

本資料は 年 月 日付けで登録区分、
変更する。 01.10.-4 [技術情報室]

分置

天然放射性核種を用いた環境中長寿命 人工放射性核種の長期動態研究(Ⅲ)

(動力炉・核燃料開発事業団 委託研究成果報告書)

1994年3月

金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設

本資料の全部または一部を複写・複製・転載する場合は、下記にお問い合わせください。

〒319-1184 茨城県那珂郡東海村大字村松4番地49
核燃料サイクル開発機構
技術展開部 技術協力課

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:
Technical Cooperation Section,
Technology Management Division,
Japan Nuclear Cycle Development Institute
4-49 Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki, 319-1184
Japan

© 核燃料サイクル開発機構 (Japan Nuclear Cycle Development Institute)

この資料は、動燃事業団社内における検討を目的とする社内資料です。ついては、複製、転載、引用等を行わないよう、また第三者への開示又は内容漏洩がないよう管理して下さい。また今回の開示目的以外のことには使用しないよう注意して下さい。

本資料についての問い合わせは下記に願います。

〒107 東京都港区赤坂1-9-13
動力炉・核燃料開発事業団
技術協力部 技術協力室



天然放射性核種を用いた環境中長寿命 人工放射性核種の長期動態研究 (III)

山本 政儀, 小村 和久, 上野 馨*

要 旨

核燃料サイクル施設から一般環境に漏洩する可能性のある長寿命人工放射性核種の長期動態を評価・予測するための基礎研究として、すでに環境中で定常状態となっていると考えられる天然放射性核種の海洋における挙動研究を実施する（平成 3 年から平成 5 年度までの 3 年間）。このため海水中に存在するウラン、トリウム、ラジウムあるいはポロニウムを構成する諸核種について、沿岸海洋の濃度レベル、海洋生物への濃縮、海底堆積物への移行・蓄積などについて調査・検討を行う。平成 3 年度は、以下の項目についてレビューを行った。

- (1) 海洋試料中に含まれる放射性核種の定量法
- (2) 海洋における ^{238}U (^{234}U), ^{232}Th (^{228}Th), ^{226}Ra (^{228}Ra), ^{222}Rn , ^{210}Pb , ^{210}Po ,
の分布と挙動
- (3) LLRL のこれまでの研究成果

本報告書は、金沢大学が動力炉・核燃料開発事業団の委託により実施した研究の成果である。

契約番号：050D0149

事業団担当部課室および担当者：東海事業所安全管理部環境安全課 清水武彦

※：金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設

平成 4 年度は以下の項目について測定を実施した。

- (1) 東海および大洗の沿岸で採取した海産生物 [シラス, カレイ (ヒラメ), 平貝 (コタマ貝), アラメ (カジメ, ヒジキ)] について, 非破壊 γ 線スペクトロメトリーおよび化学分離・ α 線スペクトロメトリーにより ^{40}K , U 同位体, Th 同位体, ^{226}Ra (^{228}Ra), ^{210}Pb , ^{210}Po および ^{137}Cs を定量した。
- (2) 得た測定結果を基礎にして, これら核種の生物への濃縮程度および生物間の種差の違いによるレベル差などを考慮した。

今年度は, 以下の項目について測定を実施し, 3 年間のまとめを行った。

- (1) 海産生物 (昨年度からの継続分) について ^{40}K , U 同位体, Th 同位体, ^{226}Ra (^{228}Ra), ^{210}Pb , ^{210}Po および ^{137}Cs を定量した。
- (2) 海底土および海水について上記核種を定量した。
- (3) 今年度分の結果をまとめると共に 3 年間実施してきた本調査研究の全体のまとめを行った。

さらに, 本調査に関連した LLRL の研究成果の抄録を作った。

目 次

1. まえがき
2. 調査方法
3. 試料
4. 測定対象放射性核種
5. 分析・測定法
 - 5.1. 非破壊 γ 線スペクトロメトリー
 - 5.2. 化学分離・ α 線スペクトロメトリー
 - 5.2.1. 生物試料中の U および Th 同位体と ^{226}Ra 測定
 - 5.2.2. 生物試料中の ^{210}Pb と ^{210}Po 測定
 - 5.2.3. 海水中の U 同位体, ^{226}Ra , ^{210}Pb および ^{210}Po 測定
 - 5.2.4. 海水中の Th 同位体の測定
6. 結果と考察
 - 6.1. 表層海底堆積物
 - 6.2. 沿岸表層海水
 - 6.3. 沿岸海洋生物
 - 6.3.1. ウラン
 - 6.3.2. トリウム
 - 6.3.3. ラジウム
 - 6.3.4. 鉛-210 とポロニウム-210
 - 6.3.5. カリウム-40
 - 6.3.6. セシウム-137
 - 6.4. 放射性核種の生物濃縮の比較
 - 6.5. 海洋生物中の放射性核種間の放射能比
 - 6.6. 海産物摂取を通しての被ばく線量
 - 6.7. 天然アナログ研究
7. あとがき
8. 付録

1. まえがき

現在、国内の原子力利用施設のほとんどが沿岸地域に立地している。沿岸帯は陸域と海域との境界であり両域の接合部に当る。したがって、これら原子力利用施設からの人工放射性核種の一般環境への放出は、大気中からのフォールアウトを別にすれば、すべて沿岸帯をとおして行われる。沿岸帯では、放出された物質の分散という物理的問題はもとより、化学的には溶存物質の不溶化、沈殿、再溶出の問題、生物学的には物質代謝の問題が集中的に展開される海域であり、さらに物質の収支と循環が最も活発に演じられる場所でもある。また一方、そこは人々が最も親しみやすい海域であり広くレクリエーションの場所としても利用され、海洋生物の生育場所である。人々はこの沿岸帯から多くの海産物を食用として恵を受けている。

沿岸帯で発生するこれらの諸過程を系統的・総合的により明確にし、質、量の両面に関する実態の把握を行うことは、単に原子力施設周辺の沿岸モニタリングにとどまらず、純粹な学問的な観点からも重要である。

本調査研究は、東海村沿岸海域をフィールドとして選び、その海域の海水、堆積物、海産物中の天然放射性核種 (U, Th, Ra 同位体, ^{210}Pb , ^{210}Po , ^{40}K) を測定し、この沿岸海域で展開されているいくつかの過程を明らかにしようとする。このような研究は、原子力利用施設から一般環境、特に沿岸海洋に放出される可能性がある長寿命人工放射性核種の長期動態を評価・予想するためのアナログ研究としてのみならず、海産物を多く摂取する日本人が、海産物を通して天然放射性核種からどの程度の内部被ばく線量を受けているかの実態を把握する上でも極めて重要かつ必要である。

2. 調査方法

1991年（平成 3 年）の初年度は、河口および沿岸と大洋における天然放射性核種（U, Th, Ra 同位体, ^{210}Pb および ^{210}Po ）の濃度レベル, 分布, 存在状態, 海洋生物への濃縮, 堆積物への移行, 蓄積などに関してすでに報告されている文献を調査評価した。

1992年度（平成 4 年度）と1993年度（平成 5 年度）は、東海村沿岸をフィールドとして、海水, 堆積物および海産生物中の上記核種の分析・測定を実施した。1992年度は四半期毎に採取した海産生物の分析を主として行い, 1993年度は海水, 堆積物および1992年度に分析できなかった海産生物の分析を行った。1992年度の報告書に大部分の海産生物の結果について概要を述べてきたが, この報告書には, それらの結果も取り入れて全体のまとめを記した。

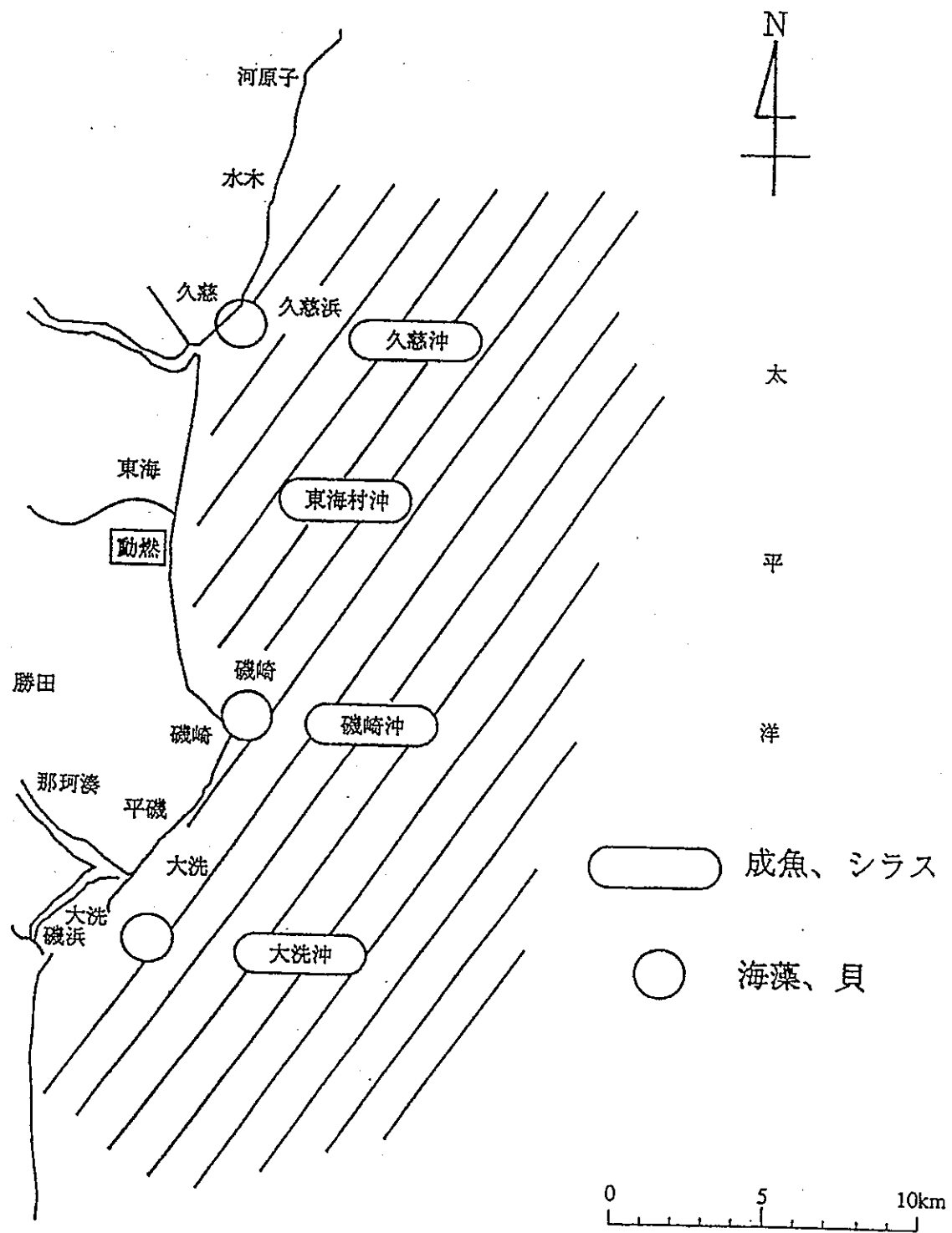


図1 海産生物試料の採取地点

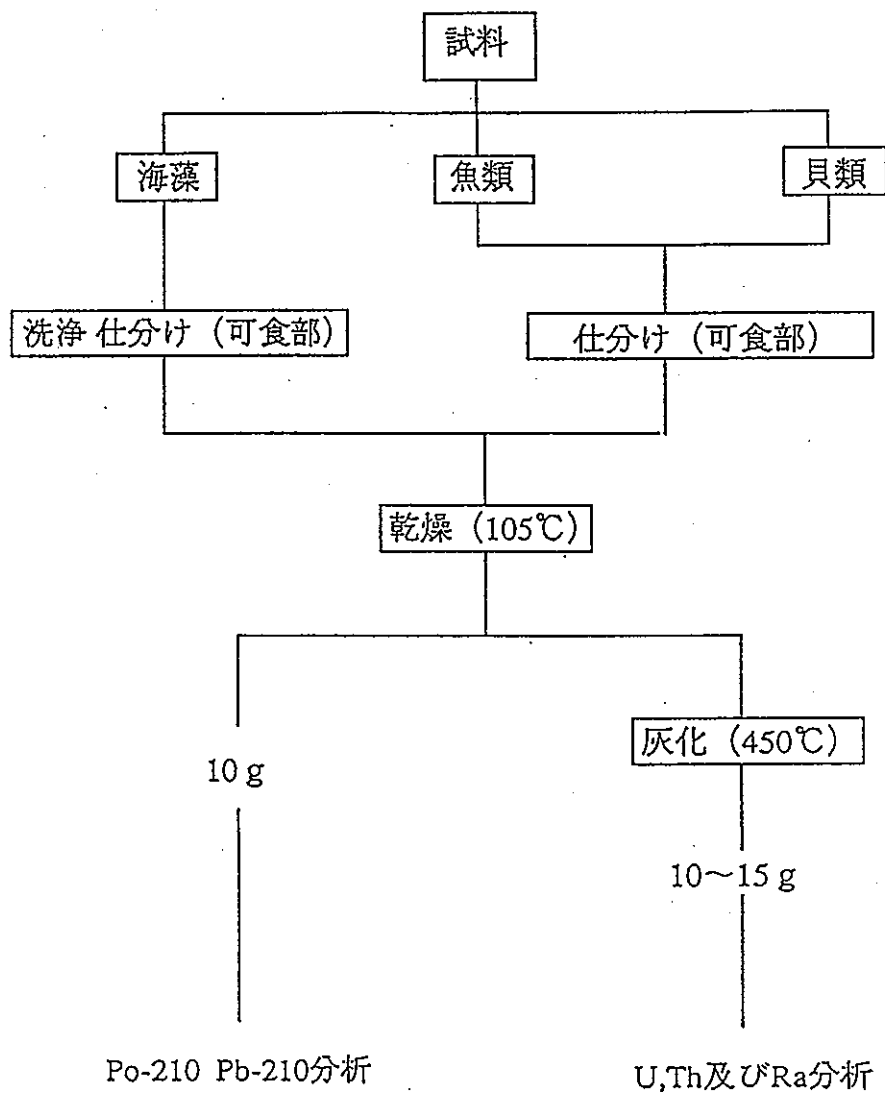


図2 海産生物試料の前処理法

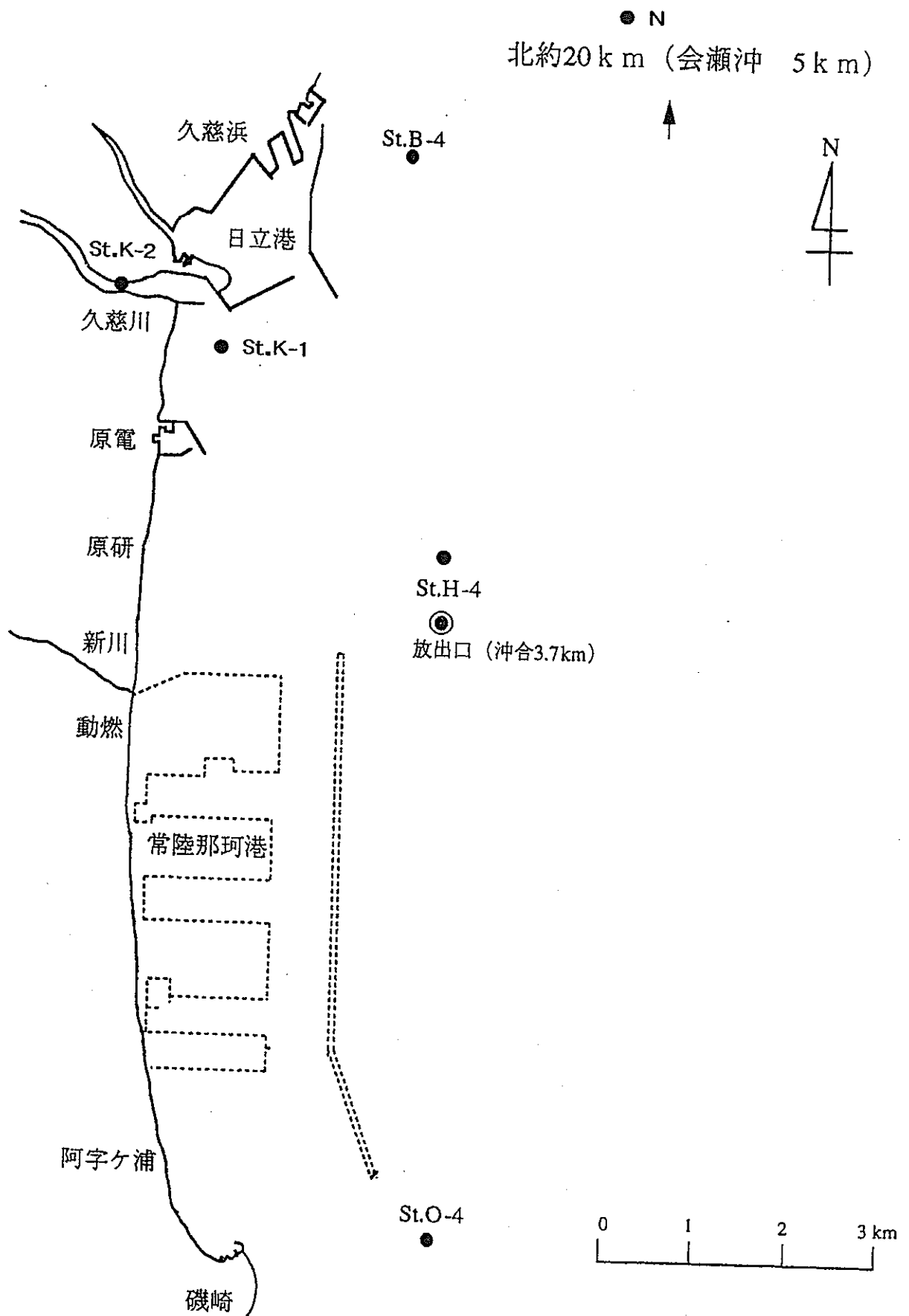


図 3.1 海底土及び海水の採取地点

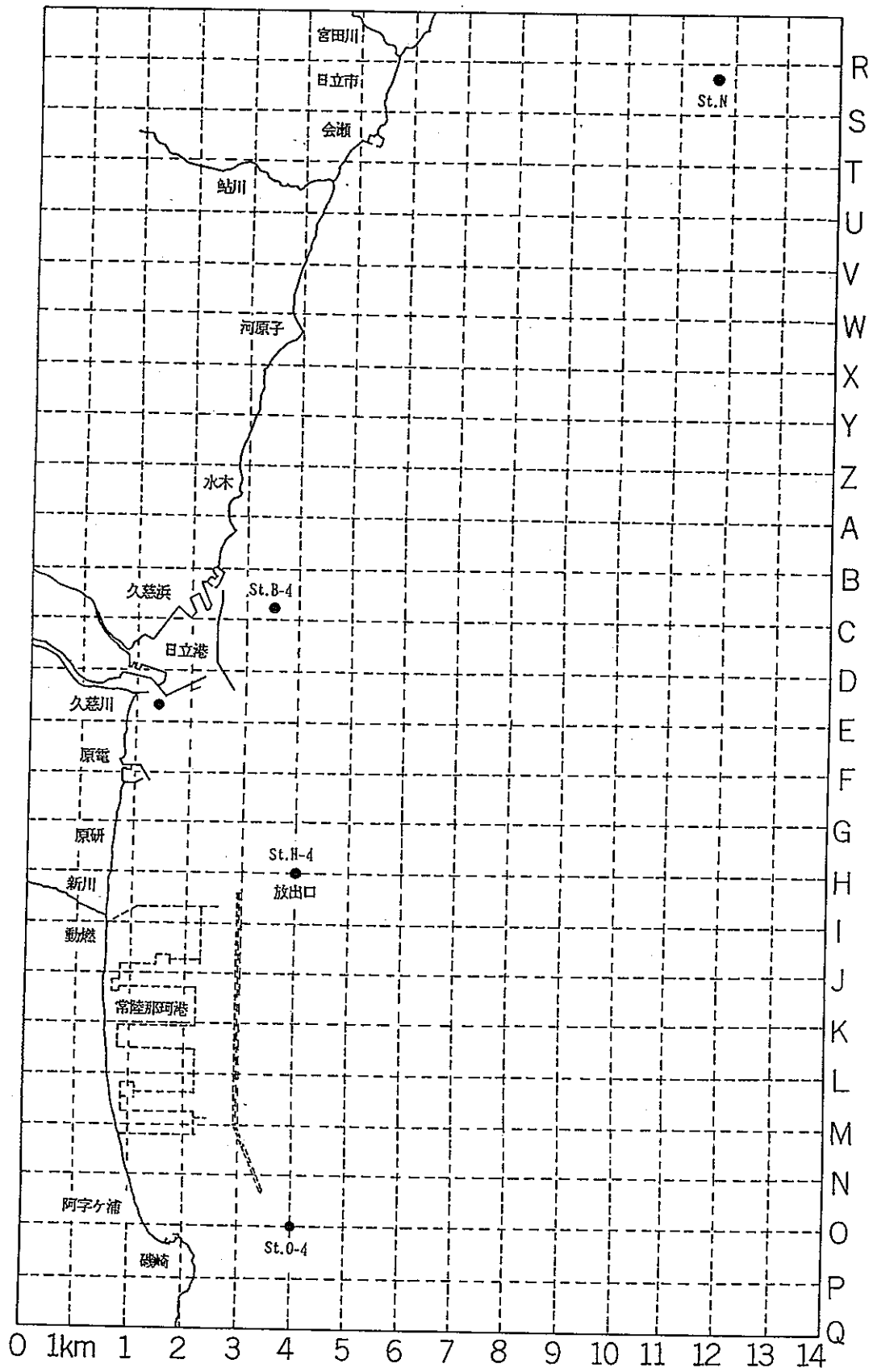


図 3.2 海底土及び海水の採取地点

金沢大学委託研究用送付試料一覧

動燃事業団

環境安全課

表 1.1 海産生物試料 (海藻: アラメ)

海 藻 (アラメ)

採取時期	採取場所	採取年月日	乾燥試料重量 (g)	乾分率 (%)	生重量 (g)	灰試料重量 (g)	灰分率 (%)	生重量 (g)
7月～9月	久慈浜	92. 7. 3	182.	17.5	1040	22.0	3.04	724
	磯崎	92. 7. 4	120.	15.2	789	27.1	2.85	951
	大洗	92. 8.27	136.	23.6	576	25.5	2.86	892
10月～12月	久慈浜	92.10. 6	153.	20.6	742	29.0	3.33	985
	磯崎	92.10.11	172.	20.3	847	32.8	3.45	950
	大洗*	92.12.14	100.	10.2	980	48.6	4.30	1130
1月～3月	久慈浜	93. 1. 7	60.1	10.9	551	35.6	2.03	1754
	磯崎	93. 1.20	44.7	10.8	414	52.6	2.67	1970
	大洗	93. 3.11	126.	14.3	881	39.3	2.97	1323
4月～6月	久慈浜	93. 4. 8	92.3	12.3	750	39.7	3.04	1306
	磯崎	93. 4.16	104.	15.9	654	38.2	3.48	1098
	大洗	93. 5.25	106.	16.0	663	37.0	2.94	1259

* ヒジキ

表 1.2 海産生物試料（貝類：平貝）

平 貝（コタマ貝）

採取時期	採取場所	採取年月日	乾燥試料重量 (g)	乾分率 (%)	生重量 (g)	灰試料重量 (g)	灰分率 (%)	生重量 (g)
7月～9月	久慈浜	92. 7. 7	34.8	13.5	258	31.4	2.35	1336
	磯崎	92. 7.16	24.9	9.49	262	31.7	1.67	1898
	大洗	92. 7. 6	35.7	14.5	246	32.2	2.06	1563
10月～12月	久慈浜*	92.11.16	78.2	23.7	330	38.1	2.29	1664
	磯崎	92.12. 1	77.4	26.7	290	38.2	2.01	1900
	大洗	92.11.19	64.4	25.8	250	37.7	2.37	1590
1月～3月	久慈浜	—	—	—	—	—	—	—
	磯崎	93. 2. 2	104.	27.9	373	50.5	2.02	2500
	大洗	93. 1.13	116.	27.0	430	63.6	1.94	3278
4月～6月	久慈浜	93. 5.12	111.	29.2	380	36.7	2.28	1610
	磯崎	93. 5.14	84.4	30.3	279	50.9	2.94	1731
	大洗*	93. 5.13	128.	26.8	478	50.1	2.19	2288

* ハマグリ

表 1.3 海産生物試料 (小型魚: シラス)

魚類 (シラス)

採取時期	採取場所	採取年月日	乾燥試料重量 (g)	乾分率 (%)	生重量 (g)	灰試料重量 (g)	灰分率 (%)	生重量 (g)
シラス 7月～9月	東海 磯崎 大洗	92. 7. 20	164.	15. 6	1050	26. 9	1. 80	1494
		92. 7. 20	112.	16. 7	671	29. 1	2. 01	1448
		未採取	—	—	—	—	—	—
シラス 10月～12月	東海 磯崎 大洗	92. 10. 16	74. 7	14. 4	519	26. 0	1. 89	1376
		92. 10. 7	170	16. 5	1030	34. 8	2. 04	1706
		92. 10. 1	130. 8	17. 3	751	32. 0	2. 12	1509
シラス 1月～3月	東海 磯崎 大洗	93. 3. 12	172.	18. 9	910	39. 1	2. 51	1558
		93. 3. 1	120.	17. 5	686	47. 4	2. 29	2070
シラス 4月～6月	東海 磯崎 大洗	93. 6. 1	189.	17. 2	1099	42. 3	2. 10	2014
		93. 5. 28	151.	16. 4	921	36. 2	2. 02	1792
		93. 5. 19	169.	16. 7	1012	33. 9	1. 99	1704

表 1.4 海産生物試料 (沿岸魚：カレイ, シラス)

魚類 (カレイ又はヒラメ)

採取時期	採取場所	採取年月日	乾燥試料重量 (g)	乾分率 (%)	生重量 (g)	灰試料重量 (g)	灰分率 (%)	生重量 (g)
カレイ 7月～9月	東海 磯崎 大洗	未採取	—	—	—	—	—	—
		92. 8. 27	110.	21. 8	505	23. 1	1. 74	1328
カレイ 10月～12月	東海 磯崎* 大洗**	92. 11. 4	115	25. 0	460	38. 6	1. 73	2231
		92. 10. 13	116	22. 8	509	32. 3	1. 68	1922
		92. 12. 11	102	14. 6	699	46. 1	1. 92	2401
カレイ 1月～3月	東海 磯崎 大洗	93. 1. 22	112	21. 3	526	36. 6	1. 72	2128
		—	—	—	—	—	—	—
カレイ 4月～6月	東海 磯崎 大洗	93. 4. 22	110	20. 4	539	43. 0	1. 67	2575
		93. 4. 28	93. 8	17. 6	532	39. 4	1. 53	2575
		93. 4. 12	126	22. 8	553	40. 6	1. 50	2707

* ヒラメ **小ヒラメ

表 1.5 海底土及び海水 (その1)

試料No	採取場所	採取日	海水及び河川水の 温度及び塩素濃度	海底土採取方法及び送付重量
N	北20km	93.9.10	21.1℃ 17.85‰	カナナ型採泥器 96.4g
B-4	久慈沖	93.9.10	21.1℃ 17.92‰	カナナ型採泥器 73.4g
久慈川河口	久慈川河口より、海側へ約100m	93.9.16	21.9℃ 14.69‰	スミス、マッキンタイヤ型採泥器 92.3g
H-4	東海沖	93.9.16	22.2℃ 17.44‰	スミス、マッキンタイヤ型採泥器 94.4g
O-4	磯崎沖	93.9.16	21.8℃ 16.85‰	カナナ型採泥器 119.9g
久慈川	久慈川河口より、山側へ約200m	93.9.17	23.0℃ 1.165‰	118.6g

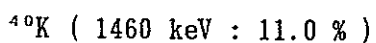
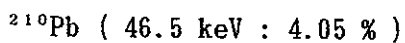
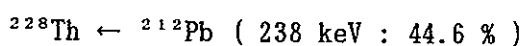
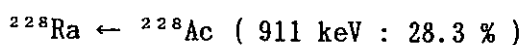
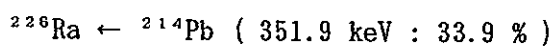
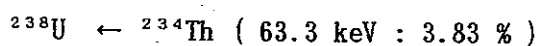
表 1.6 海底土及び海水 (その2)

試料No	採取場所	採取日	海水		海底土採取方法及び送付重量
			温度	塩素濃度	
N	北20km	94.2.14	11.5℃	19.19‰	カナナ型採泥器 123.2g
B-4	久慈沖	94.2.14	11.5℃	19.17‰	カナナ型採泥器 129.8g
久慈川河口	久慈川河口より、海側へ約100m	94.2.15	11.0℃	16.01‰	スミス、マッキンタイヤ型採泥器 126.2g
H-4	東海沖	94.2.15	11.9℃	19.17‰	スミス、マッキンタイヤ型採泥器 119.3g
O-4	磯崎沖	94.2.15	11.8℃	19.14‰	カナナ型採泥器 132.6g

4. 測定対象放射性核種

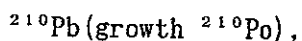
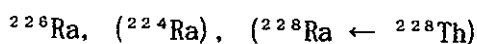
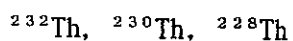
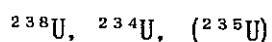
非破壊 γ 線スペクトロメトリーと化学分離・ α 線スペクトロメトリーを併用して定量できる天然放射性核種を可能な限り多く定量することにした。通常以下の核種の定量が可能である。

1) γ 線スペクトロメトリー



(^{137}Cs などの γ 線を放出する人工放射性核種)

2) 化学分離・ α 線スペクトロメトリー



5. 分析・測定法

5.1. 非破壊 γ 線スペクトロメトリー

生物試料については、灰化試料の一定量($\approx 20\text{g}$)をとり油圧式のプレスで直径 5 cm の円盤状の線源を作成し、線源の重量を秤定した後、汚染の防止と ^{222}Rn の損失を防ぐためサ

ランラップで包み、さらにポリエチレン袋に封入して約 1 ヶ月間保存した。海底土については、灰化試料と同様にプレスを試みたが、砂や貝殻が多く含まれていて固形化が困難であった。それ故、試料 50 ~ 60 g を一定のプラスチック容器に入れ密閉して約 1 ヶ月間保存した。γ線測定は通常の Ge(Li) 検出器を用いて 1 ~ 2 日間行った。標準試料としては、NBL(New Brunswick Laboratory)が売出している U 標準試料の既知濃度を特級 NaCl 試料に均一に混ぜたものおよび特級 KCl 試薬を用いた。Ge(Li) 検出器を用いたシラス、アラメ、平貝のγ線スペクトル例を図 4.1 および図 4.2 に示す。γ線のピークとしては、 ^{40}K (1460 keV)のγ線が顕著なピークとして検出され、その他に ^{137}Cs (661 keV)、U 系列核種 ^{214}Pb (295 keV, 352 keV)、 ^{214}Bi (609 keV)および Th 系列核種 ^{212}Pb (239 keV)、 ^{208}Tl (583 keV)、 ^{228}Ac (338 keV, 911 keV) が検出されている。しかしながら検出器のバックグラウンドを考慮すると、今回の一連の海産物試料に対しては ^{40}K および ^{137}Cs のみが定量可能であった。Ge(Li) 検出器によるγ線スペクトロメトリー以外に、pure-Ge から成る低エネルギー光子スペクトロメーター (LEPS) を用いて ^{210}Pb (46.6 keV) と ^{234}Th (63.3 keV) の低エネルギーγ線測定も試みた。海産物試料に対しては、 ^{210}Pb と ^{234}Th 検出は ほとんどの試料で測定誤差の範囲内で検出不可能であった。堆積物については、すべての試料でこれらの核種が有意に検出された (図 4.3)。

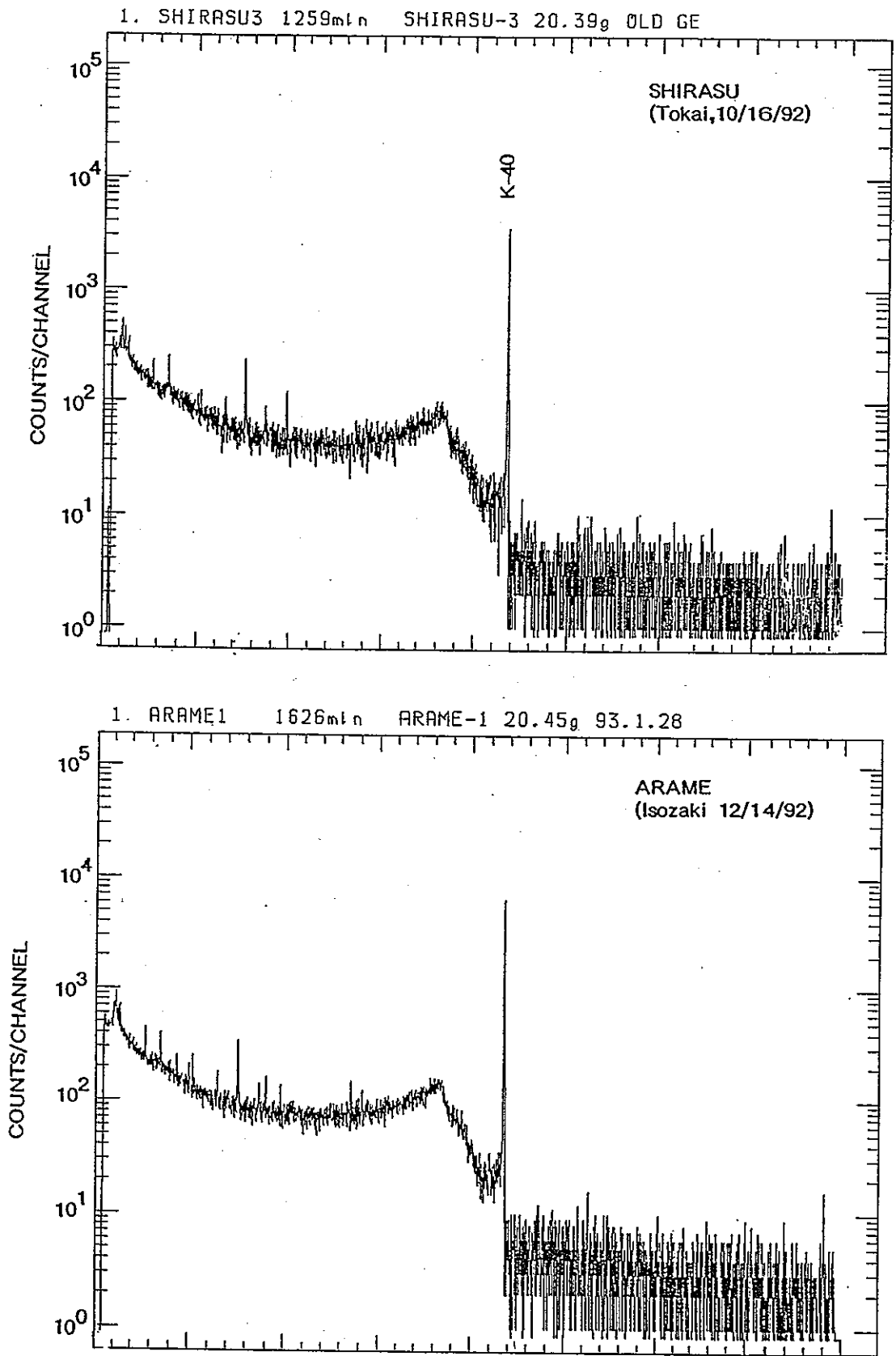


図 4.1 海産生物 (シラス、アラメ) の γ 線スペクトル例

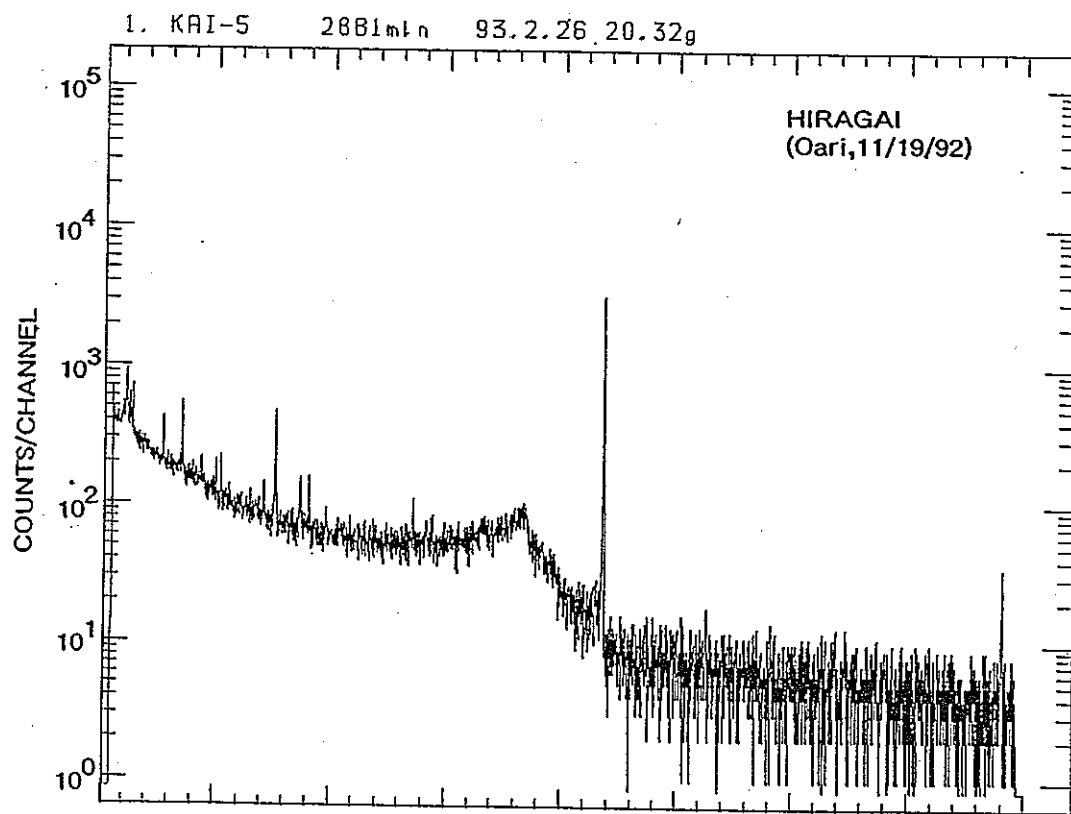


図4.2 海産生物（コタマ貝）の γ 線スペクトル例

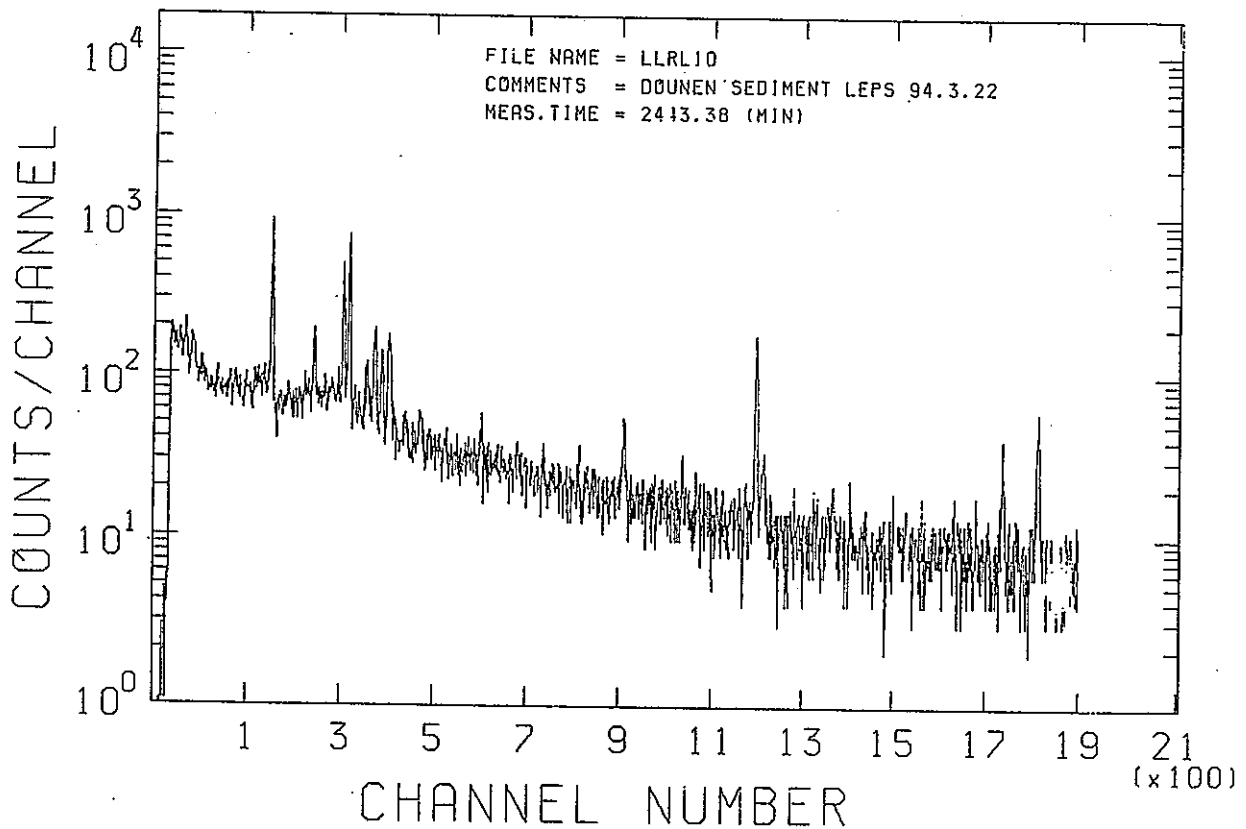
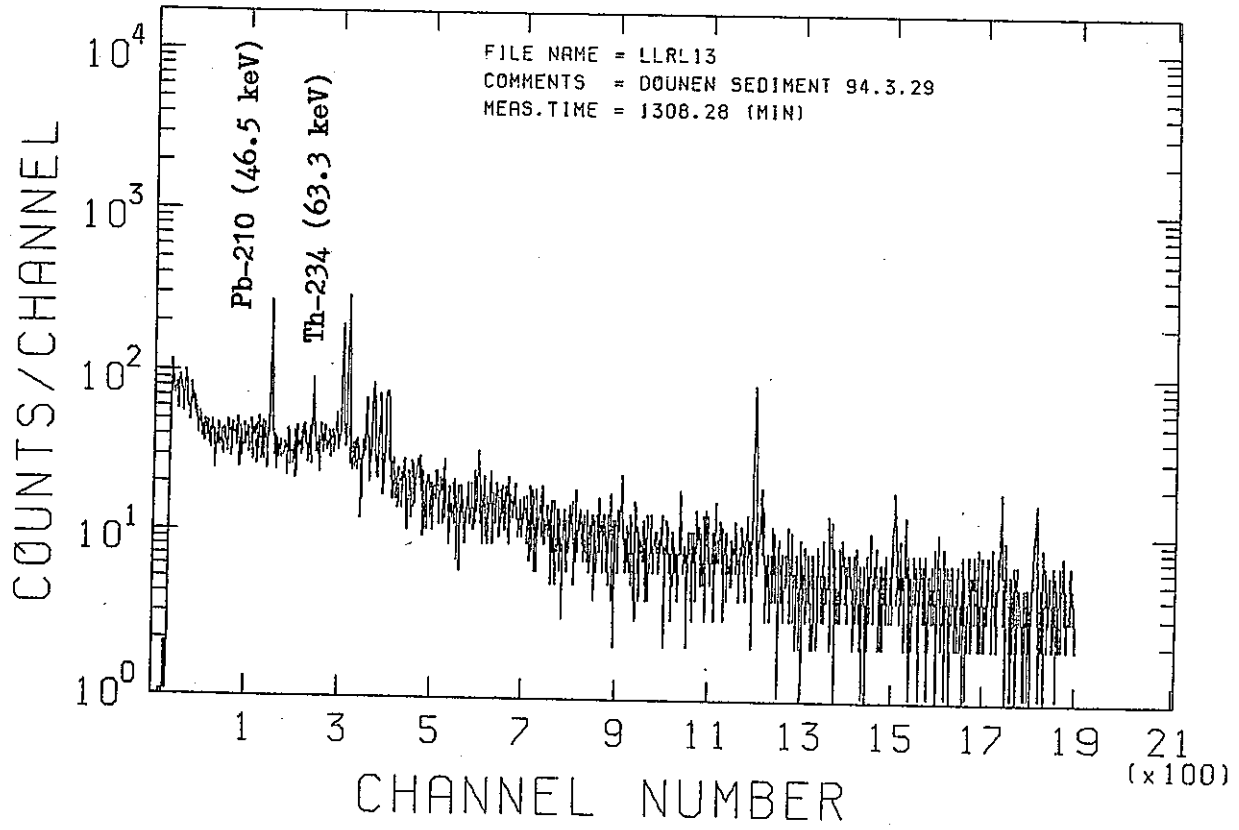


図4.3 海底土のLEPSスペクトル例

5.2. 化学分離, α 線スペクトロメトリー

U 同位体 (^{238}U , ^{234}U), Th 同位体 (^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th), ^{226}Ra および ^{210}Po は α 線を放出する核種である。放射能レベルが高い場合には, 上記核種の幾つかを非破壊 γ 線スペクトロメトリーで測定できるが, レベルが低い場合には化学分離を行い α 線の吸収の少ない均一線源を調製して, Si(Li) 検出器で測定する方法が通常よく用いられる。その際, できることなら同一の試料からすべての核種を逐次的に化学分離した方が, 湿式灰化の時間の短縮, 貴重な試料の保存という面から好都合である。そこで, 今回の試料の分析においては, U 同位体, Th 同位体および ^{226}Ra は灰化試料を用いて同一試料から逐次分離を行った。一方 ^{210}Po および ^{210}Pb については, 特に ^{210}Po が試料の灰化 (約 450°C で一晚) 中に飛散するので, 乾燥試料を用いて分析を行った。海水については, U 同位体, ^{210}Pb - ^{210}Po , ^{226}Ra 分析を別々の試料を用いて行った。また一試料ではあるが $1000\ \text{g}$ を用いて Th 同位体の検出を試みた。海底土については, 化学分離による上記核種の定量は実施しなかった。

5.2.1. 生物試料中の U 同位体, Th 同位体および ^{226}Ra 測定

分析には灰化試料 $10 \sim 20\ \text{g}$ を用い, U, Th および ^{226}Ra の収率補正用のトレーサーとして ^{232}U および ^{229}Th - ^{226}Ra を一定量添加した後, HNO_3 - H_2O_2 - HClO_4 で完全に分解した。その後 8M HNO_3 $50 \sim 100\ \text{ml}$ に溶解し, 蒸留水で約 $700\ \text{ml}$ に希釈した。不溶成分 (主に砂) がある場合には, $0.45\ \mu\text{m}$ フィルターでろ過操作を行って取り除いた。得た溶液に Ra 同位体を含まない Ba キャリアーを $20\ \text{mg}$ 添加し, H_2SO_4 - $(\text{NH}_4)_2\text{SO}_4$ で BaSO_4 沈殿をつくり, Ra をまず始めに共沈させた。ろ過後, 次にその上澄液に Fe キャリアー $20 \sim 40\ \text{mg}$ を添加し, NH_4OH で水酸物等の沈殿をつくり, U および Th を共沈させた。まず U の分析については, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 等の沈殿を 10M HCl に溶解し, 大部分の Fe をイソプロピルエーテルで除去する。その後, 陰イオン交換カラムで U を捕集し, 少量の 8M HNO_3 でカラムに残っている Fe を除去, 次いで 0.5M HCl 約 $100\ \text{ml}$ で U を溶離する。Th は HCl 系からの陰イオン交換樹脂に吸着しないので, カラムを通過した溶液を蒸発乾

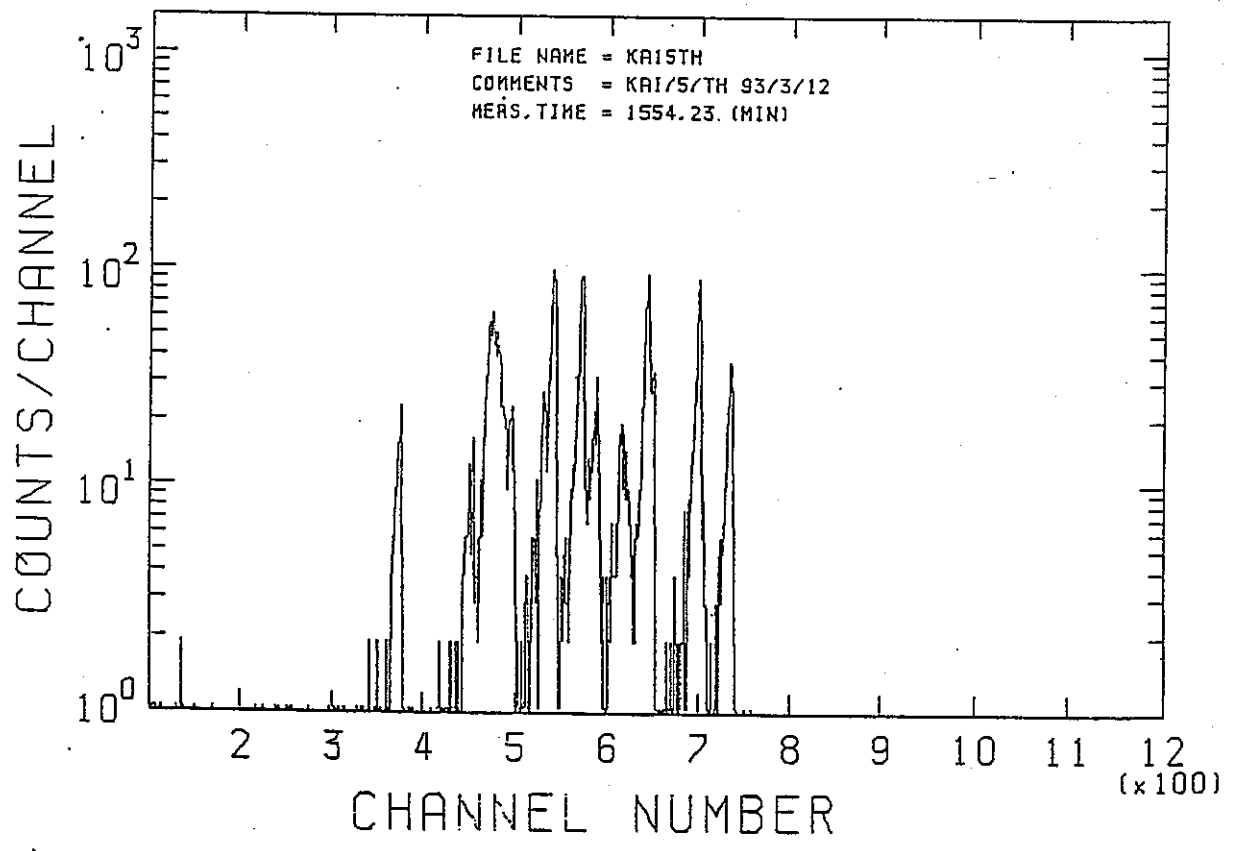
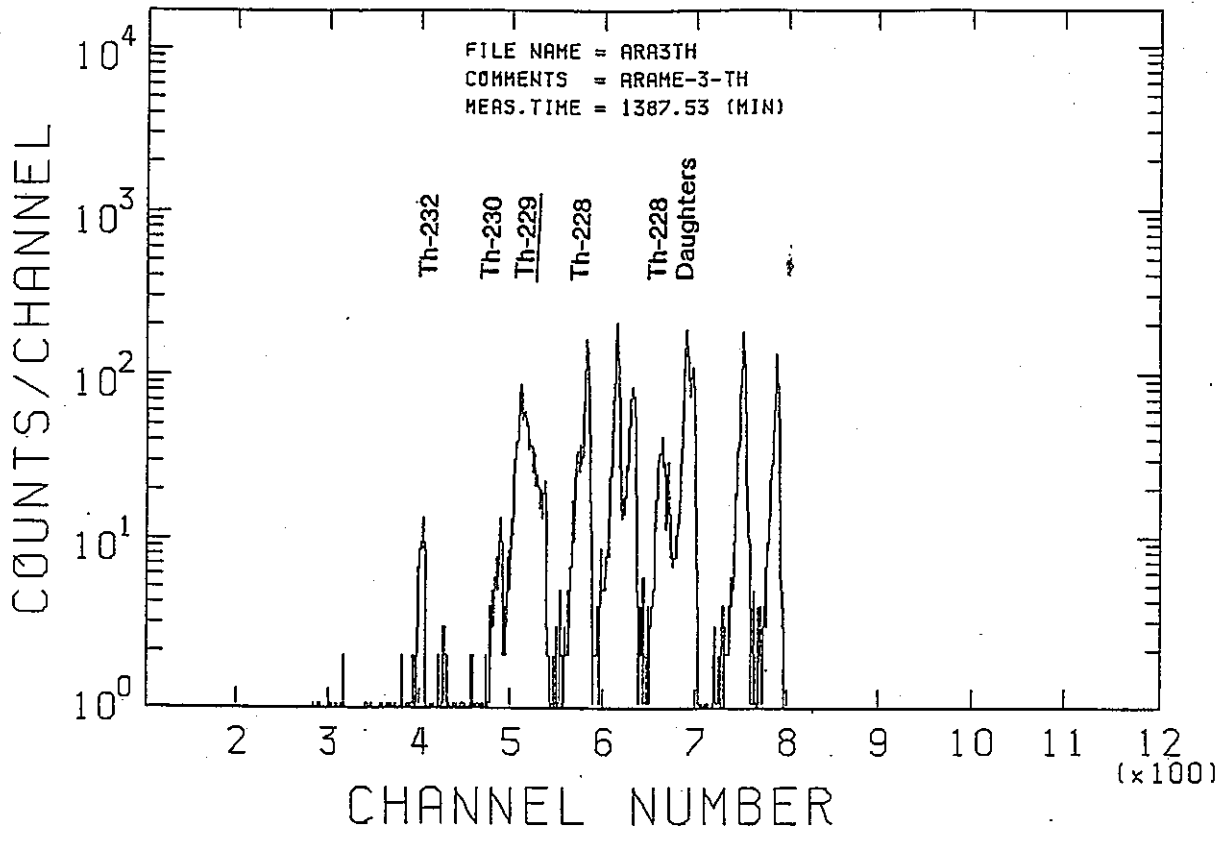


図5.2 海産生物 (アラメ、コタマ貝) のトリウムの α 線スペクトル例

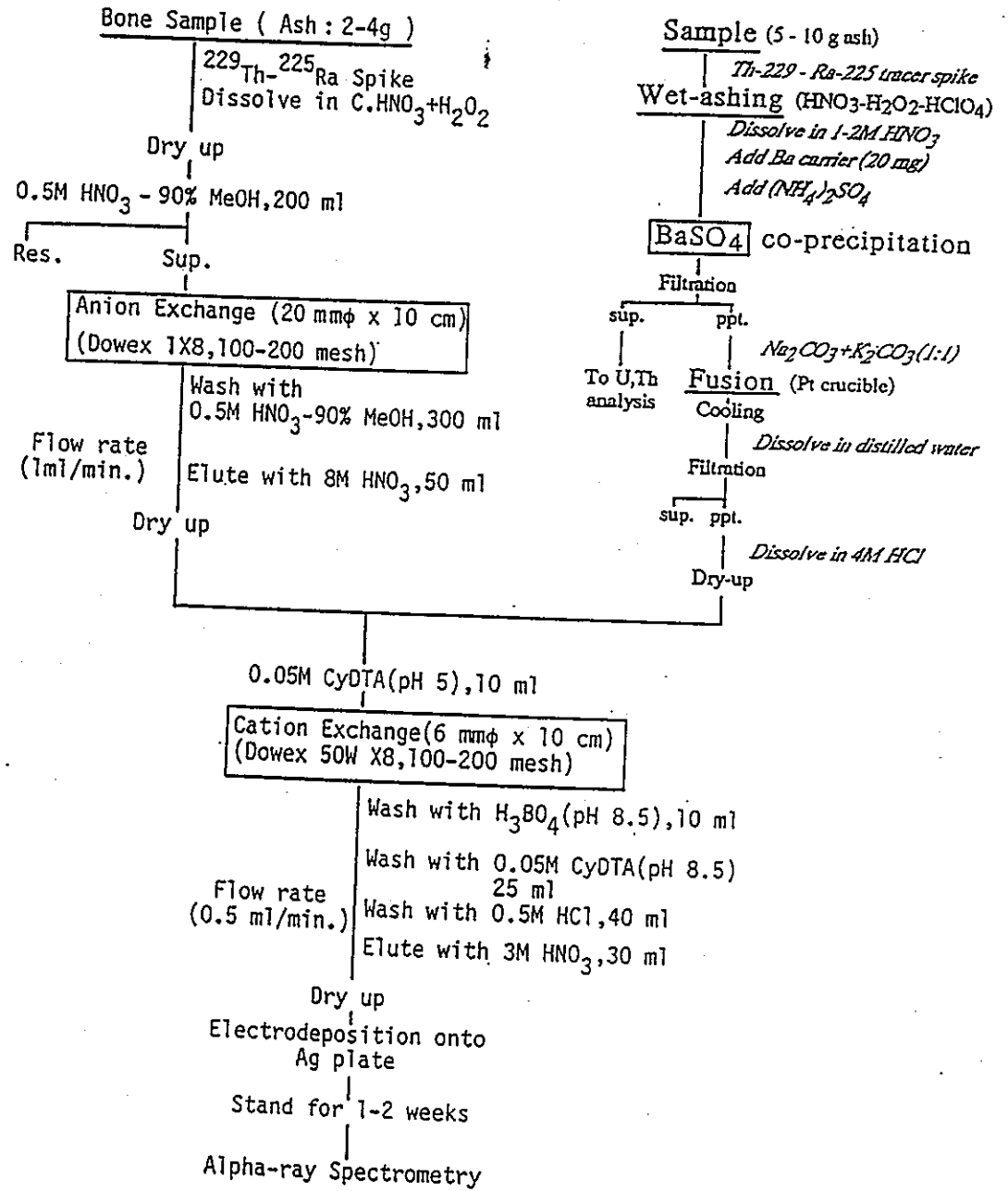


図6 海産生物試料のラジウムの分析スキーム

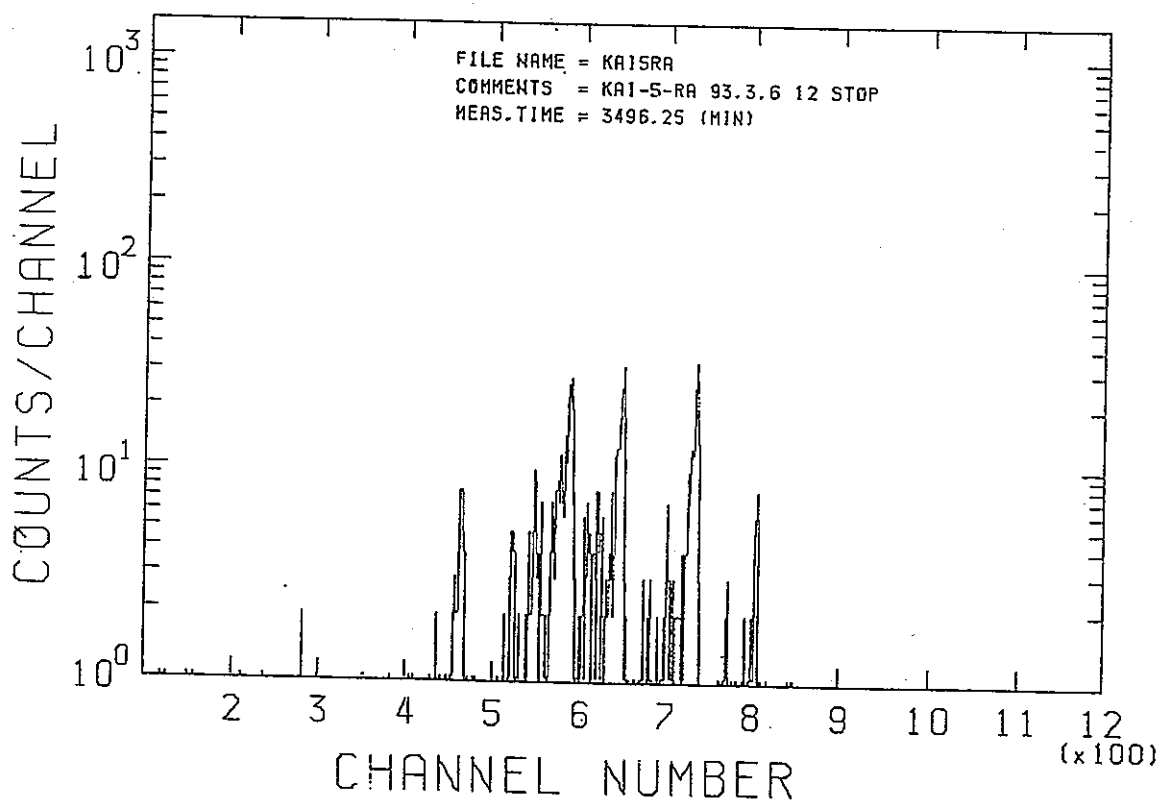
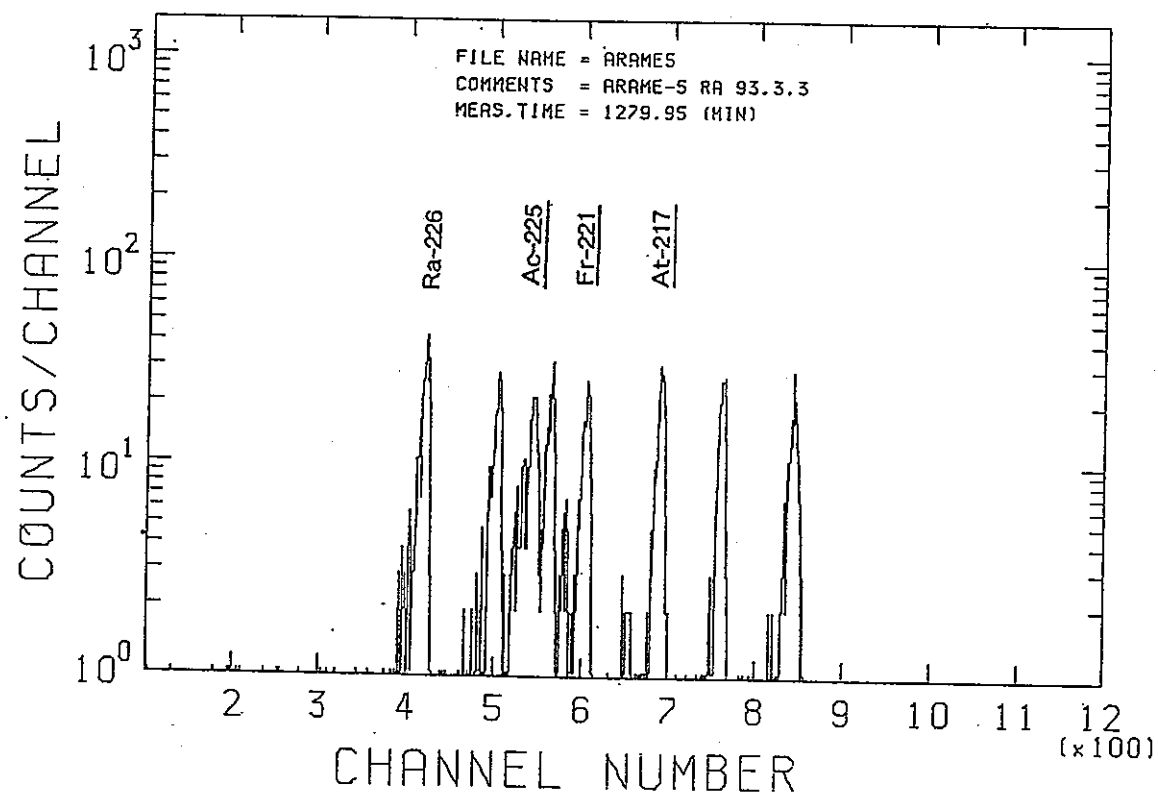


図7 海産生物 (アラメ、コタマ貝) のラジウムの α 線スペクトル例

5.2.2. 生物試料中の ^{210}Pb および ^{210}Po 測定

^{210}Pb および ^{210}Po の分析は、特に ^{210}Po が試料灰化中に飛散するので、乾燥試料を用いて行った。分析には乾燥試料 10 ~ 15 g を用い、 ^{210}Po および ^{210}Pb の化学収率補正用のトレーサーとして ^{209}Po および安定 Pb (^{210}Pb を含まない Pb : 2 ~ 4 mg) を一定量添加した後、 $\text{HNO}_3 - \text{H}_2\text{O}_2 - \text{HClO}_4$ で完全に湿式分解した。数 10 mg のアスコルビン酸の存在下で約 0.5M HCl 溶液から 70 ~ 90 °C で約 6 時間かけて銀板上に Po を自己析出させたものを測定線源として α 線スペクトロメトリーにより ^{210}Po を測定した。 β 線放射体で ^{210}Po の親核種 ^{210}Pb は、濃度が低く非破壊 γ 線測定では十分な測定精度が得られないため、上記溶液中に残存している ^{210}Po (^{209}Po) を陰イオン交換法 (HCl 系) により、完全に除去した後、3 ~ 6 カ月放置して溶液中に ^{210}Pb から成長した ^{210}Po を測定する間接定量を行った。収率補正用の安定 Pb は原子吸光分析法で定量し、収率を求めて ^{210}Pb 濃度を求める際に考慮した。なお、採取直後に分析を行う場合を除いて、採取時点の ^{210}Po 濃度を正しく評価するためには、試料採取から分析までの期間中に ^{210}Pb から成長した ^{210}Po の寄与を差し引くことが必要である。今回用いた分析スキームを図 8 に、また ^{210}Po の測定で得たヒラメおよび平貝の α 線スペクトル例を図 9 に示す。

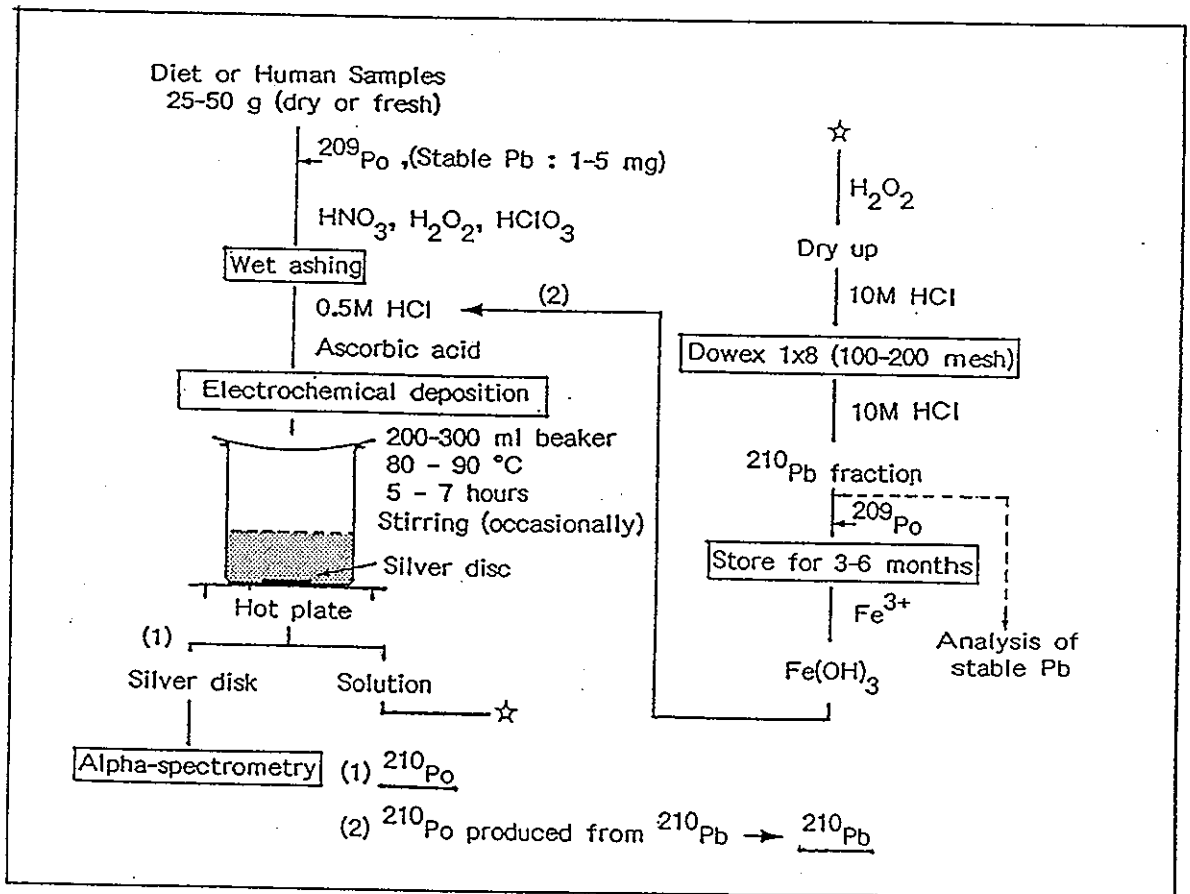


図 8 海産生物試料のPo-210とPb-210の分析スキーム

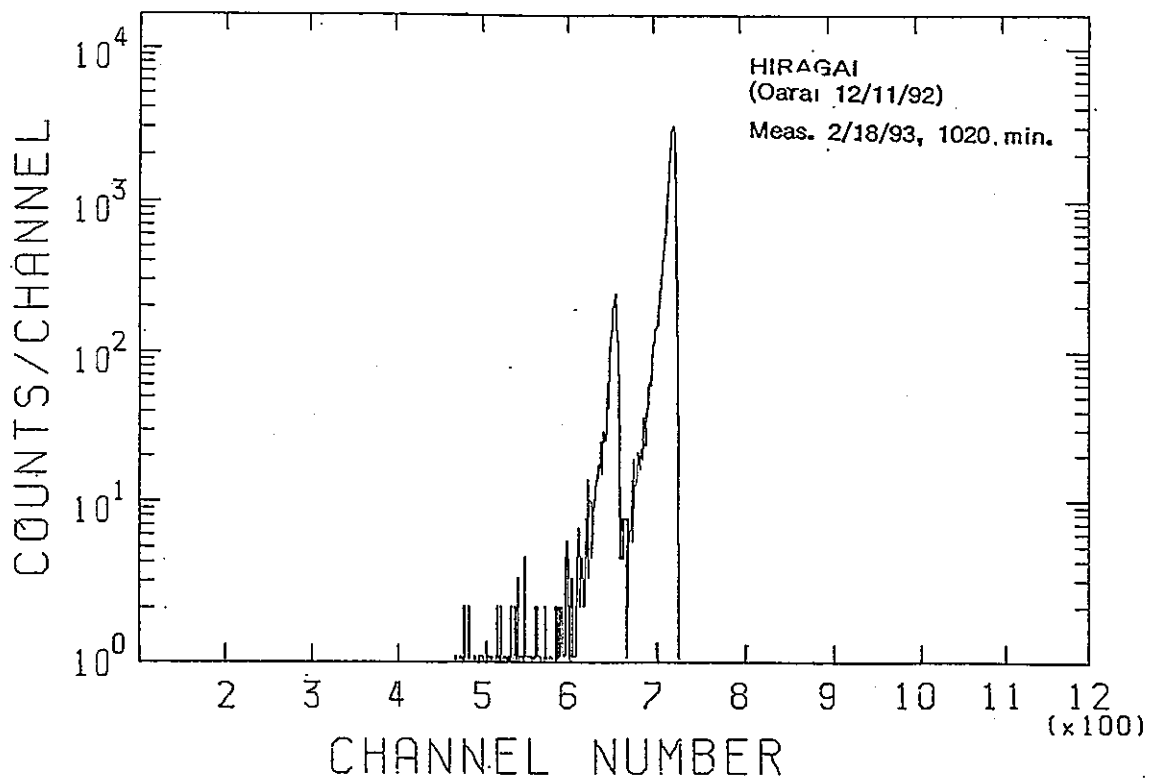
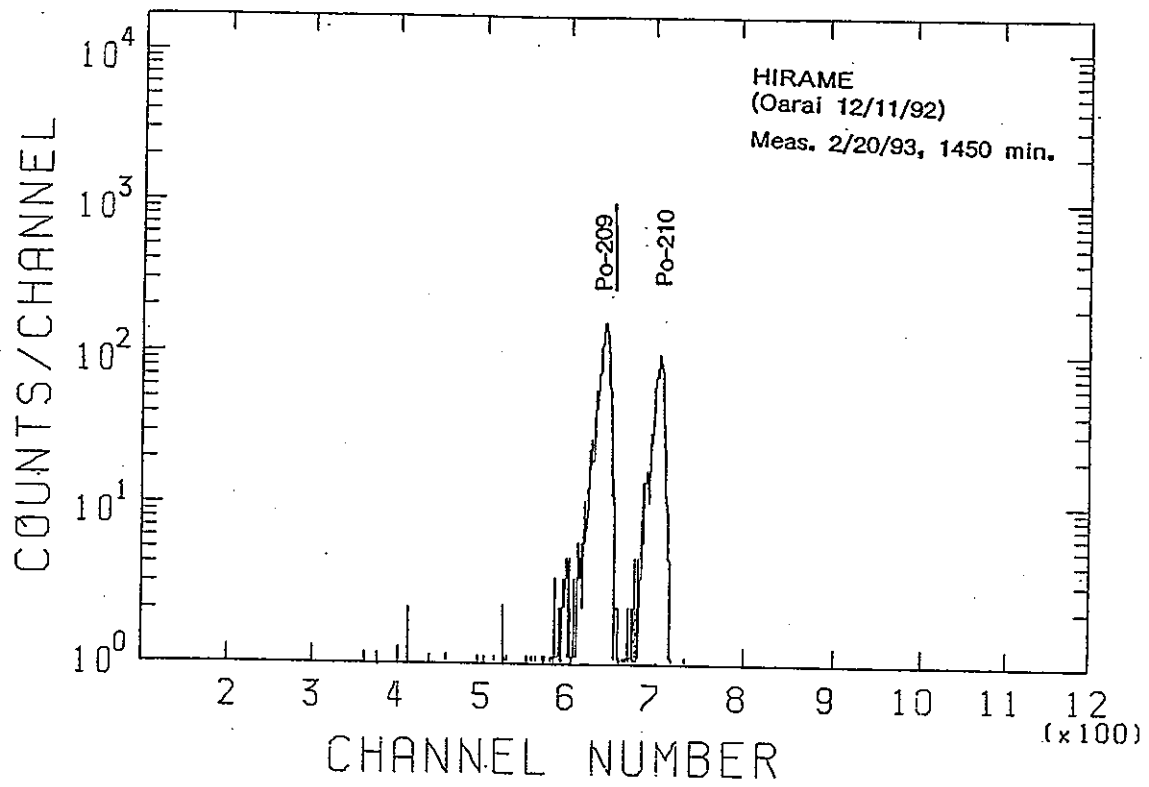


図9 海産生物（ヒラメ、コタマ貝）のPo-210の α 線スペクトル例

5.2.3. 海水中の U 同位体, ^{226}Ra および ^{210}Pb - ^{210}Po 測定

海水についても同一試料からの U 同位体, ^{226}Ra および ^{210}Pb - ^{210}Po の逐次化学分離法がいくつか報告されているが, ここでは以下の理由により別々に実施することにした。

- (1) 海水中の ^{238}U レベルは通常 $3.3 \mu\text{g}/\ell$ (約 $2.5 \text{ dpm}/\ell$) なので 1ℓ で充分検出可能である。 20ℓ 程度を用いて ^{210}Pb - ^{210}Po と同時に分析可能であるが, その際 U の収率補正用の ^{232}U トレーサーを多量に添加しなければならない。
- (2) ^{226}Ra (^{228}Ra) について, 予備的に 20ℓ から BaSO_4 共沈を行い, 3 週間程度その沈殿をポリエチレン袋に密封して保存した後 $\text{Ge}(\text{Li})$ 検出器による ^{214}Pb および ^{228}Ac の γ 線測定を試みたが検出不可能であった。したがって, 今回は海水 1ℓ 程度からでも ^{226}Ra 検出が可能な化学分離の方法を用いることにした。

U 分析については, 試水 1ℓ (すでに HCl 酸性にしてある) を用い, 一定量の ^{232}U トレーサーを添加し, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沈法により濃縮した。 ^{210}Pb - ^{210}Po については, 試水 20ℓ に数 dpm の ^{209}Po トレーサーと安定 Pb (2 mg) を添加し, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ に共沈させた。 ^{226}Ra については, 試水 $4 \sim 5\ell$ (大部分 5ℓ) に ^{226}Ra トレーサーを添加し, $\text{Fe}(\text{OH})_3$ と CaCO_3 に Ra を共沈捕集させた。その後, 沈殿を HCl に溶解し, Ba キャリアー 20 mg を加えて Ra を BaSO_4 に共沈させた。以後の U, Ra および Pb - Po の精製は上記の海産物と同様に行った。

5.2.4. 海水中の Th 同位体の測定

一試料のみではあるが、未ろ過海水 1000 ℓ を用いて Th 同位体の検出を試みた。大型の 500 ℓ 用のポリバケツ 2 ケ にそれぞれ 500 ℓ の海水を採取し、HCl 酸性にした後 それぞれのポリバケツに収率補正用のトレーサーとして ^{229}Th を 0.4 mBq (0.025 dpm) 添加した。 Fe^{3+} を 10mg / ℓ の割合で加え 一晩放置後 NH_4OH で $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 沈殿を作り Th を共沈させた、両 $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 共沈を合わせ、HCl に溶解後、イソプロピルエーテルで大部分の Fe を除去した。その後 NH_4OH で再び $\text{Fe}(\text{OH})_3$ 沈殿をつくり Th を共沈させた。沈殿を 8M HNO_3 に溶解し、陰イオン交換カラム法により Th を精製し、電着後 α 線スペクトロメトリーにより Th 同位体を定量した。

6. 結果と考察

海水中に存在する（あるいは放出された）放射性物質が生物に達するまでの経路を単純に模式化し、図 10 に示す。さまざまな放射性元素の種々の生物への移行・濃縮は、元素の物理、化学的性質および存在状態、生物の種類、生息環境、さらに生物の餌などに大きく依存する。

このようなことを念頭において、以下に今回測定した表層海底堆積物、沿岸表層海水およびいくつかの生物種のさまざまな放射性核種の濃度レベルを比較検討する。

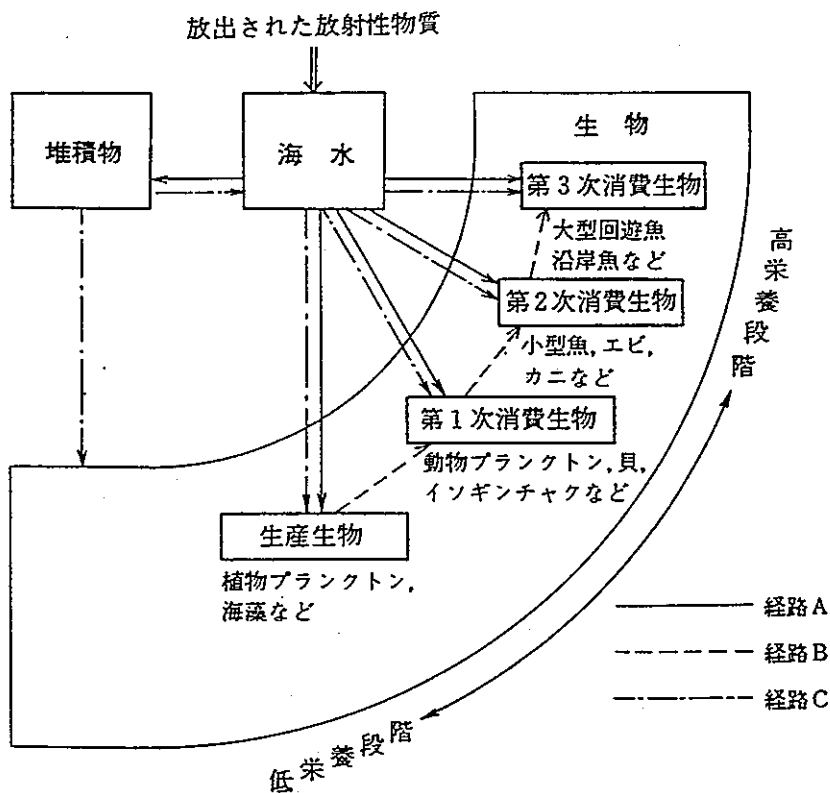


図 10 沿岸における放射性核種の移行経路

6.1. 表層海底堆積物

沿岸堆積物は、沿岸海洋環境に放出された放射性核種のリザーバーとして重要な役割を演じている。放射性核種の海水から海底土への移行・蓄積は、これら核種の海水中での存在状態、海水中の微粒子の構成成分や性質、さらに生物活動などによって大きく異なる。一般的に言って、沿岸表層堆積物中の ^{137}Cs や $^{239, 240}\text{Pu}$ 濃度は、細かいシルトや粘土成分を多く含む底質ほど高い傾向にある。

東海村沿岸の海底堆積物中の天然放射性核種の濃度レベルについてはいくつかのデータが報告されていると思われるが、現時点でサーベータできなかった。

今回測定した 6 地点からの 11 試料について見ると、表 2 に示すように、 ^{40}K が 366 ~ 672 Bq/kg dry の濃度範囲で最も高く、ついで ^{210}Pb が 53 ~ 203 Bq/kg dry の範囲で、 ^{232}Th (^{228}Ra と放射平衡にあると仮定) と ^{238}U はほぼ等しく 10 ~ 50 Bq/kg dry で ^{40}K の 1/10 ~ 1/20 レベルであった(表 3 (参))。 ^{137}Cs は、そのほとんどが 1960 年代初めの大気圏内核実験からのフォールアウトに由来していると考えられるが、その濃度は 0.3 ~ 2 Bq/kg dry で、ここで測定した核種の中で最も低い濃度であった。

測定した堆積物は、外見上は、砂や貝殻を多く含む試料など、採取地点ごとに明らかに異なっているが、 ^{40}K 、 ^{226}Ra 、 ^{228}Ra 濃度は久慈川河口の冬場に採取した試料のやや高い値を除けば、いずれの核種も 2 倍以内の濃度範囲にあり、これら核種濃度の大きな地域差はみられない(図 11)。

今回測定した核種の中で、特に興味ある核種は ^{210}Pb である。この核種は、堆積物自身の中に ^{238}U の壊変生成物として ^{238}U (厳密には ^{226}Ra) とほぼ等しいレベルで含まれているが、それ以外に大気からフォールアウトとして降下した ^{210}Pb 、さらに海水中の ^{226}Ra から生成した ^{210}Pb を吸着している。 ^{210}Pb は、懸濁物質に非常に吸蓄しやすく、 ^{226}Ra レベルよりも多い“過剰 ^{210}Pb レベル”を用いて湖底堆積物など過去 100 年前後までの年代測定(堆積速度の評価)に利用されている。表 2 の ^{210}Pb データを見ると、久慈川河口(K-1)および上流(K-2)以外で採取した試料は、それぞれの試料中の ^{238}U や ^{226}Ra 濃度をはるかに上回る多量の ^{210}Pb を含んでいる。久慈川河口の試料については、上流で採取した試料(K-2)共に ^{210}Pb が ^{238}U や ^{226}Ra とくらべてそれほど過剰にならなならず、他の採取地点と全く異なっている。この河口域では上記した ^{228}Ra 、 ^{238}U

データからも示唆されるように、大気からのフォールアウト ^{210}Pb の影響を比較的受けにくい表層以外の土壌や河底土などが常に供給され、堆積物が流動、攪拌されているものと考えられ、試料の採取場所によっては、濃度がかなり変動することが予想される。過剰 ^{210}Pb 濃度が最も高い H-4 地点（放水口近傍）は、他の地点よりも ^{210}Pb と同じように挙動する元素（懸濁物質に吸着されやすい元素）を多く集積する可能性が高いことが示唆される。

表 4 に測定した核種について、放射能比でまとめた結果を示す。 ^{238}U 系列については、測定した ^{226}Ra まではほぼ放射平衡にある。一方、 ^{232}Th 系列については、 ^{232}Th を直接測定していないが ^{228}Th までほぼ放射平衡になっていると考えられる。

表2 海底土中の放射性核種濃度 (Bq/kg dry)

Table Radionuclides in sediments collected from the Tokai coastal areas

Sample No.	Sampling station	Sampling date	K-40 (Bq/kg.dry)	Ra-228 (Bq/kg.dry)	Th-228 (Bq/kg.dry)	U-238 (Bq/kg.dry)	Ra-226 (Bq/kg.dry)	Pb-210 (Bq/kg.dry)	Cs-137 (Bq/kg.dry)
N	20 km north	9/10/93	366 ± 6	14.2 ± 0.7	14.8 ± 1.1	10.8 ± 1.0	10.3 ± 0.4	117 ± 3	0.54 ± 0.12
		2/14/94	420 ± 5	12.4 ± 0.5	12.5 ± 0.2	17.2 ± 1.8	13.2 ± 0.4	75.4 ± 3.2	0.61 ± 0.09
B-4	Off Kuji	9/10/93	529 ± 12	22.5 ± 1.4	23.4 ± 0.9	23.6 ± 1.3	21.7 ± 0.8	106 ± 3	0.59 ± 0.23
		2/14/94	539 ± 14	21.5 ± 1.4	19.5 ± 0.7	26.1 ± 2.9	29.2 ± 1.2	63.6 ± 3.5	1.03 ± 0.29
K-1*	ca.100 m off R.Kuji-mouth	9/16/93	672 ± 12	21.8 ± 1.0	23.4 ± 1.0	16.1 ± 1.1	17.6 ± 0.6	28.5 ± 2.0	1.97 ± 0.24
		2/15/94	590 ± 6	53.0 ± 1.5	51.6 ± 0.8	47.6 ± 4.7	53.3 ± 0.8	52.7 ± 4.5	1.08 ± 0.15
H-4	Off Toukai	9/16/93	502 ± 10	19.4 ± 1.1	22.0 ± 0.7	14.3 ± 1.6	18.2 ± 0.4	137 ± 5	1.03 ± 0.20
		2/15/94	568 ± 11	20.1 ± 1.3	20.7 ± 0.6	22.6 ± 1.4	25.8 ± 1.2	203 ± 6	2.20 ± 0.31
O-4	Off Isozaki	9/16/93	397 ± 9	14.9 ± 0.8	15.6 ± 0.4	8.40 ± 0.50	8.29 ± 0.37	61.7 ± 2.5	0.32 ± 0.13
		2/15/94	530 ± 9	15.6 ± 0.8	15.3 ± 0.4	14.5 ± 1.0	16.0 ± 0.6	90.3 ± 5.9	1.45 ± 0.22

K-2**	ca.200 m above R.Kuji-mouth	9/17/93	740 ± 10	17.8 ± 0.9	18.2 ± 0.6	14.5 ± 1.1	13.7 ± 0.4	23.7 ± 1.5	0.73 ± 0.15

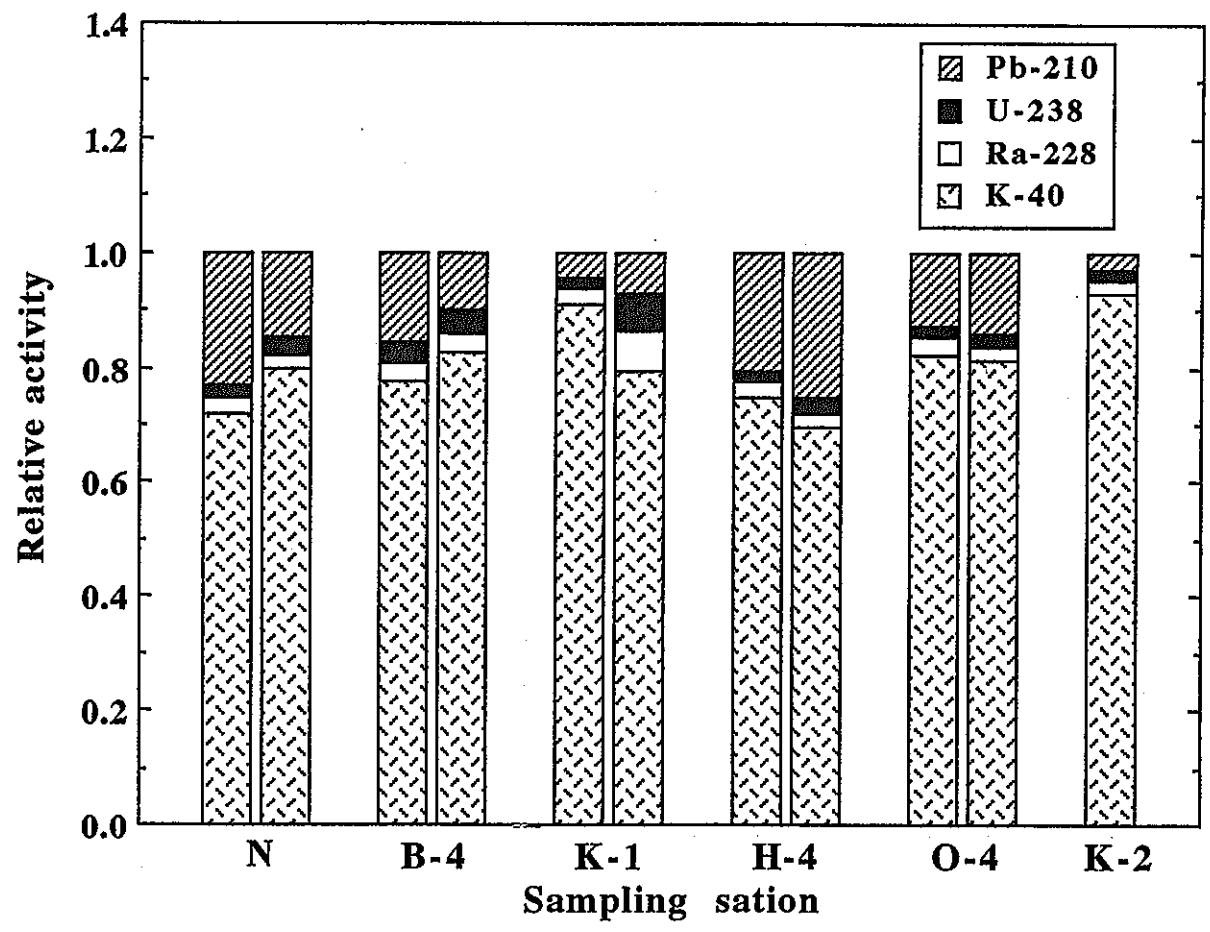


Fig. Diagram of relative activities of K-40, Ra-228, U-238 and Pb-210 for sediments from Tokai coastal areas.

図 1 1 海底土中の放射性核種の含有割合

表3(参) 各種岩石試料中のUとTh濃度及びTh/U放射能比

Rock type	Name	U (ppm)	Th (ppm)	Th/U			
Igneous	granites granodiorites rhyolites dacites	2.2-6.1	8-33	3.5-6.3			
	gabbros				0.8	3.8	4.3
	basalts				0.1-1	0.2-5	1-5
	ultramafics				< 0.015	< 0.05	variable
	Metamorphic	eclogites	0.3-3	0.2-0.5	2-4.3		
		granulites	4.9	21	4.3		
gneiss		2.0	5-27	1-30			
schist		2.5	7.5-19	≥ 3			
phyllite		1.9	5.5	2.8			
slate		2.7	7.5	2.8			
Sedimentary	orthoquartzite	0.45-3.2	1.5-9	1.6-3.8			
	greywackes	0.5-2.0	1-7	~ 2			
	shales: grey-green	2-4	10-13	2.7-7			
	red-yellow						
	black				3-1250	—	low
	bauxite	11.4	49	~ 5			
	limestones	~ 2	0-2.4	< 1			
	dolomites	0.03-2	—	—			
	phosphates	50-300	1-5	< 0.1			
	evaporites	< 0.1	< 1	—			
	speleothem	< 0.03-100	0-10	—			
	living molluscs	< 0.01-0.5	low	—			
	fossil molluscs	0.5-8	low	—			
	coral	2-4	low	—			
	Mn nodules	2-8	10-130	~ 7			
	oceanic sands and clays	0.7-4	1-30	0.4-10			
	peat	1-12	1-5	≤ 1			
	lignite	< 50-80	—	—			
	coal	< 10- < 6000	—	—			
	asphalt	10-3760	—	—			
oil	4-77	—	—				

(From: Rogers and Adams 1969; Kaufman *et al.* 1971; Harmon *et al.* 1975; Kunzendorf and Friedrich 1976).

表4 海底土中の放射性核種間の放射能比

Table Activity ratios among radionuclides in sediments collected from the Tokai coastal areas

Sample No.	Sampling station	Sampling date	Ra-226	Pb-210	Ra-228	Th-228	Ra-228
			U-238	U-238	U-238	Ra-228	Ra-226
N	20 km north	9/10/93	0.95 ± 0.09	10.8 ± 1.0	1.31 ± 0.14	1.04 ± 0.09	1.38 ± 0.09
		2/14/94	0.77 ± 0.08	4.40 ± 0.50	0.72 ± 0.08	1.01 ± 0.05	0.94 ± 0.05
B-4	Off Kuji	9/10/93	0.92 ± 0.06	4.47 ± 0.27	0.95 ± 0.08	1.04 ± 0.08	1.04 ± 0.07
		2/14/94	1.12 ± 0.13	2.43 ± 0.30	0.82 ± 0.10	0.91 ± 0.07	0.74 ± 0.06
K-1	ca.100 m off R.Kuji-mouth	9/16/93	1.09 ± 0.09	1.77 ± 0.18	1.35 ± 0.11	1.07 ± 0.07	1.24 ± 0.07
		2/15/94	1.12 ± 0.11	1.11 ± 0.14	1.11 ± 0.11	0.97 ± 0.03	0.99 ± 0.03
H-4	Off Toukai	9/16/93	1.27 ± 0.15	9.59 ± 1.13	1.36 ± 0.17	1.13 ± 0.07	1.07 ± 0.06
		2/15/94	1.14 ± 0.09	9.00 ± 0.63	0.89 ± 0.08	1.03 ± 0.07	0.78 ± 0.06
O-4	Off Isozaki	9/16/93	0.99 ± 0.07	7.34 ± 0.53	1.78 ± 0.14	1.04 ± 0.06	1.80 ± 0.12
		2/15/94	1.10 ± 0.08	6.22 ± 0.57	1.07 ± 0.09	0.98 ± 0.06	0.97 ± 0.06
K-2	ca.200 m above R.Kuji-mouth	9/17/93	0.95 ± 0.08	1.64 ± 0.16	1.23 ± 0.11	1.02 ± 0.06	1.30 ± 0.08

6.2. 沿岸表層海水

沿岸表層海水は年 2 回、海底土とほぼ同一の採取地点で採水した。久慈川上流の河川水も河底土と同様に採取した。測定結果を表 5 に示した。

塩素量 (chlorinity) は夏場と冬場の試料で、夏場の方がやや低い傾向にあるが、全体として 14.7 ~ 19.2 % の範囲で変動している。標準海水 19.38 % と比べると特に久慈川河口域は低く、河川の影響を強く受けていることがわかる。久慈川上流の河川水の塩素量は 1.2 % で海水の影響は無視できると思われる。 ^{238}U 濃度は 24.2 ~ 40.9 mBq/l であり、外洋水中の ^{238}U 濃度 40.8 mBq/l (3.3 $\mu\text{g/l}$) と比べて大部分の試料で低い。 $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比は 1.1 ~ 1.7 の範囲にあり、海水での比 1.13 ~ 1.14 にほぼ一致している。標準海水の塩素量 19.38 % でノーマライズしても大部分の海水で ^{238}U が 32 ~ 36 mBq/l になり、河川水による希釈効果が考えられるが、一部の U が有機物が多いこのような沿岸域で除去されている可能性もある。(ウランは通常海水中では VI 価として安定に存在しているとみなすことができるが、III 価の Fe が II 価に還元されるのと同じ程度の電位で IV 価に還元される。IV 価のウランはトリウムなど他の IV 価と同様に水和酸化物をつくりやすく固相が安定である。したがって還元的な環境では U が海水から除かれる可能性が大きい)。

アルカリ土類金属であるラジウム (^{226}Ra) は、海水中ではイオンが安定である。海水へは、河川からの供給と堆積物内で親核種の壊変によって生成したものの溶出の二つの供給源がある。一般に、前者の寄与は数 % にすぎない。沿岸海水中の ^{226}Ra については、最近野崎らが東京湾と大阪湾で測定したデータが報告されている。表 7 (参) にそのデータを示すが ^{226}Ra 測定についてみると、大阪湾では淀川の河口に近づくにつれて外洋での値 1 mBq/l から 2 ~ 2.7 mBq/l と増加している。一方、東京湾では 1.3 ~ 1.6 mBq/l と比較的一定である。

山本等は石川県の小松沿岸の海水について ^{226}Ra 濃度が 2.4 mBq/l であったと報告している。今回測定した東海沿岸の海水は N 点は沿岸から約 5 km, H-4 地点は約 3 km, B-4 と O-4 は 1 ~ 2 km, K-1 は久慈川河口沖 100 m で採取したものであり、表 5 からわかるように久慈川河口で 0.77 ~ 0.78 mBq/l と最も低く、他の地点での濃度は 1 ~ 1.3 mBq/l とほぼ一定である。久慈川河口以外の海水で検出された 1 ~ 1.3 mBq/l の値は先に示した野崎らのデータと比較すると、東京湾や大阪湾の湾奥の値よりも湾口あるいは

は黒潮の表面海水の値に近い。

^{210}Pb - ^{210}Po に関しては、2 回目の試料の ^{210}Pb 分析について ^{210}Pb から成長する ^{210}Po を待っているところであり、現時点で全部のデータがそろわないが、1 回目の試料のデータで議論を進める。沿岸海水中の ^{210}Pb 供給源はその大部分が大気からで、海水中の ^{226}Ra からの寄与は少ない。 ^{210}Po は大気からも幾分供給されるが、ほとんどは海水中で粒子状態になりやすい ^{210}Pb から生まれる。表 5 に示すように、今回測定した ^{210}Pb 濃度は $0.41 \sim 2.15 \text{ mBq/l}$ 、 ^{210}Po 濃度は $0.61 \sim 1.34 \text{ mBq/l}$ であった。 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は久慈川上流で 0.47 と最も低く、それ以外の沿岸海水でその比は 1 以下の 0.87 もあるが、大部分は 1 以上になっている。全体として、濃度の絶対値は ^{210}Pb の方が ^{210}Po より測定毎にかなり変動しているが、 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比の 1 より大きい傾向には共通点があるように思える。 ^{226}Ra 濃度と比較すると ^{210}Pb 濃度は ^{226}Ra とほぼ等しい値から半分ぐらいまで減少している。久慈川上流の ^{210}Pb 濃度は ^{226}Ra より約 3 倍程度高い。国内の沿岸海水中の ^{226}Ra 、 ^{210}Pb および ^{210}Po を扱ったデータをほとんど見ることができないが、先の野崎らの大阪湾と東京湾についての ^{210}Pb 濃度を見ると湾内のデータすべてにおいて ^{226}Ra 濃度の方がその絶対量は多少異なるとも ^{210}Pb より高くなっている。今回の ^{210}Pb データは野崎らの ^{210}Pb データと共に黒潮表面海水中の ^{210}Pb 濃度 3.4 mBq/l ($202 \sim 209 \text{ dpm/1000 l}$) の数分の 1 であり、このような沿岸では ^{210}Pb が粒子に取り込まれるなどして沈降除去されることが強く示唆される。この東海海域において定常状態を仮定して ^{210}Pb の平均滞留時間 ($1/K_{\text{Pb}}$) を下記式を用いて試算すると、20 日前後になる。この値の妥当性はともかくとして、このような大まかな計算からも Pb が懸濁粒子に吸着して海水から迅速に除去されていることが示唆される。このことは、表層海底土に過剰 ^{210}Pb が比較的多く見い出されることとも矛盾しない。 ^{210}Po については今回 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比で 1 以上の値が得られ、 ^{210}Pb に比べて ^{210}Po を濃縮しやすい動物あるいは植物プランクトンの影響、あるいは ^{210}Pb に比べて ^{210}Po が除去されにくいことによるのか、さらに検討する必要がある。いずれにしてもこのような核種の沿岸海水データが非常に少なく、データの蓄積が待たれるところである。

$$I_{Pb} + \lambda_{Rn}N_{Rn} = \lambda_{Pb}N_{Pb} + K_{Pb}N_{Pb}$$

I_{Pb} : 大気からの ^{210}Pb 共給量

$$1.5 \text{ dpm/cm}^2 \text{ y} \rightarrow N = 0.8 \text{ atom/cm}^2 \text{ s}$$

$\lambda_{Rn}N_{Rn}$: 海水中の ^{222}Rn からの ^{210}Pb 共給

^{226}Ra 濃度 (1 mBq/l) の 0.8 が ^{222}Rn として海水中に残ると仮定
平均深度 10 m を仮定すると単位面積当りの全海水量は 1 l となる。

$$1 \times 0.8/1000 \text{ dps/l} = 0.0008 \text{ atom/cm}^2 \text{ s}$$

$\lambda_{Pb}N_{Pb}$: 海水中の ^{210}Pb 濃度

$$1 \text{ mBq/l} \rightarrow 0.001 \text{ atom/cm}^2 \text{ s}$$

N_{Pb} : 海水中の ^{210}Pb 原子数

$$N = A/\lambda = 0.001 \times 22.3 \times 3.16 \times 10^7/0.693 = 1.02 \times 10^6 \text{ atom/cm}^2 \text{ s}$$

$$\therefore 0.8 + 0.0008 = 0.001 + K_{Pb} \cdot 1.02 \times 10^6$$

$$I_{Pb} = 1/K_{Pb} = 17 \text{ 日} \approx 20 \text{ 日}$$

次に Th に関してであるが、沿岸海水中のデータはほとんどない。海水中の Th は最も平均滞留時間の短い元素のグループに属している。海水中にはいくつかの Th 同位体が存在するが、すべてその供給源が異なっている。すなわち、すべて陸起源である ^{232}Th 、一部陸起源で大部分が海水起源の ^{230}Th 、すべて海水起源である ^{234}Th 、一部が河川水から一部が海底から供給される ^{226}Ra の壊変によって生じる ^{228}Th などがある。今回一試料ではあるが β -放射体の ^{234}Th を除く、 ^{232}Th 、 ^{230}Th 、 ^{228}Th を測定することができた。表 6 にその結果を示したが、 ^{232}Th と ^{230}Th はほぼ等しく 9.8 mBq/1000 l、 ^{228}Th は約 4 倍高い 36.7 mBq/1000 l であった。外洋での値約 0.4 mBq/1000 l と比べるとこの沿岸海水の値は約 20 倍ぐらい高いが、大久保の瀬戸内海の海水中の ^{232}Th 値 1.7 ~ 3.3 dpm/1000 l と大差ない。大久保はその海域の $^{228}Th/^{232}Th$ 比が 6 前後から 80 近くまで変化していることを報告している(表8(参))。

表5 海水中の放射性核種濃度 (mBq/l)

Table Radionuclides in sea and river waters collected from the Tokai coastal areas

Sample No.	Temperature, Chlorinity (°C; ‰)	Sampling date	Concentration				Activity ratio		
			U-238 (mBq/l)	Ra-226 (mBq/l)	Pb-210 (mBq/l)	Po-210 (mBq/l)	U-234 / U-238	Ra-226 / U-238	Po-210 / Pb-210
N	21.1; 17.85	9/10/93	32.7 ± 1.5	1.27 ± 0.24	0.59 ± 0.06	1.05 ± 0.17	1.12 ± 0.05	0.039 ± 0.008	1.78 ± 0.34
	11.5; 19.19	2/14/94	33.2 ± 1.6	1.02 ± 0.09	±	±	1.10 ± 0.05	0.031 ± 0.003	±
B-4	21.1; 17.92	9/10/93	29.0 ± 0.9	1.14 ± 0.20	1.18 ± 0.10	1.03 ± 0.10	1.14 ± 0.03	0.039 ± 0.007	0.87 ± 0.11
	11.5; 19.17	2/14/94	33.7 ± 1.5	1.18 ± 0.08	±	±	1.10 ± 0.07	0.035 ± 0.003	±
K-1*	21.9; 14.69	9/16/93	24.2 ± 1.5	0.77 ± 0.15	0.65 ± 0.06	1.22 ± 0.15	1.17 ± 0.08	0.032 ± 0.007	1.88 ± 0.29
	11.0; 16.01	2/15/94	29.7 ± 1.3	0.78 ± 0.09	±	±	1.14 ± 0.07	0.026 ± 0.003	±
H-4	22.2; 17.44	9/16/93	29.7 ± 1.3	1.12 ± 0.36	1.03 ± 0.10	1.34 ± 0.14	1.15 ± 0.05	0.038 ± 0.012	1.30 ± 0.19
	11.9; 19.17	2/15/94	40.9 ± 1.7	1.32 ± 0.09	±	±	1.11 ± 0.06	0.032 ± 0.003	
O-4	21.8; 16.85	9/16/93	29.2 ± 2.0	1.13 ± 0.26	0.41 ± 0.04	0.61 ± 0.07	1.13 ± 0.08	0.039 ± 0.009	1.49 ± 0.22
	11.8; 19.14	2/15/94	31.3 ± 1.5	1.25 ± 0.13	±	±	1.15 ± 0.05	0.040 ± 0.005	±
K-2**	(23.0, 1.17)	9/17/93	1.72 ± 0.09	0.89 ± 0.16	2.15 ± 0.12	1.02 ± 0.09	1.24 ± 0.09	0.517 ± 0.097	0.47 ± 0.05

*: ca. 100 m off the mouth of River Kuji, **: ca. 200 m above the mouth of River Kuji.

表6 海水中のトリウム濃度 (mBq/1000 l)

Table Concentration of Th isotopes in sea water collected from the Tokai coastal area.

Nuclide	Concentration	
	(mBq/1000 l)	(dpm/1000 l)
Th-232	9.83 ± 1.00	0.59 ± 0.06
Th-230	9.83 ± 1.00	0.59 ± 0.06
Th-228	36.7 ± 3.7	2.20 ± 0.22

Anal. volume : 1050 l.

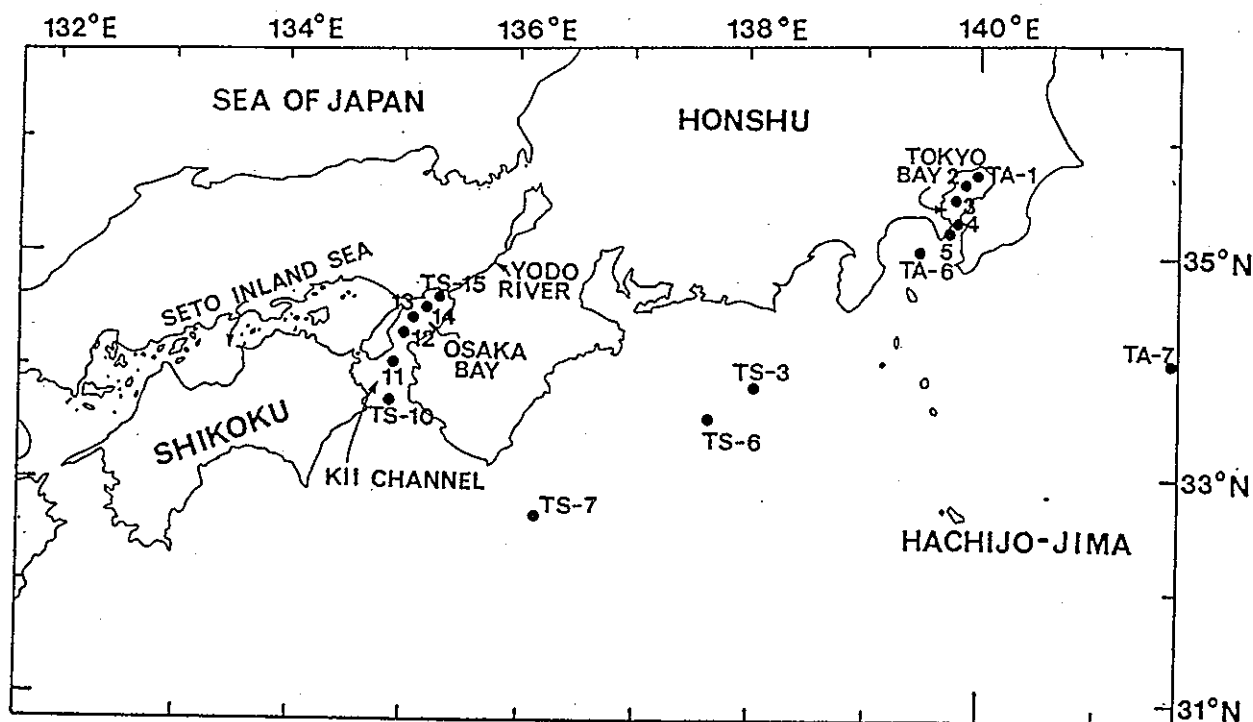


Fig. 1. Map of station locations at which ^{210}Pb and Ra isotopes were measured.

Table 1. ^{210}Pb , Ra isotope and hydrographic data obtained by the KT-86-16 R/V Tansei-Marui cruise

Sample No.	Latitude	Longitude	Depth (m)	Ra-226 dpm/1000L	Ra-228 dpm/1000L	Pb-210* dpm/1000L	Temp. °C	Salinity* ppt	Si* μM	P μM
TS-15S	34°38.5'N	135°20.4'E	0	161 ± 5	663 ± 26	39 ± 5	15.9	31.645	46.2	4.13
TS-15B	34°38.5'N	135°20.4'E	14	104 ± 5	449 ± 24	n.d.	16.7	32.398	41.8	4.31
TS-14S	34°33.0'N	135°14.7'E	0	127 ± 4	484 ± 17	30 ± 5	17.0	32.698	35.5	3.82
TS-14B	34°33.0'N	135°14.7'E	18	101 ± 5	374 ± 22	n.d.	17.8	32.986	33.9	3.69
TS-13S	34°26.9'N	135°08.0'E	0	120 ± 3	347 ± 15	30 ± 3	17.8	33.002	32.6	2.90
TS-13S	34°26.9'N	135°08.0'E	34	85 ± 4	367 ± 20	n.d.	17.9	32.999	34.2	4.32
TS-12S	34°21.0'N	135°02.1'E	0	91 ± 4	331 ± 17	32 ± 3	17.8	33.145	33.9	3.63
TS-12B	34°21.0'N	135°02.1'E	39	87 ± 3	307 ± 14	n.d.	18.0	33.261	33.6	3.51
TS-11S	34°11.7'N	134°57.1'E	0	81 ± 4	182 ± 15	40 ± 4	18.5	33.805	28.6	2.25
TS-10S	34°00.2'N	134°53.0'E	0	77 ± 4	151 ± 13	42 ± 4	18.5	33.942	27.3	1.96
TS-7S	32°52.7'N	136°05.2'E	0	59 ± 3	25 ± 9	176 ± 9	21.8	34.483	41.1	0.42
TS-6S	33°36.0'N	137°31.9'E	0	61 ± 3	3 ± 9**	209 ± 10	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.
TS-3S	33°37.4'N	137°33.4'E	0	56 ± 3	19 ± 9	202 ± 10	23.3	34.603	16.9	0.33

*n.d. = not determined. **value doubtful

Table 2. ^{210}Pb , Ra isotope and salinity data for the surface waters in Tokyo Bay mixing zone obtained by the KT-86-3 R/V Tansei-Marui cruise

Station	Latitude	Longitude	Ra-226 dpm/1000L	Ra-228 dpm/1000L	Pb-210 dpm/1000L	Salinity ppt
TA-1	35°34.5'N	139°54.9'E	89 ± 3	55 ± 9	45 ± 9	26.533
TA-2	35°28.2'N	139°51.6'E	95 ± 3	77 ± 8	27 ± 4	21.594
TA-3	35°21.7'N	139°46.8'E	80 ± 2	51 ± 5	30 ± 6	29.905
TA-4	35°13.8'N	139°47.7'E	89 ± 3	48 ± 7	19 ± 4	31.428
TA-5	35°10.0'N	139°42.7'E	83 ± 1	42 ± 4	50 ± 10	32.184
TA-6	34°59.9'N	139°28.9'E	96 ± 2	31 ± 5	83 ± 8	33.957
TA-7	34°00.2'N	141°55.1'E	60 ± 1	20 ± 2	207 ± 14	34.410

Geochemical Journal, 23(1989)129.

表 7(参) 野崎らの大阪湾及び東京湾の海水中の Ra 同位体と Pb-210 濃度

表 8 (参) 大久保らの瀬戸内海の海水中の Th-232 と Th-228 濃度

Table 4 ^{232}Th and ^{228}Th concentrations of water samples from the Seto Inland Sea.

Doctor's thesis (T.Okubo)

Sample	^{232}Th (dpm / 1000 l)	^{228}Th	$^{228}\text{Th} / ^{232}\text{Th}$ activity ratio	$^{228}\text{Th} / ^{228}\text{Ra}$ activity ratio	Residence time (days)
Kii Channel					
F781-1 (Mar.)	0.5 ± 0.1	13.9 ± 0.6	28 ± 6	0.11 ± 0.02	120 ± 20
KT791-13 (Jan.)	LTD*	3.0 ± 0.2	—	0.17 ± 0.05	200 ± 70
Osaka Bay					
F791-6 (Mar.)	2.2 ± 0.2	15.9 ± 0.6	7.2 ± 0.7	0.041 ± 0.003	43 ± 3
Harima Nada					
F781-2 (Mar.)	0.1 ± 0.09	28.3 ± 1.0	—	0.078 ± 0.005	85 ± 6
F782-1 (Jul.)	0.5 ± 0.3	42.3 ± 1.6	85 ± 51	0.12 ± 0.007	139 ± 9
KT791-11 (Jan.)	1.1 ± 0.1	11.0 ± 0.4	10 ± 1	0.031 ± 0.003	32 ± 3
F792-1 (Jul.)	0.3 ± 0.04	4.2 ± 0.2	14 ± 2	0.013 ± 0.001	13 ± 1
Hiuchi Nada					
KT791-7 (Jan.)	2.0 ± 0.2	13.1 ± 0.5	6.6 ± 0.7	0.018 ± 0.001	18 ± 2
F791-5 (Mar.)	0.7 ± 0.1	18.3 ± 0.8	26 ± 4	0.026 ± 0.002	27 ± 2
F792-2 (Jul.)	0.7 ± 0.1	17.4 ± 0.8	25 ± 4	0.022 ± 0.001	22 ± 2
Iyo Nada					
KT791-3 (Jan.)	1.1 ± 0.1	7.8 ± 0.3	7.1 ± 0.7	0.025 ± 0.002	26 ± 2
F791-4 (Mar.)	0.7 ± 0.09	10.6 ± 0.4	15 ± 2	0.041 ± 0.004	43 ± 4
F792-3 (Jul.)	0.7 ± 0.06	5.6 ± 0.2	8.0 ± 0.7	0.018 ± 0.001	18 ± 2
Suo Nada					
F782-2 (Jul.)	0.3 ± 0.09	20.9 ± 0.6	70 ± 21	0.062 ± 0.003	67 ± 4
F792-4 (Jul.)	0.5 ± 0.06	4.6 ± 0.2	9.2 ± 1.2	0.014 ± 0.001	15 ± 1
Bungo Channel					
KT791-1 (Jan.)	0.1 ± 0.05	3.2 ± 0.2	32 ± 16	0.18 ± 0.008	220 ± 120

Errors are standard deviations calculated from counting statistics.

*LTD: less than detectable.

6.3. 海洋生物

6.3.1. ウラン

天然に存在する U には、質量数 238, 235, 234 の 3 つの同位体がある。地殻中の U 濃度は 3 ppm であり、岩石の風化の際、炭酸ウラニルイオン ($UO_2(CO_3)_2^{4-}$) を形成して溶解し、河川を通じて海へ流入する。 ^{234}U は ^{238}U の α 反跳効果により、溶けやすくなっており、海水中の $^{234}U/^{238}U$ 放射能比は 1.14 と 1 を越えている。外洋水中での U は塩分 35 ‰ で $3.3 \mu\text{g}/\ell$ ($40.8 \text{ mBq}/\ell$) と一定であり、海水中の懸濁粒子によって効果的に除去されることはなく、保存成分とみなされている。しかし還元的な雰囲気の中では IV 価に還元され、水和酸化物などをつくり除去される。

今回測定した生物の ^{238}U および ^{234}U データを他の核種データと共にまとめて表 9, 10 に示した。また $^{234}U/^{238}U$ 放射能比は表 11 に示した。新鮮重量当りの ^{238}U 濃度 (表 9) で見ると、カレイやヒラメの筋肉が 9 ~ 17 (平均 12.1 ± 3.2) $\text{mBq}/\text{kg wet}$ で最も低く、シラス 11 ~ 31 (平均 21.7 ± 5.9) $\text{mBq}/\text{kg wet}$, 平貝 65 ~ 145 (平均 92.6 ± 21.0) $\text{mBq}/\text{kg wet}$, 海藻のアラメ 360 ~ 790 (平均 545 ± 146) $\text{mBq}/\text{kg wet}$ の順に濃度が高くなっている。同じ生物種間の U 濃度の地域差はないと言ってよい。日本近海の海洋生物の U 濃度に関する報告例は極めて少ないが、最近石井らが北海道から沖縄に至る日本沿岸から採取した 55 種の生物について ICP-MS を用いて測定した ^{238}U 濃度を報告している。それらの結果を表 13.1(参) ~ 13.3(参) に示すが、魚類の値はここで測定したシラスやカレイ (ヒラメ) などの値とよく一致している。平貝の値は石井らの測定した二枚貝や巻貝の U 濃度と比べてやや低い値を示すが、魚肉とくらべて高い傾向は共通している。海藻類については、石井らは測定した大部分の試料で 3000 ~ 7000 $\text{mBq}/\text{kg dry}$ の値を見い出しており、今回のアラメの濃度 3000 ~ 5700 $\text{mBq}/\text{kg dry}$ (表 10) とよく一致している。 $^{234}U/^{238}U$ 放射能比は表 11 に示すように生物種間で差はなく、平均で 1.12 ~ 1.14 の範囲にあり、海水の 1.13 と一致する。一部の試料 (アラメ) で ^{235}U も検出でき ^{238}U との放射能比は 0.043 ~ 0.050 で天然の $^{235}U/^{238}U$ 放射能比 0.046 と変わらない。

6.3.2. トリウム

天然に存在するトリウムには質量数 234, 232, 231, 230, 228, 227 の 6 つの同位体があるが、放射能的に存在量の少ないアクチニウム系列を除くと ^{234}Th , ^{232}Th , ^{230}Th , ^{228}Th の 4 核種が海洋関係でそれらの供給源がすべて異なるために興味ある核種である。

地殻中のトリウム濃度はウラン濃度の 3 ~ 4 倍の 10 ppm であるが、難溶性であり、水和酸化物を作りやすいために海水中では迅速に沈降除去される。したがって、海水中の ^{232}Th 濃度は極めて低く、平均的な濃度は $1 \times 10^{-4} \mu\text{g}/\ell$ 、放射能濃度で 0.024 dpm / 1000 ℓ (0.4 mBq/1000 ℓ) と報告されている。表 9 に示した新鮮重量当りで ^{232}Th 濃度を見ると、カレイ (ヒラメ) は 1.2 ~ 5.0 (平均 2.7 ± 1.2) mBq/kg wet, シラスは 1.7 ~ 7.4 (平均 3.7 ± 2.0) mBq/kg wet で両者はほぼ同じレベルにあり、アラメは 1.3 ~ 17.8 (平均 6.1 ± 5.3) mBq/kg wet, 平貝は 14 ~ 59 (平均 32 ± 13) mBq/kg wet でやや高い。山本等は 1989 年 9 月に石川県の能登沿岸の 5 地点で採取したサザエについて筋肉と内臓について ^{232}Th 分析を行い、平均濃度としてそれぞれ 73 ± 6 mBq/kg wet, 110 ± 20 mBq/kg wet の値を得ている。こうして見ると貝類については、分析試料に砂が少し混入している点は否めないが、他の海産物より幾分高い傾向にあるように見える。表 11 に示した Th 同位体比については、 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 比は、いずれの生物種も 1 に近い値になっている。この比は上記した海水中の比とほぼ等しい。一方 $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 比は、 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 比と異なって、アラメやカレイで明らかに 1 以上の 4 ~ 3 前後の高い値になっている。海水中のこの比は約 4 であるが、生物については直接 ^{228}Th をとり込む (この量は非常に少ないであろう) ほかに ^{228}Th の親である ^{228}Ra を取り込む。 ^{228}Ra から生成してくる ^{228}Th の寄与が大であるので、単純に議論することは危険であるが、生物の ^{228}Th を直接取り込む量が無視できるならば、この ^{228}Ra と ^{228}Th を用いて生物の年齢の推定が可能であり、 ^{228}Th は興味ある核種である。

6.3.3. ラジウム

天然のラジウム同位体のうち、ウラン系列に属する ^{226}Ra ($T_{1/2} = 1600 \text{ y}$) とトリウム系列に属する ^{228}Ra ($T_{1/2} = 5.76 \text{ y}$) は、海水中では ^{226}Ra および ^{228}Ra の先行核である ^{230}Th および ^{232}Th が難溶性であるため Th と比べてかなり過剰に存在している。アルカリ土類金属であるラジウムは、海水中ではイオンが安定である。海水中の ^{226}Ra 定量研究はかなり多く、大洋表層水ではほぼ均一で約 $5 \times 10^{-14} \text{ g Ra/l}$ (1.85 Bq/1000 l) であるが、深さともに増し、深海底近くでは海底土からの Ra の溶出拡散による供給をうけ 10^{-13} g Ra/l をやや超えるものもある。沿岸水の濃度は外洋水より高くなっており、 $2 \sim 3 \text{ Bq/1000 l}$ 程度の値が報告されている。一方、 ^{228}Ra については、一般に外洋表面水で低く、太平洋ではわずか数 dpm/1000 l である。沿岸海域では数 100 dpm/1000 l にも達する値が報告されており、大洋より濃度ははるかに高い。

表 9 に今回測定した結果をまとめて示したが、この表にみられるように海藻のアラメ中の ^{226}Ra 濃度 (平均 $137 \pm 41 \text{ mBq/kg wet}$) は平貝 (平均 $18.2 \pm 7.6 \text{ mBq/kg wet}$)、シラス (平均 $7.8 \pm 3.1 \text{ mBq/kg wet}$)、そしてカレイ (平均 $11 \pm 5 \text{ mBq/kg wet}$) に比べると約 10 倍高い値である。平貝、シラス、カレイの ^{226}Ra 濃度は大差ないので、Ra は海藻により親和性を示す元素だと言えるが、さらに石灰などの付着物について調べる必要がある。山本は以前石川県の能登沿岸の 5 地点で採取したサザエについて ^{226}Ra 濃度を測定した結果として筋肉で $15 \sim 53 \text{ mBq/kg}$ 生と内蔵で $30 \sim 115 \text{ mBq/kg wet}$ の値を報告しているが、筋肉の値は今回の平貝の値に比べて大きな差は見られない。

6.3.4. 鉛-210 とポロニウム-210

^{210}Pb と ^{210}Po はウラン系列の末端に位置する半減期のかなり長い核種である。地殻中の岩石には ^{238}U もしくは ^{226}Ra 放射能とほぼ等しい放射能で存在しているが、一部のラドンが地表から大気中に揮散するため、その娘核種として地上あるいは海上に降下してくる。降下量は、空間的、時間的にかなり変動する。表層海水への ^{210}Pb 供給源は大部分は大気からのフォールアウトによる。一方 ^{210}Po は大気からの供給が少ないので、ほとんどが海水中の ^{210}Pb から成長したものである。海水中には ^{226}Ra が存在しているので、深海ではこの ^{226}Ra から ^{210}Pb が供給される。海水中の Pb, Po は Th と同様に安定な溶存イオン種を持たず周囲の粒子に吸着あるいは取り込まれるなどして迅速に沈降除去される。沿岸海水中の ^{210}Po 濃度は約 1 mBq/l 程度であろうと考えられている。今回測定した東海村沿岸海水中の ^{210}Po 濃度もそれに近い値を見出した。一方 ^{210}Pb については 0.5 ~ 1 mBq/l の値がこの海域で見いだされた。海洋生物中の ^{210}Po 濃度については、この核種が生物に高濃度に蓄積されるため、自然放射性核種による海洋生物への主要な放射線被曝源としてのみならず海産物を通じての人間への被曝線量を評価する上からも最近多くの研究が行われるようになった。

表 9 に今回測定した ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度をまとめて示したが、特に ^{210}Po 濃度の単位が mBq ではなく、Bq であることに留意されたい。表からわかるように ^{210}Po 濃度は ^{40}K 濃度について多く、アラメ (平均 2.5 ± 0.6 Bq/kg wet), カレイ (平均 4.3 ± 1.4 Bq/kg wet) で低く、平貝 (平均 40 ± 15 Bq/kg wet) とシラス (平均 47 ± 16 Bq/kg wet) でやや高くなっている。 ^{210}Pb 濃度は、平貝が平均 4.17 ± 10 mBq/kg wet で他のアラメ、シラス、カレイよりも 2 ~ 2.5 倍高い傾向にある。シラス、カレイ、ヒラメの ^{210}Pb 濃度は、ほぼ同等である。 $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 比は、アラメで 16 ± 6 , カレイで 33 ± 14 , 平貝で 96 ± 36 , シラスで 372 ± 40 となっており、生物種でこの比がかなり異なっている。ここで測定した ^{210}Po と ^{210}Pb 濃度は以前山本等が東北沿岸に生息する海洋生物約 30 種を分析して得られた結果 (付録参照) と比べて大きな差は見られず、生物種によるこれら核種の蓄積傾向がよく類似していることがわかった。

6.3.5. カリウム-40

K は生物にとって必須元素の 1 つである。同種の生物では ^{40}K 濃度に大きな違いはない。生物種間では幾分異なっているが海洋生物に最も高い濃度で取り込まれている核種である。

6.3.6. セシウム-137

日本近海の海産生物中で検出される ^{137}Cs は、ほとんど 100 % が大気圏内核実験からのフォールアウトである。この核種についてはすでに多くの調査研究が行われており、今回測定した生物の ^{137}Cs レベルは、たとえば福井県や石川県で原子力発電所周辺海域で採取している生物種に対して検出されている値と比べて大差ない。ただ生物の測定については、その直接測定がかなり困難になりつつあるように思われる。

参考のため、生物種毎の放射性核種濃度を表 12.1 から 表 12.4 に示した。

表9 海産生物の新鮮重量当りの放射性核種濃度 (Bq, mBq/kg wet) のまとめ

Table Radionuclide Concentration on a basis of wet weight in Marine organisms

Sampling station	Sampling date	Dry (%)	Concentration (Bq/kg or mBq/kg wet weight $\pm 1\sigma$ ***)						
			K-40 (Bq/kg wet)	Th-232 (mBq/kg wet)	U-238 (mBq/kg wet)	Ra-226 (mBq/kg wet)	Pb-210 (mBq/kg wet)	Po-210 (Bq/kg wet)	Cs-137 (mBq/kg wet)
<i>Arame</i>									
Kujihama	7/3/92	17.5	248 \pm 2	5.12 \pm 0.53	415 \pm 22	117 \pm 9	128 \pm 12	1.46 \pm 0.10	89.3 \pm 15.8
	10/6/92	20.6	278 \pm 2	6.61 \pm 0.82	750 \pm 46	233 \pm 10	214 \pm 19	3.21 \pm 0.33	117 \pm 23
	1/7/93	10.9	106 \pm 1	8.61 \pm 1.20	625 \pm 73	155 \pm 11	153 \pm 31	2.67 \pm 0.27	52.9 \pm 10.4
Isozaki	4/8/93	12.3	303 \pm 2	1.97 \pm 0.37	428 \pm 54	97.2 \pm 7.4	191 \pm 15	1.34 \pm 0.16	53.8 \pm 10.3
	7/4/92	15.2	126 \pm 1	17.8 \pm 1.2	598 \pm 41	155 \pm 11	233 \pm 19	2.94 \pm 0.23	62.3 \pm 9.1
	10/11/92	20.3	267 \pm 2	13.1 \pm 1.0	516 \pm 22	134 \pm 9	210 \pm 17	2.67 \pm 0.22	126 \pm 22
	1/20/93	10.8	247 \pm 1	1.30 \pm 0.32	361 \pm 30	87.5 \pm 9.7	83.2 \pm 9.7	1.99 \pm 0.22	59.1 \pm 13.8
Oarai	4/16/93	15.9	282 \pm 2	1.91 \pm 0.32	607 \pm 62	121 \pm 8	156 \pm 16	2.64 \pm 0.29	88.6 \pm 16.7
	8/27/92	23.6	178 \pm 2	6.34 \pm 0.71	541 \pm 28	128 \pm 9	267 \pm 19	3.00 \pm 0.31	142 \pm 17
	3/11/93	14.3	233 \pm 2	2.15 \pm 0.57	365 \pm 30	112 \pm 13	102 \pm 14	2.86 \pm 0.44	71.5 \pm 13.2
5/25/93	16.0	320 \pm 2	2.24 \pm 0.48	790 \pm 66	173 \pm 16	142 \pm 13	2.29 \pm 0.29	145 \pm 14	
Ave. ± 1 s.d.			235 \pm 70	6.10 \pm 5.30	545 \pm 146	137 \pm 41	171 \pm 57	2.46 \pm 0.62	91.5 \pm 35.2
<i>Hiragai</i>									
Kujihama	7/7/92	13.5	57.7 \pm 0.7	26.3 \pm 1.6	91.9 \pm 4.1	15.5 \pm 1.2	418 \pm 25	20.5 \pm 1.8	43.2 \pm 6.8
	11/16/92*	23.7	43.9 \pm 1.0	40.8 \pm 3.3	88.7 \pm 3.7	11.1 \pm 0.7	n.a.	n.a.	28.4 \pm 4.7
Isozaki	5/12/93	29.2	59.0 \pm 0.7	22.8 \pm 1.8	98.7 \pm 5.8	18.1 \pm 1.5	420 \pm 32	54.3 \pm 5.8	39.4 \pm 9.6
	7/16/92	9.5	41.1 \pm 0.7	27.3 \pm 2.5	65.2 \pm 2.1	13.8 \pm 1.0	343 \pm 25	23.2 \pm 1.9	40.8 \pm 6.6
	12/1/92	26.7	44.1 \pm 0.7	24.2 \pm 2.1	71.5 \pm 3.0	11.7 \pm 0.8	272 \pm 21	44.1 \pm 5.1	45.4 \pm 8.0
Oarai	2/2/93	27.9	44.2 \pm 0.6	13.7 \pm 1.1	87.0 \pm 4.2	22.9 \pm 1.7	424 \pm 31	53.0 \pm 5.9	25.4 \pm 5.9
	5/14/93	30.3	71.7 \pm 0.5	48.2 \pm 5.2	141 \pm 5	30.6 \pm 1.8	597 \pm 36	52.4 \pm 5.5	37.3 \pm 7.6
	7/6/92	14.5	65.0 \pm 0.8	59.3 \pm 4.8	116 \pm 4	15.0 \pm 1.5	323 \pm 28	16.0 \pm 1.5	43.5 \pm 8.7
	11/19/92	25.8	53.0 \pm 0.6	25.3 \pm 2.6	89.0 \pm 3.8	17.1 \pm 2.1	392 \pm 31	41.8 \pm 4.6	43.9 \pm 7.7
	1/13/93	27.0	43.3 \pm 0.5	29.2 \pm 4.9	77.8 \pm 4.1	11.3 \pm 1.1	556 \pm 27	50.0 \pm 5.1	27.5 \pm 7.6
5/13/93	26.8	55.6 \pm 0.6	38.3 \pm 6.7	92.2 \pm 9.1	33.2 \pm 2.1	429 \pm 38	41.8 \pm 4.3	54.7 \pm 5.9	
Ave. ± 1 s.d.			52.6 \pm 10.2	32.3 \pm 13.1	92.6 \pm 21.0	18.2 \pm 7.6	417.4 \pm 98.8	39.7 \pm 14.5	39.0 \pm 8.8
<i>Shitasu</i>									
Tokai	7/20/92	15.6	112 \pm 1	1.77 \pm 0.47	15.6 \pm 0.4	6.4 \pm 0.6	79.3 \pm 7.5	24.0 \pm 2.1	123 \pm 6
	10/16/92	14.4	105 \pm 1	2.21 \pm 0.43	25.4 \pm 1.1	7.8 \pm 0.7	156 \pm 12	32.4 \pm 2.0	112 \pm 12
	3/12/93	18.9	98.9 \pm 0.6	4.91 \pm 0.76	22.5 \pm 1.9	7.2 \pm 0.9	287 \pm 17	55.8 \pm 5.9	190 \pm 11
Isozaki	6/1/93	17.2	112 \pm 1	3.27 \pm 0.86	22.9 \pm 1.4	13.6 \pm 1.0	120 \pm 9	65.9 \pm 5.2	164 \pm 10
	7/20/92	16.7	120 \pm 1	2.59 \pm 0.33	17.8 \pm 0.9	4.8 \pm 0.5	86.0 \pm 6.5	26.6 \pm 2.1	134 \pm 8
	10/7/92	16.5	112 \pm 1	2.93 \pm 0.50	30.6 \pm 0.6	5.9 \pm 0.7	129 \pm 11	39.7 \pm 3.0	94.1 \pm 11.6
	5/28/93	16.4	99.1 \pm 1.0	4.10 \pm 0.66	24.6 \pm 2.0	8.9 \pm 0.7	317 \pm 33	69.0 \pm 7.9	136 \pm 9
Oarai	10/1/92	17.3	125 \pm 1	6.40 \pm 0.52	19.0 \pm 1.0	4.5 \pm 0.5	139 \pm 14	47.3 \pm 3.8	84.8 \pm 12.1
	3/1/93	17.5	99.1 \pm 0.9	7.35 \pm 0.88	27.5 \pm 1.4	12.4 \pm 1.6	98.0 \pm 8.8	55.3 \pm 5.6	210 \pm 16
	5/19/93	16.7	108 \pm 1	1.67 \pm 0.33	11.0 \pm 1.2	6.2 \pm 0.8	207 \pm 15	57.1 \pm 6.0	145 \pm 8
Ave. ± 1 s.d.		109 \pm 9	3.72 \pm 1.95	21.7 \pm 5.9	7.76 \pm 3.07	162 \pm 83	47.3 \pm 16.0	139 \pm 40	
<i>Karei</i>									
Tokai	11/4/92	25.0	139 \pm 1	1.94 \pm 0.25	13.0 \pm 0.6	8.7 \pm 1.0	101 \pm 8	4.65 \pm 0.40	138 \pm 10
	1/22/93	21.3	113 \pm 1	2.98 \pm 0.64	15.5 \pm 1.3	16.0 \pm 1.3	211 \pm 21	5.90 \pm 0.66	165 \pm 11
	4/22/93	20.4	115 \pm 1	n.d.	11.8 \pm 0.6	15.9 \pm 1.4	208 \pm 18	6.28 \pm 0.71	195 \pm 14
Isozaki	8/27/92	21.8	116 \pm 1	1.96 \pm 0.44	9.23 \pm 0.54	7.3 \pm 0.9	72.6 \pm 6.1	3.86 \pm 0.33	164 \pm 13
	10/13/92**	22.8	143 \pm 2	2.34 \pm 0.46	10.0 \pm 0.5	7.2 \pm 1.1	48.9 \pm 3.9	2.36 \pm 0.21	232 \pm 16
Oarai	4/28/93	17.6	91.5 \pm 0.4	3.98 \pm 1.41	17.2 \pm 0.9	19.9 \pm 1.6	157 \pm 19	2.97 \pm 0.44	165 \pm 5
	12/11/92**	14.6	129 \pm 1	2.22 \pm 0.29	13.7 \pm 0.8	7.5 \pm 0.7	n.a.	n.a.	164 \pm 12
	1/21/93	20.4	91.6 \pm 0.6	1.22 \pm 0.20	6.73 \pm 0.41	6.9 \pm 0.8	251 \pm 14	5.18 \pm 0.51	219 \pm 8
4/12/93	22.8	97.6 \pm 0.9	5.02 \pm 0.91	11.9 \pm 0.9	13.0 \pm 1.8	155 \pm 21	3.17 \pm 0.36	223 \pm 16	
Ave. ± 1 s.d.			115 \pm 19	2.71 \pm 1.24	12.1 \pm 3.2	11.4 \pm 4.9	150 \pm 72	4.30 \pm 1.43	185 \pm 33

*: Hamaguri, **: Hiramé, ***: One standard deviation of counting statistics.

表 10 海産生物の乾燥重量当りの放射性核種濃度 (Bq/kg dry) のまとめ

Table Radionuclide Concentration on a basis of dry weight in Marine organisms

Sampling station	Sampling date	Concentration (Bq/kg or mBq/kg dry weight $\pm 1\sigma$ ***)						
		K-40 (Bq/kg dry)	Th-232 (Bq/kg dry)	U-238 (Bq/kg dry)	Ra-226 (Bq/kg dry)	Pb-210 (Bq/kg dry)	Po-210 (Bq/kg dry)	Cs-137 (Bq/kg dry)
<i>Arame</i>								
Kujihama	7/3/92	1417 \pm 12	0.029 \pm 0.003	2.37 \pm 0.13	0.67 \pm 0.05	0.73 \pm 0.07	8.33 \pm 0.58	0.51 \pm 0.09
	10/6/92	1350 \pm 11	0.032 \pm 0.004	3.64 \pm 0.22	1.13 \pm 0.05	1.04 \pm 0.09	15.6 \pm 1.6	0.57 \pm 0.11
	1/7/93	969 \pm 9	0.079 \pm 0.011	5.73 \pm 0.67	1.42 \pm 0.10	1.40 \pm 0.28	24.5 \pm 2.5	0.49 \pm 0.10
Isozaki	4/8/93	2463 \pm 16	0.016 \pm 0.003	3.48 \pm 0.44	0.79 \pm 0.06	1.55 \pm 0.12	10.9 \pm 1.3	0.44 \pm 0.08
	7/4/92	828 \pm 6	0.117 \pm 0.008	3.93 \pm 0.27	1.02 \pm 0.07	1.54 \pm 0.13	19.3 \pm 1.5	0.41 \pm 0.06
	10/11/92	1313 \pm 11	0.065 \pm 0.005	2.54 \pm 0.11	0.66 \pm 0.05	1.03 \pm 0.08	13.1 \pm 1.1	0.62 \pm 0.11
Oarai	1/20/93	2284 \pm 13	0.012 \pm 0.003	3.34 \pm 0.28	0.81 \pm 0.09	0.77 \pm 0.09	18.4 \pm 2.0	0.55 \pm 0.13
	4/16/93	1776 \pm 10	0.012 \pm 0.002	3.82 \pm 0.39	0.76 \pm 0.05	0.98 \pm 0.10	16.6 \pm 1.8	0.56 \pm 0.11
	8/27/92	754 \pm 7	0.027 \pm 0.003	2.29 \pm 0.12	0.54 \pm 0.04	1.13 \pm 0.08	12.7 \pm 1.3	0.60 \pm 0.07
Ave. ± 1 s.d.	3/11/93	1628 \pm 11	0.015 \pm 0.004	2.55 \pm 0.21	0.78 \pm 0.09	0.71 \pm 0.10	20.0 \pm 3.1	0.50 \pm 0.09
	5/25/93	2000 \pm 11	0.014 \pm 0.003	4.94 \pm 0.41	1.08 \pm 0.10	0.89 \pm 0.08	14.3 \pm 1.8	0.90 \pm 0.09
<i>Hiragai</i>								
Kujihama	7/7/92	428 \pm 5	0.195 \pm 0.012	0.68 \pm 0.03	0.115 \pm 0.009	3.10 \pm 0.19	152 \pm 14	0.32 \pm 0.05
	11/16/92*	185 \pm 2	0.172 \pm 0.014	0.37 \pm 0.02	0.047 \pm 0.003	n.a.	n.a.	0.12 \pm 0.02
	5/12/93	202 \pm 2	0.078 \pm 0.006	0.34 \pm 0.02	0.062 \pm 0.005	1.44 \pm 0.11	186 \pm 20	0.14 \pm 0.03
Isozaki	7/16/92	433 \pm 7	0.287 \pm 0.026	0.69 \pm 0.02	0.145 \pm 0.011	3.61 \pm 0.26	245 \pm 20	0.43 \pm 0.07
	12/1/92	165 \pm 3	0.091 \pm 0.008	0.27 \pm 0.01	0.044 \pm 0.003	1.02 \pm 0.08	165 \pm 19	0.17 \pm 0.03
	2/2/93	158 \pm 2	0.049 \pm 0.004	0.31 \pm 0.02	0.082 \pm 0.006	1.52 \pm 0.11	190 \pm 21	0.09 \pm 0.02
Oarai	5/14/93	237 \pm 2	0.159 \pm 0.017	0.46 \pm 0.02	0.101 \pm 0.006	1.97 \pm 0.12	173 \pm 18	0.12 \pm 0.03
	7/6/92	448 \pm 6	0.409 \pm 0.033	0.80 \pm 0.03	0.103 \pm 0.010	2.23 \pm 0.19	110 \pm 11	0.30 \pm 0.06
	11/19/92	206 \pm 2	0.098 \pm 0.010	0.34 \pm 0.01	0.066 \pm 0.008	1.52 \pm 0.12	162 \pm 18	0.17 \pm 0.03
Ave. ± 1 s.d.	1/13/93	160 \pm 2	0.108 \pm 0.018	0.29 \pm 0.02	0.042 \pm 0.004	2.06 \pm 0.10	185 \pm 19	0.10 \pm 0.03
	5/13/93	208 \pm 2	0.143 \pm 0.025	0.34 \pm 0.03	0.124 \pm 0.008	1.60 \pm 0.14	156 \pm 16	0.20 \pm 0.02
<i>Shirasu</i>								
Tokai	7/20/92	720 \pm 5	0.011 \pm 0.003	0.100 \pm 0.003	0.041 \pm 0.004	0.51 \pm 0.05	154 \pm 13	0.79 \pm 0.04
	10/16/92	732 \pm 8	0.015 \pm 0.003	0.176 \pm 0.008	0.054 \pm 0.005	1.08 \pm 0.08	225 \pm 14	0.78 \pm 0.08
	3/12/93	524 \pm 3	0.026 \pm 0.004	0.119 \pm 0.010	0.038 \pm 0.005	1.52 \pm 0.09	295 \pm 31	1.00 \pm 0.06
Isozaki	6/1/93	650 \pm 3	0.019 \pm 0.005	0.133 \pm 0.008	0.079 \pm 0.006	0.70 \pm 0.05	383 \pm 30	0.95 \pm 0.06
	7/20/92	716 \pm 4	0.016 \pm 0.002	0.107 \pm 0.006	0.028 \pm 0.003	0.51 \pm 0.04	160 \pm 13	0.80 \pm 0.05
	10/7/92	677 \pm 8	0.018 \pm 0.003	0.185 \pm 0.004	0.036 \pm 0.004	0.78 \pm 0.07	241 \pm 18	0.57 \pm 0.07
Oarai	5/28/93	604 \pm 6	0.025 \pm 0.004	0.150 \pm 0.012	0.054 \pm 0.004	1.93 \pm 0.20	421 \pm 48	0.83 \pm 0.05
	10/1/92	721 \pm 7	0.037 \pm 0.003	0.110 \pm 0.006	0.026 \pm 0.003	0.80 \pm 0.08	274 \pm 22	0.49 \pm 0.07
	3/1/93	566 \pm 5	0.042 \pm 0.005	0.157 \pm 0.008	0.071 \pm 0.009	0.56 \pm 0.05	316 \pm 32	1.20 \pm 0.09
Ave. ± 1 s.d.	5/19/93	650 \pm 4	0.010 \pm 0.002	0.066 \pm 0.007	0.037 \pm 0.005	1.24 \pm 0.09	342 \pm 36	0.87 \pm 0.05
		656 \pm 72	0.022 \pm 0.011	0.130 \pm 0.037	0.046 \pm 0.018	0.96 \pm 0.48	281 \pm 89	0.83 \pm 0.20
<i>Karei</i>								
Tokai	11/4/92	555 \pm 4	0.008 \pm 0.001	0.052 \pm 0.002	0.035 \pm 0.004	0.40 \pm 0.03	18.6 \pm 1.6	0.55 \pm 0.04
	1/22/93	530 \pm 2	0.014 \pm 0.003	0.073 \pm 0.006	0.075 \pm 0.006	0.99 \pm 0.10	27.7 \pm 3.1	0.77 \pm 0.05
	4/22/93	563 \pm 4	n.d.	0.058 \pm 0.003	0.078 \pm 0.007	1.02 \pm 0.09	30.8 \pm 3.5	0.96 \pm 0.07
Isozaki	8/27/92	533 \pm 5	0.009 \pm 0.002	0.042 \pm 0.002	0.033 \pm 0.004	0.33 \pm 0.03	17.7 \pm 1.5	0.75 \pm 0.06
	10/13/92**	625 \pm 8	0.010 \pm 0.002	0.044 \pm 0.002	0.032 \pm 0.005	0.21 \pm 0.02	10.3 \pm 0.9	1.02 \pm 0.07
	4/28/93	520 \pm 2	0.023 \pm 0.008	0.098 \pm 0.005	0.113 \pm 0.009	0.89 \pm 0.11	16.9 \pm 2.5	0.94 \pm 0.03
Oarai	12/11/92**	882 \pm 7	0.015 \pm 0.002	0.094 \pm 0.006	0.051 \pm 0.005	n.a.	n.a.	1.12 \pm 0.08
	1/21/93	449 \pm 3	0.006 \pm 0.001	0.033 \pm 0.002	0.034 \pm 0.004	1.23 \pm 0.07	25.4 \pm 2.5	1.07 \pm 0.04
	4/12/93	428 \pm 4	0.022 \pm 0.004	0.052 \pm 0.004	0.057 \pm 0.008	0.68 \pm 0.09	13.9 \pm 1.6	0.98 \pm 0.07
Ave. ± 1 s.d.		565 \pm 133	0.013 \pm 0.006	0.061 \pm 0.023	0.056 \pm 0.028	0.72 \pm 0.37	20.2 \pm 7.1	0.91 \pm 0.18

*: Hamaguri, **: Hirame, ***: One standard deviation of counting statistics.

表 1 1 海産生物の放射性核種間の放射能比

Table Activity ratios among radionuclides in marine organisms collected from Tokai coastal areas

Sampling station	Sampling date	U-234	Th-230	Ra-226	Po-210	Th-230	Th-228	U-238
		U-238	U-238	U-238	Pb-210	Th-232	Th-232	Th-232
<i>Arame</i>								
Kujihama	7/3/92	1.14 ± 0.09	0.013 ± 0.002	0.28 ± 0.03	11 ± 1	1.05 ± 0.15	4.05 ± 0.54	81 ± 9
	10/6/92	1.12 ± 0.08	0.010 ± 0.002	0.31 ± 0.02	15 ± 2	1.14 ± 0.19	5.68 ± 0.76	113 ± 16
Isozaki	1/7/93	1.12 ± 0.05	0.017 ± 0.004	0.25 ± 0.03	18 ± 4	1.22 ± 0.19	6.12 ± 0.71	73 ± 13
	4/8/93	1.06 ± 0.06	0.007 ± 0.002	0.23 ± 0.03	7 ± 1	1.63 ± 0.26	3.91 ± 0.8	218 ± 49
	7/4/92	1.16 ± 0.06	0.027 ± 0.004	0.26 ± 0.03	13 ± 1	0.92 ± 0.09	3.93 ± 0.5	34 ± 3
	10/11/92	1.08 ± 0.07	0.027 ± 0.004	0.26 ± 0.02	13 ± 1	1.07 ± 0.11	5.82 ± 0.64	39 ± 3
Oarai	1/20/93	1.18 ± 0.04	0.006 ± 0.002	0.24 ± 0.03	24 ± 4	1.64 ± 0.25	7.22 ± 0.98	278 ± 73
	4/16/93	1.16 ± 0.04	0.006 ± 0.002	0.20 ± 0.02	17 ± 3	1.76 ± 0.37	4.40 ± 0.86	318 ± 62
	8/27/92	1.14 ± 0.08	0.013 ± 0.002	0.24 ± 0.02	11 ± 1	1.09 ± 0.16	4.37 ± 0.57	85 ± 11
	3/11/93	1.17 ± 0.40	0.006 ± 0.003	0.31 ± 0.04	28 ± 6	1.00 ± 0.33	4.43 ± 0.83	170 ± 47
	5/25/93	1.09 ± 0.06	0.003 ± 0.001	0.22 ± 0.03	16 ± 2	1.05 ± 0.34	2.42 ± 0.55	353 ± 81
	Ave. ± 1 s.d.	1.13 ± 0.04	0.012 ± 0.008	0.25 ± 0.04	16 ± 6	1.23 ± 0.30	4.76 ± 1.33	160 ± 115
<i>Hiragai</i>								
Kujihama	7/7/92	1.17 ± 0.07	0.20 ± 0.03	0.17 ± 0.02	49 ± 5	0.71 ± 0.08	1.16 ± 0.12	3.50 ± 0.27
	11/16/92*	1.12 ± 0.07	0.50 ± 0.07	0.13 ± 0.01		1.08 ± 0.12	1.36 ± 0.15	2.18 ± 0.20
Isozaki	5/12/93	1.05 ± 0.05	0.24 ± 0.03	0.18 ± 0.02	129 ± 17	1.03 ± 0.10	2.02 ± 0.17	4.33 ± 0.42
	7/16/92	1.09 ± 0.05	0.39 ± 0.05	0.21 ± 0.02	68 ± 7	0.92 ± 0.08	1.22 ± 0.15	2.39 ± 0.23
	12/1/92	1.16 ± 0.07	0.26 ± 0.04	0.16 ± 0.01	162 ± 23	0.77 ± 0.10	1.11 ± 0.12	2.95 ± 0.29
	2/2/93	1.07 ± 0.04	0.13 ± 0.02	0.26 ± 0.02	125 ± 17	0.85 ± 0.11	1.91 ± 0.19	6.37 ± 0.60
Oarai	5/14/93	1.18 ± 0.04	0.33 ± 0.06	0.22 ± 0.02	88 ± 11	0.96 ± 0.15	2.10 ± 0.28	2.92 ± 0.33
	7/6/92	1.09 ± 0.05	0.44 ± 0.05	0.13 ± 0.01	49 ± 6	0.87 ± 0.07	1.18 ± 0.12	1.96 ± 0.17
	11/19/92	1.15 ± 0.07	0.25 ± 0.05	0.19 ± 0.02	107 ± 14	0.87 ± 0.13	1.91 ± 0.24	3.52 ± 0.39
	1/13/93	1.10 ± 0.05	0.23 ± 0.05	0.15 ± 0.02	90 ± 10	0.62 ± 0.09	1.15 ± 0.17	2.67 ± 0.47
	5/13/93	1.12 ± 0.07	0.35 ± 0.12	0.36 ± 0.04	98 ± 13	0.85 ± 0.22	1.20 ± 0.27	2.41 ± 0.48
	Ave. ± 1 s.d.	1.12 ± 0.04	0.30 ± 0.11	0.20 ± 0.07	96 ± 36	0.87 ± 0.13	1.48 ± 0.41	3.20 ± 1.26
<i>Shirasu</i>								
Tokai	7/20/92	1.12 ± 0.04	0.15 ± 0.06	0.41 ± 0.04	303 ± 39	1.33 ± 0.44	4.18 ± 1.14	8.82 ± 2.35
	10/16/92	1.14 ± 0.07	0.10 ± 0.03	0.31 ± 0.03	208 ± 20	1.13 ± 0.29	1.03 ± 0.24	11.5 ± 2.3
	3/12/93	1.11 ± 0.80	0.29 ± 0.08	0.32 ± 0.05	194 ± 23	1.33 ± 0.28	1.31 ± 0.27	4.58 ± 0.80
Isozaki	6/1/93	1.12 ± 0.06	0.17 ± 0.07	0.59 ± 0.06	547 ± 58	1.21 ± 0.38	2.38 ± 0.7	7.00 ± 1.89
	7/20/92	1.16 ± 0.08	0.20 ± 0.04	0.27 ± 0.03	310 ± 34	1.36 ± 0.22	1.77 ± 0.26	6.86 ± 0.95
	10/7/92	1.15 ± 0.03	0.12 ± 0.03	0.19 ± 0.02	307 ± 35	1.25 ± 0.27	1.40 ± 0.26	10.4 ± 1.8
Oarai	5/28/93	1.14 ± 0.07	0.13 ± 0.04	0.36 ± 0.04	218 ± 34	0.77 ± 0.20	2.26 ± 0.48	6.00 ± 1.07
	10/1/92	1.16 ± 0.06	0.38 ± 0.06	0.24 ± 0.03	341 ± 44	1.12 ± 0.14	0.94 ± 0.09	2.97 ± 0.29
	3/1/93	1.15 ± 0.05	0.26 ± 0.06	0.45 ± 0.06	564 ± 76	0.97 ± 0.20	1.96 ± 0.23	3.74 ± 0.48
	5/19/93	1.15 ± 0.05	0.19 ± 0.07	0.56 ± 0.10	276 ± 35	1.23 ± 0.33	1.64 ± 0.35	6.60 ± 1.49
	Ave. ± 1 s.d.	1.14 ± 0.02	0.20 ± 0.09	0.37 ± 0.13	327 ± 40	1.17 ± 0.18	1.89 ± 0.94	6.85 ± 2.76
<i>Karei</i>								
Tokai	11/4/92	1.07 ± 0.07	0.15 ± 0.04	0.67 ± 0.08	46 ± 5	1.03 ± 0.19	4.06 ± 0.56	6.70 ± 0.92
	1/22/93	1.15 ± 0.06	0.21 ± 0.08	1.03 ± 0.12	28 ± 4	1.07 ± 0.31	4.17 ± 0.98	5.21 ± 1.20
	4/22/93	1.11 ± 0.05		1.34 ± 0.14	30 ± 4			
Isozaki	8/27/92	1.08 ± 0.08	0.24 ± 0.09	0.79 ± 0.10	53 ± 6	1.11 ± 0.33	2.60 ± 0.62	4.71 ± 1.08
	10/13/92**	1.20 ± 0.08	0.29 ± 0.09	0.72 ± 0.12	48 ± 6	1.25 ± 0.31	3.47 ± 0.7	4.28 ± 0.86
	4/28/93	1.10 ± 0.09	0.15 ± 0.08	1.15 ± 0.11	19 ± 4	0.65 ± 0.26	1.55 ± 0.57	4.34 ± 1.55
Oarai	12/11/92**	1.11 ± 0.08	0.18 ± 0.04	0.55 ± 0.06		1.12 ± 0.20	1.85 ± 0.28	6.19 ± 0.90
	1/21/93	1.08 ± 0.06	0.15 ± 0.03	1.03 ± 0.14	21 ± 2	0.80 ± 0.11	4.18 ± 0.74	5.50 ± 0.98
	4/12/93	1.18 ± 0.07	0.39 ± 0.14	1.10 ± 0.18	20 ± 4	0.91 ± 0.28	2.25 ± 0.47	2.36 ± 0.47
	Ave. ± 1 s.d.	1.12 ± 0.05	0.22 ± 0.08	0.93 ± 0.26	33 ± 14	0.99 ± 0.19	3.02 ± 1.09	4.91 ± 1.34

*: Hamaguri, **: Hirame, ***: One standard deviation of counting statistics.

表 1 2.1 アラメ試料中の放射性核種濃度

Table Marine algae (Arame, Kajime, Hijiki)

Sampling site	Sampling date	Concentration (Bq/kg dry weight $\pm 1\sigma^*$)						
		K-40	Th-232	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210	Cs-137
<i>Arame</i>								
	7/3/92	1417 \pm 12	0.029 \pm 0.003	2.37 \pm 0.13	0.67 \pm 0.05	0.73 \pm 0.07	8.33 \pm 0.58	0.51 \pm 0.09
Kujihama	10/6/92	1350 \pm 11	0.032 \pm 0.004	3.64 \pm 0.22	1.13 \pm 0.05	1.04 \pm 0.09	15.6 \pm 1.6	0.57 \pm 0.11
	1/7/93	969 \pm 9	0.079 \pm 0.011	5.73 \pm 0.67	1.42 \pm 0.10	1.40 \pm 0.28	24.5 \pm 2.5	0.49 \pm 0.10
	4/8/93	2463 \pm 16	0.016 \pm 0.003	3.48 \pm 0.44	0.79 \pm 0.06	1.55 \pm 0.12	10.9 \pm 1.3	0.44 \pm 0.08
	7/4/92	828 \pm 6	0.117 \pm 0.008	3.93 \pm 0.27	1.02 \pm 0.07	1.54 \pm 0.13	19.3 \pm 1.5	0.41 \pm 0.06
Isozaki	10/11/92	1313 \pm 11	0.065 \pm 0.005	2.54 \pm 0.11	0.66 \pm 0.05	1.03 \pm 0.08	13.1 \pm 1.1	0.62 \pm 0.11
	1/20/93	2284 \pm 13	0.012 \pm 0.003	3.34 \pm 0.28	0.81 \pm 0.09	0.77 \pm 0.09	18.4 \pm 2.0	0.55 \pm 0.13
	4/16/93	1776 \pm 10	0.012 \pm 0.002	3.82 \pm 0.39	0.76 \pm 0.05	0.98 \pm 0.10	16.6 \pm 1.8	0.56 \pm 0.11
Oarai	8/27/92	754 \pm 7	0.027 \pm 0.003	2.29 \pm 0.12	0.54 \pm 0.04	1.13 \pm 0.08	12.7 \pm 1.3	0.60 \pm 0.07
	3/11/93	1628 \pm 11	0.015 \pm 0.004	2.55 \pm 0.21	0.78 \pm 0.09	0.71 \pm 0.10	20.0 \pm 3.1	0.50 \pm 0.09
	5/25/93	2000 \pm 11	0.014 \pm 0.003	4.94 \pm 0.41	1.08 \pm 0.10	0.89 \pm 0.08	14.3 \pm 1.8	0.90 \pm 0.09
<i>Kajime</i>								
Kujihama	10/6/92					0.44 \pm 0.04	8.70 \pm 0.70	
Oarai	8/27/92					0.39 \pm 0.04	16.4 \pm 1.1	
<i>Higiki</i>								
Oarai	12/14/92	5234 \pm 36	0.047 \pm 0.004	5.74 \pm 0.25	1.52 \pm 0.02			0.72 \pm 0.21

*: One standard deviation of counting statistics.

表 1 2.2 平貝試料中の放射性核種濃度

Table Marine molluscs (Hiragai)

Sampling site	Sampling date	Concentration (Bq/kg dry weight $\pm 1 \sigma^{**}$)						
		K-40	Th-232	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210	Cs-137
Kujihama	7/7/92	428 \pm 5	0.195 \pm 0.012	0.68 \pm 0.03	0.115 \pm 0.009	3.10 \pm 0.19	152 \pm 14	0.32 \pm 0.05
	11/16/92*	185 \pm 2	0.172 \pm 0.014	0.37 \pm 0.02	0.047 \pm 0.003	n.a.	n.a.	0.12 \pm 0.02
	5/12/93	202 \pm 2	0.078 \pm 0.006	0.34 \pm 0.02	0.062 \pm 0.005	1.44 \pm 0.11	186 \pm 20	0.14 \pm 0.03
Isozaki	7/16/92	433 \pm 7	0.287 \pm 0.026	0.69 \pm 0.02	0.145 \pm 0.011	3.61 \pm 0.26	245 \pm 20	0.43 \pm 0.07
	12/1/92	165 \pm 3	0.091 \pm 0.008	0.27 \pm 0.01	0.044 \pm 0.003	1.02 \pm 0.08	165 \pm 19	0.17 \pm 0.03
	2/2/93	158 \pm 2	0.049 \pm 0.004	0.31 \pm 0.02	0.082 \pm 0.006	1.52 \pm 0.11	190 \pm 21	0.09 \pm 0.02
	5/14/93	237 \pm 2	0.159 \pm 0.017	0.46 \pm 0.02	0.101 \pm 0.006	1.97 \pm 0.12	173 \pm 18	0.12 \pm 0.03
Ooarai	7/6/92	448 \pm 6	0.409 \pm 0.033	0.80 \pm 0.03	0.103 \pm 0.010	2.23 \pm 0.19	110 \pm 11	0.30 \pm 0.06
	11/19/92	206 \pm 2	0.098 \pm 0.010	0.34 \pm 0.01	0.066 \pm 0.008	1.52 \pm 0.12	162 \pm 18	0.17 \pm 0.03
	1/13/93	160 \pm 2	0.108 \pm 0.018	0.29 \pm 0.02	0.042 \pm 0.004	2.06 \pm 0.10	185 \pm 19	0.10 \pm 0.03
	5/13/93	208 \pm 2	0.143 \pm 0.025	0.34 \pm 0.03	0.124 \pm 0.008	1.60 \pm 0.14	156 \pm 16	0.20 \pm 0.02

* : Hamaguri, **: One standard deviation of counting statistics.

表 1 2.3 シラス試料中の放射性核種濃度

Table Marine fishes (Shirasu)

Sampling station	Sampling date	Concentration (Bq/kg dry weight $\pm 1 \sigma$ *)						
		K-40	Th-232	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210	Cs-137
Tokai	7/20/92	720 \pm 5	0.011 \pm 0.003	0.100 \pm 0.003	0.041 \pm 0.004	0.51 \pm 0.05	154 \pm 13	0.79 \pm 0.04
	10/16/92	732 \pm 8	0.015 \pm 0.003	0.176 \pm 0.008	0.054 \pm 0.005	1.08 \pm 0.08	225 \pm 14	0.78 \pm 0.08
	3/12/93	524 \pm 3	0.026 \pm 0.004	0.119 \pm 0.010	0.038 \pm 0.005	1.52 \pm 0.09	295 \pm 31	1.00 \pm 0.06
	6/1/93	650 \pm 3	0.019 \pm 0.005	0.133 \pm 0.008	0.079 \pm 0.006	0.70 \pm 0.05	383 \pm 30	0.95 \pm 0.06
Isozaki	7/20/92	716 \pm 4	0.016 \pm 0.002	0.107 \pm 0.006	0.028 \pm 0.003	0.51 \pm 0.04	160 \pm 13	0.80 \pm 0.05
	10/7/92	677 \pm 8	0.018 \pm 0.003	0.185 \pm 0.004	0.036 \pm 0.004	0.78 \pm 0.07	241 \pm 18	0.57 \pm 0.07
	5/28/93	604 \pm 6	0.025 \pm 0.004	0.150 \pm 0.012	0.054 \pm 0.004	1.93 \pm 0.20	421 \pm 48	0.83 \pm 0.05
Oarai	10/1/92	721 \pm 7	0.037 \pm 0.003	0.110 \pm 0.006	0.026 \pm 0.003	0.80 \pm 0.08	274 \pm 22	0.49 \pm 0.07
	3/1/93	566 \pm 5	0.042 \pm 0.005	0.157 \pm 0.008	0.071 \pm 0.009	0.56 \pm 0.05	316 \pm 32	1.20 \pm 0.09
	5/19/93	650 \pm 4	0.010 \pm 0.002	0.066 \pm 0.007	0.037 \pm 0.005	1.24 \pm 0.09	342 \pm 36	0.87 \pm 0.05

* : One standard deviation of counting statistics.

表 1 2.4 カレイ(ヒラメ) 試料中の放射性核種濃度

Table Marine fishes (Karei,Hirame)

Sampling station	Sampling date	Concentration (Bq/kg dry weight $\pm 1\sigma^{**}$)						
		K-40	Th-232	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210	Cs-137
Tokai	11/4/92	555 \pm 4	0.008 \pm 0.001	0.052 \pm 0.002	0.035 \pm 0.004	0.40 \pm 0.03	18.6 \pm 1.6	0.55 \pm 0.04
	1/22/93	530 \pm 2	0.014 \pm 0.003	0.073 \pm 0.006	0.075 \pm 0.006	0.99 \pm 0.10	27.7 \pm 3.1	0.77 \pm 0.05
	4/22/93	563 \pm 4	n.d.	0.058 \pm 0.003	0.078 \pm 0.007	1.02 \pm 0.09	30.8 \pm 3.5	0.96 \pm 0.07
Isozaki	8/27/92	533 \pm 5	0.009 \pm 0.002	0.042 \pm 0.002	0.033 \pm 0.004	0.33 \pm 0.03	17.7 \pm 1.5	0.75 \pm 0.06
	10/13/92*	625 \pm 8	0.010 \pm 0.002	0.044 \pm 0.002	0.032 \pm 0.005	0.21 \pm 0.02	10.3 \pm 0.9	1.02 \pm 0.07
	4/28/93	520 \pm 2	0.023 \pm 0.008	0.098 \pm 0.005	0.113 \pm 0.009	0.89 \pm 0.11	16.9 \pm 2.5	0.94 \pm 0.03
Oarai	12/11/92*	882 \pm 7	0.015 \pm 0.002	0.094 \pm 0.006	0.051 \pm 0.005	n.a.	n.a.	1.12 \pm 0.08
	1/21/93	449 \pm 3	0.006 \pm 0.001	0.033 \pm 0.002	0.034 \pm 0.004	1.23 \pm 0.07	25.4 \pm 2.5	1.07 \pm 0.04
	4/12/93	428 \pm 4	0.022 \pm 0.004	0.052 \pm 0.004	0.057 \pm 0.008	0.68 \pm 0.09	13.9 \pm 1.6	0.98 \pm 0.07

* : Hirame, **:One standard deviation of counting statistics.

表 1 3 . 1 (参) 石井らの海産生物中の U 測定の結果
(日本水産学会誌,55,779(1991))

Table 3. The concentrations of ^{238}U in fresh samples of marine animals collected from the coast of Japan

Species Japanese name	Scientific name	Tissue or Organ	^{238}U concentration (ng/g wet) ($\mu\text{Bq/g wet}$)	
Fishes				
Kuromaguro	<i>Thunnus thynnus</i>	Muscle	0.27	3.3
Mebachi	<i>Thunnus obesus</i>	Muscle	0.32	4.0
Sake	<i>Oncorhynchus keta</i>	Muscle	0.29	3.6
Kinmedai	<i>Beryx splendens</i>	Muscle	0.14	1.7
Kichiji	<i>Sebastes macrochir</i>	Muscle	0.076	0.94
Hirame	<i>Paralichthys olivaceus</i>	Muscle	0.32	4.0
Suzuki	<i>Lateolabrax japonicus</i>	Muscle	0.25	3.1
Ainame	<i>Hexagrammos otakii</i>	Muscle	0.52	6.4
Masaba	<i>Scomber japonicus</i>	Muscle	0.89	11.0
Isaki	<i>Parapristipoma trilineatum</i>	Muscle	0.30	3.7
Tachiuo	<i>Trichiurus lepturus</i>	Muscle	0.48	6.0
Katsuo	<i>Euthynnus pelamis</i>	Muscle	0.13	1.6
Sanma	<i>Cololabis saira</i>	Muscle	0.71	8.8
Maiwashi	<i>Sardinops melanostictus</i>	Muscle	0.45	5.6
Maiwashi	<i>Sardinops melanostictus</i>	Whole body	5.70	70.7
Molluscs				
Madako	<i>Octopus vulgaris</i>	Arm muscle	0.25	3.1
		Liver	85	1050
		Branchial heart	5000	62000
		Jaw	120	1490
Mizudako	<i>Paroctopus dofleini</i>	Arm muscle	0.99	12
		Branchial heart	710	8800
Iidako	<i>Octopus ocellatus</i>	Arm muscle	0.89	11
		Branchial heart	1160	14400
Kaminariika	<i>Sepia lycidas</i>	Trunk muscle	0.70	8.7
		Liver	92	1140
		Branchial heart	250	3100
		Jaw	190	2400
Kuroawabi	<i>Nordotis discus</i>	Foot muscle	0.51	6.3
		Liver	4.8	60
Wasuregai	<i>Cyclosunetta menstrualis</i>	Soft part	35	430
Kotamagai	<i>Gomphina melanaegis</i>	Soft part	19	240
Ubagai	<i>Spisula sachalinensis</i>	Soft part	19	240
Agemakigai	<i>Sinnovacula constricta</i>	Soft part	33	410
Himejako	<i>Tridacna crocea</i>	Soft part	300	3720
Shiranamigai	<i>Tridacna maxima</i>	Soft part	110	1360
Chosenhamaguri	<i>Meretrix lamarcki</i>	Soft part	12	150
Murasakiigai	<i>Mytilus edulis</i>	Soft part	16	200
Crustaceans				
Kurumaebi	<i>Penaeus japonicus</i>	Tail muscle	0.87	11
Shako	<i>Oratosquilla oratoria</i>	Tail muscle	1.6	20
Gazami	<i>Portunus trituberculatus</i>	Foot muscle	0.42	5.2
		Liver	15	190
Hiratsumegani	<i>Ovalipes punctatus</i>	Foot muscle	0.62	7.7
		Liver	22	270
Echinoderms				
Bafununi	<i>Hemicentrotus pulcherrimus</i>	Gonad	250	3100
Kitamurasakiuni	<i>Strongylocentrotus nudus</i>	Gonad	130	1610

1 gU=12.4 kBq=0.336 μCi (1 ngU=12.4 μBq =0.336 fCi).

表 1 3.2 (参) 石井らの海産生物中の U 測定の結果

Table 4. The concentrations of ^{238}U in dry samples of marine algae collected from the coast of Japan

Species Japanese name	Scientific name	Part	^{238}U concentration	
			(ng/g dry)	($\mu\text{Bq/g}$ dry)
Anaosa	<i>Ulva pertusa</i>	Whole body	10	120
Tsunomata	<i>Chondrus ocellatus</i>	Whole body	300	3700
Harigane	<i>Ahnfeltia paradoxa</i>	Whole body	190	2400
Kushibenihiba	<i>Ptilota pectinata</i>	Whole body	620	7700
Akaba	<i>Neodilsea yendoana</i>	Whole body	500	6200
Makusa	<i>Gelidium amansii</i>	Whole body	110	1400
Hijiki	<i>Hizikia fusiforme</i>	Whole body	500	6200
Wakame* ¹	<i>Undaria pinnatifida</i>	Whole body	600—3700	7400—46000
Arame	<i>Eisenia bicyclis</i>	Whole body	380	4700
Akamoku	<i>Sargassum horneri</i>	Whole body	670	8300
Oobamoku	<i>Sargassum ringgoldianum</i>	Whole body	520	6400
Hahakimoku	<i>Sargassum kjellmanianum</i>	Whole body	400	5000
Umitoranoo	<i>Sargassum thunbergii</i>	Whole body	470	5800
Nejimoku	<i>Sargassum sagamianum</i>	Whole body	420	5200
Fushisujimoku	<i>Sargassum confusum</i>	Whole body	620	7700
Uganomoku	<i>Cystophyllum hakodatense</i>	Whole body	180	2200
Sujime	<i>Costaria costata</i>	Whole body	250	3100
Chigaiso	<i>Alaria crassifolia</i>	Whole body	680	8400
Makonbu	<i>Laminaria japonica</i>	Whole body	240	3000
Sugamo* ²	<i>Phyllospadix iwatensis</i>	Whole body	270	3300

*¹ Average concentration of five samples is 1720 ng/g on a dry basis.

*² Strictly speaking, Sugamo is classified into marine phanerogams.

表 1 3.3 (参) 石井らの海産生物中の U 測定の結果

Table 5. The concentrations of ^{238}U in hard tissues of marine animals

Organisms	Tissue or Organ	Dry wt. percent	^{238}U conc. (ng/g wet wt.)
Fish	Bone	56%	21 - 84
	Scale	53%	45 - 330
	Gill	29%	7.7- 17
	Otolith	97%	11 - 37
	Fin	51%	65 - 95
Cuttlefish	Cuttlebone	67%	10 - 49
Clam	Shell	99%	3.2- 36
Shrimp	Carapace	49%	16 - 76
Crab	Carapace	72%	2.1- 12
Sea urchin	Spine	76%	20 -240

Table 6. Distribution of ^{238}U in Kuromaguro *Thunnus thynnus*

	Muscle	Liver	Kidney	Gill	Spleen	Gall-bladder	Pyloric caecum	Bone
^{238}U conc. (ng/g wet wt.)	0.27	1.6	1.6	7.7	1.5	0.83	2.4	27

Table 7. Distribution of ^{238}U in Kouika *Sepia esculenta*

	Trunk muscle	Liver	Kidney	Gill	Gonad	Branchial heart	Jaw	Ink sac	Cuttle-bone
^{238}U conc. (ng/g wet wt.)	1.1	97	22	8.8	8.6	220	420	6.7	31

Table 8. Distribution of ^{238}U in Hirejakogai *Tridacna squamosa*

	Adductor muscle+foot	Liver	Kidney	Gill	Gonad	Mantle	Byssus
^{238}U conc. (ng/g wet wt.)	19	370	280	24	14	21	330

Table 9. Average concentrations and concentration factors of ^{238}U for groups of marine organisms

Organisms	Tissue or organ	Average conc. (ng/g wet wt.)	Concentration factor
Fishes	Muscle	0.37 ± 0.22	0.1
Cephalopod molluscs	(Arm and trunk muscle	0.79 ± 0.30	0.2
	Branchial heart	1500 ± 1800	500
Bivalve molluscs	Soft part	68 ± 93	20
Crustaceans	Tail and foot muscle	0.88 ± 0.45	0.3
Echinoderms	Gonad	190	60
Algae	Whole body	$90 \pm 70^*$	30
Seawater		$3.2 \pm 0.2 \text{ ng/ml}$	

* Converted from $450 \pm 340 \text{ ng/g dry wt.}$ into $90 \pm 70 \text{ ng/g wet wt.}$ using average dry wt. percent (=20%) of twenty species of algae.

6.4. 放射性核種の生物濃縮の比較

今回測定した生物種、アラメ、平貝、シラス、カレイについて、どの核種をどの程度蓄積しているかを理解しやすいように平均値を用いてその全体像を図 12 (Bq/kg wet) と図 13 (Bq/kg dry) に示した。この図から東海沿岸域の海洋生物については生物種に無関係に ^{40}K が最も高濃度に蓄積されており、ついで ^{210}Po であることがわかる。 ^{210}Pb は ^{210}Po と比べて 1 ~ 2 桁低いが、シラスやカレイの ^{137}Cs 濃度がこれら生物種の ^{210}Pb とほぼ同程度であることは特筆されるべきであろう。 ^{238}U はアラメで ^{210}Pb より高い濃度を示すが、他の生物種では 1/5 ~ 1/10 と低い。 ^{226}Ra は ^{238}U よりやや低い傾向にあり、 ^{232}Th がここで測定した核種の中で最も低い濃度を示した。

生物への放射性物質（安定元素についても同様）の濃縮程度は、一般に生物と海水中の放射性物質の濃度比で表される。放射性元素が安定元素と地球化学的に平衡に達していると仮定したうえで、この比のことを濃縮係数と呼ぶ場合がある。実際に報告されてきた値の間には、変動幅が大きく 2 ~ 4 桁に及ぶものもあり、環境および生物自身のさまざまな要因が関与している。前者については、目的とする元素の海水中での存在状態、共存元素などであり、後者については、生物の餌のとり方、生長段階、季節的生理変化などが考えられる。それ故、この濃度比を絶対値としてとられるのではなくて、むしろその海域あるいはその沿岸で、そこに生息する生物が種々の放射性核種をどれほど蓄積しているかの相対的比較の目安と考えた方がよい。もちろん、生息する生物が平衡時に最高でどの程度の放射性核種を蓄積しうるかを表わす手段として用いることもできるが、上記したように変動幅が大きいことに常に留意すべきである。

表 14 に実測または報告*されている平均的な沿岸海水の放射性核種濃度 (^{238}U : 31.4 mBq/l, ^{232}Th : 0.0098 mBq/l, ^{226}Ra : 1.10 mBq/l, ^{210}Pb : 0.77 mBq/l, ^{210}Po : 1.05 mBq/l, ^{137}Cs : 3.5 mBq/l*, ^{40}K : 11.3 Bq/l*) を用いて試算した濃度比（以後、この値をみかけの濃縮係数と呼ぶ）をまとめて示した。この表から ^{210}Po のみかけの濃縮係数が $10^3 \sim 10^4$ で最も高く、次いで ^{232}Th ($10^2 \sim 10^3$), ^{210}Pb ($\approx 10^2$), ^{137}Cs , ^{40}K , ^{226}Ra (≈ 10) の順で小さくなり、 ^{238}U で最も小さい値になっている。栄養段階別、すなわち生産生物（アラメ）→ 第 1 次消費生物（貝）→ 第 2 次消費生物（シラス）→ 第 3 次消費生物（カレイ）の順でみかけの濃縮係数を見ると、 ^{238}U , ^{226}Ra は明らかに栄

養段階が高位に移るにつれてみかけの濃縮係数は漸減している。 ^{232}Th , ^{210}Pb , ^{210}Po については、第 1 次消費生物（貝）でみかけの濃縮係数が増加、 ^{210}Po については第 2 次消費生物（シラス）でも増加する傾向が見受けられるが、全体として第 2 次、第 3 次消費生物でみかけの濃縮係数が低くなっており、これら元素の濃縮に対する食物連鎖の影響は一般に小さいように思われる。1980 ~ 1984 年にかけて東海沿岸で採取した多種類の生物に対する Pu と Am についてのみかけの濃縮係数が PNC によって報告されている。このデータを表 15(参)に示すが、海藻類、貝類、甲殻類で Pu, Am とともに数 100 で、魚類、頭足類で数 10 のオーダーである。これらの値は今回測定した天然放射性核種の中で、どちらかと言えば ^{210}Pb の値に近い。Pu も Am もこの表 15(参)の値を見る限り濃縮に対する食物連鎖の影響はなさそうである。種々の生物に対する今回のみかけの濃縮係数の比較から ^{210}Po がすべての生物種に対して最も高い値を示していることは注目すべきことである。 ^{210}Po のこのような特異的に高い濃縮のメカニズムに関しては、Pb と同族の S との関係で議論されている。

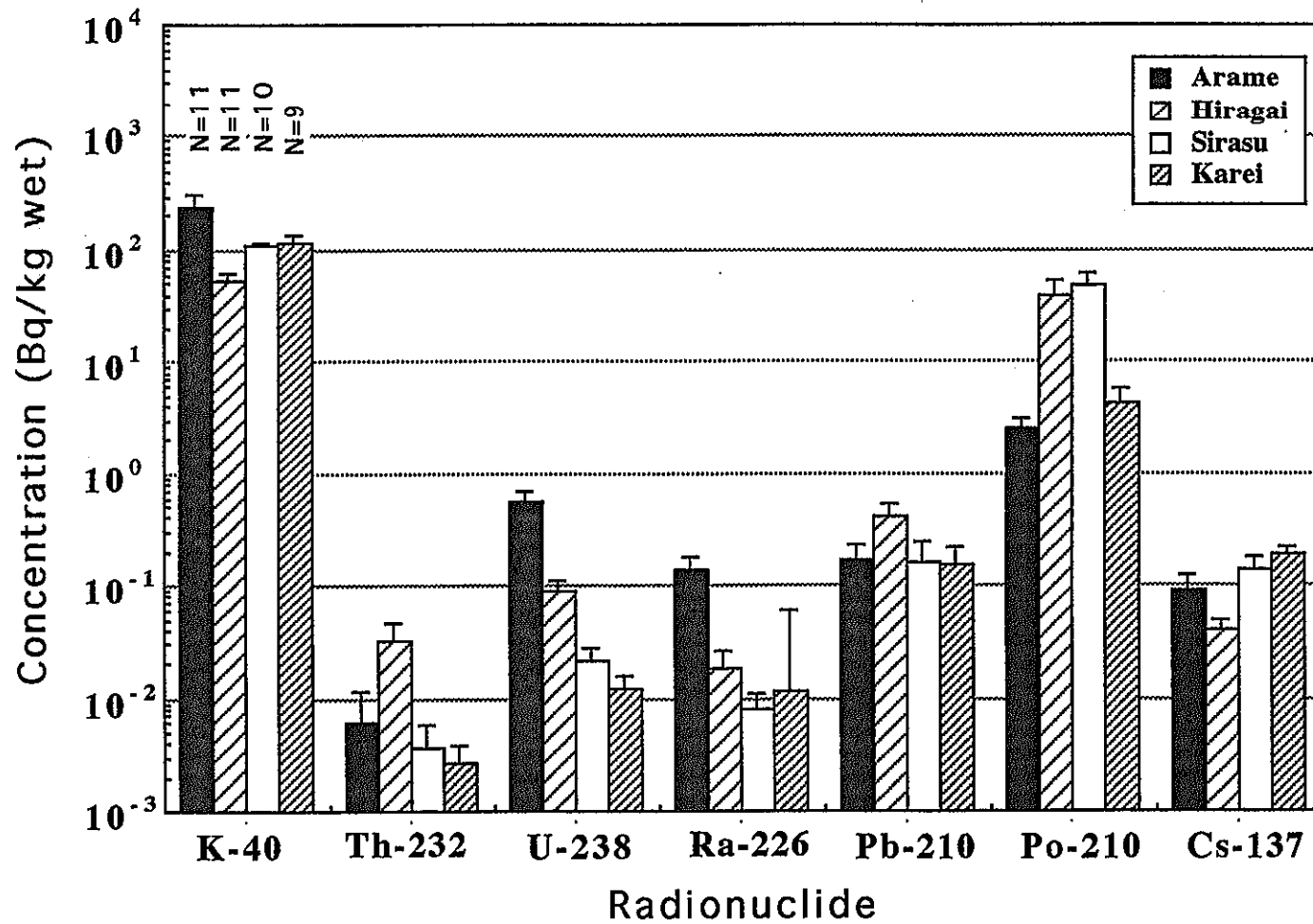


Fig. Concentrations (mean/s.d.: Bq/kg wet) of radionuclides in marine organisms around the Tokai coastal areas

図 1 2 海産生物試料の新鮮重量当りでの各核種の平均濃度の比較

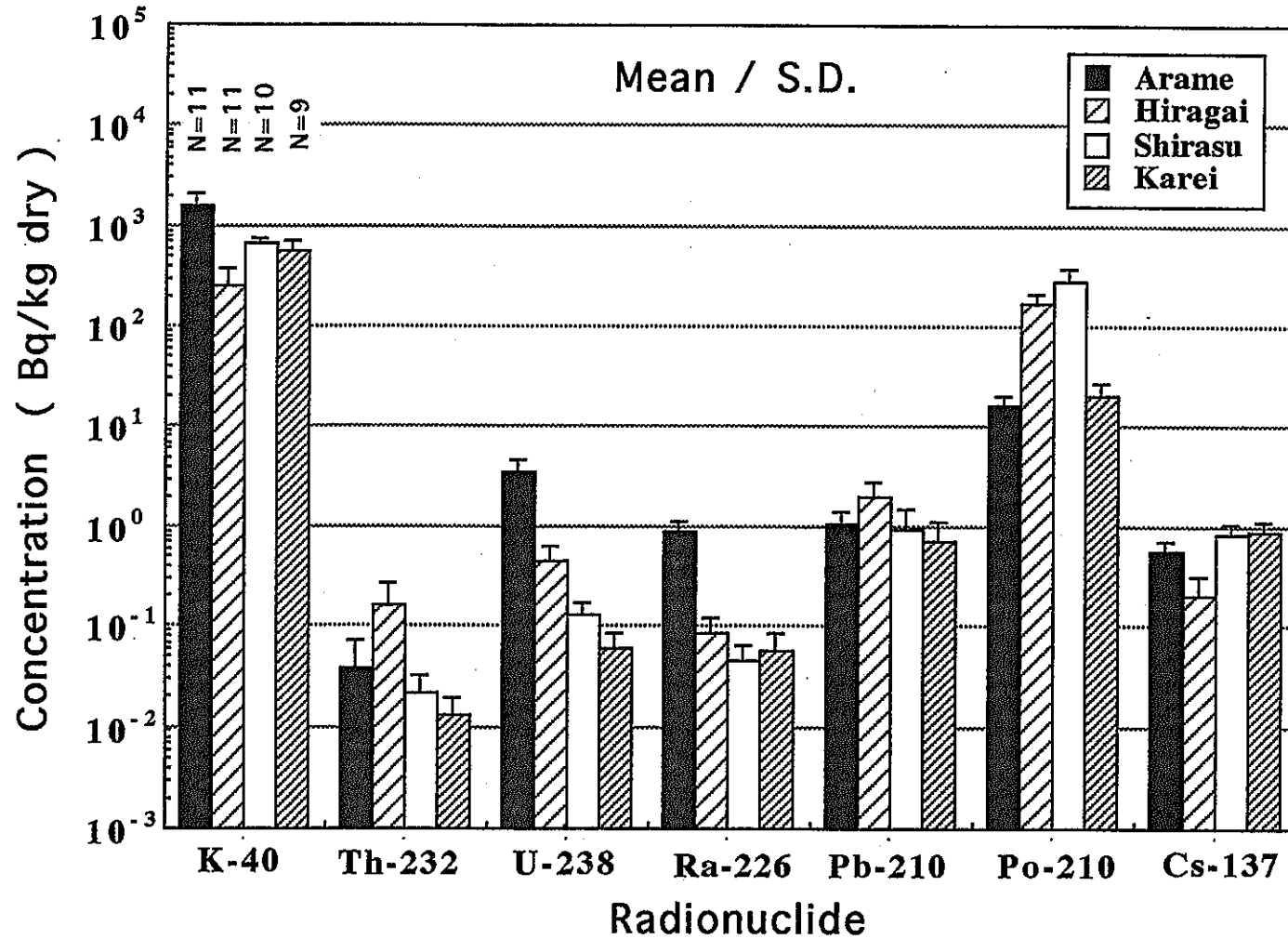


Fig. Concentrations (mean/s.d.) of radionuclides in marine organisms around the Tokai coastal areas

図 1 3 海産生物試料の乾燥重量当りでの各核種の平均濃度の比較

表 1 4 海産生物の放射性核種の見かけの濃縮比の比較

Table Apparent concentration factors (arithmetic mean, (range)) of radionuclides for marine organisms

Species	K-40	Th-232	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210	Cs-137
Amame	21 (9-28)	620 (220-1800)	17 (12-25)	130 (80-210)	220 (100-350)	2300 (1400-3100)	26 (15-41)
Hiragai	5 (4-6)	3300 (1400-6000)	3 (2-5)	17 (10-30)	540 (350-720)	38000 (15000-52000)	11 (7-16)
Shirasu	10 (9-11)	380 (170-750)	0.7 (0.4-0.9)	7 (4-12)	210 (110-410)	45000 (23000-63000)	40 (24-60)
Karai	10 (8-13)	280 (130-510)	0.4 (0.2-0.5)	10 (6-18)	200 (64-330)	4100 (2300-6000)	53 (39-63)

表15(参) 海産生物(可食部)中のPu及びAm濃度と濃縮係数
(61年度環境放射能安全研究成果報告会:林ら)

海産生物(可食部)中の $^{239,240}\text{Pu}$ 及び ^{241}Am 濃度と濃縮係数

区分	試料名	プルトニウム ($^{239,240}\text{Pu}$) 1)				アメリシウム (^{241}Am) 2)			
		件数	濃度(平均) (fCi/kg・生)	濃縮係数		件数	濃度(平均) (fCi/kg・生)	濃縮係数	
				算術平均	幾何平均			算術平均	幾何平均
稚魚	シラス	39	12	33	19	16	4.6	93	63
成魚	カレイ, ヒラメ	43	5.0	14	9.6	19	2.8	51	38
褐藻類	カジメ	42	180	410	350	29	21	290	220
	ヒジキ	28	150			13	21		
	ワカメ	13	81			4	7.9		
貝類	コタマ貝	48	69	170	140	30	71	950	710
	アワビ	10	230	790	570	5	28	630	580
頭足類	イカ	15	40	58	32	7	11	140	120
	タコ	24	13			11	9.0		
甲殻類	エビ	35	115	320	250	18	59	860	540

注1) 1980年~1984年に採取・測定したデータより算出

2) 1982年~1984年に採取・測定したデータより算出

6.5. 海産生物中の放射性核種間の放射能比

^{40}K を除けば、今回測定したすべての核種は ^{238}U および ^{232}Th の系列核種である。すなわち、 $^{238}\text{U} \rightarrow ^{234}\text{U} \rightarrow ^{230}\text{Th} \rightarrow ^{226}\text{Ra} \rightarrow ^{210}\text{Pb} \rightarrow ^{210}\text{Po}$ および $^{232}\text{Th} \rightarrow (^{228}\text{Ra}) \rightarrow ^{228}\text{Th}$ である。たとえば ^{234}U は ^{238}U の娘核種の 1 つであり、海水中では $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 放射能比は 1.13 でほぼ一定である。今回測定した生物についての $^{234}\text{U}/^{238}\text{U}$ 比はほぼ海水の値 1.13 と一致している。

Th 同位体には、 ^{232}Th 、 ^{230}Th 、 ^{228}Th があるが、難溶性のため、それらの濃度レベルは ^{238}U と比べて極端に低い。ただ ^{228}Th は ^{232}Th と放射平衡になく、 ^{228}Th の過剰がみられ、これには両核種の間にある ^{228}Ra の役割が大きい。今回 ^{228}Ra の測定は行わなかったが、 $^{228}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ 比は 1 より大きくアラメでは 4 ~ 5 である。一方 $^{230}\text{Th}/^{232}\text{Th}$ は 1 前後の値になっている。海水中の Ra については、半減期の長い ^{226}Ra と半減期 5.7 年の短い ^{228}Ra に興味がある。特に ^{228}Ra については、海洋の生物が ^{228}Th を直接取り込む量が無視できるならば、 ^{228}Th の成長をもとにその生物の年齢を推算できるなど、生物起源炭酸塩硬組織の生育機構解明にも役立つ。

^{210}Pb と ^{210}Po については、大気中からのフォールアウトの $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は 0.05 ~ 0.1 で ^{210}Pb が 10 - 20 倍多い。しかし、海洋に入ると、この比は 1 に近くなる。すなわち、フォールアウトの寄与よりも海洋中の ^{226}Ra からの供給が大であり、一般に ^{210}Po の方が ^{210}Pb にくらべて表層から除かれやすい。沿岸海域では ^{210}Pb 、 ^{210}Po の両核種ともその濃度に季節変動が認められることが報告されており、 ^{210}Pb と ^{210}Po 間の放射性非平衡はいろいろな情報を与えてくれる。海産生物については、 ^{210}Po が生物に濃縮され易く、特に海産物を多く摂取する日本人に対しての被曝線量との関係で重要視されている。

6.6. 海産物摂取を通じての被ばく線量評価

本郷、山口らにより開発された日本人用の内部被ばく線量評価システムの IDES (Internal Dose Estimation System) を用いて海産物摂取のみからの ^{232}Th , ^{228}U , ^{226}Ra , ^{210}Pb および ^{210}Po の年間実効線量当量を試算してみた。このシステムは、ICRP モデル(ICRP30, 1979)に基づくものであり、日本人の物理的、生理的パラメーターを入れ換えることによって、5種類の年齢群(1, 5, 10, 15才, 成人)の線量計算が可能となっている。表16に1Bq摂取当りのSvへの換算値をのせた。 ^{226}Ra については現在、日本人用のデータベースが入力されていないので標準人(ICRP 30)についてのデータを用いた。

東海村一般一世帯、那珂湊漁業および大洗漁業の食品群別摂取量が住谷らによって詳細に調べられている。昭和58年から62年にかけての調査結果を表17(参)に示す。海産物について、シラス等、沿岸魚、貝および海藻類の摂取量を今回のシラス、カレイ、平貝、アラメにそれぞれ代表させて、これらの海産物からの一人一日当りの摂取量を計算した(表18)。この値を基にして計算した線量結果を表19に示す。

この表から ^{210}Po が線量に最も大きな寄与をしていることがわかり、しかもその寄与が東海村一般よりも那珂湊漁業および大洗漁業地域の魚を多く食べる人ほど大きい。また、子供の方が成人よりも多く被ばくすることもこの表からわかる(子供に対する摂取量の問題があるが)。日本国民1人当りの成人に対する ^{210}Pb と ^{210}Po による年間実効線量当量が 0.16 mSv/y 程度と、一応評価されているが、東海村一般に対してのその値は 0.05 mSv/y、那珂湊と大洗漁業一般に対する値はそれぞれ、0.46 mSv/y、0.57 mSv/y になり、海産物を多く摂取する地域ではこの ^{210}Pb と ^{210}Po から日本人平均以上の被ばくを受けていることがわかる。実際には、ここで用いた以外の海産物も多く摂取しているのでさらに多くなることが予想される。いずれにしても、このように天然物からの線量も把握した上で人工放射性核種、例えば Pu, Am や Cs などによる線量の寄与を考えることが重要である。なお、自然放射線源および核実験フォールアウトによる日本人1人当りの年間実効線量当量が表20(参)に示すように推定されている。

表 1 6 1Bq 摂取当りの線量当量(WCDE)換算値

Age group	Th-232 WCDE(Sv/Bq)	U-238 WCDE(Sv/Bq)	Ra-226 WCDE(Sv/Bq)	Pb-210(f1=0.2) WCDE(Sv/Bq)	Po-210(f1=0.1) WCDE(Sv/Bq)
1 year*	3.00E-06	4.00E-07	—	8.68E-06	2.55E-06
5 years*	2.00E-06	2.00E-07	—	5.14E-06	1.53E-06
10 years*	1.00E-06	1.00E-07	—	3.23E-06	1.09E-06
15 years*	7.00E-07	9.00E-08	—	1.98E-06	7.47E-07
Adult*	7.00E-07	8.00E-08	—	1.83E-06	6.24E-07
Reference Man**	5.00E-07	7.00E-08	—	1.47E-06	5.17E-07
Reference Man***	7.40E-07	6.30E-08	3.10E-07		

*: Obtained by IDES using Japanese data

** : Obtained by IDES using ICRP Pub.30 data.

***: Obtained by ICRP model calculation.

表 1 7 (参) 食品郡別摂取量 (昭和58-62年)
一人一日当りの平均摂取量 (g/d/p)

食品群別摂取量 昭和58年~62年
一人一日当りの年平均摂取量(g/d・p. wct)
Average Daily Intake of Foods.

食品の種類	東海村一般 58~59年	那珂湊漁業 59~60年	大洗漁業 58~59年	国民平均 60年	六ヶ所村 61、62年の平均
穀類	307	350	382	309	—
米	193	269	333	216	317
小麦製品等	114	80	49	93	—
豆類	66	68	85	67	16
大豆製品	64	59	84	64	—
その他の豆類	2	9	1	2	—
種実類	2	0	0	1	—
野菜類	432	476	509	325	488
葉茎菜	97	129	132	—	283(葉茎菜, 果花菜)
果花菜	135	124	108	—	—
きのこ類	12	4	6	10	13
根菜	114	162	173	—	144
芋類	74	57	90	63	48
果実類	139	13	5	141	—
海産物	148	415	358	96	310
シラス等	2	19	33	—	184(魚類)
回遊魚	43	179	132	—	—
沿岸魚	8	80	51	—	—
沖の底魚	23	4	18	—	—
甲殻類	4	4	13	—	5
頭足類	7	36	24	—	61
貝類	1	24	26	4	7
その他魚介類	0	1	1	—	5
海藻類	34	53	35	6(乾)	35
加工品	26	15	25	33	13
淡水魚	0	3	3	—	25
鳥獣鯨肉類	121	83	88	72	88(肉加工品を含む)
卵	57	46	43	40	46
乳及び乳製品	134	24	8	117	182
その他	0	21	18	14	—
総摂取量	1406	1499	1499	—	1706

Proceedings of The Sixteenth National Institute of
Radiological Sciences, Seminar on Environmental Research
Chiba, December 1-2, 1988.

"Characteristics of the Human Body and Other Relevant
Factors in Dose Assessment"
p.95, F. Sumiya

表 1 8 海産物からの一人一日当りの放射性核種平均摂取量(mBq/d p)

海産物の種類	摂取量 g/d/p	一人一日当りの平均摂取量(mBq/d p)				
		Th-232	U-238	Ra-226	Pb-210	Po-210
(東海村一般地域)						
シラス等 (シラス)	2	0.00744	0.0434	0.01552	0.324	94.6
沿岸魚 (カレイ)	8	0.02168	0.0968	0.0912	1.2	34.4
貝類 (平貝)	1	0.0323	0.0926	0.0182	0.417	39.7
海藻類 (アラメ)	34	0.2074	18.53	4.658	5.814	83.64
合計	45	0.27	18.8	4.78	7.76	252
(那珂湊漁業地域)						
シラス等 (シラス)	19	0.07068	0.4123	0.14744	3.078	898.7
沿岸魚 (カレイ)	80	0.2168	0.968	0.912	12	344
貝類 (平貝)	24	0.7752	2.2224	0.4368	10.008	952.8
海藻類 (アラメ)	53	0.3233	28.885	7.261	9.063	130.38
合計	176	1.39	32.5	8.76	34.1	2326
(大洗漁業地域)						
シラス等 (シラス)	33	0.12276	0.7161	0.25608	5.346	1560.9
沿岸魚 (カレイ)	51	0.13821	0.6171	0.5814	7.65	219.3
貝類 (平貝)	26	0.8398	2.4076	0.4732	10.842	1032.2
海藻類 (アラメ)	35	0.2135	19.075	4.795	5.985	86.1
合計	145	1.31	22.8	6.11	29.8	2899

表 1 9 海産物摂取による年線量当量 (Sv/y)

	Th-232 (Sv/y)	U-238 (Sv/y)	Ra-226 (Sv/y)	Pb-210 (Sv/y)	Po-210 (Sv/y)
(東海村一般地域)					
1 year*	3.0E-07	2.7E-06		2.5E-05	2.3E-04
5 years*	2.0E-07	1.4E-06		1.5E-05	1.4E-04
10 years*	9.9E-08	6.9E-07		9.1E-06	1.0E-04
15 years*	6.9E-08	6.2E-07		5.6E-06	6.9E-05
Adult*	6.9E-08	5.5E-07		5.2E-06	5.7E-05
Reference Man**	4.9E-08	4.8E-07		4.2E-06	4.8E-05
Reference Man***	7.3E-08	4.3E-07	5.4E-07		

(那珂湊漁業地域)					
1 year*	1.5E-06	4.7E-06		1.1E-04	2.2E-03
5 years*	1.0E-06	2.4E-06		6.4E-05	1.3E-03
10 years*	5.1E-07	1.2E-06		4.0E-05	9.3E-04
15 years*	3.6E-07	1.1E-06		2.5E-05	6.3E-04
Adult*	3.6E-07	9.5E-07		2.3E-05	5.3E-04
Reference Man**	2.5E-07	8.3E-07		1.8E-05	4.4E-04
Reference Man***	3.8E-07	7.5E-07	9.9E-07		

(大洗漁業地域)					
1 year*	1.4E-06	3.3E-06		9.4E-05	2.7E-03
5 years*	9.6E-07	1.7E-06		5.6E-05	1.6E-03
10 years*	4.8E-07	8.3E-07		3.5E-05	1.2E-03
15 years*	3.3E-07	7.5E-07		2.2E-05	7.9E-04
Adult*	3.3E-07	6.7E-07		2.0E-05	6.6E-04
Reference Man**	2.4E-07	5.8E-07		1.6E-05	5.5E-04
Reference Man***	3.5E-07	5.2E-07	6.9E-07		

表 2 0 (参) 自然放射線源及び核実験フォールアウトによる
日本人一人当りの年間実効線量当量

表 7. 1 自然放射線源からの日本人 1 人当たり年間実効線量当量 (mSv/y)

線源	実効線量当量 (mSv/y)	内 訳			
宇宙線	0.29	{	電離成分	0.26	
			中性子成分	0.03	
大地ガンマ線	0.38				
体 内	0.81		C-14	0.014	
			H-3	0.000029	
			K-40	0.2	
			Rb-87	0.003	
			U-238 系列	U-238 → U-234	0.005*
				Th-230	0.007*
				Ra-226	0.007
				Rn-222 → Po-214	0.35
				Pb-210 → Po-210	0.16
			Th-232 系列	Th-232	0.003*
				Ra-228 → Ra-224	0.013*
Rn-220 → Tl-208	0.05**				
合 計	1.48				

*国連科学委員会1988年報告の値

**Rn-222からの推定値

表 7. 2 核実験フォールアウトによる年間実効線量当量 (mSv/y)

経 路	核 種	実効線量当量 (mSv/年)
体 外	Cs-137	0.25×10^{-2}
体 内	C-14	0.3×10^{-2}
	Sr-90	0.12×10^{-2}
	Cs-137	0.09×10^{-2}
	Pu-239, 240	0.3×10^{-2}
	Am-241	0.1×10^{-2}
合 計		1.2×10^{-2}

6.7. 天然アナログ研究

海水中の放射性元素は、特に種々の酸化状態をとりうる元素に対しては、単一イオン、錯形成をとおしての分子種、加水分解種、ポリマーやコロイド種、懸濁物からなる種々の物理・化学形態で存在していることが知られている。海水中における放射性元素の存在形態については、根本的には安定元素のそれと同じである。実際、安定同位体が存在する場合には、その安定同位体の化学種を分析することでその核種の存在状態の知見を得ることができる。しかしながら、Tc, Pm および超ウラン元素のような原子力産業の活動の結果生成した放射性核種に対しては、安定同位体が存在しないので、環境中での存在状態についてのいかなる情報も得ることはできない。実際の環境中でのこれら元素濃度は極端に低い。表 21(参) に環境中で見い出せるいくつかの人工放射性元素およびそれらの天然アナログ元素と考えられている元素の酸化状態を示す。また表 22(参) にアクチニド元素の諸核種とそれらの娘核種元素の物理化学的性質を示す。いずれにしても、海水中での存在形態が挙動や生物学的な利用度、さらに化学的な毒性にも影響を与える。図 14(参) にいくつかの人工放射性核種の口過海水中での濃度をポイント線源からの距離に対してプロットした結果を示した。この場合の海域は北東アイリッシュ海のセラフィールド再処理工場放出口の近くである。放出口での口過海水中の濃度を 100 % としてプロットしてある。Tc (TcO_4^- として存在), Cs (大部分 Cs^+ として存在) そして Np (NpO_2^{2+} として存在) は、粒子状物質(懸濁物)に対して親和性の低い可溶性の化学種である。一方、Cm はおそらくⅢ価のランタニド元素と同じように挙動すると考えられるが、粒子状物質と非常に反応しやすく、図からわかるように放出口からの距離が離れるにつれて濃度は急激に減少する。図に与えられている他の核種の存在程度は異なる化学種で存在するそれぞれの能力の関数であるように思われる。Pu は、このアイリッシュ海の東側では Np と同様に高酸化状態の Pu(V) と 3 価の Cm に似た粒子状物質と反応しやすい低酸化状態 Pu(IV) で存在していることが知られている。Pu のこの 2 つの酸化状態での存在が、海水中での Pu のやや高い易動性を反映している。環境中の ^{241}Am の立場は、 ^{241}Am がその親核種の ^{241}Pu から常に生成している成分を含んでいるので複雑である。Ru は先に示した Cs と Cm グループの中間的な挙動を示す。Ru の化学は、それがつくる多くの錯形成種によって複雑である。Ru の一部はニトロシル錯体として放出されており、それが易動性を高めているかもしれな

い。このような簡単な図から、いかに多くの努力が海底土-海水間の放射性核種の分配に関してのデータを得るために捧げられてきたかを容易に読みとることができる。表 23(参)にいくつかの人工放射性元素に対して測定されてきた分配比を示す。このようなデータは、長期挙動のモデル化や汚染物の究極的な挙動を評価する上で非常に利用価値の高いものである。引用されているデータは、実際の環境試料で測定されたものであり、必ずしも平衡に達している状態ではない。分配比は、海水 1 ℓ 当りの濃度に対しての懸濁物 1 kg 当りの濃度比で定義されている。与えられた元素の基礎的な物理・化学的特性についての知識がこれらの元素に対しての潜在的な生物学的利用のある指標を与えるだろう。このように、粒子状物質に対して高い親和力をもつ存在形態で環境中に存在する放射性核種は、粒子状物質を取り込む生物に見い出せる。逆に、可溶性の存在形態で存在している放射性核種は、放出口からはるか遠くまで拡散し、生物にはあまり取り込まれない。多くのファクターが生物学的利用に影響する。生物への取り組みに対しては、放射性核種の存在形態が最も重要なファクターである。不幸にも、環境中での放射性核種の存在形態を知るテクニックが充分に開発されていない。

ここで分析した天然放射性核種の中で、その存在形態が明らかなのは、ウラン、ラジウムで、ウランは主として海水中に可溶性の炭酸ウラニルイオン $UO_2(CO_3)_3^{4-}$ として存在して、一方 Ra は、アルカリ土類金属同様 Ra^{2+} として単一イオンとして存在している。Th は水和酸化物をつくりやすく、海水から迅速に除去される。Pb と Po についてはよくわからないが、Schell の研究では海水中の ^{210}Po の大部分が $0.3 \mu m$ 以上の粒子で水中に存在することが報告されている。それ故、海洋の表層水における $^{210}Po/^{210}Pb$ 比は 0.5 程度で ^{210}Po の滞留時間は ^{210}Pb より短く 0.6 年程度であると言われている。トリウム同位体、 ^{210}Pb 、 ^{210}Po が海水環境では水和酸化物などの固相を形成しやすいので、このような核種の挙動が海水中の粒子に対して反応性の高い核種であるので Pu や Am の挙動の 1 つの目安になるかもしれない。

表 2 1 (参) 人工放射性核種といくつかの天然アナログ元素
 に対するの環境中での酸化状態

Radio element	Oxidation state					
	II	III	IV	V	VI	VII
Curium		Cm^{3+}				
Americium		Am^{3+}		AmO_2^+		
Plutonium		Pu^{3+}	Pu^{4+}	PuO_2^+	PuO_2^{2+}	
Neptunium			Np^{4+}	NpO_2^+		
Uranium			U^{4+}	UO_2^+	UO_2^{2+}	
Thorium			Th^{4+}			
Protactinium			$[\text{Pa}(\text{OH})_5]_n^+ \text{ or } \text{PaO}(\text{OH})_2^+$			
Actinium		Ac^{3+}				
Promethium		Pm^{3+}				
Technetium			$\text{TcO}_2(\text{s})$			TcO_4^-
Rhenium			$\text{ReO}_2(\text{s})$			ReO_4^-

表 2 2 (参) 天然アクチニド核種とそれらの娘核種元素の物理化学的性質^{B)}

Element	Z	Group	Electronic configuration (Hg inner shell) ⁽¹⁾	Oxidation and reduction states ⁽²⁾	Ionic radii ⁽³⁾ (Å)	Electronegativity ⁽⁴⁾
U	92	IIIa	$6p^6 5f^3 6d^1 7s^2$	3+, <u>4+</u> , 5+, <u>6+</u>	(4+) $\begin{matrix} 0.93 \\ 1.05 \end{matrix}$	1.22
Pa	91	IIIa	$6p^6 \begin{cases} 5f^2 6d^1 7s^2 \\ 5f^1 6d^2 7s^2 \end{cases}$	3+, 4+, <u>5+</u>	(4+) 0.96	1.14
Th	90	IIIa	$6p^6 6d^2 7s^2$	3+, <u>4+</u>	(4+) $\begin{matrix} 0.99 \\ 1.10 \end{matrix}$	1.11
Ac	89	IIIa	$6p^6 6d^1 7s^2$	3+	1.11	1.00
Ra	88	IIa	$6p^6 7s^2$	2+	1.52	0.97
Rn	86	0	$6p^6$	0	—	—
Po	84	VIb	$6p^4$	4+, 2-	(4+) 1.02	1.76
Bi	83	Vb	$6p^3$	3+, 5+, 3-	(3+) 1.09	1.67
Pb	82	IVb	$6p^2$	2+, 4+	(2+) 1.32 (4+) 0.98	1.55

Notes: (1) [Hg] = $1s^2 2s^2 2p^6 3s^2 3p^6 4s^2 3d^{10} 4p^6 5s^2 4d^{10} 5p^6 6s^2 4f^{14} 5d^{10}$
 (2) the most stable oxidation states are underlined
 (3) from Cotton and Wilkinson (1972) and Goldschmidt (1954)
 (4) Allred and Rochow (1958)

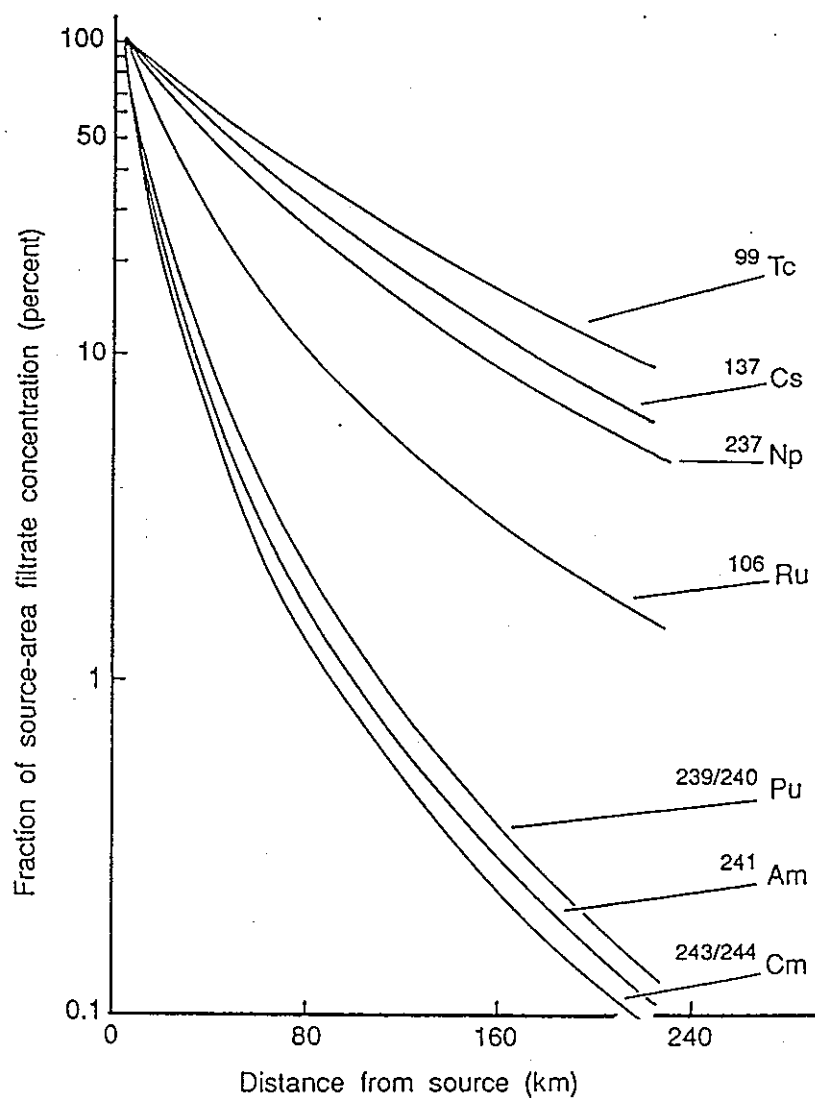


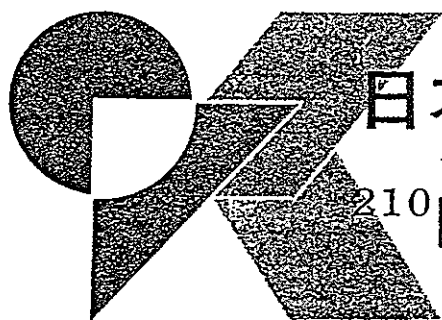
図 1 4 (参) 放出口からの距離と人工放射性核種のろ過海水(0.45 μ m)中の濃度との関係

表 2 3 (参) 海水 (0.45 μ m) と懸濁物質間の人工放射性核種の分配

Main Elemental species	Measured distribution ratios Rd	Location
Tc VII	<250	Irish Sea
Cs I	$5 \times 10^2 - 3 \times 10^3$	Irish Sea
Co II	$\sim 2 \times 10^4$	English Channel
Np V	$3 \times 10^3 - 3 \times 10^4$	Irish Sea
Pu V	$6 \times 10^3 - 2 \times 10^4$	Irish Sea
Pu IV	$4 \times 10^5 - 6 \times 10^6$	Irish Sea
Am III	$2 \times 10^6 - 3 \times 10^6$	Irish Sea
Cm III	$1 \times 10^6 - 2 \times 10^6$	Irish Sea

7. あとがき

東海村沿岸をフィールドにして、沿岸表層海水、沿岸海底堆積物および海産生物中の天然放射性核種（ウラン，トリウム，ラジウム，鉛，ポロニウム）を主として測定した。今回の調査研究が、東海村沿岸の環境放射能モニタリングのみならず、沿岸海域で展開される種々の過程を明らかにする基礎研究としてお役に立てていただければ幸いです。関係各位に厚くお礼申し上げます。



日本人の食品を通じての

^{210}Po と ^{210}Pb 摂取量

山本 政儀*

1. はじめに

ポロニウム-210(^{210}Po)はウラン(^{238}U)系列の末端に位置する半減期 138.38 dの α 線を放出する核種である。その直接の親核種はビスマス-210(^{210}Bi , β^-)であるが、半減期が5.01 dと短いので、半減期(22.3 y)の長い先行核鉛-210(^{210}Pb , β^-)を實際上の親核種と見なすことができる。環境中には、常に ^{210}Pb と共に岩石、土壌、水中に、さらに土壌表面から揮散したラドン(^{222}Rn)の娘核種として大気中に広く分布・存在している。食品の摂取は、 ^{210}Pb と ^{210}Po が人体に入る最も重要な経路である。 ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度は、肉や乳製品では低く、穀物と野菜で中間で、海産物は高い。わが国では、海産物の消費割合が多いので、欧米諸国と比べて ^{210}Pb と ^{210}Po の摂取量が多いことが予想でき、また指摘もなされているが¹⁾、測定データは非常に少なく不明な点が多い。1988年の国連科学委員会報告²⁾によれば、 ^{210}Po は ^{210}Pb 、 ^{210}Bi 、 ^{210}Po シリーズによる内部被曝線量の大部分を占め、自然放射線源からの内部被曝線量の中で、ラドン(^{222}Rn - ^{214}Po)、 ^{40}K 、トロン(^{220}Rn - ^{208}Tl)について寄与(約8%)が多い核種となっている。

ここでは、日本人の ^{210}Po と ^{210}Pb の経口摂取量について、すでに報告されている国内および諸外国のデータを参照しつつ最近の筆者らのデータも加えて、この課題を検討することにする。

2. 国内の ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量の評価例

日本人の食品を通じての ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量を推定したデータは極めて少ない。表1に、これまでに報告されてきた国内のデータを諸外国のデータと比較して示す。以下に年代順に国内のデータの概要を述べながら日本人の ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量を考えてみたい。

*Yamamoto Masayoshi/金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設

(1)全国規模での種々の食品の ^{210}Pb 測定：高田ら³⁾は、全国を北海道・東北、関東、中部・北陸、近畿・中国、四国・九州の5ブロックとさらに東京と大阪・京都の小ブロックに分けて、それぞれの地域で穀類、いも類、野菜、肉、海産物等を収集し計約80試料の ^{210}Pb 分析を行った。肉や海産物については、硝酸等で湿式灰化を行い、最初に ^{210}Po を除去した後数ヵ月放置して ^{210}Pb から成長した ^{210}Po をAg板上に析出させ波高分析器を備えたグリッド・イオン・チェンバーで測定して ^{210}Pb を定量した。米や野菜等については、500°Cで灰化处理し、その試料を数ヵ月放置した後、海産物等と同様な方法で測定した。このようにして得た各食品の ^{210}Pb 濃度と各地域の食品群別摂取量を基礎にして、全国での1人1日当りの ^{210}Pb 摂取量を約630 mBqと推定した。また海産物からの寄与が70%程度と非常に多いことを示した。(著者らはこの推定値は、あくまでも各地域の平均食品群別摂取量と測定した各食品の ^{210}Pb 濃度がその地域の食品を代表しているとの仮定のもとで試算したものであることを強調している)。

(2)岡山県のウラン鉱山周辺と千葉県での食品中 ^{210}Po 測定：岡林ら⁴⁾は岡山県のウラン鉱山周辺と千葉県で計約30試料の食品を収集し ^{210}Po の分析を実施した。 ^{210}Po の分析は、試料を硝酸を用いて注意深く湿式灰化し、アスコルビン酸の存在下で0.5 M塩酸溶液から95°CでAg板上に ^{210}Po を析出させたものを測定線源としてZnSシンチレーションカウンターで ^{210}Po を定量した。1人1日当りの ^{210}Po 摂取量は、鉱山周辺および千葉での食品群別摂取量が明確でないため推定していない(Watson⁵⁾は、千葉県での食品の ^{210}Po 濃度を用いて摂取量を330~480 mBqと推定している)。いくつかの海産物について、0.7~110 mBq/100 gの濃度範囲にある米、いも類、野菜に比べて高い値(数10 Bq/100 g)を検出した。

表1 国内および諸外国の食品を通じてのPo-210 とPb-210 摂取量

地域	mBq Pb-210/d	mBq Po-210/d	参考文献
日本			
全国	630		Takata (1968)
千葉県		330-480*	Okabayashi (1975)
東京	220		Kametani (1981)
秋田県	120 (30-370)	430 (140-7400)	LLRL-AR-15 (1991)
秋田県	130, 190		Hisamatsu (1992)
(通常の摂取をしている地域)			
アジア			
インド (ボンベイ)		56	Khandekar (1977)
ヨーロッパ			
ブルガリア	60-78		Keslev (1975)
フランス	50		Servant (1981)
イタリア	110	110	Clemente (1980)
西ドイツ	170	170	Gloebel (1966)
ソビエト	230	150	Ladinskaya (1973)
		140	Yermolaeva (1969)
イギリス		120	Hill (1965)
	82	78	Smith-Briggs (1986)
	45		Chamberlain (1983)
アメリカ			
東アメリカ	52	60	Holzman (1980)
シカゴ	46	60	Spencer (1977)
ニューヨーク	44		Morse (1971)
アルゼンチン		48	UNSCEAR (1972)
(トナカイ、カリブーを多量に消費する地域)			
カナダ		3700	Hill (1967)
フィンランド	320	2550	Kauranen (1969)
スウェーデン	133-333	2660-6660	Persson (1972)
ソ連	1630	2920	Parfenov (1974)
アラスカ	370	3700	Holzman (1966, 1968)

* Watsonの評価に基づく [5]

(3)東京での食品中の²¹⁰Pb測定：亀谷ら⁶⁾は東京市内の通常のマーケットで購入した食品、計約20試料について²¹⁰Pbを分析した。試料にPbと希硫酸を添加して乾燥、その後450°Cで灰化したものを分析試料として用いた。試料溶解後、溶媒抽出等でPbを分離・精製し、Pt板上に²¹⁰Pb(Pb)をPbO₂として電着させ²¹⁰Pbから成長する²¹⁰Biを測定することにより²¹⁰Pbを定着した。得られた食品の²¹⁰Pb濃度と日本人の平均食品群別摂取量を基にして1人1日当りの²¹⁰Pb摂取量を220 mBqと推定した。

(4)秋田県での日常食中の²¹⁰Pbと²¹⁰Po測定：阿部、山本ら⁷⁾は、秋田大学の大学病院で1989年1月～1990年1月の期間に月2回の割合で朝、昼、夜を合わせた普通給食1日分を延べ25日分収集し、²¹⁰Pbと²¹⁰Poを分析した。分析には、凍結乾燥試料約50gを用い、一定量の²⁰⁹Poを収率補正用トレーサとして加え、注意深く湿式灰化を行った。その後、ア

スコルビン酸の存在下で0.5 M塩酸溶液から70～90°Cで6時間以上かけてAg板上に²¹⁰Po(²⁰⁹Po)を析出させ、Si(Au)検出器によるα線スペクトロメトリーにより²¹⁰Poを定量した。²¹⁰Pbについては、上記溶液中に残存している少量の²¹⁰Po(²⁰⁹Po)を陰イオン交換法によって完全に除去した後、数ヶ月放置して²¹⁰Pbから成長する²¹⁰Poを同様に測定することにより²¹⁰Pbを定量した。試料採取時点の²¹⁰Po濃度を正確に評価するため、試料保存中に²¹⁰Pbから成長する²¹⁰Poの寄与、さらにその間の²¹⁰Po自身の減衰補正も行った。²¹⁰Po摂取量は、食事ごとに大きく変動し、最高約7400 mBqから最低約140 mBqの範囲を示し、幾何平均は430 mBqであった。一般的に言って、海産物が顕立に盛り込まれている時に高値を示した。一方、²¹⁰Pb摂取量は、²¹⁰Po摂取量ほど大きな変動は示さず30～370 mBqの範囲(大部分は≒100 mBq)で幾何平均は120 mBqであった。

表2 日本人の海産物を通してのPo-210とPb-210摂取量の推定

推定法(I)

種類	生産量 ^{*1)} (1000トン)	歩留り ^{*2)}	Po-210			Pb-210		
			濃度	量		濃度	量	
			(Bq/kg wet)	(10 ⁸ Bq)	(%)	(Bq/kg wet)	(10 ⁸ Bq)	(%)
魚類	9949	0.6	4.2	250.7	83.1	0.14	8.60	46.7
頭足類	712	0.8	1.0	5.7	1.8	0.68	3.87	21.0
貝類	832	0.2	11.1	18.5	6.1	0.60	1.00	5.4
甲殻類	119	0.4	4.2 ^{*3)}	2.0	0.7	0.14 ^{*3)}	0.07	0.4
海藻類	798	0.9	3.5	25.1	8.3	0.68	4.88	26.5
合計				302.0	100		18.42	100
1人1日当たりの摂取量(Bq/d) ^{*4)}				0.69			0.042	

*1)昭和63年、海面漁業漁獲量+海面養殖生産量(漁業養殖業生産統計年報)

*2)可食部の割合(日本食品標準成分表を参考)

*3)魚類と等しいと仮定

*4)人口を1.2億人と仮定

推定法(II)

種類	摂取量 ^{*1)}	Po-210	Pb-210	Po-210	Pb-210
	(g/d・p)	(Bq/kg wet)	(Bq/kg wet)	(Bq/d・p)	(Bq/d・p)
魚介類					
マグロ類	6.3	25.3	0.22	0.159	0.0014
タイ、カレイ類	7.4	8.6	0.10	0.064	0.0007
アジ、イワシ類	11.1	12.6	0.26	0.140	0.0029
サケ、マス類	3	1.5 ^{*2)}	0.12 ^{*2)}	0.004	0.0005
その他の生魚	11.7	3.0	0.13	0.035	0.0015
イカ、タコ	13	1.0	0.68	0.013	0.0088
貝類	4.4	11.1	0.60	0.049	0.0026
海藻類	5.6	3.6	0.68	0.020	0.0038
合計				0.48	0.022

*1)国民1人1日当たりの海産物群別摂取量(全国の食品群別摂取量：昭和60年調査結果)

*2)マダラとホッケの値を代用として使用

(5)秋田県での食品中の²¹⁰Pb測定：久松ら⁸⁾は、1986年10月～11月にかけて秋田市内のマーケットで購入した食品をモデル献立として11群に分別したものと4種類の海藻、さらに2日分の陰膳法による日常食について²¹⁰Pbを分析した。試料は、すべて450°Cで灰化し、4～50gをプレスしてGe-LEPSによる非破壊γ線スペクトロメトリーにより²¹⁰Pb(E_γ=46.5 keV, 4.05%)を直接定量した。その結果、モデル献立方式による1人1日当りの²¹⁰Pb摂取量は130 mBq、2日分の日常食のそれは、平均190 mBq(個々の値は210と160 mBq)となった。また同時に、海産物からの寄与を約45%と推定した。

(6)石川県での日常食の²¹⁰Pbと²¹⁰Po測定：山本ら⁹⁾は、石川県からの委託研究として1990～1992年度の3年間にわたり、県内の2町村で陰膳方式によって日常食1日分を毎年各20世帯について2度収集した80試料、3年間で計240試料を対象に²¹⁰Pbと²¹⁰Po測定を実施している。分析・測定法は、

(4)で述べた秋田大学での普通病院給食で用いた方法と同様であるが⁵⁾、²¹⁰Pbについては一定量のPb(²¹⁰Pbを含まないPb)を添加し、収率補正を行っている。現在160試料について測定を終了した。その結果で見ると、2町村での²¹⁰Pbと²¹⁰Po摂取量の差はなく、特に²¹⁰Poが⁵⁾食事内容に極めて大きく依存していることがわかった。160試料を基にした²¹⁰Pbと²¹⁰Po摂取量の幾何平均は、まだ暫定値ではあるがそれぞれ約200 mBq、600～700 mBqと見積られる。

以上国内の²¹⁰Pbと²¹⁰Po摂取量を扱ったデータの内容を簡単に述べてきたが⁵⁾、一読して明らかなように、研究者の目的に応じて、種々の試料収集法と分析・測定法が用いられている。摂取量の推定法や平均値の取り扱いなどの違いもあり、一同に並べて評価することは困難であるが⁵⁾、²¹⁰Pb摂取量については、(1)の高田らの推定値がやや高い傾向にあるものの、他の(3)～(6)の結果は非常によく一致している。²¹⁰Po摂取量については、Watsonの推定値(2)と

陰膳方式による(4)と(6)のデータのみしかなく、少なくとも ^{210}Pb 摂取量よりも多いことは確かである。両核種の摂取量の評価においては、マーケットバスケット方式(またはモデル献立方式)の場合には、特に海産物からの ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量の取り扱いによって、また一方陰膳方式の場合には献立に海産物がもり込まれているか否かで、その値が大きく異なることがわかる。

3. 海産物からの ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量

上記で述べてきたように、日本人の ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量の評価においては、日本人の食品摂取の特徴でもある海産物を通じての摂取量の評価を避けて通ることはできない。海産物中の ^{210}Po 濃度については、以前この雑誌で木村¹⁰⁾が概説しているように、濃縮係数は $10^3\sim 10^6$ と非常に大きい。日本近海の高濃度の ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度についての包括的なデータは非常に限られているが、清水¹¹⁾と山本¹²⁾のデータがある。清水は、1981年から1983年の3年間にわたり、主として銚子魚市場で水揚げされた海産物計約40試料と塩干品、缶詰等の水産加工品18品目について ^{210}Pb を測定した。試料(可食部)中の ^{210}Pb 濃度は、灰化試料数10gを用い、Ge-LEPSによる非破壊 γ 線スペクトロメトリーにより直接定量している。このようにして得た生鮮物、加工品の ^{210}Pb 濃度を用い、日本人が魚介類を通して摂取する ^{210}Pb を2通りの方法で推定した。1つは、分類群別生産量と可食部中 ^{210}Pb 濃度を基礎とするもので1人1日当りの摂取量は約31 mBq、もう1つは、食糧需給表から得られる魚介類、海藻類の純食料供給量を基礎とするもので約36 mBqとなり、魚介類を通じての日本人の1人1日当りの ^{210}Pb 摂取量は37 mBq(1 pCi)程度と評価している。山本らは1988~1990年にわたり、大部分東北沿岸で水揚げされた生鮮海産物、計約30種類について ^{210}Pb と ^{210}Po の分析を行った。分析法は(4)と同様であり、清水の方法と同じ手法を用いて1人1日当りの ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量の推定を試みた。表2に2通りの方法で推定した結果を示すが、 ^{210}Pb については両方法で2倍の違いがあるものの、清水の推定値に近い値になっている。一方、 ^{210}Po については480~690 mBqと ^{210}Pb 摂取量の10~20倍高い値が見積られた。データの十分ではないが、このようなデータから ^{210}Pb 摂取量については約37 mBq程度であろうと推定してもそう大きく誤っていないように思われる。一方、 ^{210}Po については、(1)の方法で特に魚類の摂取による寄与

が80%と大きく、この種類の平均濃度の取り扱いによっては、摂取量の評価が数倍異なる恐れもあり、さらなるデータが必要であると考えている。

4. 日本人の ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量

日本人に対しての穀物、いも類、野菜類、肉類、乳製品等を通じての各食品群別の ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量の代表的な値を現時点で推定することは困難である。しかし、仮に海産物の消費割合の少ない欧米諸国の ^{210}Pb および ^{210}Po 摂取量(表1)が、海産物を食べない時の日本人の摂取量に近いとするならば、非常に大胆であるが日本人の1人1日当りの摂取量はそれぞれ100~200 mBq、500~800 mBqと推定できる。 ^{210}Pb についての値は偶然かもしれないが先に示した(3)~(6)のデータとも大きく矛盾しない。一方、 ^{210}Po についても、秋田県での430 mBq、石川県での600~700 mBqとほぼ同じレベルになる。海産物を通じての山本らの ^{210}Po 摂取量の推定値は、あくまでも生鮮品を食べたときの値で、実際には、もう少し低い値になると予想できる。摂取量についてのより正確な評価は今後に譲るとしても、日本人が ^{210}Pb よりも ^{210}Po を多く摂取していることが、 ^{210}Pb と ^{210}Po をほぼ同程度摂取している欧米人とは大きく異なり、トナカイやカリブーを多量に消費する地域の人々の ^{210}Po 過剰摂取とよく似ている点で興味深い。

5. おわりに

以上、これまでに報告されてきた(報告されつつある)国内の ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量について述べてきたが、最も重要な問題は、試料の収集法である。ここで述べてきた報告においては代表的な値を得ようとする目的に対して、国民栄養調査に基づく食品群別摂取量を考慮したマーケットバスケット方式(またはモデル献立方式)と陰膳方式がとられている。いずれの方法にも長所があり、完璧の方法はないと言ってもよいだろう。さらに、この ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量の問題を難しくしているのは、環境中の ^{210}Pb と ^{210}Po の大部分がフォールアウトとして存在しているため、食品中のこれらの核種の濃度が空間的、時間的に非常に変動が大きい。また、特に ^{210}Po については、測定した試料中の ^{210}Po が ^{210}Po 自身で食品に取り込まれたものと、同時に取り込まれた親核種 ^{210}Pb から時間の経過とともに成長する ^{210}Po の2つの成分をもっていることである。しかも、長期間経過すれば ^{210}Po は減衰し、 ^{210}Pb 濃度と平衡になる。したがっ

て ^{210}Po 濃度は、 ^{210}Pb 以上に変動する多くの要因を含んでいる。日本人の ^{210}Pb と ^{210}Po 摂取量の代表的な値を評価するためには、このようなことを常に念頭におきながら、今後とも食品中の ^{210}Pb と ^{210}Po データ取得のための測定を積み重ねていく必要がある。

最後に原稿とりまとめに協力いただいた当施設中本美智代氏に感謝します。

参考文献

- 1) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Ionizing radiation : Sources and biological effects, 1977 report to the general assembly, with annexes, United Nations, New York (1977).
- 2) *ibid*, 1988 report to the general assembly (1988).
- 3) Takata, N., Watanabe, H., Ichikawa, R.: *J. Radiat. Res.*, 9. 29 (1968).
- 4) Okabayashi, H., Suzuki-Yasumoto, M., Hongo, S., Watanabe, S.: *J. Radiat. Res.*, 16. 142(1975).
- 5) Watson, A. P., *Nucl. Safety*, 26(2), 179 (1985).
- 6) Kametani, K., Ikebuchi, H., Matsumura, T., Kawakami, H.: *Radioisotopes*. 30. 681(1981).
- 7) Annual Progress Reports of Low Level Radioactivity Lab., Kanazawa Univ., LLRL-AR-15, 10 (1991).
- 8) Hisamatsu, S., Takizawa, Y., Komura, K., Tada, T.: *Radioisotopes*, 41, 574(1992).
- 9) Yamamoto, M. et al.: unpublished data.
- 10) Kimura, K.: *Radiological Sciences*, 32 (9), 263 (1989).
- 11) Shimizu, M.: 1982 Report of the Project (Studies on the distribution and behaviors of natural and artificial radionuclides) pp.42, 1983, Nuclear Safety Research Association.
- 12) Yamamoto, M. et al.: in preparation.

**Polonium-210 and Lead-210 in Marine Organisms :
Intake Levels for Japanese**

M. Yamamoto, T. Abe*, J. Kuwabara, K. Komura ,
K. Ueno and Y. Takizawa*

Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University, Tatsunokuchi,
Ishikawa 923-12, Japan

*Akita University School of Medicine, 1-1-1, Hondo, Akita-shi 010, Japan

Abstract

The concentrations of ^{210}Po and ^{210}Pb were determined in about 30 species of marine organisms collected mainly from the north-eastern region of Japan to know the levels and distributions of these radionuclides and to estimate their intake levels from marine foods. ^{210}Po and ^{210}Pb showed a wide range of concentration in species: 0.6 - 26 and 0.04 - 0.54 Bq/kg (wet wt) in fishes, 0.5 - 220 and 0.2 - 43 Bq/kg (wet wt) in molluscs, echinoderms and chordatas, and 2.8 - 4.3 and 0.4 - 1.3 Bq/kg (wet wt) in algae, respectively. Higher accumulation of ^{210}Po relative to ^{210}Pb was found in all of the samples analyzed.

The intake levels of ^{210}Po and ^{210}Pb by marine foods consumption were roughly estimated to be 0.48 - 0.69 and 0.022 - 0.042 Bq/d per person, respectively, on the basis of the statistical data on the consumption of seafood and/or production rates of marine foods.

Introduction

The nuclides ^{210}Po ($T_{1/2}=138.38$ d, α) and ^{210}Pb ($T_{1/2}=22.3$ y, β^-) are the last radioactive members of the ^{238}U series, and present widely in the environment mainly as a natural fallout from the decay of ^{222}Rn in the atmosphere. According to the 1988 UNSCEAR Report¹⁾, this pair is estimated to contribute about 8% of natural internal radiation dose to man. These radionuclides are transferred to the human body via inhalation and/or ingestion of food and water. Ingestion of food is recognized to be the most important routes of these nuclides to man. In general, the concentrations of ^{210}Po and ^{210}Pb are relatively low in meat and milk products, middle in vegetables and cereals, and much higher in most of the marine organisms²⁾.

It is well-known that Japanese people takes animal protein mainly through marine foods. Therefore, Japanese living on seafood may be expected to have high intake of ^{210}Po and ^{210}Pb ²⁾. Data on dietary intake of ^{210}Po and ^{210}Pb are, however, very scarce in Japan, although only a few data are available³⁻⁶⁾. In this context, it seems indispensable to estimate the intake levels of ^{210}Po and ^{210}Pb through marine foods consumption, which is the traditional dietary habit for Japanese.

In the present paper, we report the results of measurements of ^{210}Po and ^{210}Pb in about 30 species of marine organisms collected mainly from the north-eastern region of Japan. The study is very important not only to evaluate the levels and distributions of ^{210}Po and ^{210}Pb in marine organisms in Japanese waters but also to estimate the intake levels of these nuclides by the people consuming large amounts of seafood.

Materials and Methods

Samples

Most of the samples were collected during the years 1988-1990 from the north-eastern region of Japan. Some samples were obtained by purchase from commercial suppliers, the sampling date and caught region being guaranteed. Fishes were dissected into muscle and remainder, and only muscle was used to analysis. Shellfish were, whenever possible, dissected into muscle and viscera. All samples were oven-dried at 80-90 °C or freeze-dried and then mixed homogeneously.

Analytical procedures

Aliquots of the homogenized samples, 1 - 20 g in dry weight, were subjected to radiochemical analysis of ^{210}Po and ^{210}Pb , using ^{209}Po as a yield tracer of polonium. The sample was carefully decomposed by wet-ashing with HNO_3 , H_2O_2 and HClO_4 , followed by HCl . The resultant residue was then dissolved in 100-200 ml of 0.5M HCl with warming, and several 10 mg's of ascorbic acid was added to the solution. Polonium was spontaneously deposited on a polished silver disc (the backside of which was coated with heat-resistant tape) put in this solution for more than 6 hours at 70-90 °C (time : t_1). After the first deposition of polonium, the 0.5M HCl solution was gently evaporated to dryness with the addition of small amount of HNO_3 and H_2O_2 . The residue was dissolved in about 50 ml of 10M HCl , and the solution was passed through a Dowex 1-X8 anion exchange resin column to remove completely the polonium remaining after the first deposition of polonium. The column was washed thoroughly with about 50 ml of 10M HCl (time : t_2). Lead is not adsorbed on the column under this condition, while Po is strongly

adsorbed. ^{209}Po tracer was spiked to the effluent (usually about 100 ml) from the column, and the solution was stored for 3-6 months to allow ^{210}Po ingrowth from the ^{210}Pb contained in the solution. The ^{210}Po grown from ^{210}Pb was coprecipitated with $\text{Fe}(\text{OH})_3$, and deposited on another silver disc by the above mentioned procedures (time : t_3).

Measurements

The activity of polonium (^{210}Po and ^{209}Po) deposited on the silver disc was measured by using a Si(Au) surface barrier detector with a 450 or 500 mm^2 active area, coupled with a 1K channel pulse-height analyzer.

The concentrations of ^{210}Pb (D_0) and ^{210}Po (F_0) at the sampling date (t_0) were calculated using the following equations :

$$D_0 = f_1 \cdot F_2$$

$$F_0 = f_2 \cdot (F_1 - f_3 \cdot D_0)$$

where F_1 = activity of ^{210}Po (mBq/g) at time t_1 ,

F_2 = activity of ingrowth ^{210}Po (mBq/g) at time t_3 for the measurement of ^{210}Pb

f_1 = factor to correct the growth of ^{210}Po from ^{210}Pb in the period from t_2 to t_3 ,

f_2 = factor to correct the decay of ^{210}Po in the period from t_0 to t_1 ,

f_3 = factor to correct the growth of ^{210}Po from ^{210}Pb in the period from t_0 to t_1 .

The factors f_1 and f_3 were calculated by using Beteman's equation for the decay and growth of three radionuclides, that is, ^{210}Pb , ^{210}Bi and ^{210}Po .

Results and Discussion

The analytical data obtained from the measurements of samples by several categories are presented in Tables 1, 2, 3 and 4. All results are discussed on a basis of wet weight.

Accumulation levels of ^{210}Po and ^{210}Pb

The ^{210}Po concentrations in muscles of fishes, listed in Table 1, range from 0.6 to 26.3 Bq/kg (a factor of 44), while the ^{210}Pb concentrations range by a factor of only 18, from 0.03 to 0.54 Bq/kg. ^{210}Pb concentration is much lower than its granddaughter ^{210}Po , and resultant $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ activity ratios range extensively from 5 to 149. The data on molluscs, echinoderms and chordatas given in Table 2 show a wide range of ^{210}Po concentrations from 0.5 to 220 Bq/kg, the higher values being found in viscera of shellfish, *Battillus cornutus* and *Neptunea polycostata*, and the lower values in *Octopus vulgaris* and in muscle of *Buccinum striatissimum*. The ^{210}Pb values range from 0.21 Bq/kg in total soft tissues of *Meretrix lusoria* to 42.6 Bq/kg in viscera of *Battillus cornutus*. The $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ ratios ranging from 1 to 57 as a whole seem to be lower than those for fishes given in Table 1. Since higher concentrations of ^{210}Po and ^{210}Pb were found in viscera of shellfish (*Battillus cornutus* and *Neptunea polycostata*) analysed here, ^{210}Po and ^{210}Pb distributions between soft tissues with *Patinopecten yessoensis* were studied. The results are presented in Table 3. The ^{210}Po concentration in hepatopancreas is as high as 478 Bq/kg, which corresponds to 86% of the total ^{210}Po content of the organism. Similarly, ^{210}Pb concentration reaches 6.1 Bq/kg in hepatopancreas, and its content contributes 54% of the total ^{210}Pb . Both ^{210}Po and ^{210}Pb concentrations in the organs analysed decrease as follows :

hepatopancreas > gonads > gills > mantle adductor. The results that ^{210}Po is concentrated highly in hepatopancreas, accompanied by a lower accumulation of ^{210}Pb , are consistent with the results found already in several marine organisms by Follsom et al.⁷⁾, Heyraud et al.⁸⁾ and Cherry et al.⁹⁻¹²⁾ The concentrations of ^{210}Po and ^{210}Pb in algae shown in Table 4 lie in relatively narrow range 2.8 - 4.3 and 0.43 - 1.32 Bq/kg, respectively.

Overall, the data here show that the concentrations of both nuclides range with the two orders of magnitude. Surprisingly, no data, except one data on ^{210}Pb , has been reported as yet for both of ^{210}Po and ^{210}Pb in marine organisms in Japanese waters. Shimizu¹³⁾ has measured ^{210}Pb contents in about 40 species of marine organisms collected by trawling during the years 1981-1983 mainly from the offshore in Choshi, Chiba Prefecture, facing to the Pacific Ocean. The reported ^{210}Pb concentrations ranged from 0.03 to 0.3 Bq/kg in muscle of fishes and from 0.3 to 1.5 Bq/kg in muscle of molluscs. The ^{210}Pb measured here for fishes and molluscs have activities within the ranges found by Shimizu¹³⁾. On the other hand, since no data on ^{210}Po in marine organisms in Japanese waters has been reported, the present ^{210}Po data are, therefore, believed to be very important for the fact that these data begin to provide a baseline of ^{210}Po concentrations in marine organisms in Japanese waters.

Comparison with other radionuclides

Besides ^{210}Po and ^{210}Pb , naturally occurring and artificial radionuclides such as ^{238}U , ^{232}Th , ^{226}Ra , ^{40}K , ^{137}Cs etc., were measured to compare their accumulation levels with those for ^{210}Po and ^{210}Pb . Such studies are necessary not only in assessing dose to humans via the consumption of seafood but also in providing useful analogue information on the behavior of transuranic nuclides. Analytical techniques used have been described previously¹⁴⁾. Briefly, gamma-ray emitting nuclides were determined by gamma-spectrometry

using Ge detector. Alpha-ray emitting nuclides such as ^{238}U , ^{232}Th and ^{226}Ra were determined by alpha-spectrometry after chemical separation. The contents of radionuclides measured in some species are shown in Table 5. As seen from this table, ^{210}Po in viscera of *Batillus cornutus* exhibits the highest activity among the radionuclides detected, although ^{40}K is the most abundant radionuclides in most of the samples. Concentration of the nuclides such as ^{232}Th and ^{226}Ra are significantly lower than those of ^{40}K , ^{210}Po and ^{210}Pb . It is evident here that marine organisms have a great ability to accumulate ^{210}Po and ^{210}Pb . Thus, assessment of internal radiation dose via marine food consumption is subsequently dominated by the contribution of natural radionuclides ^{210}Po and ^{210}Pb , in particular ^{210}Po .

Intake levels from marine food consumption

According to the 1977 UNSCER Report²⁾, Japanese people is classified as an example of high ^{210}Pb intake by marine foods consumption. It is, therefore, very important to evaluate the daily intake levels of ^{210}Po and ^{210}Pb by ingestion of marine foods. In Japan, one data on estimation of ^{210}Pb intake by marine food consumption has been reported. Shimizu¹³⁾ has measured ^{210}Pb contents in 18 processed marine products other than about 40 species of marine organisms mentioned above. Using these data, daily intake of ^{210}Pb by ingestion of marine foods was estimated to be around 0.037 Bq/d per person based on the statistical data on the annual production of seafood by categories and/or annual supply of seafood calculated from an average food supply in Japan. Similarly, ^{210}Pb and ^{210}Po ingestions from marine foods were calculated using the geometric mean values of ^{210}Po and ^{210}Pb concentrations in each categories of marine organisms measured here and the statistical data on annual production of seafood¹⁵⁾ by the similar manner as Shimizu (Method-I) and also on consumption rates of individual species of marine organisms¹⁶⁾

(Method-II). The results thus obtained are presented in Table 6. As seen from this table, intake levels are in the range from 0.022 to 0.042 Bq/d per person for ^{210}Pb and from 0.48 to 0.69 Bq/d per person for ^{210}Po . The present values for ^{210}Pb are close to the value (about 0.037 Bq/d per person) estimated by Shimizu. On the other hand, as for ^{210}Po , the intake level is about 10 to 20 times higher than those of ^{210}Pb . The intake level for ^{210}Po by Method-I may be considerably overestimated because all of the freshly caught marine organisms are not always consumed immediately, and a part of them are used as processed marine products. During their processed and/or stored periods most of excess ^{210}Po relative to ^{210}Pb would decay to lower concentration, although some ^{210}Po are produced by the decay of ^{210}Pb . In case of ^{210}Pb , such consideration seems to be not necessary because half-life of this nuclide is relatively long. Contrary to Method-I, the values for ^{210}Po and ^{210}Pb calculated by Method-II may be underestimated because of the lack of a consideration on the ingestion of both nuclides from processed marine products. It should be borne in mind that these figures were calculated by using only a few data set of ^{210}Po and ^{210}Pb obtained here. It is, moreover, not sure whether the marine organisms used in the present estimation were the representative of both for ^{210}Pb and ^{210}Po , because the samples were limited in north-eastern region. Further data are needed to estimate reliable intake levels of ^{210}Po and ^{210}Pb for Japanese by marine foods consumption. Nevertheless, it is worth remarking to point out that Japanese people may ingest excess of ^{210}Po relative to its grandparent ^{210}Pb from marine foods. Such situation may be similar to the excess ^{210}Po intake for inhabitants of the Arctic and Sub-arctic regions of Alaska, Canada, Scandinavia etc. who consume large amounts of the meat of reindeer.

References

- 1) United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, Ionizing radiation : Sources and Biological Effects, 1988 report to the general assembly, with annexes, United Nations, New York (1988).
- 2) *ibid.*, 1977 report to the general assembly (1977).
- 3) N. TAKATA, H. WATANABE, R. ICHIKAWA, J. Radiat . Res., 9, 29(1968).
- 4) H. OKABAYASHI, M. SUZUKI-YASUMOTO, S. HONGO, S. WATANABE, J. Radiat. Res., 16, 142(1975).
- 5) K. KAMETANI, H. IKEBUCHI, T. MATSUMURA, H. KAWAKAMI, Radioisotopes, 30, 681(1981).
- 6) S. HISAMATSU, Y. TAKIZAWA, K. KOMURA, T. TADA, Radioisotopes, 41, 574(1992).
- 7) T. R. FOLSOM, K. M. WONG, V. F. HODGE, In The Natural Radiation Environment II, eds J. A. S. Adams, W. M. Lowder, R. F. Gessell, U. S. Department of Energy Report CONF-7208, pp.863-82.
- 8) M. HEYRAUD, R. D. CHERRY, B. DOWDLE, J. Environ. Radioactivity, 5, 249(1987).
- 9) R. D. CHERRY, M. HEYRAUD, Mar. Biol., 65, 165(1981).
- 10) R. D. CHERRY, M. HEYRAUD, Science, 218, 54(1982).
- 11) R. D. CHERRY, L. V. SHANNON, Atom. Energy Rev., 12, 3(1974).
- 12) R. D. CHERRY, M. HEYRAUD, J. J. W. HIGGO, Mar. Ecol. Prog. Ser., 13, 229(1983).
- 13) M. SHIMIZU, In 1982 Report of the Project "Studies on the distribution and behavior of natural and artificial radionuclides" pp. 42-56(1983), Nuclear Safety Research Association.

- 14) M. YAMAMOTO, In Approach to the Nuclear Safety for Environment and Members of Public "Ecological Behavior, Metabolism, Dose Evaluation of Radionuclides", eds T. Iwakura, T. Nakajima, Proceedings of The Twentieth National Institute of Radiological Sciences, Seminar on Environmental Research, Chiba Japan, pp.106-122(1993).
- 15) Ministry of Agriculture, Forestry and Fisheries, 1988 Annual Report of Production Statistics on Fishery and Aquaculture (Agriculture, Forestry and Fishery Statistics Bulletin, pp.2-3 (1990).
- 16) Ministry of Health and Welfare, Japan, 1982, "Showa 57 Nenban Kokumin Eiyou No Genjo (Current Status of National Nutrition, 1982)", Dai-Ichi Shuppan, Tokyo(1982).

Table 1 Concentrations of Po-210 and Pb-210 in marine fishes

Species		Tissue or Organ	Po-210 Content($\pm 1 \sigma$ *)		Pb-210 Content($\pm 1 \sigma$ *)		Ratio
Japanese name	Scientific name		Bq/kg (wet wt)	Bq/kg (dry wt)	Bq/kg (wet wt)	Bq/kg (dry wt)	Po-210 Pb-210
Shirauo	<i>Salanx microdon</i>	Whole body	0.6 \pm 0.1	5.5 \pm 0.9	0.13 \pm 0.01	1.13 \pm 0.09	5
Maiwashi	<i>Sardinops melanostictus</i>	Muscle	6.8 \pm 0.7	34.2 \pm 3.7	0.15 \pm 0.01	0.74 \pm 0.06	46
		Muscle	19.2 \pm 1.1	87.3 \pm 4.9	0.49 \pm 0.06	2.22 \pm 0.25	39
		Muscle	22.2 \pm 0.9	85.2 \pm 3.5	0.54 \pm 0.06	2.09 \pm 0.23	41
kisu	<i>Sillago sihama</i>	Muscle	6.9 \pm 0.3	32.5 \pm 1.3	0.28 \pm 0.03	1.32 \pm 0.14	25
Ainame	<i>Hexagrammos otakii</i>	Muscle	2.1 \pm 0.1	9.6 \pm 0.7	0.04 \pm 0.01	0.20 \pm 0.04	48
		Muscle	1.0 \pm 0.1	4.6 \pm 0.4	0.11 \pm 0.02	0.54 \pm 0.09	9
Karei	<i>Hippoglossoides dubius</i>	Muscle	5.8 \pm 0.4	27.3 \pm 1.9	0.06 \pm 0.01	0.26 \pm 0.05	105
		Muscle	14.4 \pm 0.7	55.4 \pm 2.6	0.10 \pm 0.02	0.37 \pm 0.07	149
		Muscle	7.7 \pm 0.3	34.4 \pm 1.5	0.16 \pm 0.01	0.69 \pm 0.07	50
Kichiji	<i>Sebastolobus macrochir</i>	Muscle	0.9 \pm 0.1	4.1 \pm 0.3	0.03 \pm 0.01	0.12 \pm 0.05	34
Maaaji	<i>Trachurus trachurus</i>	Muscle	8.8 \pm 0.5	36.1 \pm 2.0	0.11 \pm 0.01	0.44 \pm 0.04	82
Honsaba	<i>Pneumatophous japonicus</i>	Muscle	25.8 \pm 1.3	91.2 \pm 4.7	0.19 \pm 0.04	0.67 \pm 0.13	136
Hatahata	<i>Arctoscopus japonicus</i>	Muscle	6.7 \pm 0.4	31.3 \pm 1.9	0.30 \pm 0.07	1.42 \pm 0.33	22
		Muscle	4.3 \pm 0.3	22.2 \pm 1.4	0.30 \pm 0.03	1.53 \pm 0.16	15
Hotsuke	<i>Pleurogrammus azonus</i>	Muscle	2.1 \pm 0.2	10.7 \pm 0.9	0.24 \pm 0.05	1.20 \pm 0.25	9
		Muscle	2.3 \pm 0.2	10.5 \pm 0.9	0.23 \pm 0.04	1.04 \pm 0.20	10
Madara	<i>Godus macrocephalus</i>	Muscle	0.6 \pm 0.1	3.0 \pm 0.3	0.11 \pm 0.02	0.56 \pm 0.11	5
Kuromaguro	<i>Thunnus thynnus</i>	Muscle	24.4 \pm 1.6	83.6 \pm 5.5	0.28 \pm 0.03	0.96 \pm 0.10	87
		Muscle	26.3 \pm 2.1	74.4 \pm 6.0	0.18 \pm 0.05	0.51 \pm 0.14	145

* propagated counting error.

Table 2 Concentrations of Po-210 and Pb-210 in marine molluscs, echinoderms and chordatas

Japanese name	Species Scientific name	Tissue or Organ	Po-210 Content($\pm 1 \sigma^*$)		Pb-210 Content($\pm 1 \sigma^*$)		Ratio Po-210/Pb-210
			Bq/kg (wet wt)	Bq/kg (dry wt)	Bq/kg (wet wt)	Bq/kg (dry wt)	
Molluscs							
Madako	<i>Octopus vulgaris</i>	Arm muscle	0.5 \pm 0.1	3.7 \pm 0.4	0.50 \pm 0.06	3.4 \pm 0.4	1
Surumeika	<i>Todarodes pacificus</i>	Trunk muscle	1.9 \pm 0.2	10.0 \pm 0.9	0.92 \pm 0.09	4.8 \pm 0.4	2
Manamako	<i>Stichopus japonicus</i>	Muscle	5.8 \pm 0.2	68.5 \pm 2.5	0.24 \pm 0.03	2.8 \pm 0.4	25
Sazae	<i>Batillus cornutus</i>	Muscle	32.8 \pm 2.6	147 \pm 12	2.39 \pm 0.25	10.7 \pm 1.1	14
		Viscera	220 \pm 18	1081 \pm 89	119 \pm 7	583 \pm 36	2
		Muscle	21.4 \pm 1.6	93.6 \pm 7.0	1.86 \pm 0.17	8.1 \pm 0.7	12
		Viscera	117 \pm 9	577 \pm 44	42.6 \pm 3.0	210 \pm 15	3
Echuubaigai	<i>Buccinum Striatissimum</i>	Muscle	0.5 \pm 0.1	1.9 \pm 0.2	0.16 \pm 0.02	0.6 \pm 0.1	3
		Viscera	13.4 \pm 1.4	36.3 \pm 3.7	1.07 \pm 0.12	2.9 \pm 0.3	13
Ezoborzgai	<i>Neptunea polycostata</i>	Muscle	18.9 \pm 1.4	80.3 \pm 6.0	0.33 \pm 0.03	1.4 \pm 0.1	57
		Viscera	65.5 \pm 5.2	197 \pm 16	11.1 \pm 0.6	33.4 \pm 1.9	6
Asari	<i>Tapes philippinarum</i>	Soft part	3.7 \pm 0.3	33.7 \pm 2.3	0.27 \pm 0.02	2.4 \pm 0.2	14
Hamaguri	<i>Meretrix lusoria</i>	Soft part	3.4 \pm 0.2	36.3 \pm 2.3	0.21 \pm 0.01	2.2 \pm 0.2	17
Hotate	<i>Patinopecten yessoensis</i>	Soft part	54.0 \pm 2.6	348 \pm 17	0.56 \pm 0.05	3.6 \pm 0.3	17
Magaki	<i>Crassostrea gigas</i>	Soft part	46.6 \pm 3.5	183 \pm 14	2.12 \pm 0.22	8.3 \pm 0.9	22
Echinoderms							
Murasakiuni	<i>Anthocidaris crassispina</i>	Gonad	6.4 \pm 0.3	22.8 \pm 1.0	0.27 \pm 0.03	1.0 \pm 0.1	24
Chordatas							
Akahoya	<i>Halocynthia aurantium</i>	Muscle	4.0 \pm 0.2	24.3 \pm 1.1	1.16 \pm 0.10	7.0 \pm 0.6	3

* propagated counting error.

Table 3 Distribution of Po-210 and Pb-210 in Hotate *Patinopecten yessoensis*

Tissue or Organ	% of total weight	Po-210($\pm 1 \sigma^*$)	Pb-210 ($\pm 1 \sigma^*$)	% of total content	
		Bq/kg (wet wt)	Bq/kg (wet wt)	Po-210	Pb-210
Adductor	41	3.5 \pm 0.2	0.21 \pm 0.03	2.7	7.8
Mantle	14.3	3.5 \pm 0.2	0.27 \pm 0.04	0.9	3.5
Gills	13.5	14.6 \pm 0.9	0.48 \pm 0.05	3.7	6.0
Gonards	21.5	16.9 \pm 1.4	1.45 \pm 0.13	6.7	28.4
Hepatopancreas	9.7	479 \pm 27	6.14 \pm 0.41	86.0	54.3
Total	100	54.0 \pm 2.6	0.56 \pm 0.05	100	100

* propagated counting error.

Table 4 Concentrations of Po-210 and Pb-210 in marine algae

Japanese name	Species Scientific name	Tissue or Organ	Po-210 Content($\pm 1 \sigma^*$)		Pb-210 Content($\pm 1 \sigma^*$)		Ratio
			Bq/kg (wet wt)	Bq/kg (dry wt)	Bq/kg (wet wt)	Bq/kg (dry wt)	Po-210 / Pb-210
Wakame	<i>Undaria sp.</i>	Whole body	3.9 \pm 0.3	51.6 \pm 3.9	0.51 \pm 0.03	6.7 \pm 0.4	8
		Whole body	3.1 \pm 0.2	53.4 \pm 3.7	0.69 \pm 0.04	11.9 \pm 0.7	5
Gibasa	<i>Sargassum horneri</i>	Whole body	4.3 \pm 0.4	42.0 \pm 3.6	1.32 \pm 0.09	13.0 \pm 0.9	3
Iwanori	<i>Porphyra sp.</i>	Whole body	3.9 \pm 0.4	—	0.43 \pm 0.03	—	9
Mozuku	<i>Nemacystus decipiens</i>	Whole body	2.8 \pm 0.3	12.2 \pm 1.1	0.74 \pm 0.06	3.3 \pm 0.2	4

* propagated counting error.

Table 5 Comparison of radionuclide concentrations in marine organisms (Bq/kg wet weight $\pm 1\sigma$ *)

Nuclides	<i>Batillus cornutus</i>		<i>Sillago sihama</i>		<i>Pneumatophous japonics</i>		<i>Todarodes pacificus</i>		<i>Octopus vulgaris</i>	
	Muscle	Viscera	Muscle	Muscle	Trunk muscle	Arm muscle				
U-238	1.03 \pm 0.03	1.77 \pm 0.085	0.0066 \pm 0.0006	0.0026 \pm 0.0004	0.0067 \pm 0.0007	0.023 \pm 0.002				
U-234	1.19 \pm 0.03	2.06 \pm 0.100	0.0075 \pm 0.0007	0.0030 \pm 0.0004	0.0074 \pm 0.0007	0.026 \pm 0.002				
Th-230	0.052 \pm 0.004	0.12 \pm 0.01	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.				
Ra-226	0.053 \pm 0.005	0.12 \pm 0.01	0.0078 \pm 0.0009	0.0089 \pm 0.0010	n.d.	n.d.				
Pb-210	2.80 \pm 0.22	72.3 \pm 5.0	0.28 \pm 0.03	0.19 \pm 0.01	0.90 \pm 0.09	0.50 \pm 0.06				
Po-210	36.0 \pm 2.1	143 \pm 13	6.92 \pm 0.28	25.8 \pm 1.3	1.92 \pm 0.18	0.53 \pm 0.06				
Th-232	0.073 \pm 0.006	0.11 \pm 0.02	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.				
Ra-228	0.28 \pm 0.03	0.52 \pm 0.06	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.				
Th-228	0.25 \pm 0.01	0.48 \pm 0.04	n.d.	n.d.	n.d.	n.d.				
K-40	78.8 \pm 1.6	61.9 \pm 1.8	90.9 \pm 1.8	119 \pm 2	102 \pm 2	62.9 \pm 1.3				
Cs-137	0.073 \pm 0.016	0.045 \pm 0.010	0.11 \pm 0.01	0.21 \pm 0.02	0.089 \pm 0.015	n.d.				

* : propagated counting error.

n.d. : not detected.

Table 6 Estimation of daily intake of Po-210 and Pb-210 from marine foods. Geometric mean was used as average concentrations of Po-210 and Pb-210 for each category, respectively.

Method-I

Category	Production*1 (1000 ton)	Rate of edible part	Po-210			Pb-210		
			Content (Bq/kg wet)	Amount (10 ⁸ Bq)	(%)	Content (Bq/kg wet)	Amount (10 ⁸ Bq)	(%)
Fish	9949	0.6	4.2	250.7	83.1	0.14	8.60	46.7
Cephalopad	712	0.8	1.0	5.7	1.8	0.68	3.87	21.0
Shellfish	832	0.2	11.1	18.5	6.1	0.60	1.00	5.4
Crustacean	119	0.4	4.2*2	2.0	0.7	0.14*2	0.07	0.4
Seaweeds	798	0.9	3.5	25.1	8.3	0.68	4.88	26.5
Total				302.0	100		18.42	100
Bq/d/p*3				0.69			0.042	

*1) From 1988 annual report of production statistics on fishery and aquaculture[15].

*2) Assumed to be equal to fish.

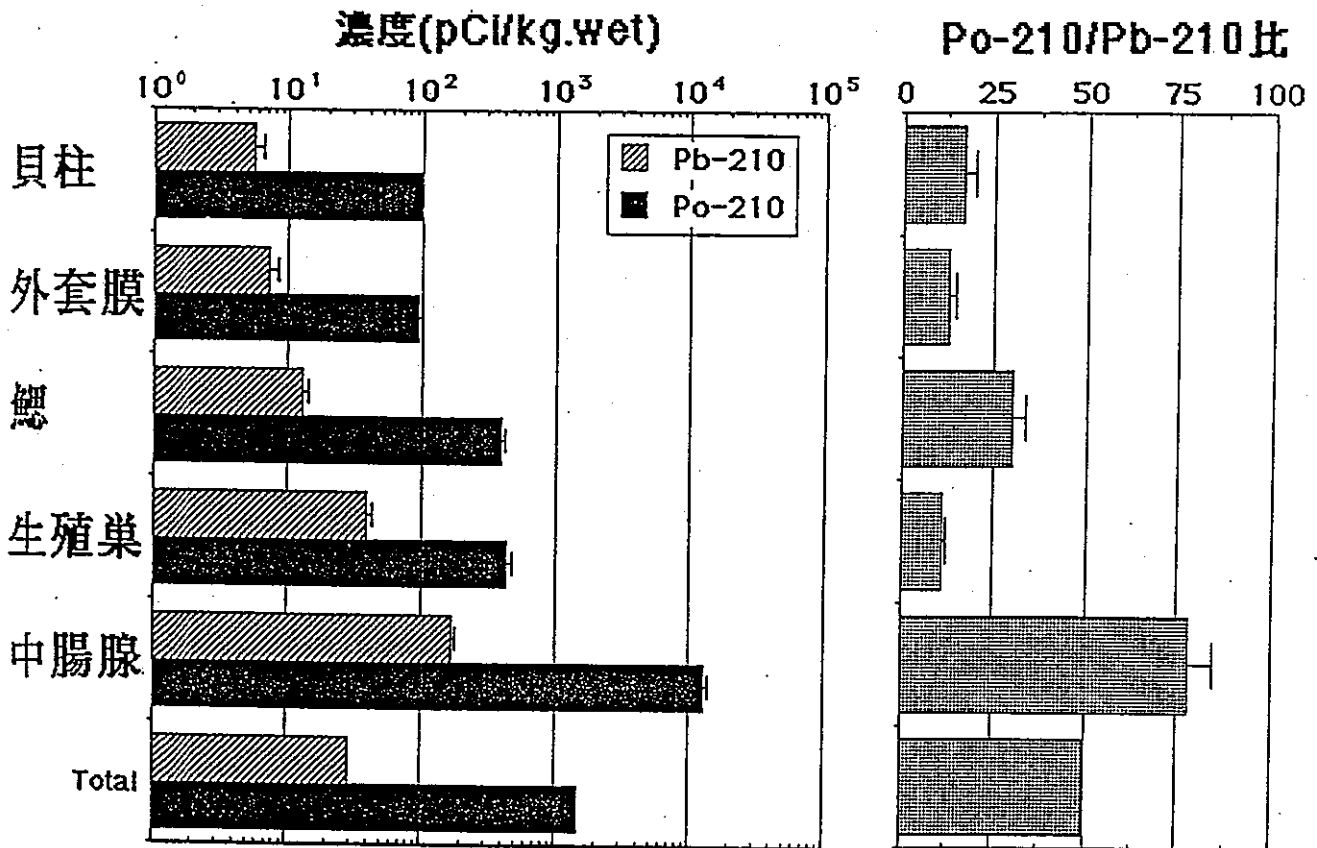
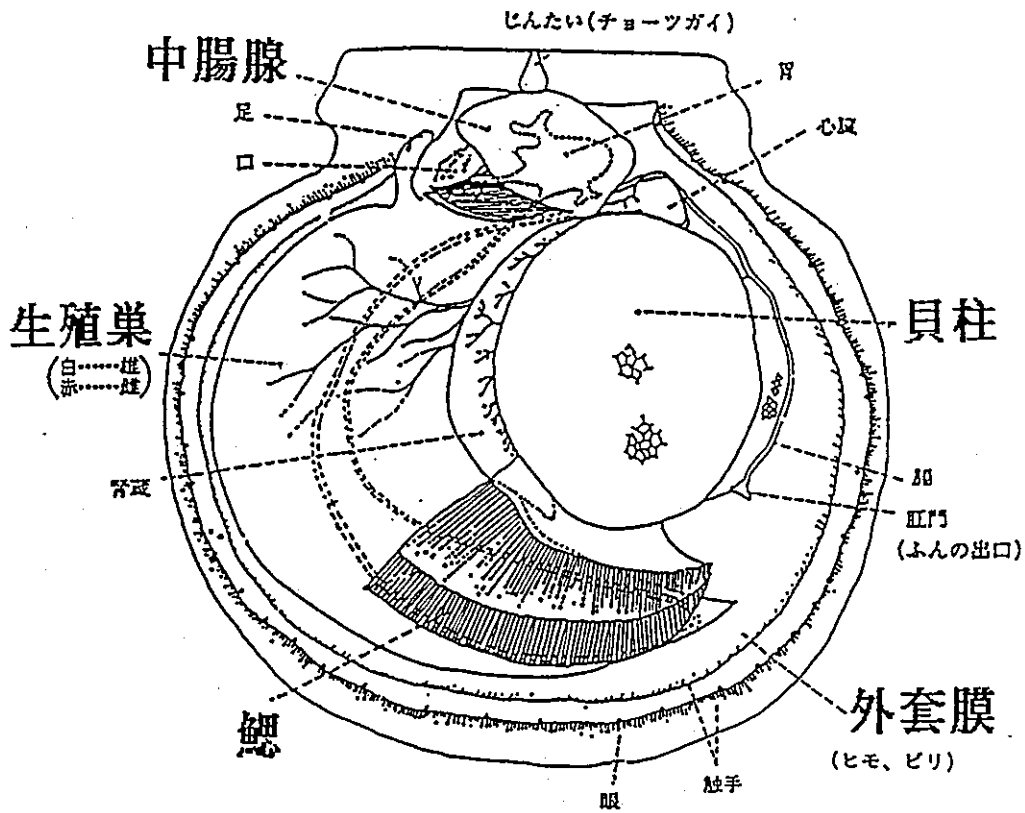
*3) Total population : one hundred and twenty million.

Method-II

Category	Daily intake*1	Po-210	Pb-210	Po-210	Pb-210
	(g /d/p)	(Bq/kg wet)	(Bq/kg wet)	(Bq/d/p)	(Bq/d/p)
Fish					
Tuna	6.3	25.3	0.22	0.159	0.0014
Porgy, Plaice	7.4	8.6	0.10	0.064	0.0007
Saurel, Sardine	11.1	12.6	0.26	0.140	0.0029
Saloon, Trout*2	3	1.5	0.18	0.004	0.0005
Others	11.7	3.0	0.13	0.035	0.0015
Squid, Octopas	13	1.0	0.68	0.013	0.0088
Shellfish	4.4	11.1	0.60	0.049	0.0026
Seaweeds	5.6	3.6	0.68	0.020	0.0038
Total				0.48	0.022

*1) Average daily intake in Japanese[16].

*2) Contents of Po-210 and Pb-210 in Madara (*Godus macrocephalus*) and Hotsuke (*Pleurogrammus azonus*) were used as substitute of this category.



Fallout ^{237}Np , Pu Isotopes and ^{241}Am in Lake and Sea Sediments from the Coastal Area of the Sea of Japan

By M. Yamamoto, Y. Yamauchi, K. Chatani, S. Igarashi*, K. Komura and K. Ueno

Low level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University, Tatsunokuchi, Ishikawa 923-12, Japan

* Fukui Prefectural Institute of Public Health, Harame, Fukui 910, Japan

(Received March 7, 1990; revised April 2, 1990)

Fallout / ^{237}Np / Pu isotopes / ^{241}Am / Sediments / Japan

Abstract

Depth profile and inventory of fallout ^{237}Np in sediment cores from the Mikata Five Lakes and Nyu Bay located in the coastal area of the Sea of Japan have been studied together with those of Pu isotopes (^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Pu), ^{241}Am and ^{137}Cs to understand the sedimentation behaviors of these elements under different aquatic environments. Mikata Five Lakes has different water salinity levels in a narrow area: fresh water (Lake Mikata), brackish water (Lakes Kugushi, Suigetsu and Suga) and sea water (Lake Hiruga).

The inventory of $^{239,240}\text{Pu}$ estimated from measured depth profiles ranged from 109 to 347 MBq/km². The depth profiles of ^{237}Np and ^{241}Am in sediment cores were similar to that of $^{239,240}\text{Pu}$. On the basis of a comparison of the $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ inventory ratio obtained in sediment cores with that in surface soils, Np is considered to be more soluble than Pu in an aquatic environment. The ^{241}Am depth profile observed can well be explained by the ingrowth from parent ^{241}Pu by assuming the USA nuclear tests during the late 1950's as a substantial source of this nuclide and the immobilization of Pu and Am in the sediment. The $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ inventory increased from 0.027 to 0.38 with the increase of salinity of the water.

1. Introduction

With the increase of the inventory of transuranium elements in the environment by the operation of nuclear reactors, nuclear fuel reprocessing plants, etc., it is more necessary than ever to deepen our understanding of the biological, physicochemical and geochemical behaviors of transuranium elements in the environment.

Studies on environmental plutonium and americium derived from nuclear weapons tests and nuclear reprocessing plants have been performed extensively using various kinds of environmental samples. However, data on environmental neptunium are very sparse [1–6], although a significant amount (about 2 tons) of ^{237}Np ($T_{1/2} = 2.14 \times 10^6$ y, alpha-decay) has already been distributed as global fallout [2]. This is mainly due to the technical difficulties in the determination of extremely low-level ^{237}Np as compared with that of $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Am .

In the aquatic environment, considerable attention [7–15] has been focused mainly on the sedimentary

behaviors of transuranium elements, since marine and/or lake sediments play an important role as the principal reservoir of such long-lived radionuclides [16]. It is well known that Pu(IV) and Am(III) have large distribution coefficients for adsorption onto suspending particles in sea or lake water and are swiftly deposited on lake or sea floors as sedimentary particles when they are introduced into a marine or lake environment [10]. On the other hand, Np introduced into well-oxidized fresh- or sea-water is considered to have soluble pentavalent species such as NpO_2^+ [17]. Consequently, the distribution coefficient of Np on particulate materials is much lower than that of Pu(IV) and Am(III) [18, 19]. Recently, an accurate and reliable analytical method has been developed for extremely low-level ^{237}Np in environmental samples using alpha-ray spectrometry [20].

In the present work, the depth profile and inventory of environmental ^{237}Np derived from nuclear weapons tests have been precisely studied together with those of Pu isotopes, ^{241}Am and ^{137}Cs for sediment cores collected from the Mikata Five Lakes and Nyu Bay, Fukui Prefecture, Japan. The "Mikata Five Lakes" consist of five lakes with quite different environmental features in a narrow area of about 25 km². Therefore, differences in sedimentation behaviors of these elements due to environmental circumstances may also be clarified by the precise measurement of depth profiles and inventories of these radionuclides.

2. Overview of the Mikata Five Lakes and Nyu Bay

The Mikata Five Lakes (35°34'N, 135°53'E) are located between Mikata Town and Mihama Town facing the Sea of Japan in Fukui Prefecture. They include from north to south, Lake Hiruga, Lake Kugushi, Lake Suigetsu, Lake Suga and Lake Mikata (Fig. 1). Four of these, all except Lake Kugushi, were originally fresh water lakes. In 1630, Hiruga Canal was excavated to discharge the water of Lake Hiruga into the Sea of Japan. Since that time lake Hiruga has been saline. Lake Suigetsu was connected to Lake Suga and linked to Lake Kugushi through the Urami Canal, excavated in 1664, and since then this lake has been

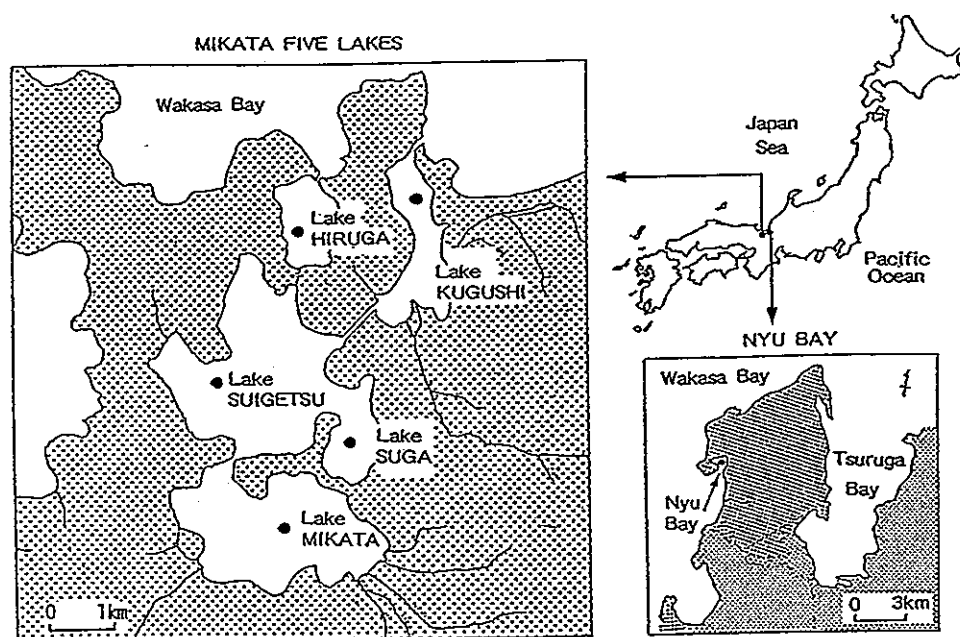


Fig. 1. Sampling locations of sediment cores in the Mikata Five Lakes and Nyu Bay, Fukui Prefecture, Japan.

Table 1. Geographical and geochemical features of the Mikata Five Lakes in Fukui Prefecture

Property	Lake Hiruga	Lake Kugushi	Lake Suigetsu	Lake Suga	Lake Mikata
Surface area (km ²)	0.9	1.4	5.0	1.0	3.6
Max. water depth (m)	38.5	2.5	34.0	13.0	5.8
Mean water depth (m)	14.3	0.8	14.3	4.6	1.3
River basin (km ²)	2.2	15.8	4.3	1.3	60.3
pH surface water ^a	7.8–8.2	7.5–8.9	7.5–8.7	7.5–8.1	7.5–9.2
Suspended materials ^a (mg/l)	0.7	5.8	3.2	2.9	22
Cl ⁻ ion concentration (%) ^a					
Surface water	16–18	1–14	0.4–1.5	0.4–1.5	0.03–0.4
Bottom water	≈18	5–14	≈8	≈7	0.03–0.4
H ₂ S near bottom concentration (mg/l) ^a	5–6	0	160–180	61	0
Sedimentation rate (mg/cm ² /y)	98 ^b , 113 ^b	217 ^b	35 ^c , 52 ^d		395 ^b

^a Tagawa, S., 1981 [21], ^b Komura, K., 1984 [22], ^c Nakanishi, T., 1981 [23], ^d Matsumoto, E., 1981 [24].

saline. In 1801 the Saga Tunnel was constructed between Lake Suigetsu and Lake Hiruga, which is open to the Sea of Japan. After the Saga Tunnel was dredged and widened in 1934–1935, a large volume of sea water was introduced into Lake Suigetsu, and this lake has become extremely brackish. Lake Mikata remains fresh water because all of its water is supplied by the Hasu River and some smaller rivers. Table 1 summarizes the geographical and chemical characteristics of the Mikata Five Lakes [21–24].

Nyu Bay (35°24'N, 135°58'E) of Tsuruga Peninsula is located about 15 km NE of the Mikata Five Lakes (Fig. 1). This bay is partially enclosed and has an area of 0.67 km². Maximum water depth is 13–15 m at the center of the bay, but the depth at its mouth is only 2–5 m.

3. Materials and analytical methods

3.1. Samples

Sampling locations of the sediment core are shown in Fig. 1. Sediment cores to about 20 cm depth were collected in November 1986 by using an Ekman-Birge type box sampler (14 cm × 14 cm × 25 cm) in Lakes Hiruga, Suigetsu and Suga at the points where water depth was 40 m, 30 m and 11 m, respectively. On the other hand, in Lakes Mikata and Kugushi the sediment cores were collected simply by inserting an acrylic resin pipe with 9.5 cm i.d. at the point where water depth was 2 m and 2.5 m, respectively, in August 1988. The core samples collected were divided into 5 or 7 fractions on a boat and preserved in polyethylene bags at room temperature. The sample from Nyu Bay

was collected in February 1988 by a diver who inserted an acrylic resin pipe with 10.2 cm i.d. into soft mud at the deepest point, with water depth of 15 m. After siphoning off of supernatant water, the core sample was cut into 10 fractions at 4 cm intervals from the top. All fractions were air-dried at 105°C , weighed, powdered and homogenized for analysis.

3.2. Analytical methods

After non-destructive gamma-ray measurements of fallout ^{137}Cs and natural radionuclides including ^{210}Pb , a 40–60 g aliquot was subjected to chemical analyses for Np, Pu and Am, using ^{239}Np , ^{236}Pu and ^{243}Am as yield tracers for each element. The analytical method for Np consists of (i) leaching of Np, Pu and Am from the sample by treating it with aqua regia containing a small amount of H_2O_2 , (ii) solvent extraction of Np by TOA (tri-*n*-octylamine), (iii) coprecipitation of Np with LaF_3 and (iv) two anion exchanges for separation and purification. Details of the analytical method have been reported elsewhere, together with the precision and accuracy of the method [20]. Plutonium and Am were separated from aqueous phase of TOA extraction of Np based on the method described by Yamato [25]. The alpha-ray activity of each source electroplated onto a stainless steel disc was measured by a Si(Au) surface barrier detector coupled with 1 k channel PHA. Beta-ray-emitting ^{241}Pu , which is a precursor of long-lived ^{241}Am , was measured by using low-background liquid scintillation spectrometer [26]. In order to perform successfully sequential separation of Np, Pu and Am, much attention was paid to eliminating the energy interferences among the alpha-ray emitters with similar energy. For Pu, ^{236}Pu was used as a yield tracer instead of ^{242}Pu to avoid the energy-interference of ^{242}Pu ($E = 4.86, 4.96$ MeV) with the measurement of ^{237}Np ($E = 4.77, 4.79$ MeV). Since ^{236}Pu was prepared by (γ, n) reaction on ^{237}Np followed by the beta-decay of short-lived ^{236}Np [27], radiochemical purity of ^{236}Pu was checked for trace amounts of target ^{237}Np . On the other hand, the milking of ^{239}Np from parent ^{243}Am was performed with great care to avoid contamination by ^{243}Am .

4. Results and discussion

Details of the sampling conditions of six cores, measured activities of ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{137}Cs and excess ^{210}Pb and the activity ratios of $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ and $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ are given in Appendixes I and II.

4.1. Depth profile of ^{210}Pb and sedimentation rate

In order to study sedimentation behaviors of fallout radionuclides in lake or sea sediment, sedimentation

rate is of fundamental importance. The ^{210}Pb method is considered to be most useful for the dating of sediment less than 100 years old.

In Fig. 2, excess ^{210}Pb activities are plotted as a function of the depth in mass-base (g/cm^2) of the sediment cores from the Mikata Five Lakes and Nyu Bay. As is evident from this figure, exponential decrease of excess ^{210}Pb activity was ascertained for the cores from Lakes Hiruga, Kugushi and Suga. Sedimentation rates were evaluated as 55, 245 and 47 $\text{mg}/\text{cm}^2/\text{y}$, respectively. The rather large sedimentation rate of Lake Kugushi is in agreement with previous estimate (217 $\text{mg}/\text{cm}^2/\text{y}$ below 4 g/cm^2 layer) based on the same technique [22], but the present data for Lake Hiruga was half of the previous one [22] (see Table 1). Although the surface layer of about 0.9 g/cm^2 (0–8.5 cm depth) in the core from Lake Suigetsu exhibits the possibility of mixing by natural or artificial processes or by turbation during the sampling, the sedimentation rate could be estimated to be 37 $\text{mg}/\text{cm}^2/\text{y}$ from the slope of ^{210}Pb for the 0.9–2.1 g/cm^2 (8.5–22.5 cm depth) layer, which can be compared with previous values of 35 and 52 $\text{mg}/\text{cm}^2/\text{y}$ [23, 24]. The fresh water core from Lake Mikata showed rather constant excess ^{210}Pb activities of 200–300 Bq/kg to the depth of 11 g/cm^2 (0–29 cm depth), suggesting intense mixing by some physical and biological processes or by fishing. A high sedimentation rate of 395 $\text{mg}/\text{cm}^2/\text{y}$ [22] has been reported for this lake. Though the core sample of Nyu Bay was collected carefully by a diver, depth profile of ^{210}Pb of the surface layer of 4.5 g/cm^2 (0–12 cm depth) is homogeneous, suggesting the mixing is probably due to bioturbation.

4.2. Depth profile of $^{239,240}\text{Pu}$ and inventory

The depth profile of $^{239,240}\text{Pu}$ activity observed is shown in Fig. 3 together with those of ^{237}Np , ^{241}Am and ^{137}Cs . The apparent ages of all the increments of the sediment core estimated by ^{210}Pb chronology are also shown in the upper part of the figure.

As is seen from this figure (and Appendix I), appreciable differences were observed for both the concentration and the depth profile of $^{239,240}\text{Pu}$. The $^{239,240}\text{Pu}$ activities ranged from 0.13 to 18.1 Bq/kg. The highest value, 18.1 Bq/kg, was found at the 6.5–9.5 cm layer in the core from Lake Hiruga. This value is 2.5 times higher than the highest value of 7.5 Bq/kg found for a section of 8–10 cm layer of the Sannich Inlet sediment core, USA [11]. A noteworthy feature of the depth profiles of $^{239,240}\text{Pu}$ is the subsurface maximum which is commonly observed for the cores from Lakes Suigetsu, Suga, Kugushi and Hiruga. The depth of subsurface maximum of $^{239,240}\text{Pu}$ activity was 5.5–8.5 cm for Lake Suigetsu, 7–10 cm for Lake Suga, 14.5–17.5 cm for Lake Kugushi and 6.5–9.5 cm for Lake Hiruga. According to ^{210}Pb chronology, these layers correspond to the 1960–1970

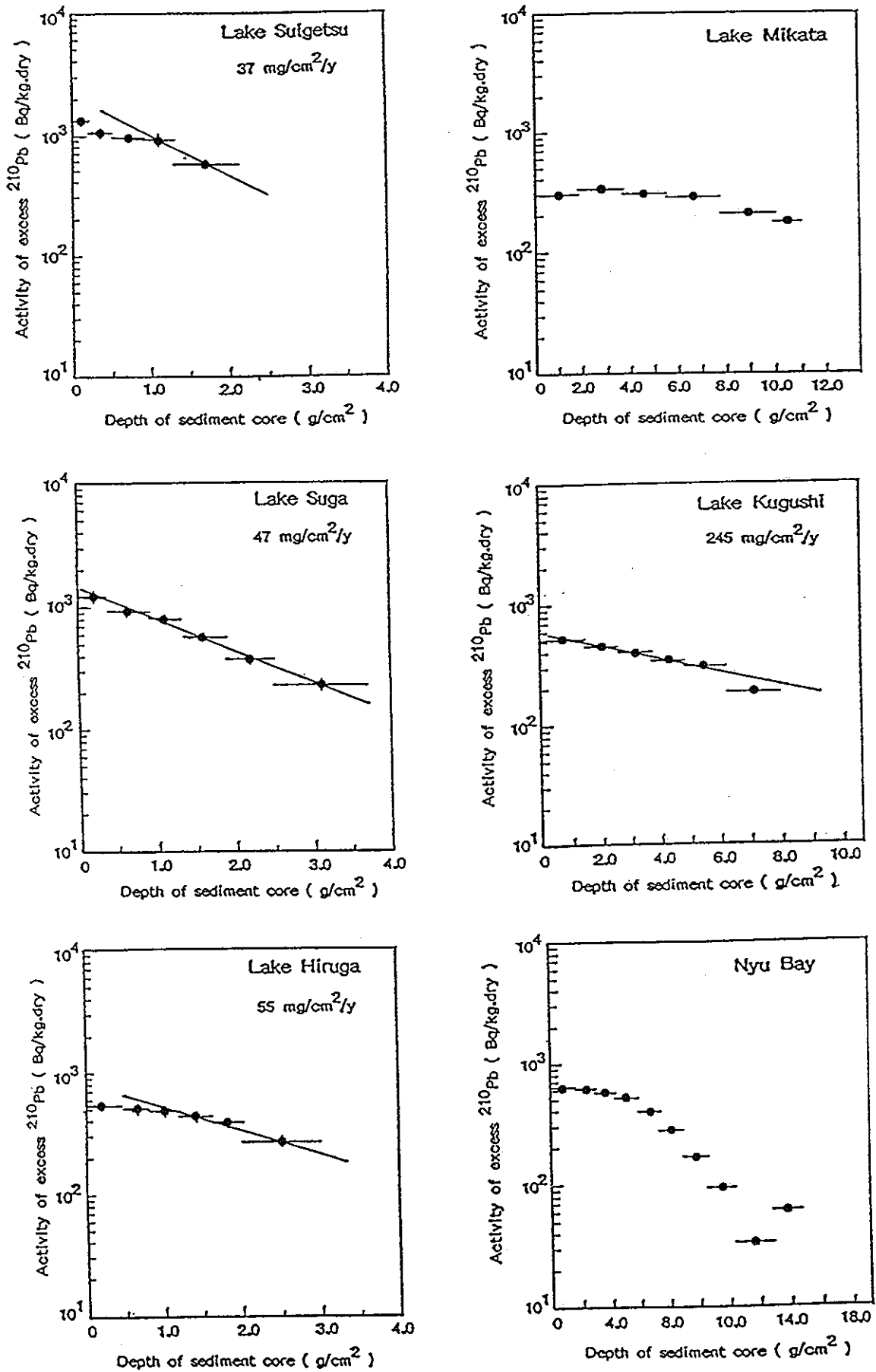


Fig. 2. Depth profiles of excess ²¹⁰Pb activity in sediment cores from the Mikata Five Lakes and Nyu Bay as a function of depth (g/cm²).

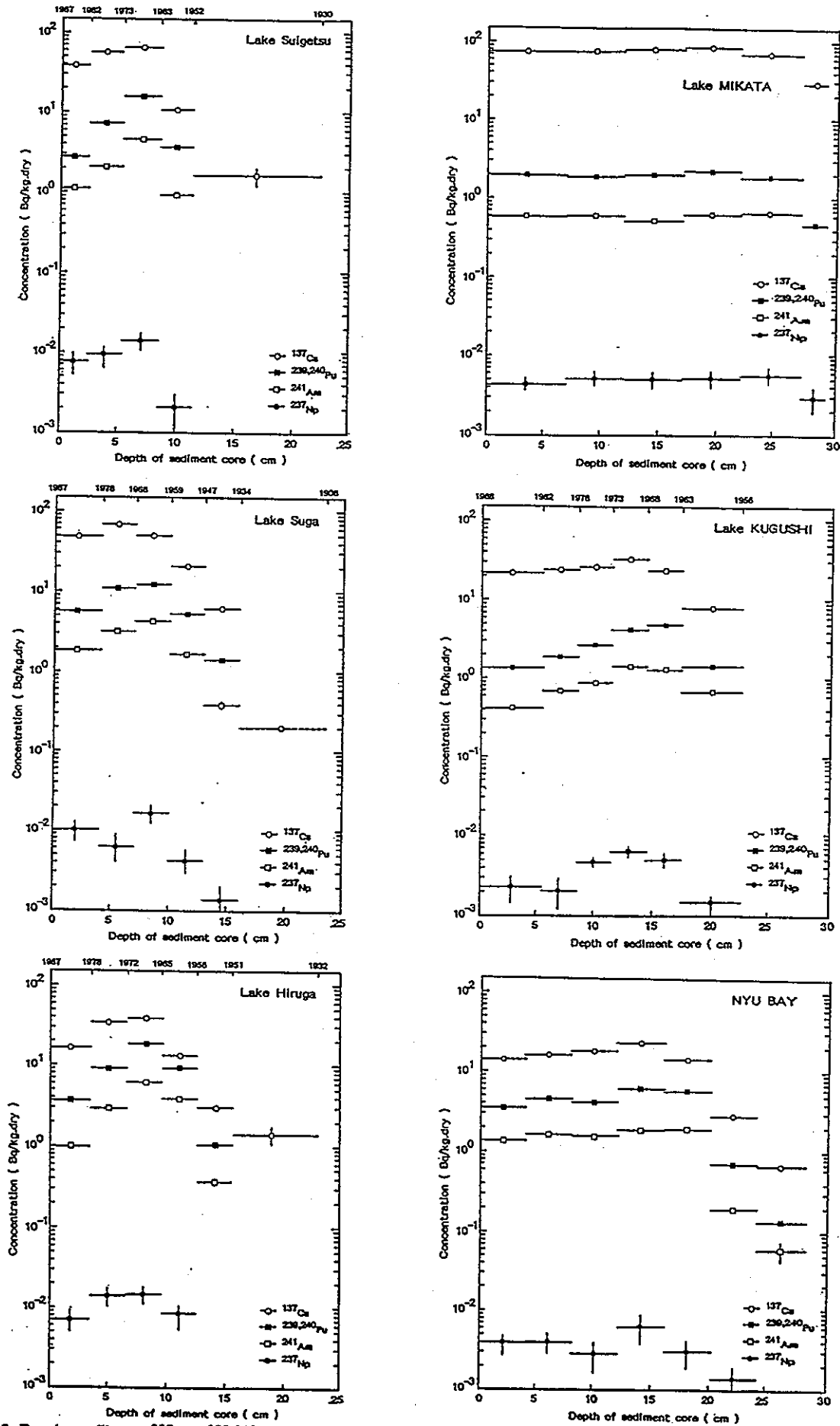


Fig. 3. Depth profiles of ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am and ^{137}Cs in sediment cores from the Mikata Five Lakes and Nyu Bay.

Table 2. Inventories of ^{237}Np , Pu isotopes, ^{241}Am and ^{137}Cs calculated for the sediment cores from the Mikata Five Lakea and Nyu Bay, and their inventory ratios

Nuclides	Lake Mikata	Lake Suigetsu	Lake Suga	Lake Kugushi	Lake Hiruga	Nyu Bay
Inventory						
(MBq/km ²)						
^{237}Np	0.53 ± 0.05	0.11 ± 0.02	0.19 ± 0.03	0.29 ± 0.03	0.17 ± 0.02	0.34 ± 0.05
^{238}Pu	7.8 ± 0.4	4.6 ± 0.5	7.0 ± 0.5	7.3 ± 0.4	5.9 ± 0.3	11.9 ± 0.7
$^{239,240}\text{Pu}$	181 ± 3	109 ± 4	163 ± 4	200 ± 5	157 ± 4	347 ± 8
^{241}Pu	659 ± 27	410 ± 16	605 ± 18	728 ± 24	555 ± 15	1395 ± 39
^{241}Am	58 ± 3	31 ± 1	51 ± 2	68 ± 3	53 ± 2	122 ± 3
^{137}Cs	6678 ± 46	580 ± 10	957 ± 17	1604 ± 20	409 ± 16	1227 ± 18
Inventory ratio						
$^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ (%)	0.29 ± 0.03	0.10 ± 0.02	0.11 ± 0.02	0.15 ± 0.01	0.11 ± 0.02	0.10 ± 0.02
$^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ (%)	4.3 ± 0.2	4.1 ± 0.4	4.2 ± 0.3	3.6 ± 0.2	3.8 ± 0.2	3.4 ± 0.2
$^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$	3.6 ± 0.2	3.8 ± 0.2	3.7 ± 0.1	3.7 ± 0.2	3.5 ± 0.1	4.0 ± 0.2
$^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$	0.32 ± 0.02	0.29 ± 0.02	0.31 ± 0.01	0.34 ± 0.02	0.34 ± 0.01	0.35 ± 0.01
$^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$	0.027 ± 0.001	0.19 ± 0.01	0.17 ± 0.01	0.12 ± 0.01	0.38 ± 0.02	0.28 ± 0.01

All data were decay corrected to collection date. The ^{241}Am at collection date was calculated from measured ^{241}Am by subtracting ingrowth ^{241}Am from ^{241}Pu at the time of collection to the time of the americium and plutonium separation.

period. These maxima may reflect the fallout maximum due to atmospheric nuclear tests carried out during 1952 through 1958 primarily by the USA and in the early 1960's primarily by the USSR [28].

Mixing of the surface layer in the core from Nyu Bay caused broadening of the subsurface maximum of $^{239,240}\text{Pu}$ activity. The $^{239,240}\text{Pu}$ concentration of the core from Lake Mikata showed rather uniform values of 1.6 to 2.0 Bq/kg in the top 27 cm.

The inventory of $^{239,240}\text{Pu}$ was estimated to range from 109 to 347 MBq/km² (Table 2). The inventory of Nyu Bay was found to be 2–3 times higher than that in the Mikata Five Lakes. The $^{239,240}\text{Pu}$ inventory on the ground surface of the 30°–40°N area is reported to be 67 ± 22 MBq/km² [28]. Cumulative deposition of $^{239,240}\text{Pu}$ at Tokyo (36°N, 140°E) on the Pacific coast was measured to be about 44 MBq/km² at the end of 1976 by Miyake *et al.* [30]. The average integrated deposit of $^{239,240}\text{Pu}$ in Japan is estimated to be 55–65 MBq/km² by the analysis of surface soils (0–about 20 cm depth) [29]. The average deposition (100–110 MBq/km²) in the area facing the Sea of Japan was found to be 3 times higher than that (37–44 MBq/km²) on the Pacific coast. The difference has been shown to be caused mainly by meteorological and topographical differences between the Sea of Japan coast and the Pacific coast [30].

The inventory of $^{239,240}\text{Pu}$ estimated by the core sample from Lake Suigetsu (109 MBq/km²) agreed well with the average values of ground surface soils in the coastal area facing the Sea of Japan, while the corresponding values for other lakes and Nyu Bay are 1.5 to 3 times higher than those of surface soils. The highest value, that in Nyu Bay, may be caused by the migration of the fine particulate fraction containing a relatively large amount of $^{239,240}\text{Pu}$ from the shallow mouth area to the central area [31].

As shown in Fig. 1 and Table 1, small rivers flow into Lakes Mikata and Kugushi with high sedimen-

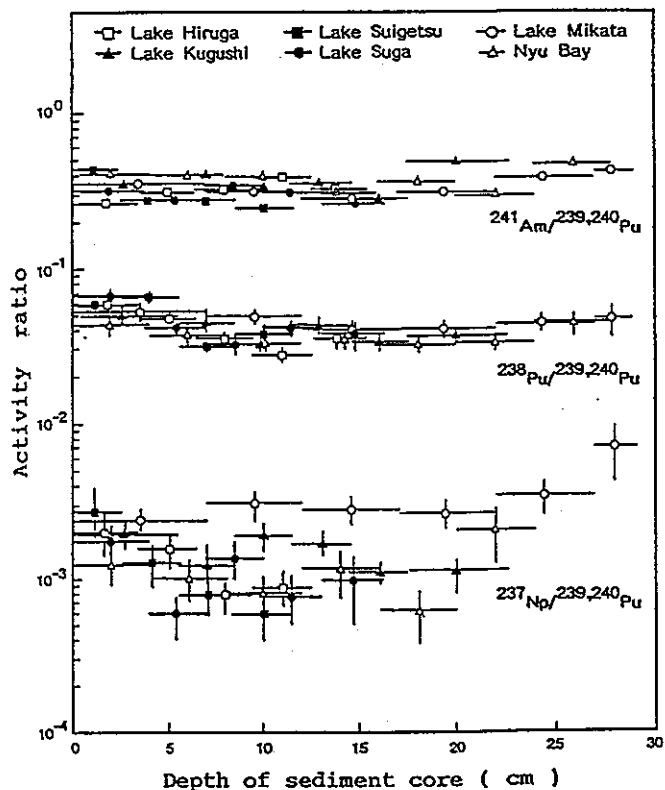


Fig. 4. Depth profiles of $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ and $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratios in sediment cores from the Mikata Five Lakes and Nyu Bay.

tation rates. The high inventory of $^{239,240}\text{Pu}$ in these lakes may be explained by the inflow of surface soil containing large amounts of Pu. However, conclusions based on comparison between delivery estimated and inventories observed in a limited number of cores from the Mikata Five Lakes are not conclusive, because horizontal advection can cause significant variations of inventory within the lake.

Table 3. Activity ratios of $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ and $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ in core samples from Lakes Kugushi, Suigetsu, Suga and Hiruga

Depth (g/cm ²)	Age of Mid- point stratum	^{241}Pu $^{239,240}\text{Pu}$		^{241}Am $^{239,240}\text{Pu}$		$^{241}\text{Am}^d$ $^{241}\text{Am}^c$
		Measured ^a	Decay col- lected ^b	Measured ^c	Ingrowth ^d	
Lake Kugushi; water depth 2.5 m; 9 August 1988						
0-1.5	Jun. 1985	3.9±0.2	13.8	0.32±0.03	0.33	1.0
1.5-2.6	Mar. 1980	4.1±0.2	14.4	0.38±0.04	0.36	1.0
2.6-3.7	Sep. 1975	3.9±0.2	13.8	0.34±0.04	0.33	1.0
3.7-4.9	Jan. 1971	3.6±0.2	12.7	0.34±0.04	0.30	0.9
4.9-6.1	Mar. 1966	3.5±0.1	12.4	0.27±0.04	0.29	1.1
6.1-8.0	Oct. 1959	3.2±0.2	12.9	0.48±0.05		
Lake Suigetsu; water depth 30 m; 18 November 1986						
0-0.2	Mar. 1984	4.7±0.1	15.2	0.45±0.05	0.35	0.8
0.2-0.5	May 1977	4.4±0.1	14.3	0.28±0.02	0.33	1.2
0.5-0.9	Jan. 1968	3.5±0.1	11.4	0.28±0.02	0.27	1.0
0.9-1.3	Mar. 1957	3.3±0.1	13.6	0.25±0.02		
1.3-2.1						
Lake Suga; water depth 11 m; 18 November 1986						
0-0.4	Aug. 1982	4.5±0.2	14.4	0.32±0.02	0.34	1.1
0.4-0.9	Feb. 1973	3.7±0.1	12.0	0.28±0.02	0.28	1.0
0.9-1.3	Jul. 1963	3.6±0.1	11.6	0.34±0.02	0.27	0.8
1.3-1.9	Nov. 1952	3.3±0.1	16.1	0.32±0.02		
1.9-2.5	Feb. 1940	3.2±0.1	15.4	0.27±0.03		
2.5-3.7						
Lake Hiruga; water depth 40 m; 18 November 1986						
0-0.5	May 1982	4.1±0.2	13.4	0.27±0.02	0.31	1.2
0.5-0.8	Feb. 1975	3.8±0.1	12.2	0.31±0.03	0.28	0.9
0.8-1.2	Oct. 1968	3.4±0.1	11.0	0.33±0.03	0.26	0.8
1.2-1.6	May 1961	3.3±0.1	10.8	0.40±0.03		
1.6-2.0	Mar. 1954	3.2±0.1	15.4	0.34±0.02		
2.0-3.0						

^a Decay corrected to collection date.

^b ^{241}Pu was decay corrected to July 1, 1962, for all sediment stratum deposited after this date assuming that the primary contribution of ^{241}Pu to the sediment was from the October 31, 1961, to December 25, 1962, USSR nuclear tests. All deposition prior to July 1, 1962, was decay corrected to the mid-point of each level, as stated by Koide *et al.* [13].

^c ^{241}Am at collection date was calculated from measured ^{241}Am by subtracting ingrowth ^{241}Am from ^{241}Pu at the time of collection to the time of the americium and plutonium separation.

^d Ingrowth ^{241}Am was calculated to the time of collection from the ^{241}Pu [column 4] assuming that the ^{241}Pu at July 1, 1962 [column 4], is a mixture of which 32% is decay corrected to November 1, 1955, mid-point from November 1, 1952, to November 1, 1958, and the remainder is decay corrected to July 1, 1962, as stated by Koide *et al.* [13].

4.3. ^{238}Pu and ^{241}Pu

The $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratios in the core samples from the Mikata Five Lakes and Nyu Bay were mostly 0.03–0.05 independent of the depth of the core (Fig. 4 and Appendix II). This value agrees with the expected value of 0.037 based on the cumulative $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{238}Pu activities deposited in 30–40°N [28]. After the release of ^{238}Pu (0.6 PBq) due to the reentry accident of SNAP-9A in April 1964 [28], Mamuro *et al.* [32] reported an extremely high $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ratio of 0.26 in rainwater in Osaka, Japan, collected in 1968. However, the high $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ value due to the SNAP-9A accident could not be observed in the sediment cores studied in the present work. The inventory of ^{238}Pu estimated by the core sample is shown in

Table 2. The $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ inventory ratio was evaluated to be 0.034–0.043.

The activity ratio of $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ ranges from 3.5 to 4.5 depending on the date of sampling (Appendix II). This value agreed well with the 3.5–4.0 value estimated from surface soil samples of the same period [29]. When observed ^{241}Pu activity is decay-corrected to July 1, 1962, as pointed out by Koide *et al.* [13], the $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio in sediment samples deposited after 1962 can be estimated to be 11–15 with a mean value of 13, as shown in Table 3. It has been pointed out that the $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio in the fallout of the atomic bomb tests during 1952–1958 was significantly higher than the average value of 12–14 (decay corrected to July 1, 1962) [33, 34]. Koide *et al.* [33] have reported that the $^{241}\text{Pu}/$

$^{239,240}\text{Pu}$ ratio of the ice-sheet of the polar region corresponding to 1952–1958 had the very high ratio of 26 ± 3 . Such a high value was not observed in the deep layer corresponding to the period before 1962.

4.4. Depth profile of ^{237}Np and inventory

No data has been reported as yet for global fallout ^{237}Np in an aquatic environment. ^{237}Np is produced by $^{238}\text{U}(n,2n)^{237}\text{U} \rightarrow ^{237}\text{Np}$ or $^{235}\text{U}(n,\gamma)(n,\gamma)^{237}\text{U} \rightarrow ^{237}\text{Np}$ neutron reactions on uranium isotopes by atomic bombing or by alpha-decay of ^{241}Am . Eford *et al.* [4] have reported that the mean $^{237}\text{Np}/^{239}\text{Pu}$ atom ratio of global fallout is 0.7 ± 0.2 on the basis of mass-spectrometric measurements of surface soils down to 20–30 cm in depth. This value corresponds to the $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio of $(4.8 \pm 1.4) \times 10^{-3}$ using the commonly accepted atomic ratio of 0.18 for global fallout $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ [35]. Recently, we have obtained the $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ ratio of $(2.9–4.0) \times 10^{-3}$ for the surface soils of 20 cm depth [26], which agrees with the average ratio of $(2.7 \pm 0.4) \times 10^{-3}$ for lichen samples reported by Holm [2].

^{237}Np concentration in the core samples from the Mikata Five Lakes and Nyu Bay was measured to range from 1.5 to 17.2 mBq/kg (Fig. 2 and Appendix I). The highest value was obtained for the 7–10 cm layer of the core from Lake Suga. The concentration of ^{237}Np is extremely low compared with that of $^{239,240}\text{Pu}$. The $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratios for the core samples from Lakes Mikata, Suga and Kugushi and from Nyu Bay were rather constant independent of the depth of the core, although the tendency of this ratio to decrease with an increase in depth was observed for the core samples from Lakes Suigetsu and Hiruga (Appendix II). The $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ inventory ratio calculated from depth profiles was 2.9×10^{-3} for Lake Mikata 1.5×10^{-3} for Lake Kugushi and $(1.0–1.1) \times 10^{-3}$ for Lakes Hiruga, Suigetsu and Suga and for Nyu Bay (Table 2). The value for Lake Mikata is close to the $(2.9–4.0) \times 10^{-3}$ value for surface soils mentioned above [26]. However, the other four lakes and Nyu Bay give 2 or 3 times lower values than that of the surface soil, indicating that fallout Np in these aquatic environments may be more soluble than Pu isotopes. The rather high value for Lake Mikata may be explained by the contribution of soil components supplied by rivers.

4.5. Depth profile of ^{241}Am and inventory

Since most of ^{241}Am is ingrowth component from its precursor ^{241}Pu , ^{241}Am activity varies with the time elapsed after deposition.

The depth profile of ^{241}Am was apparently similar to that of $^{239,240}\text{Pu}$ for all core samples (Fig. 2). The $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio was found to be in the narrow range of 0.3–0.4 (Appendix II), independent

of the depth of the core, and the $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ inventory ratio calculated from their depth profiles was 0.29–0.35 (Table 2).

The $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio of integrated global fallout was estimated to be 0.22 in 1974 on the basis of soil data [35]. We have shown that this ratio in surface soil was about 0.30 in 1984 and will reach its maximum value of 0.41 in 2030, assuming that there are no atmospheric nuclear weapons tests in future [29]. The $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ activity ratio of the core samples is expected to be 0.32–0.34 at the time of collection (1986–1988). The $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ inventory ratio (average 0.33 ± 0.02) calculated for core samples is in excellent agreement with the value of soil samples.

Referring to the approach by Koide *et al.* [13], the ^{241}Am grown from ^{241}Pu well explains observed ^{241}Am activity (Table 3). This fact indicates that most Pu and ^{241}Am grown from ^{241}Pu are retained in the sediment.

4.6. ^{137}Cs

The $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ activity ratios for the core samples from Lake Mikata showed a rather constant value of 0.027–0.028 to the depth of 27 cm. However, a tendency of this ratio to increase with depth was observed for the core samples from Lakes Suigetsu, Suga, Kugushi and Hiruga (Appendix II). The increase of the $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ activity ratio can be explained mostly by the decay of short-lived ^{137}Cs trapped at an early stage. However, faster diffusion of ^{137}Cs may be partly responsible for the observed depth profile [8].

It was found that the inventory ratio of $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ differs greatly depending on the depositional circumstance mainly on the salinity of the water. This value is 0.027 for Lake Mikata with its fresh water, 0.12–0.19 for Lakes Suigetsu, Suga and Kugushi with brackish water and 0.28–0.38 for Lake Hiruga and Nyu Bay with sea water (Table 2). Such a tendency has already been pointed out in the previous paper [36].

5. Conclusion

Global fallout ^{237}Np , Pu isotopes (^{238}Pu , $^{239,240}\text{Pu}$ and ^{241}Pu), ^{241}Am and ^{137}Cs have been measured in the sediment cores from the Mikata Five Lakes and Nyu Bay in order to investigate their depth profiles and inventories under different environmental circumstances. The results of the present study are summarized as follows:

(1) Concentrations of fallout ^{237}Np in sediment cores ranged from 1.5 to 17.2 mBq/kg. The depth profile of ^{237}Np is relatively similar to that of $^{239,240}\text{Pu}$. From the comparison of $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$ inventory ratios observed in sediment core with that in surface soils,

Np may be considered to be more soluble than Pu in the aquatic environment.

(2) The inventory of $^{239,240}\text{Pu}$ in the core from Lake Suigetsu (109 MBq/km^2) is almost the same as that in ground surface soils in the coastal area facing the Sea of Japan. However, this value ($135\text{--}347 \text{ MBq/km}^2$) obtained for other lakes and for Nyu Bay is 1.5 to 3 times higher than that of surface soils. The $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ inventory ratio was 0.034–0.043, which agrees well with the value of 0.037 estimated from cumulative activity of fallout Pu. The $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$ inventory ratio was found to be 3.6–4.0 at the time of sampling (1986–1988). This value is also in accord with the corresponding value for surface soils.

(3) The depth profile of ^{241}Am was rather similar to that of $^{239,240}\text{Pu}$. The $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ inventory ratio of 0.33 ± 0.02 on average at the time of collection (1986–1988) is in excellent agreement with the value of 0.32–0.34 for surface soil of the same period. Most of the ^{241}Am found in core sample can well be explained by the ingrowth of parent ^{241}Pu by assuming both the USA nuclear tests during the late 1950's as a substantial source of this nuclide and the immobilization of Pu and Am in the sediment, as stated by Koide *et al.* [13].

(4) The $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ inventory ratio increased with an increase in salinity of the water.

Acknowledgements

The author wishes to thank Dr. M. Sakanoue, emeritus professor of Kanazawa University, for his continuous encouragement and many suggestions throughout the course of this study, and Mr. H. Takada, of the Office of Mihama Town of Fukui Prefecture, for sampling of sediment cores in the Mikata Five Lakes. Part of this work was supported by a Grant-in-Aid for Scientific Research from the Ministry of Education, Science and Culture of Japan (Contact No. 61740355).

References

- Noshkin, V. E., Wong, K. M., Eagle, R. J., Gattousis, C.: USAEC report UCRL-51612 (1974).
- Holm, E., in: Impact of radionuclide release into the marine environment, IAEA Symp., IAEA-SM-248/108, 1981, p. 155.
- Pentreath, R. J., Harvey, B. R.: Mar. Ecol. Prog. Ser. 6, 243 (1981).
- Efurd, D. W., Knobloch, G. W., Perrin, R. E., Barr, D. R.: Health Phys. 47, 186 (1984).
- Germain, P., Guegueniat, P., May, S., Pinte, P.: J. Environ. Radioact. 5, 319 (1987).
- Sakanoue, M.: Radiochim. Acta 42, 103 (1987).
- Hetherington, J. A., Jefferies, D. E., Lovett, M. B., in: Impacts of nuclear releases into the aquatic environment, IAEA Symp., IAEA-SM-198/29, 1975, p. 193.
- Edgington, D. N., Alberts, J. J., Wählgröm, M. A., Karttunen, J. O., Reeve, C. A., in: Transuranium nuclides in the environment, IAEA Symp., IAEA-SM-199/47, 1976, p. 154.
- Sholkovitz, E. R.: Earth Sci. Rev. 19, 95 (1983).
- Livingston, H. D., Bowen, V. T.: Earth Planet. Sci. Lett. 43, 29 (1979).
- Carpenter, R., Beasley, T. E.: Geochim. Cosmochim. Acta 45, 1917 (1981).
- Arberts, J. J., Orlandin, K. A.: Geochim. Cosmochim. Acta 45, 1931 (1981).
- Koide, M., Goldberg, E. D.: Earth Plane. Sci. Lett. 57, 263 (1982).
- Aston, S. R., Stanners, D. A.: Nature 289, 581 (1981).
- Aston, S. R., Assinder, D. J., Kelly, K.: Estuar. Coast. Shelf Sci. 20, 761 (1985).
- Bowen, V. T.: HASL-291, I-58 (1975).
- Allard, B., in: *Actinides in perspective*, ed. N. E. Edelstein, Pergamon Press, Oxford 1982, p. 553.
- Bondietti, E. A., Tamura, T., in: Transuranic elements in the environment, ed. W. C. Hanson, U.S. Department of Energy, DOE/TIC-22800, 1980, p. 145.
- Harvey, B. R., Kershaw, P. J.: Eur. Rep. comm. Eur. Common, EUR-9214, 1984, p. 131.
- Yamamoto, M., Chatani, K., Komura, K., Ueno, K.: Radiochim. Acta 47, 63 (1989).
- Tagawa, S., Sawada, M., Shirazaki, K., Maekawa, T., Utsunomiya, T., Ueyama, Y., Yamaguchi, S., Aoki, K., Itou, K.: Annual Rep. of the Environmental Pollution Research Center of Fukui Pref. 11, 167 (1981).
- Komura, K., Personal discussion.
- Nakanishi, T., Personal discussion.
- Matsumoto, E.: Verh. Internat. Verein. Limnol. 21, 603 (1981).
- Yamato, M.: J. Radioanal. Chem. 75, 265 (1982).
- Yamamoto, M., Igarashi, S., Chatani, K., Komura, K., Ueno, K.: J. Radioanal. Nucl. Chem. 138, 365 (1990).
- Ishimori, T., Akatsu, E.: J. Nucl. Sci. Technol. 6, 480 (1969).
- Perkins, R. W., Thomas, C. W., in: Transuranic elements in the environment, ed. W. C. Hanson, Tech. Inf. Center, U.S. Department of Energy, 1980, p. 55.
- Yamamoto, M., Komura, K., Sakanoue, M.: J. Radiat. Res. 24, 237 (1983).
- Geochemical Study of the Ocean and Atmosphere, Part I and II (Miyake, Y., Seventieth anniversary collected papers), Geochem. Lab. Meteor. Res. Inst., Tokyo 1978.
- Yamamoto, M., Igarashi, S., Yoshioka, M., Kitagawa, T., Sakanoue, M.: Health Phys. 46, 455 (1984).
- Mamuro, T., Matsunami, T.: Science 164, 465 (1969).
- Koide, M., Goldberg, E. D., Herron, M. M., Langway, C. C.: Nature 269, 137 (1977).
- Hisamatsu, S., Sakanoue, M.: Health Phys. 35, 301 (1978).
- Krey, P. W., Hardy, E. P., Pauchucki, C., Rourke, F., Coluzza, J., Benson, W. K., in: Transuranium nuclides in the environment, IAEA Symp., IAEA-SM-199/39, 1976, p. 671.
- Annual Progress Rep. of Low Level Radioactivity Lab., Kanazawa Univ., LLRL-AR-3, 1978, p. 8.

Appendix I. Concentrations of ^{237}Np , $^{239,240}\text{Pu}$, ^{241}Am , ^{137}Cs and excess ^{210}Pb measured in core samples from Mikata Five Lakes and Nyu Bay

Depth in core		^{237}Np ($\times 1000$)	Concentration (Bq/kg · dry)			Excess ^{210}Pb
(cm)	(g/cm ²)		$^{239,240}\text{Pu}$	^{241}Am	^{137}Cs	
Lake Mikata; water depth 2 m; 9 August 1988						
0-7.0	0-1.9	4.4±0.8	1.83±0.08	0.56±0.06	64.8±1.0	297±9
7.0-12.0	1.9-3.7	5.2±1.0	1.72±0.08	0.57±0.06	64.6±1.1	323±7
12.0-17.0	3.7-5.5	5.0±1.2	1.79±0.09	0.48±0.03	67.6±0.8	307±9
17.0-22.0	5.5-7.7	5.2±1.3	2.00±0.09	0.58±0.06	72.1±1.2	284±8
22.0-27.0	7.7-9.8	5.6±1.3	1.64±0.06	0.60±0.06	58.5±0.9	204±7
27.0-29.0	9.8-10.9	2.9±1.0	0.43±0.03	0.27±0.04	24.7±0.7	175±7
Lake Suigetsu; water depth 30 m; 18 November 1986						
0-2.5	0-0.2	7.7±2.6	2.74±0.15	1.24±0.12	38.2±1.3	1318±115
2.5-5.5	0.2-0.5	9.1±2.9	7.16±0.36	2.02±0.14	56.6±1.4	1049±92
5.5-8.5	0.5-0.9	14.1±3.8	15.97±0.88	4.53±0.26	64.1±1.7	946±83
8.5-11.5	0.9-1.3	2.2±1.0	3.60±0.20	0.90±0.04	10.5±0.7	928±82
11.5-22.5	1.3-2.1	—**	—**	—**	1.6±0.4	562±51
Lake Suga; water depth 11 m; 18 November 1986						
0-4.0	0-0.4	10.3±0.8	5.71±0.26	1.83±0.11	49.6±2.0	1216±108
4.0-7.0	0.4-0.9	6.8±1.0	11.04±0.46	3.12±0.21	66.7±2.4	920±82
7.0-10.0	0.9-1.3	17.2±1.2	12.15±0.49	4.10±0.19	50.3±1.6	804±73
10.0-13.0	1.3-1.9	4.3±1.3	5.15±0.23	1.66±0.10	21.8±0.9	571±53
13.0-16.0	1.9-2.5	1.4±1.3	1.44±0.11	0.39±0.03	6.1±0.6	380±37
16.0-23.5	2.5-3.7	—**	—**	—**	—*	231±24
Lake Kugushi; water depth 2.5 m; 9 August 1988						
0-5.5	0-1.5	2.6±0.8	1.36±0.05	0.43±0.04	20.8±0.6	538±10
5.5-8.5	1.5-2.6	2.2±0.9	1.83±0.08	0.70±0.06	22.8±0.7	446±9
8.5-11.5	2.6-3.7	5.0±0.7	2.60±0.20	0.88±0.08	24.6±0.7	409±9
11.5-14.5	3.7-4.9	6.8±1.0	4.04±0.30	1.39±0.10	30.6±0.8	347±8
14.5-17.5	4.9-6.1	5.3±1.0	4.62±0.21	1.27±0.17	21.7±0.6	290±8
17.5-22.5	6.1-8.0	1.5±0.3	1.38±0.07	0.67±0.06	7.4±0.4	184±9
Lake Hiruga; water depth 40 m; 18 November 1986						
0-3.5	0-0.5	7.1±2.3	3.56±0.19	0.98±0.07	16.2±0.6	528±47
3.5-6.5	0.5-0.8	14.2±3.2	8.89±0.37	2.80±0.24	32.7±0.4	515±47
6.5-9.5	0.8-1.2	14.7±3.9	18.07±0.74	6.01±0.42	36.9±0.9	492±45
9.5-12.5	1.2-1.6	8.5±2.9	9.44±0.41	3.81±0.21	13.9±0.7	441±41
12.5-15.5	1.6-2.0	—*	1.11±0.04	0.37±0.02	3.0±0.4	389±36
15.5-23.0	2.0-3.0	—**	—**	—**	1.4±0.4	269±27
Nyu Bay; water depth about 15 m; 29 February 1988						
0-4.0	0-1.7	4.3±1.1	3.44±0.16	1.33±0.07	13.2±0.4	640±16
4.0-8.0	1.7-3.0	4.3±1.2	4.28±0.28	1.61±0.16	15.2±0.5	621±18
8.0-12.0	3.0-4.5	3.1±1.3	3.93±0.25	1.50±0.09	17.0±0.6	585±13
12.0-16.0	4.5-5.9	6.6±2.6	5.83±0.28	1.78±0.09	21.5±0.7	512±15
16.0-20.0	5.9-7.4	3.2±1.2	5.30±0.23	1.84±0.07	13.1±0.5	414±12
20.0-24.0	7.4-8.9	1.5±0.6	0.69±0.05	0.19±0.01	2.7±0.3	282±8
24.0-28.0	8.9-10.5	—**	0.13±0.01	0.06±0.02	0.7±0.1	169±7
28.0-32.0	10.5-12.4	—**	—**	—**	—*	95±6
32.0-36.0	12.4-14.8	—**	—**	—**	—*	35±6
36.0-40.0	14.8-16.7	—**	—**	—**	—*	62±4
40.0-52.0	16.7-25.4	—**	—**	—**	—*	33±4

All data were decay corrected to collection date. The ^{241}Am at collection date was calculated from measured ^{241}Am by subtracting ingrowth ^{241}Am from ^{241}Pu at the time of collection to the time of the americium and plutonium separation. Errors cited are counting errors.

* not detectable ** not measured.

Appendix II. Activity ratios of $^{237}\text{Np}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{238}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Pu}/^{239,240}\text{Pu}$, $^{241}\text{Am}/^{239,240}\text{Pu}$ and $^{239,240}\text{Pu}/^{137}\text{Cs}$ measured in core samples from Mikata Five Lakes and Nyu Bay

Depth in core		Activity ratio (Bq/Bq)				
(cm)	(g/cm ²)	$\frac{^{237}\text{Np}}{^{239,240}\text{Pu}} (\times 100)$	$\frac{^{238}\text{Pu}}{^{239,240}\text{Pu}}$	$\frac{^{241}\text{Pu}}{^{239,240}\text{Pu}}$	$\frac{^{241}\text{Am}}{^{239,240}\text{Pu}}$	$\frac{^{239,240}\text{Pu}}{^{137}\text{Cs}}$
Lake Mikata; water depth 2 m; 9 August 1988						
0-7.0	0-1.9	0.24±0.05	0.050±0.005	3.5±0.3	0.31±0.04	0.028±0.001
7.0-12.0	1.9-3.7	0.30±0.06	0.048±0.005	4.0±0.3	0.33±0.04	0.027±0.001
12.0-17.0	3.7-5.5	0.28±0.07	0.039±0.006	3.8±0.4	0.27±0.02	0.027±0.001
17.0-22.0	5.5-7.7	0.26±0.06	0.039±0.004	3.7±0.3	0.29±0.03	0.028±0.001
22.0-27.0	7.7-9.8	0.34±0.08	0.041±0.003	3.4±0.2	0.36±0.04	0.028±0.001
27.0-29.0	9.8-10.9	0.68±0.24	0.047±0.009	3.1±0.7	0.62±0.10	0.017±0.001
Lake Suigetsu; water depth 30 m; 18 November 1986						
0-2.5	0-0.2	0.28±0.10	0.059±0.010	4.7±0.1	0.45±0.05	0.07±0.01
2.5-5.5	0.2-0.5	0.13±0.04	0.065±0.007	4.4±0.1	0.28±0.02	0.13±0.01
5.5-8.5	0.5-0.9	0.09±0.02	0.033±0.006	3.5±0.1	0.28±0.02	0.25±0.02
8.5-11.5	0.9-1.3	0.06±0.03	0.038±0.006	3.3±0.1	0.25±0.02	0.34±0.03
11.5-22.5	1.3-2.1					
Lake Suga; water depth 11 m; 18 November 1986						
0-4.0	0-0.4	0.18±0.06	0.069±0.007	4.5±0.2	0.32±0.02	0.12±0.01
4.0-7.0	0.4-0.9	0.06±0.02	0.042±0.004	3.7±0.1	0.28±0.02	0.17±0.01
7.0-10.0	0.9-1.3	0.14±0.04	0.033±0.003	3.6±0.1	0.34±0.02	0.24±0.01
10.0-13.0	1.3-1.9	0.08±0.03	0.042±0.005	3.3±0.1	0.32±0.02	0.24±0.01
13.0-16.0	1.9-2.5	0.10±0.05	0.038±0.008	3.2±0.1	0.27±0.03	0.24±0.03
16.0-23.5	2.5-3.7					
Lake Kugushi; water depth 2.5 m; 9 August 1988						
0-5.5	0-1.5	0.19±0.06	0.048±0.004	3.9±0.2	0.32±0.03	0.07±0.01
5.5-8.5	1.5-2.6	0.12±0.05	0.043±0.004	4.1±0.2	0.38±0.04	0.08±0.01
8.5-11.5	2.6-3.7	0.19±0.03	0.028±0.004	3.9±0.2	0.34±0.04	0.11±0.01
11.5-14.5	3.7-4.9	0.17±0.03	0.041±0.004	3.6±0.2	0.34±0.04	0.13±0.01
14.5-17.5	4.9-6.1	0.11±0.02	0.031±0.003	3.5±0.1	0.27±0.04	0.21±0.01
17.5-22.5	6.1-8.0	0.11±0.02	0.035±0.005	3.2±0.2	0.48±0.05	0.19±0.01
Lake Hiruga; water depth 40 m; 18 November 1986						
0-3.5	0-0.5	0.20±0.07	0.059±0.007	4.1±0.2	0.27±0.02	0.22±0.01
3.5-6.5	0.5-0.8	0.16±0.04	0.049±0.004	3.8±0.1	0.31±0.03	0.27±0.01
6.5-9.5	0.8-1.2	0.08±0.02	0.034±0.003	3.4±0.1	0.33±0.03	0.49±0.02
9.5-12.5	1.2-1.6	0.09±0.03	0.028±0.004	3.3±0.1	0.40±0.03	0.68±0.05
12.5-15.5	1.6-2.0		0.036±0.005	3.2±0.1	0.34±0.02	0.37±0.05
15.5-23.0	2.0-3.0					
Nyu Bay; water depth about 15 m; 29 February 1988						
0-4.0	0-1.7	0.12±0.03	0.041±0.005	4.0±0.1	0.39±0.03	0.26±0.01
4.0-8.0	1.7-3.0	0.10±0.03	0.036±0.004	4.0±0.1	0.38±0.04	0.28±0.02
8.0-12.0	3.0-4.5	0.08±0.03	0.031±0.006	4.5±0.1	0.38±0.03	0.23±0.02
12.0-16.0	4.5-5.9	0.11±0.05	0.034±0.004	3.9±0.1	0.31±0.02	0.27±0.02
16.0-20.0	5.9-7.4	0.06±0.02	0.031±0.003	3.7±0.2	0.35±0.02	0.40±0.02
20.0-24.0	7.4-8.9	0.21±0.09	0.032±0.008	5.7±1.1	0.28±0.03	0.26±0.03
24.0-28.0	8.9-10.5		0.042±0.005			0.20±0.04
28.0-32.0	10.5-12.4					
32.0-36.0	12.4-14.8					
36.0-40.0	14.8-16.7					
40.0-52.0	16.7-25.4					

All data were decay corrected to collection date. The ^{241}Am at collection date was calculated from measured ^{241}Am by subtracting ingrowth ^{241}Am from ^{241}Pu at the time of collection to the time of the americium and plutonium separation. Errors cited are counting errors.