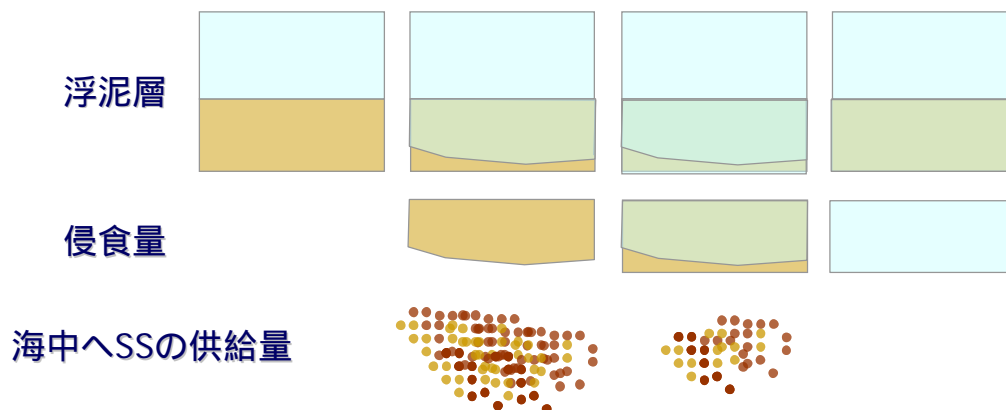


図 4-2 浮泥層と SS についての概要

## 4-6 計算条件

流動モデルに関して述べる。計算対象領域の水深分布図を図 4-3 に示す。これらの領域において、水平格子間隔を 2000m としていた。また鉛直方向においては、座標系を用いて、常に 10 層の層分割とした。気象条件は、海面気圧、蒸気圧、相対湿度は千葉管区气象台における実測値、雲量、短波放射は東京管区气象台における実測値、気温、風向、風速は、羽田地域気象観測(アメダス)資料を用いた。これらはすべて一時間移動平均である。潮位については、横須賀における験潮記録(海上保安庁による)より与えた。この際、江戸川・多摩川については河口に最も近い測定地点(それぞれ野田・石原)における実測の河川流量を、その他の河川については過去 5 年分の流量年表から算出した流量の比を求めて、旧江戸川の流量にこの比を乗じて与えた。 $t = 600(s)$ とした。

底泥輸送に関して述べる。底泥輸送は、短期的な移動ではなく、長期的なものと考え、底泥輸送に使用した流況は、流動モデルで出された 1 時間毎の値を 25 時間平均させて入力させた。これは、夏場と冬場で流況が異なるため、卓越した流況を入力させるべきだと考えたからである。



#### 4-6-1 諸パラメータ

底泥輸送モデルについてのパラメータを表 2-1 にまとめた。浮動動態のパラメータは細川ら(1986)や中川(2002)など既往の研究を参考にした。

表 4-1 パラメータの一覧

$w_s$	沈降速度	$8.64\text{m day}^{-1}$
$e$	巻き上げ限界せん断応力	$1.0 \cdot 10^{-2} \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-2}$
$d$	沈降限界せん断応力	$5.0 \cdot 10^{-2} \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-2}$
$P$	経験定数	$7.5 \cdot 10^{-8} \text{ kg m}^{-1} \text{ s}^{-2}$
$f_w$	底面摩擦係数	0.03
$n$	Manning の粗度係数	$0.025\text{s m}^{-1/3}$
$t$	湿潤密度	$1.100 \text{ g cm}^{-3}$
	含水比	3.5



## 4-7 計算結果

ここでは、構築したモデルを基に様々な条件においての計算結果を示す。初期条件としての SS 濃度が 0、SS 濃度が一様に広がっているケース、SS 濃度が任意の点のケースである。

まずはじめに、残差流について述べる。

### 4-7-1 残差流

流動モデルから解いた東京湾の底層における残差流について考える。まず、残差流について簡単に説明を行う。沿岸海域では通常半日周潮流が卓越しているので、半日(12 時間 25 分)、あるいは 1 日(24 時間 50 分)の測流結果を平均すれば平均流はほぼ 0 ではなく、なんらかの平均値が得られることが普通である。このような平均流を残差流と呼び、その平均流から潮流成分を除いたという意味である。従来沿岸海域の物質の拡がりには、最も卓越する潮流の役割が大きいと考えられていたが、長期間の物質の輸送や広がりを注意深く観察してみると、数潮汐以上の長時間の物質輸送に残差流の影響が強いと考えられている。そこで、東京湾の底層における残差流を考えてみる。図 4-4 は、東京湾の底層において、4 月 1 日から計算をはじめて、25 時間平均で求めたものである。図 4-4 の上図は、残差流のベクトル図を示しものであり、下の図はそのベクトル図を結んだ、流線曲線を示したものである。

図 4-4 より、東京港と、多摩川河口から南下した場所に流線が重なり合っていることがわかる。線と千葉港より南方向周辺に湾奥から流れている。湾中央部分から分かれている様子もわかる。西側からは、一度湾奥へ行き、それから回り込んでいる様子がわかる。これをより定量的に見るために、残差流の流速ベクトルより発散:divergence を求める。

底層における 2 次元の流速ベクトル場  $F = (u, v)$  を考えると

$$\text{div}F > 0 \quad \text{: 移動(その場に留まらない.)}$$

$$\text{div}F < 0 \quad \text{: 堆積(その場に留まる.)}$$

と解釈が出来る。結果を図 4-5 に示す。湾口付近は水深が深く、流速が大きいので必然的に数値が多いので、詳細を見るためにコンタを細かくした。

湾奥における中央部分から東側において他の地点と比べて負の値をとっている。ゆえに、その場においては堆積することになる。そして東に行くと正の値をとる。それは海岸線にそって移動していることがわかる。湾奥の西側においては、正の値、つまり堆積する場所が確認できる。

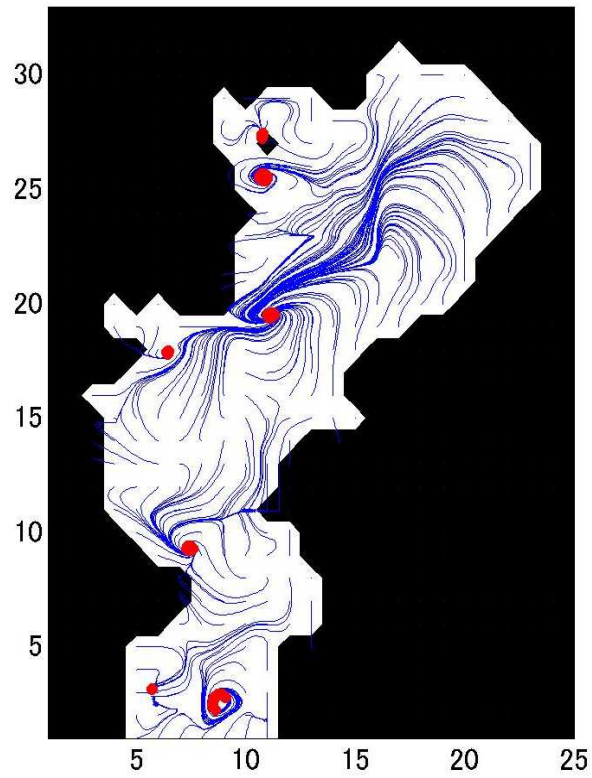
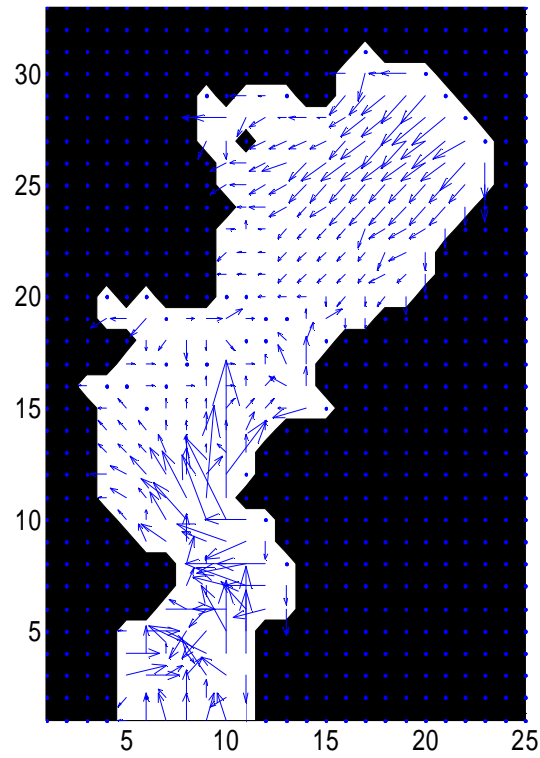


図 4-4 東京湾における残差流,上図は流速のベクトル図であり,下図は流線である.

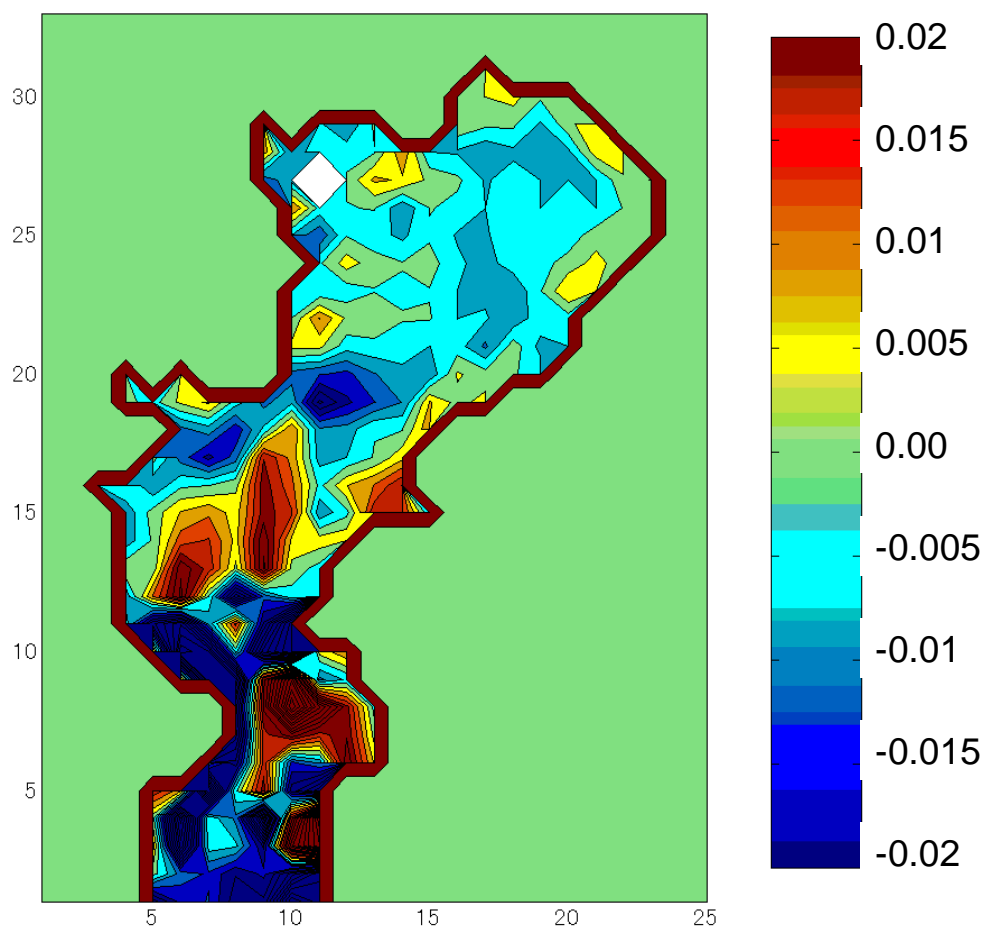


図 4-5 残差流の流速ベクトルより求めた Divergence

#### 4-7-2 底泥輸送モデルの結果

残差流より輸送傾向がある程度わかったが、底泥輸送においては移動限界水深がある。移動限界水深とは、底質が波や流れの作用によって移動を開始する水深のことであり、東京湾においては概ね 20m とされている。残差流で求めたものは、このことについての考慮がなされていないので、底泥輸送モデルを適用させた。

##### 4-7-2-1 せん断力図

4-3-3 項における式(4.43)で示したとおり、波によるせん断応力を求める必要がある。ここでは、東京湾における代表的な値として全ての地点において  $H=0.4\text{m}$ ,  $T=5\text{s}$  の波が働いているとして仮定した。それによって算出されたせん断力図のコンタを図 4-6 にプロットする。図から見てわかるように、川崎や、富津岬周辺以外だと、湾奥の沿岸沿いにしか働いていない。つまり、水深が浅い部分にしかせん断力が働いていないことになる。

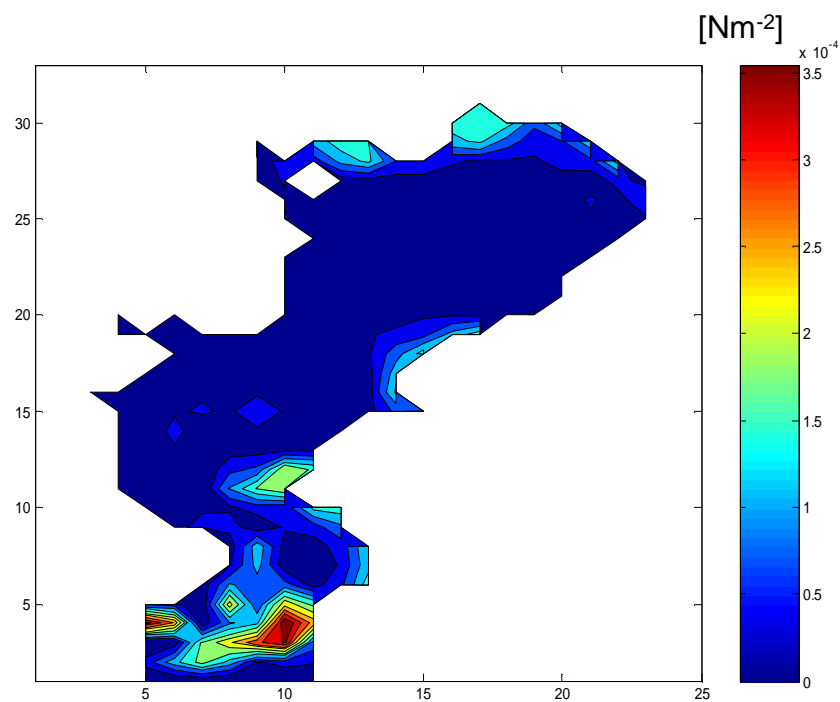


図 4-6 東京湾におけるせん断力図

#### 4-7-2-2 初期条件 SS を 0

SS 濃度を水域において 0 とする。そして、浮泥層を図 4-7 に示した通りにする。湾口付近には浮泥層をもたないので設定していない。

しかし、図 4-6 示した通り、せん断力が微小なので、巻き上がりが起こらず、SS が湾内にない状態になる。

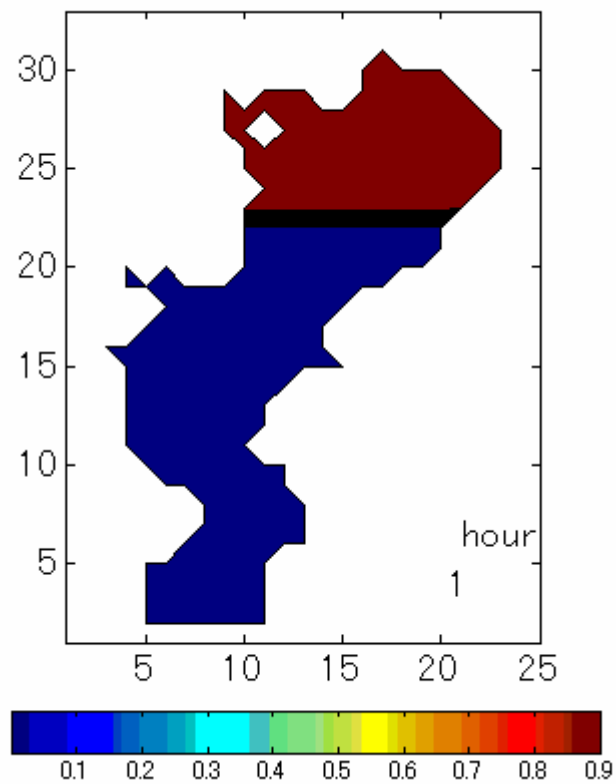


図 4-7 浮泥層の初期条件

#### 4-7-2-3 初期条件 一様に SS 濃度

一様に SS 濃度を置いてみる。これより、SS 濃度がどこに溜まっていくのかがわかる。SS 濃度の変化を以下の図 4-8 に示す。湾口付近は、浮泥層はないので、初期条件として( $t=0(h)$ )一様に、SS 濃度を与える。その後、すぐに( $t=81(h)$ )のように湾全体に拡がる。それが多摩川河口域に行き届き( $t=221(h)$ )、そこを基点として拡がる( $t=501(h)$ )。ただその後は湾内に留まることなく、湾外へ移動している( $t=1141(h)$ )。そして、2 ヶ月もしないうちに湾口へ移動してしまう。

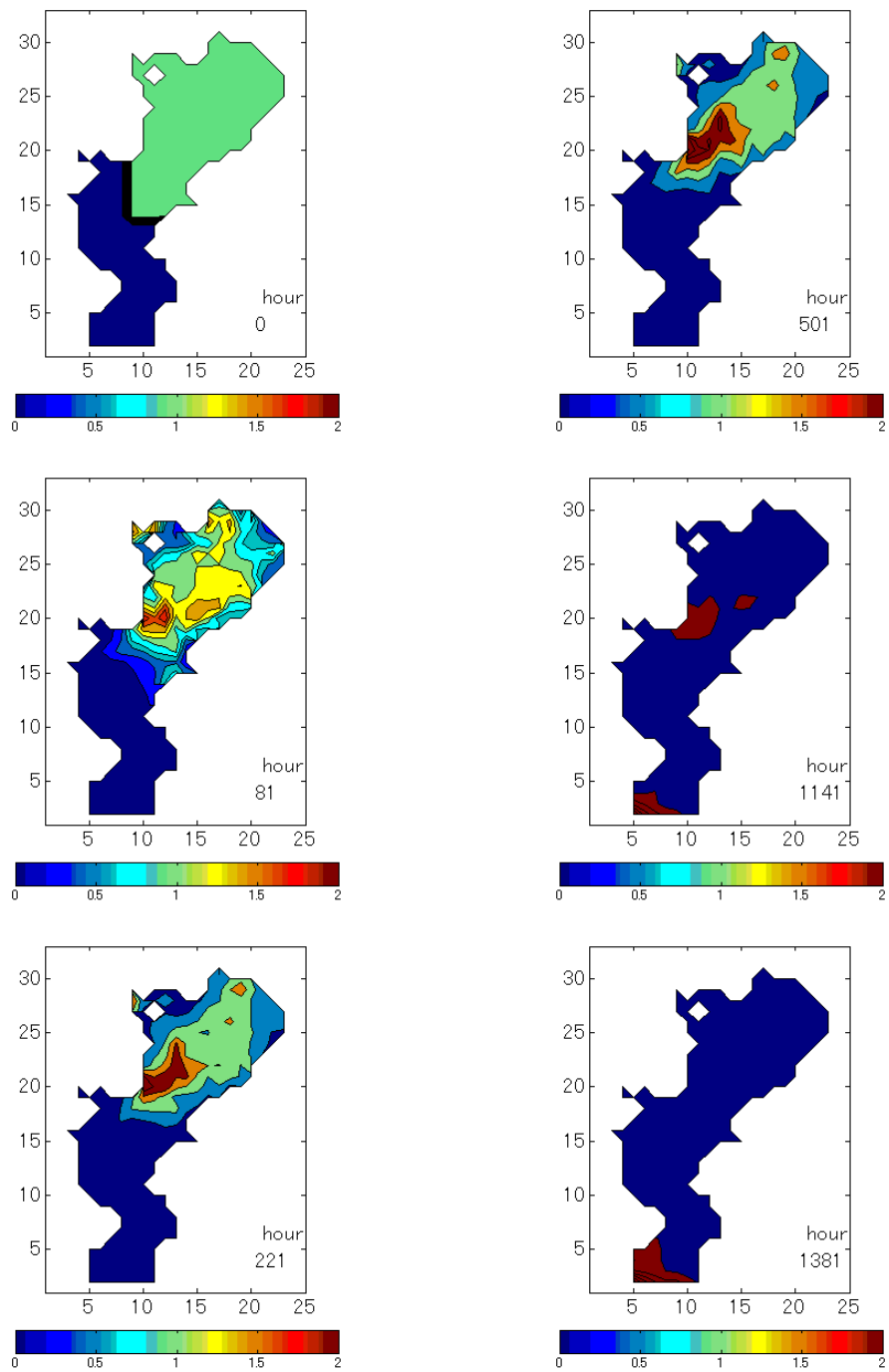


図 4-8 SS 濃度の時系列による拡がり方(SS 濃度一様)  
(単位:g/l)

#### 4-7-2-4 初期条件 SS 濃度を任意の地点

次に、初期条件として SS 濃度を任意の場所(1.市原港付近,2.袖ヶ浦付近)において SS 濃度の移動傾向を見る。結果は図 4-9, 図 4-10 で示す。

まず、市原港付近について述べる。初期の状態が図 4-9 の左上で示す( $t=1(h)$ )。SS はまず北側へ移動し( $t=621(h)$ )、そして湾奥から中央部分へ移動( $t=1041(h)$ )、そして全体に広がり( $t=1321(h)$ )、多摩川河口域から沖へ行く( $t=1821(h)$ )。計算結果から、約 3 ヶ月( $t=2081(h)$ )で反対の西側へ移動している様子がわかる。

図 4-10 は、図 4-9 の分布が一度、湾奥へ広がってから東京港へ移動したので、それより南側ではどのような挙動を示すか確かめてみた。今回は、湾奥へは広がるのだが( $t=761(h)$ )湾中央へ一度行き( $t=441(h)$ )それから南北へ広がっていく( $t=521(s)$ )、そして結果的に西側の多摩川河口域から沖へ行った場所に堆積する( $t=1321(h)$ )。市原港付近より約 20 日間早く辿りついていくことがわかる。

他の点でも行ってみたが、最終的に湾の西側へ輸送されていく。これらのケースの結果より、例えば東側でも湾中央を移動、もしくは湾奥の沿岸域に沿って拡がりながら西側にたどりついていくことがわかる。これは、残差流で得られた知見とほぼ等しい。



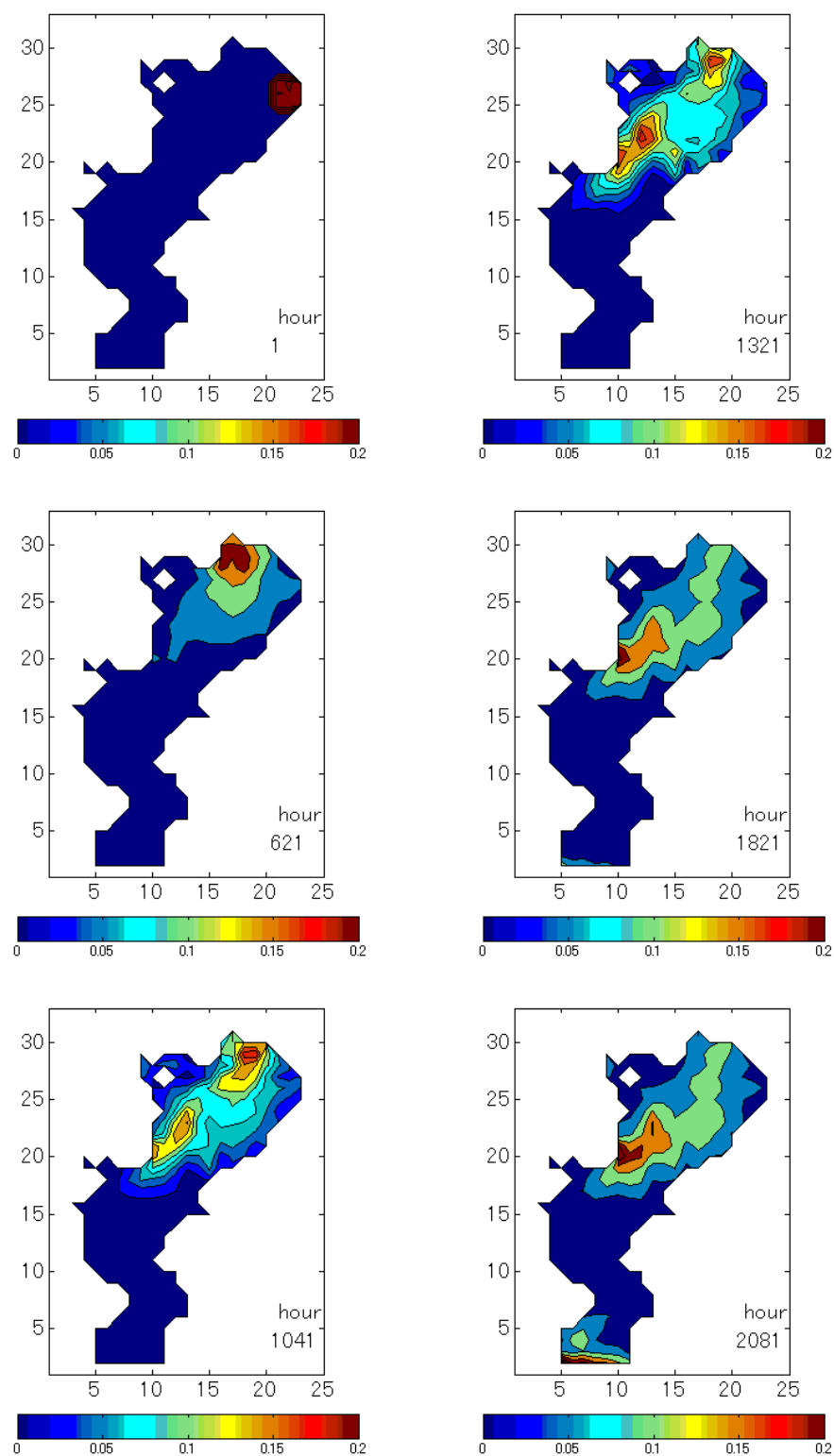


図 4-9 SS 濃度の時系列による拡がりかた(市原港周辺に SS 濃度がある場合)  
(単位:g/l)

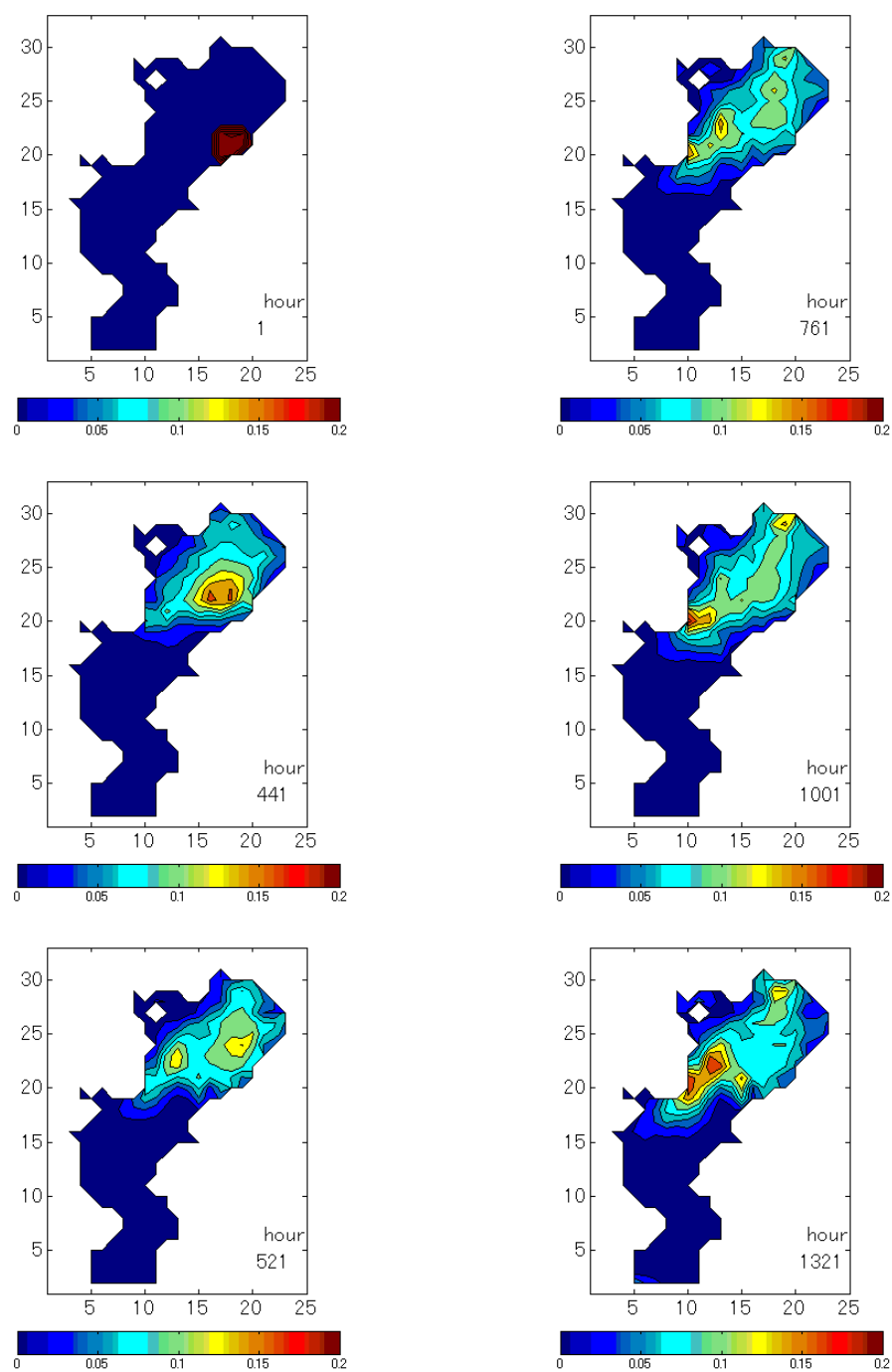


図 4-10 SS 濃度の時系列による拡がり方 (袖ヶ浦周辺に SS 濃度がある場合)  
(単位:g/l)

#### 4-8 まとめ

沈降, 巻き上げのプロセスを考慮した移流拡散方程式である底泥輸送モデルを構築したが, せん断応力により巻き上がる SS 濃度が極端に少ないため, 巻き上げのプロセスをきちんと確認できなかった。

初期条件において, SS 濃度を一様に置いても, また任意の地点に置いても湾西にたどり着くことがわかった。ただ拡がり方については, 湾奥へいったから拡がるケースもあれば湾中央に拡がってからいくものもある。近い地点からの出発でもたどり着くことに時間がことなることがわかった。

## 5 結論と今後の課題

### 5-1 結論

東京湾のダイオキシン類濃度から、主成分分析を行い 6 種類の汚染原因に分けることが出来た。これにより、東京湾において底泥が溜まりやすい場所がわかった。

それを底泥輸送モデルを構築して、数値計算で再現しようと試みたが、せん断応力の算定で結果としてはうまく示すことができなかった。ただ、浮遊物質濃度の SS 濃度を底層における移流拡散を解くことによりダイオキシンで得た知見と同じ部分に辿りついた。そして、沈降速度もあるが、約 3 ヶ月で東から、西へ移動していることがわかった。

### 5-2 今後の課題

ダイオキシン類によるトレーサは、より詳細なデータを取り続ければより予想傾向がわかると思う。汚染原因を把握することで、よりよいトレーサになると思う。

底泥輸送モデルについては、水深が低い場所では、せん断力が大きくなる。しかし、東京湾においてそれらの場所のほとんどはシルトや粘土よりもより荒いもの、つまり砂などが大部分を占めている。このことより、モデルに粒径を反映させなくてはならない。さらに、沈降速度や底面せん断応力の閾値も一定値を与えるわけではなく、流動特性を考慮しなくてはならない。底泥の流動特性は、底泥の組成や含水比によって変化し、また、試料を乱すことにより流動性が増す“チクソトロピー性”も有しているので、きわめて複雑である。このような特性に対して、沈降速度、底面せん断応力の閾値を考慮すべきであろう。また、凝集現象や粒子の種類・サイズ分布も合わせて考慮する必要がある。

## 参考文献

- 五十嵐学, 佐々木淳(2004) 東京湾奥部における浮泥堆積層厚の空間分布特性 海岸工学論文集 51巻 pp.981-985
- 稲垣聡, Stephen G., Jeffery R. Koseff, Jeremy D. Bricker(2001) 南サンフランシスコ湾における底泥輸送解析 海岸工学論文集 48巻 pp.641-645
- 奥野忠一, 久米均, 芳賀敏郎, 吉澤正(1988) 改訂版 多変量解析法 日術技連
- 小野澤恵一(2005) お台場における雨天時越流水の数値解析
- 環境省環境管理局総務課(2004) ダイオキシン類挙動ハンドブック
- 環境庁(2000) 底質マニュアル
- 鯉淵幸生(2000) 東京湾における物質循環機構に関する研究
- 呉海鍾(2006) 干潟・浅海域の底質の現地調査に基づく環境分析に関する研究
- 五明美智男, 矢内栄二, 大槻忠(1990) 東京湾底泥の堆積特性 海岸工学論文集 37巻 pp.848-852
- 櫻井健郎(1996) 霞ヶ浦と東京湾, およびその周辺の底質・土壌中のダイオキシン類の分析とその起源の定量的推定
- 寒川喜三郎, 白色和夫(1996) 最新の底質分析と化学動態 技報堂
- 中川康之(2002) 東京湾奥部での底泥巻上げとその粒度分布特性について 海岸工学論文集 49巻 pp.1046-1050
- 日本海洋学会編 沿岸環境調査マニュアル 底質生物編 恒星社厚生閣
- 細川恭史, 田中則男, 久高将信, 佐藤勝弘(1986) トレンチ内に堆積する浮泥量の予測手法と現地への適用例 海岸工学論文集 33巻 pp.312-316
- 益永茂樹(2004) 残留性化学物質による沿岸汚染, 海洋と生物, 154, pp.403-410
- 松本英二(1983) 東京湾の底質環境(総説) 地球化学 vol.17, No.1 pp.27-32
- 吉澤正, 石渡康尊, 半野勝正, 仁平雅子, 小倉久子, 鯉淵幸生, 依田彦太郎, 原雄(2004) 東京湾底質のダイオキシン類汚染の概況
- Kim, Tae In and Suk Woo Lee(2003) sedimentation processes induced by large developments in the KEUMriver estuary workshop on Hydro-environmental impacts of large coastal developments 2003 pp.147-169

## 謝辞

本論文の作成において適切なご指導を頂きました指導教官である磯部先生、副査の鯉淵先生にお礼を申し上げます。

同研究室のスタッフである、佐藤先生、黄先生、田島先生、本田先生、秘書の山上さんと児玉さんにはお世話になりました。ゼミで的確なコメントや励ましのコメント、また研究室の運営をして頂いたことお礼を申し上げます。2 年間この研究室で過ごしたことは、私にとって貴重な経験でした。

千葉県環境センターのスタッフの方、データを拝借させて頂きました。ありがとうございます。

また、同センターの「きよすみ」スタッフの方々、いつも乗船させていただきありがとうございます。また、コアサンプルの回収の時は、忍足さんに大変助けられました。ありがとうございます。

また、私の研究がこうして1つの形として閉じられるのは3人の先輩方によるものだと思います。呉さん(現在 博士課程 3 年)は、分析・研究方針についてアドバイスを頂き、田中さん(現在 博士課程 2 年)には、図化の仕方、発表の仕方についてアドバイスを頂きました。そして、下園さん(現在 博士課程 1 年)には節目毎に一緒に夜を明かしながら議論相手になってもらい、多くのアドバイス、コメントを頂きました。この3人の先輩がいなければもう少し私は研究室にいないけなかつたと思います。感謝いたします。

保坂さんとは分析データを共有させて頂きました。ありがとうございます。阿部君には観測の際お世話になりました。ありがとう。

長い時間を共に過ごした同期の皆や後輩にも感謝を申し上げたいと思います。とても楽しい研究室生活を過ごすことで出来ました。ありがとう。

最後に、私の大学院生活を支えてくれた家族へ最大の感謝とともにこの論文を閉じます。