

~6章~

溶出モデル

1. はじめに

堆積物に含まれる有害化学物質の生態系への影響を防ぐための対策として、汚染堆積物の浚渫による除去と、覆砂による溶出抑制が検討されている。しかし、覆砂による溶出抑制効果の定量化は未だ明らかでない。

疎水性物質であるTBTに関する著者らの研究では、分配係数 K_d に影響を与える支配的なパラメータは粒子含有の有機物含有量TOCおよび有機物の分解度を表すC/N比であり、有機物が豊富な粒子への吸着には塩分やpHはほとんど影響しないことが分かっている。また堆積物内の粒子含有濃度の挙動は、堆積物表層の再懸濁層と生物による混合層の存在が鉛直分布を再現するためには重要であることが分かっている。

本研究では、これらの知見を基にTBTを対象とした溶出モデルを作成し、名古屋港でのTBT濃度およびTOC等の実測値を用いて堆積物からの溶出フラックスの経時変遷を推算した。このモデルでは、間隙水中濃度の拡散による濃度変化に伴う粒子濃度との吸脱着を考慮している。さらに堆積物表層に覆砂層を設置した場合の効果について考察した。

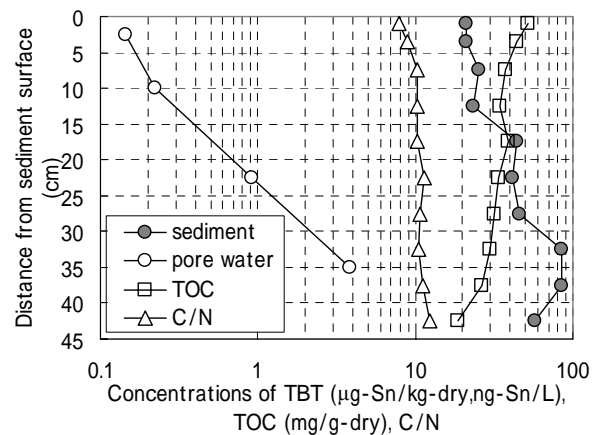


図 - 1 堆積物中の鉛直分布
(粒子含有および間隙水中TBT濃度, TOC, C/N)

2. 計算方法

(1) 対象地点

対象は名古屋港奥部(北緯 $35^{\circ}04'38''$, 東経 $136^{\circ}52'45''$)での調査結果を用いる¹⁾。同地点での堆積物粒子に含まれるTBT濃度および間隙水中のTBT濃度, さらに堆積物粒子含有の有機物量TOC (mg/g-dry)とC/N比の鉛直分布を図-1に, 粒子密度と間隙率の鉛直分布を図-2に, 堆積物表層の粒度分布を図-3に示す。

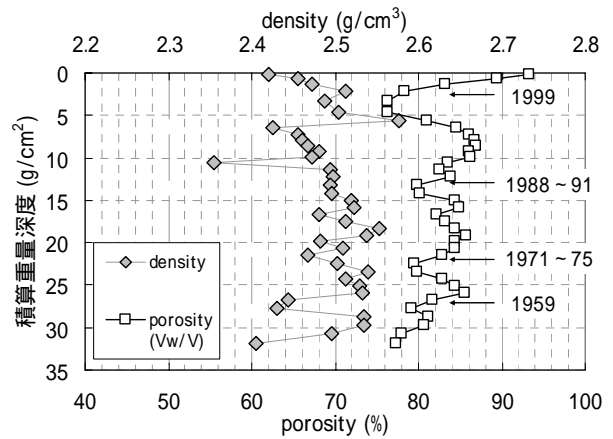


図 - 2 粒子密度と間隙率の鉛直分布

(2) モデル概要

堆積物からの溶出フラックスは、海水層および再懸濁層(いわゆる浮泥層)をそれぞれ単層で、堆積物層は多層で模擬化した鉛直1次元のコンパートメントモデルにて算定した。化学物質の光分解が促進される海水面表層にコンパートメントを作成した研究^{2, 3, 4)}もあるが、本研究では堆積物からの溶出フラックスに着目するため、海水面表層は考慮していな

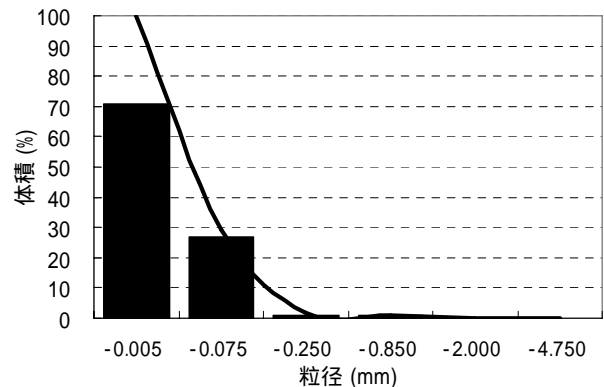


図 - 3 堆積物表層の粒度分布

い .

各コンパートメントでの化学物質の主な挙動を表-1に示す . さらに表-1の挙動に加え , 覆砂の効果を検討する .

表 - 1 化学物質の主な挙動

コンパートメント	粒子態化学物質	溶存態化学物質
海水層	・移流拡散 ^{*)}	・移流拡散 ^{*)}
	・海水への脱着	・懸濁粒子への吸着
	・懸濁粒子の沈降	・分解
	・分解	
再懸濁層	・海水への巻き上げ	・海水への溶出
	・間隙水への脱着	・堆積物粒子への吸着
	・堆積	・拡散
	・分解	・分解
堆積物層	・間隙水への脱着	・堆積物粒子への吸着
	・生物による混合	・生物の巣穴による水交換 ^{*)}
	・堆積	・拡散
	・分解	・分解

*) : 本研究では未考慮

本モデルでは , 鉛直1次元モデルのため , 海水層での移流拡散の効果は考慮していない . また間隙水中濃度が海水中濃度より大きな場合 , 底生生物の巣穴があることにより , 堆積物中からの溶出フラックスが増大する効果がある . Hamerらの研究⁵⁾では , 巣穴の影響は無視できない現象であるとしているが , 対象場所ごとに巣穴の影響を適切に設定することは困難のようである . 本研究では , 覆砂層の有無について比較することを目的とするため , 巣穴の影響は考慮しないものとした .

モデル概念図を図-4に示す .

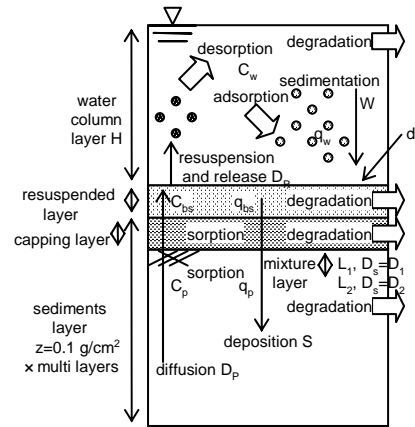


図 - 4 モデル概念図

(3) モデル式

海水層 , 再懸濁層 , 堆積物層の粒子含有濃度はそれぞれ式(1)(2)(3)で表す⁶⁾ . 計算は積算重量深度により行う .

$$H \frac{\partial q_w}{\partial t} = -Wq_w + \alpha q_{bs} - \lambda q_w \quad (1)$$

$$\delta \frac{\partial q_{bs}}{\partial t} = Wq_w - \alpha q_{bs} - Sq_{bs} - \lambda q_{bs} \quad (2)$$

$$\frac{\partial q_s}{\partial t} = D_s \frac{\partial^2 q_s}{\partial z^2} - S \frac{\partial q_s}{\partial z} - \lambda q_s \quad (3)$$

ここに , q_w ・ q_{bs} ・ q_s : 海水層・再懸濁層・堆積物層の粒子含有化学物質濃度 (ng-Sn/kg-dry) ,
 t : 時刻 (day) , H : 水深 (g/cm²) , δ : 再懸濁層厚 (g/cm²) , W : 沈降速度 (g/cm²/day) , α :
 巻き上げ速度 (g/cm²/day) , S : 堆積速度 (g/cm²/day) , D_s : 生物による堆積物粒子の混合
 係数 (g²/cm⁴/day) , λ : 物質の分解速度 (day⁻¹) , z : 堆積物表層からの積算重量深度 (g/cm²)

である。積算重量深度とは、1cm²あたりの粒子の堆積物表層からの積算重量である。

堆積物層内の間隙水中濃度の拡散は式(4)で表す。計算は粒子含有濃度の計算に用いた積算重量深度 (g/cm²) を通常の深度(cm)に換算して行う。

$$\frac{\partial C_p}{\partial t} = D_p \frac{\partial^2 C_p}{\partial z^2} - \lambda C_p \quad (4)$$

ここに、C_p：堆積物間隙水中の溶存態濃度 (ng-Sn/L)、D_p：間隙水中の化学物質の拡散係数 (cm²/min) である。

再懸濁層から海水層への溶存態TBTの溶出フラックスは式(5)で表す。

$$FLUX = \frac{D_R}{d} (C_p - C_w) \times 1000 \quad (5)$$

ここに、D_R：海水中の化学物質の拡散係数 (cm²/min)、d：境膜厚 (cm)、C_w：海水中の溶存態濃度 (ng-Sn/L) である。

TBTにおける堆積物粒子中の含有濃度q_s (ng-Sn/kg-dry) と間隙水中濃度C_p (ng-Sn/L) の分配係数 Kd = q_s / C_p は、C/N比7~12の堆積物において、TOC (g/g-dry) を用いて式(6)で表される¹⁾。

$$\log Kd = 2.0 \log TOC + 7.72 \quad (6)$$

(4) 計算格子間隔 zおよび t

堆積物内の鉛直方向の計算格子間隔 zは0.1 g/cm²とする。またTBTの吸脱着反応における平衡時間は短く、平均間隙水流速に影響されない⁷⁾。また吸着反応の98%は速く、脱着反応の80%は30分以内に起こり2時間で平衡に達する⁸⁾。したがって化学物質の吸脱着は24時間以内に平衡になるものとして粒子含有濃度の計算時間間隔および吸脱着平衡の計算時間間隔を t=1 dayとする。間隙水の拡散の計算時間間隔は t=1 minとする。

(5) パラメータ値

各層のパラメータを表-2に示し、以下に根拠を記す。

表-2 パラメータの設定値

	粒子密度	間隙率n	TOC	層厚		混合係数	沈降・巻上・堆積速度	拡散係数	分解速度	
	(g/cm ³)	(%)	(mg/g-dry)	(cm)	(g/cm ²)	(g ² /cm ⁴ /day)	(g/cm ² /day)	(cm ² /min)	(day ⁻¹)	
海水層	2.0	99.9999	500.0	11.3	H=2.26 × 10 ⁻³		W=9.22 × 10 ⁻⁶	D _R =3.38 × 10 ⁻⁴	0.0346	
再懸濁層	2.4	98.0	70.0	4.2	δ=0.2		=1.0 × 10 ⁻³		0.00492	
覆砂層	材質:砂	2.6	45.0	0.5	50.0	71.5	1)	S=1.92 × 10 ⁻³	D _p =D _R × n ²	1)
	材質:原泥	2.42	70.0	50.0	50.0	36.3				
堆積物層	強混合層 ¹⁾	図-2参照	図-1参照	5.0	L ₁ =1.2	D ₁ =2.73 × 10 ⁻³	S=1.92 × 10 ⁻³	D _p =D _R × n ²	0.00147	
	弱混合層 ¹⁾			10.0	L ₂ =5.2	D ₂ =2.73 × 10 ⁻⁵				
	混合なし			25.9	10.2	D=0.0				0.0

1): 覆砂層を設定する場合の強混合層および弱混合層は、覆砂層表層とし、原堆積物内の混合および分解はないものとする。

a) TOCおよび粒子密度 と間隙率n

海水層の懸濁粒子に含まれる有機物量 TOC は現地調査の結果(SS 2~3 mg-dry/L, TOC=1.2~1.7 mg/L)より TOC が全て粒子態と仮定して設定した。海水層および再懸濁層における TOC, 密度, 間隙率 n は任意に設定した。堆積物含有の有機物量 TOC は時間経過に伴い分解するため, 堆積速度を一定とした場合, 堆積物表層からの深度により規定される。ここでは計算時間内において図-1 の値で一定とした。また間隙率 n についても堆積に伴う圧密の影響をうけるため, 堆積物表層からの深度により図-1 の値で一定とした。覆砂層内の TOC および粒子密度および間隙率は深度によらず任意の値で一定とした。

b) 境膜厚d

再懸濁層と海水層の境膜厚は一般的な値としてここでは $d=0.02$ cm (0.2 mm) とした。

c) 再懸濁層厚

再懸濁層厚 δ について, 名古屋港調査でのコア採取では確認できなかった。したがって, 穴道湖での検討結果⁶⁾より比較的小さな厚さとした。

d) 生物による混合層厚 L_1, L_2

堆積物中における生物混合の影響を強く受ける層厚 L_1 および弱く受ける層厚 L_2 は, 図-1 のTBTの濃度分布より, 粒子濃度が一樣となっている範囲とした。覆砂層を設ける場合は, 覆砂層表層から同深度を混合層とした。

e) 混合係数 $D_s (=D_1, D_2)$

生物による強混合係数 D_1 および弱混合係数 D_2 は穴道湖での検討結果⁶⁾より平均的な値とした。

f) 沈降速度W

図-3よりほとんどの粒径は5 μ m以下である。粒子密度を2.0 g/cm³および海水密度を1.02 g/cm³とし, 20 での粒径1 μ mの沈降速度としてStokesの式より算出した。

g) 巻き上げ速度

橋本ら⁹⁾は東京湾におけるPCBの検討で, 巻き上げ速度 は0.05 cm/day (粒子密度2.4 g/cm³, 間隙率0.98とすると 2.4×10^{-3} g/cm²/day)としている。

渡辺ら²⁾は $=0.48 \times 10^{-3}$ g/cm²/dayとしている。

名古屋港でのセディメントトラップ(設置高堆積物上+3.0 mおよび+0.5 m)を用いた現地調査の結果¹⁰⁾, は7.48 g/m²/day (0.75×10^{-3} g/cm²/day)であった。

したがって, はこれらの中間値とした。

h) 堆積速度S

堆積速度Sは鉛-210exおよびセシウム-137による年代測定の結果に基づくことが望ましい。しかし名古屋港奥部では, 伊勢湾台風(1959年)などに伴う河川出水の影響を過去に数度受けている。この際に河川由来の砂質土が港湾堆積物層中に混入するため, 年代測定の算出が不明確な結果であった。1959年以降に人為的な掘削が行われなかったものとし, 堆積物の粒子密度が比較的大きな層が出水時に堆積した層に相当するものとし, 出水年月との関係を図-2中に併せて示す。ここでは出水年と堆積層厚の関係より堆積速度を算出した。

i) 化学物質の拡散係数 D_R および D_p

有機化学物質の拡散係数 D_R は、分子量 M を用いて式(7)で表される⁵⁾。

$$\log D_R(25) = 1.72 - 0.39 \log M \quad (7)$$

海水中でのTBTの主な形態であるTBT-OH ($M=307 \text{ g/mol}$)¹¹⁾より算出した。堆積物中の拡散係数 D_p は D_R に対して間隙率 n の二乗で減衰するものとした。

j) 分解速度

渡辺らの研究¹²⁾よりTBTの分解速度 λ を設定した。ただし、堆積物では強混合層および弱混合層のみが分解を受けるものとし、以深は分解の影響を受けないものとした。

細川ら¹³⁾は1999年に同地点で堆積物表層のTBT濃度を測定し、 $700 \text{ }\mu\text{g-Sn/kg-dry}$ との結果を得ている。上記堆積速度より1999年から2005年の6年間に堆積した粒子は堆積物表層より 4.2 g/cm^2 であり、この地点でのTBT濃度は $24 \text{ }\mu\text{g-Sn/kg-dry}$ である。堆積物層の分解係数は $=0.00147 \text{ day}^{-1}$ (0.415 year^{-1})より、 $700 \times (1-0.415)^6=27.9$ 、となり、妥当な分解速度と言える。

(6) TBT濃度の初期値

堆積物中の粒子含有のTBT濃度 q_s は図-1に示す値とした。間隙水中濃度 C_p は式(6)にて算出した。海水中の溶存態TBT濃度 C_w の初期値は調査結果¹⁾より $C_w=0.044 \text{ ng-Sn/L}$ とした。粒子含有濃度 q_w は式(6)にて算出し $577.3 \text{ ng-Sn/g-dry}$ とした。再懸濁層の溶存態濃度は、堆積物表層の間隙水中濃度と海水層の溶存態濃度の平均値とし 0.092 ng-Sn/L とした。粒子含有濃度 q_{bs} は式(6)にて算出し 23.7 ng-Sn/g-dry とした。覆砂層の粒子含有濃度および間隙水中濃度の初期値はゼロとした。また、覆砂層設置時の海水層および再懸濁層の濃度はゼロとした。

(7) 計算条件

計算条件は以下の3ケースとし将来予測を行なう。

- Case 1 覆砂なし (評価期間10年)
- Case 2 覆砂あり (未汚染の砂, 50 cm 厚, 評価期間 20 年)
- Case 3 覆砂あり (未汚染の原泥, 50 cm 厚, 評価期間 10 年)

(8) 計算手順

計算手順を図-5に示す。

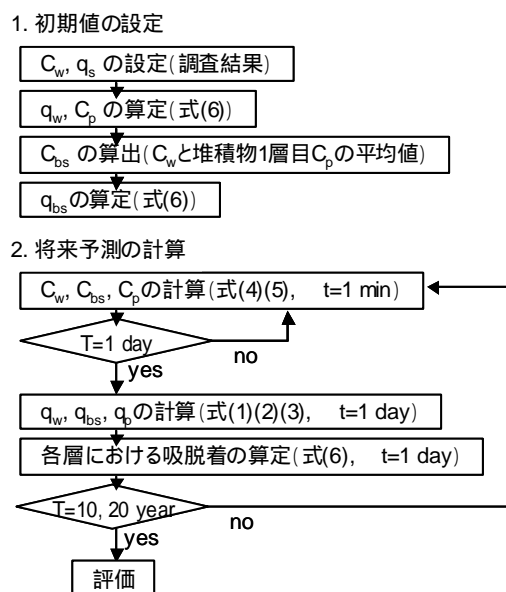


図 - 5 計算手順

3. 計算結果

(1) 対策なしの場合

覆砂による対策を施さない場合の TBT 濃度の 10 年後までの将来予測結果を図-6 に示す。

堆積物中の粒子含有濃度は、時間経過に伴う堆積の影響で深層へと輸送されている。堆積物表層では、分解の影響により時間経過とともに濃度低下している。堆積物表層で鉛直方向に濃度がほぼ一様になっている理由は粒子の混合の影響である。再懸濁層の粒子含有濃度が、堆積物中の粒子含有濃度と比較して小さい理由は間隙水中濃度が小さいためであり、海水層の懸濁粒子含有濃度が大きい理由は懸濁粒子に含まれる有機物量 TOC が大きいためである。

堆積物内の間隙水中濃度は、堆積物中の TOC で規定される K_d に従い、粒子と吸脱着を繰り返し行っている。そのため間隙水中濃度は、TOC が大きく粒子含有濃度が低い堆積物表層では比較的低くなり、逆に TOC が小さく粒子含有濃度が大きな深層では高くなっている。間隙水中濃度は、堆積物から再懸濁層さらに海水層にかけて低濃度となっており、堆積物から海水層に向けての溶出フラックスが存在していることを示している。しかし、その濃度レベルは 1 年後に 3 オーダー、2 年後に 6 オーダー低くなり、海水としては生態系に対して影響のない濃度レベルとなる。

10 年間に於いて溶存態の溶出に関わる堆積層は、粒子含有濃度および間隙水中濃度が減少している範囲より推定すると、汚染堆積物表層約 2 g/cm^2 (6.5 cm) 程度および 10 年間で新たに堆積した層であり、逆に汚染堆積物表層約 2 g/cm^2 (6.5 cm) 以深の堆積物は分解もせず、溶出にもあまり寄与しないと言える。

(2) 覆砂あり（材質：未汚染の砂、50 cm厚）

初期状態に覆砂層（材質：未汚染の砂）を 50 cm 厚で設けた場合の TBT 濃度の 20 年後までの将来予測結果を図-7 に示す。

汚染堆積物からの間隙水の拡散により、覆砂層内の粒子含有濃度および間隙水中濃度は時間経過とともに覆砂層の下層から上層へと移行する。間隙水中の TBT 濃度は約 20 年後でも覆砂層表層には到達しないが、覆砂層内の濃度は上昇する傾向にある。しかし、たとえ覆砂層表層に到達したとしても、この間に新たに覆砂層表層に堆積した粒子に吸着することにより、堆積物から解す地への溶出は生態系に対して影響のない濃度レベルとなる。

覆砂材の TOC は 0.5 mg/g-dry と設定しているため、式(6)より覆砂中の K_d は比較的小さく、間隙水中濃度が大きい。式(6)の適用範囲は、有機物分解が進行していない C/N 比が 7~12 程度の粒子を対象としたものであるが、有機物量が微小な場合、粒子への吸着はイオン結合による影響が強くなるため、有機物の影響は弱くなる。そのため式(6)をそのまま用いても大きな差はない。

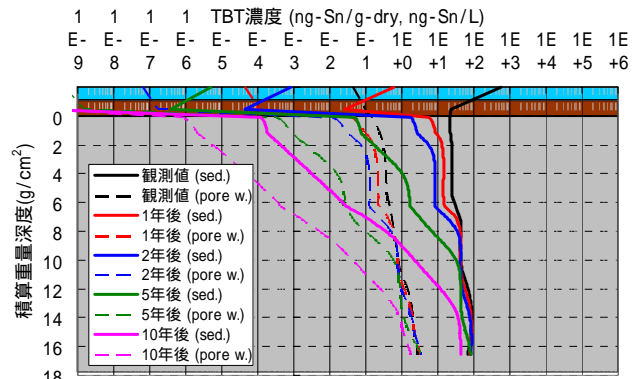


図-6 対策なしでの将来予測結果

覆砂層と有機物が豊富な汚染堆積物との境界では，当初は拡散により間隙水中濃度が覆砂層下層の粒子に吸着するため，覆砂層下層の粒子含有濃度が上昇し，さらに粒子含有濃度から間隙水中濃度へ脱着することにより，間隙水中濃度は汚染堆積物中より覆砂層内の方が大きくなる．これに伴い，覆砂層から汚染堆積物表層へ間隙水中濃度の再移行が発生するため，汚染堆積物表層の粒子含有濃度は当初の濃度レベルより上昇している．

(3) 覆砂あり（材質：未汚染の原泥，50 cm厚）

初期状態に覆砂層（材質：未汚染の原泥）を50 cm厚で設けた場合のTBT濃度の10年後までの将来予測結果を図-8に示す．

間隙水中濃度の拡散に伴い1年後には汚染堆積物から覆砂層の下層約2 g/cm²までTBTが移行しているが，その後は間隙水中濃度の拡散より，堆積による粒子が下層に移動する効

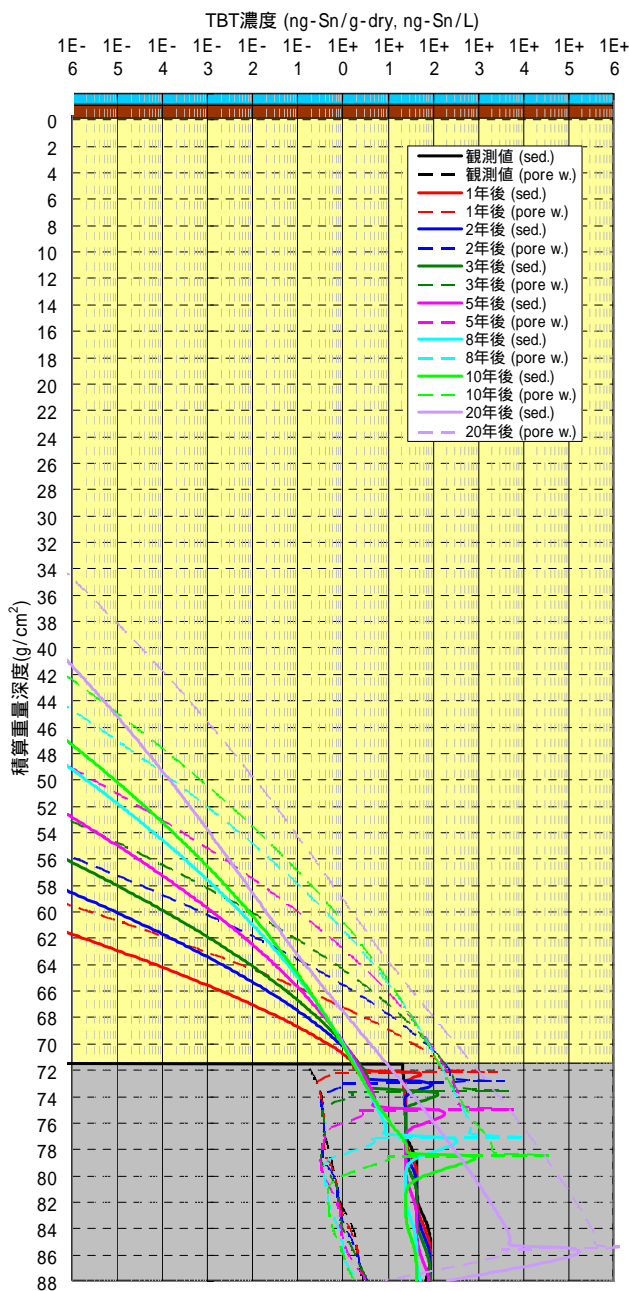


図-7 覆砂層（材質：砂，50cm）を設けた場合の将来予測結果

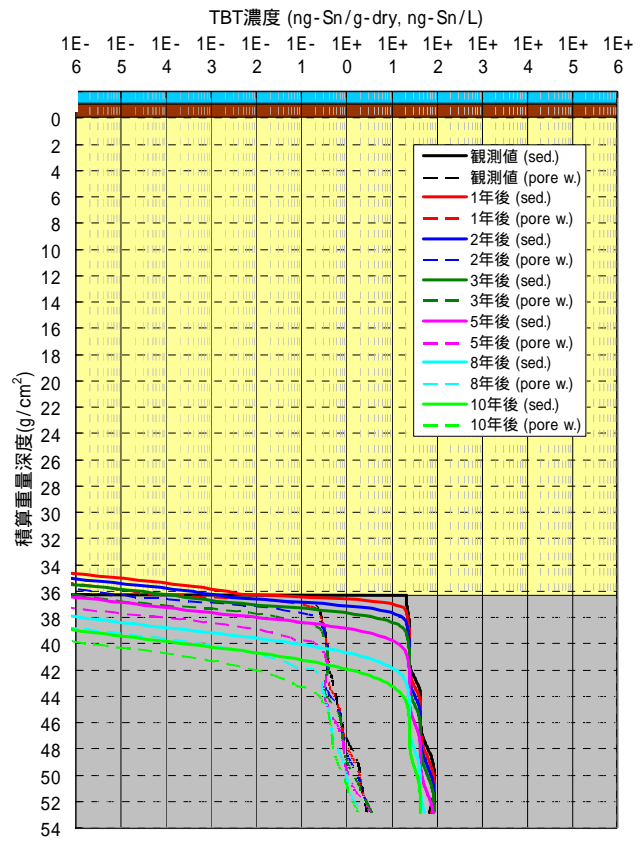


図-8 覆砂層（材質：原泥砂，50cm）を設けた場合の将来予測結果

果の方が強く、覆砂内のより上層には移行しない。これは粒子含有のTOCが50.0 mg/g-dryと大きいこと、Kdも大きく、汚染堆積物から拡散してきた間隙水中濃度が覆砂層内の粒子へ吸着し捕集されたためである。その結果、10年以上の長期間にわたって、海水層への溶出はないと推算された。

4. 考察

(1) 溶出フラックスの経時変化

覆砂なしの場合 (Case1) における再懸濁層から海水層への溶出フラックスの経時変化を図-9に示す。溶出フラックスは、将来的に減少する傾向にある。この要因としては堆積物表層での分解による影響が強いと考えられる。しかし一方では、計算初年以前はより多くのTBTの溶出があった可能性が推測できる。

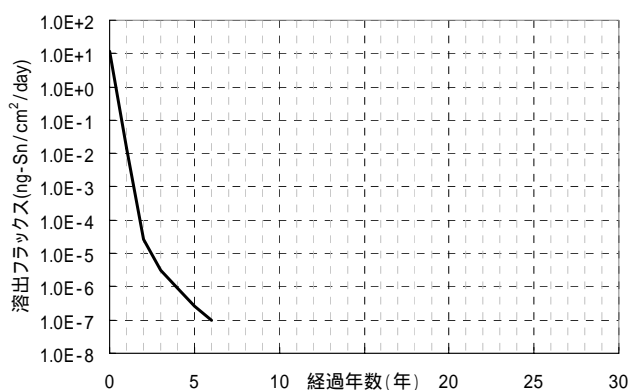


図-9 溶出フラックスの経時変化

(2) 覆砂による溶出抑制効果

覆砂層を設置することにより約20年にわたり、堆積物からの溶出を抑制する効果が確認できた。この溶出抑制効果は有機物含有量の大きな未汚染の原泥を用いることにより、一層大きくなると考えられる。

5. 結論

疎水性が強く堆積物粒子に含まれる有機物に支配的に吸着する有害化学物質について、堆積物からの溶出モデルを作成した。このモデルおよび名古屋港奥部におけるTBTの調査結果を用いて、同地点での堆積物内の濃度分布および溶出フラックスの将来予測の推算を行った。また覆砂を設置する効果について検証した。

検討計算の結果、覆砂なしの場合 (現況) では、堆積物表層の分解の効果により数年後には海水中のTBT濃度は生態系に影響のないと思われる濃度レベルまで低下することが推測できた。覆砂材に砂を用いた場合、間隙水中のTBT濃度が覆砂内を拡散により覆砂表層に達するまで20年以上かかることが推測でき、さらに長期間にわたる対策として効果があると考えられる。覆砂材に未汚染の現地堆積物を用いた場合は、さらに間隙水の拡散抑制効果が向上するため、海水中への溶出をほぼゼロにすることが可能と考えられる。

本モデルの課題としては以下の事項が挙げられる。

- ・生物の巣穴の影響を考慮する必要がある。生物の巣穴があることにより堆積物内と海水層の海水交換が行われるため、堆積物から海水中への溶出フラックスは大きくなると考えられる。

・有機物分解が進んだ粒子への分配係数 K_d の定式化が必要である。式(6)は有機物分解が比較的進んでいないと考えられる粒子に対する経験式である。これは分解が進んでいない有機物は化学物質を多く吸着できるフミン酸が主構成であると考えられ、分解によりフミン酸の割合が減少すると吸着サイトの減少に伴い吸着量および分配係数 K_d が減少すると考えられる。これらの定式化についてはMeadorの式¹⁸⁾が提唱されている。しかし、著者らの現地調査の結果¹⁾では、有機物分解が比較的進んでいない粒子における分配係数 K_d は、Meadorの式による K_d と比較して1~2オーダー大きく、分解が進行した粒子においても1オーダー大きい。ただし分解が進行した粒子におけるTOCの K_d に対する影響は一乗とMeadorの式と同程度であった。したがって、分解が進行した粒子に対する K_d の定式化としてはMeadorの式を10倍するなどの工夫が必要である。

・本モデルの吸脱着を考慮する時間スケールは1日としている。これは堆積物中では1日で十分平衡に達していると考えられるためである。しかし、仮に平衡に達する時間が1日より短い場合、例えば、堆積物表層からの溶出に伴う間隙水中濃度の減少分を堆積物粒子からの脱着により補う場合では、一定期間中の溶出フラックスは増大し、また粒子含有濃度は速く減少する。逆に覆砂材のような未汚染粒子へ間隙水中濃度が吸着する場合は、覆砂層内での拡散が広がらずに堆積物表層への到達が遅れる。このような影響が考えられる。より精度の良い予測検討を行う場合は、吸脱着速度に関するより詳細な知見が必要である。

・分解速度について、本モデルでは渡辺らの実験結果を用いている。しかしTBTの分解は光分解と微生物分解が主であるため、光条件や微生物の存在量など対象とする場所ごとにより異なる分解速度となる。環境中のTBTのフラックスの検討¹⁾では、分解がTBT濃度の減少に支配的な影響を与えることから、分解速度に関する知見をさらに深め、モデルの精度を向上させる余地がある。

・分解する層について、本モデルでは海水層・再懸濁層・堆積物表層としている。堆積物深層での分解については、分解しないものとしているが、この真偽については定かではない。つまり堆積物深層にTBTを分解する微生物がいないと言い切れないと考えている。これに関してはさらに数年間にわたる同地点での現地調査を行い、堆積物深層での濃度変化について検証する必要がある。

・堆積物から巻き上げられた粒子の海水中での脱着や、海水中の植物プランクトンなどの未汚染粒子への吸着について、本モデルでは一定値として与えている。しかし実際は海底面の流速や日照条件などの要素が、植物プランクトン等を含めた懸濁粒子の存在量に影響を与えるため、これらの挙動についてより詳細なモデルを組み込む余地がある。

参考文献

1) 5章 および

山崎智弘, 中村由行, 益永茂樹: 港湾域における有機スズ化合物の存在特性と水中回帰に関する現地調査, 土木学会論文集G, Vol.62, No.3, pp.287-296, 2006.

2) 渡辺信久, 酒井伸一, 高月紘: 有機スズ化合物の環境動態と運命予測, 環境科学会誌, 2(4), pp.275-286, 1989.

3) 高月紘, 酒井伸一, 渡辺信久: 環境汚染物質と動態モデル, 化学工学, 7月号, pp. 23-26, 1989.

4) 平松和昭, 四ヶ所四男美, 森健, 井上英: 有明海における有機スズ化合物の環境動態の数値実験,

九大農学芸誌，第55巻，第1号，pp. 27-43，2000.

- 5) Hamer, K., Karius, V. : Tributyltin release from harbour sediments - modeling the influence of sedimentation, bio-irrigation and diffusion using data from Bremerhaven, *Marine Pollution Bulletin*, 50, pp. 980-992, 2005.
- 6) 3章 および
山崎智弘，中村由行：表層混合層と再懸濁層を考慮した化学物質の堆積物中鉛直分布モデル，海岸工学論文集，51，pp. 976-980，2004.
- 7) Bueno, M., Astruc, A., Astruc, M. and Behra, P. : Dynamic Sorptive behavior of tributyltin in quartz sand at low concentration levels : Effect of pH, flow rate, and monovalent cations, *Environ. Sci. Technol.*, 32, pp.3919-3925, 1998.
- 8) Ma, H., Dai, S. and Huang, H. : Distribution of tributyltin chloride in laboratory simulated estuarine microcosms, *Wat.Res.*, 34(10), pp.2829-2841, 2000.
- 9) 橋本俊也，柳哲雄，武岡英隆，高田秀重：東京湾のP C B分布・堆積モデル，沿岸海洋研究，36(1)，pp.77-82，1998 .
- 10) 付録7 および
山崎智弘，中村由行，加賀山亨，益永茂樹：堆積物中に含まれる有機スズ類の水中回帰に関する現地調査，海岸工学論文集，52，pp. 971-975，2005.
- 11) Laughlin, Jr. R. B., Guard, H. E. and Coleman, W. M. : Tributyltin in seawater: speciation and octanol-water partition coefficient, *Environ. Sci. Technol.*, 20, pp. 201-204, 1986.
- 12) 渡辺信久，酒井伸一，高月紘：水 - 底質系におけるブチルスズの動態と環境運命，水環境学会誌，15(10)，pp. 672-682，1992.
- 13) 細川恭史，安井誠人，吉川和身，田中裕作，鈴木幹夫：港湾における底質中の内分泌攪乱化学物質の全国調査，海岸工学論文集，48，pp. 1111-1115，2001.