

湖沼環境での物質循環に関する研究：琵琶湖における天然放射性核種 ^{210}Pb と ^{210}Po の挙動

著者	大塚 良仁, 山本 政儀, 小藤 久毅, 横田 喜一郎, 小村 和久
著者別表示	Ohtsuka Yoshihito, Yamamoto Masayoshi, Kofuji Hisaki, Yokota Ki-ichirou, Komura Kazuhisa
雑誌名	地球化学
巻	35
号	2
ページ	85-106
発行年	2001-06-20
URL	http://doi.org/10.24517/00063582

doi: 10.14934/chikyukagaku.35.85



地球化学 35, 85-106 (2001)

Chikyukagaku (Geochemistry) 35, 85-106 (2001)

報 文

湖沼環境での物質循環に関する研究

—琵琶湖における天然放射性核種²¹⁰Pbと²¹⁰Poの挙動—大塚良仁^{*,***}・山本政儀^{*}・小藤久毅^{*}横田喜一郎^{**}・小村和久^{*}

(2000年6月30日受付, 2001年3月11日受理)

Studies on geochemical cycles in lake environment

—Behavior of naturally occurring radionuclides ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in Lake Biwa, Japan—Yoshihito OHTSUKA^{*,***}, Masayoshi YAMAMOTO^{*}, Hisaki KOFUJI^{*},
Ki-ichirou YOKOTA^{**} and Kazuhisa KOMURA^{*}

- * Low Level Radioactivity Laboratory, Kanazawa University,
Tatsunokuchi, Nomi-gun, Ishikawa 923-1224, Japan
- ** Lake Biwa Research Institute,
1-10, Uchidehama, Otsu, Shiga 520-0806, Japan
- *** Present address; Institute of Environmental Sciences,
Obuchi, Rokkasho, Kamikita, Aomori 039-3212, Japan

The behavior of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in Lake Biwa, a large mesotrophic lake situated in the Kinki district of Japan, was investigated by analyzing lake water at various depths and precipitation at approximately monthly intervals for a period of 1.5 years, and sediments, streams flowing into and out of the lake.

Flux balance calculation indicated that atmospheric deposition was the major source (97% of total) of ²¹⁰Pb to the lake, and for ²¹⁰Po growth *in-situ* from the decay of ²¹⁰Pb contributed about 75% of the total ²¹⁰Po supply to the lake. Most (about 90%) of all the ²¹⁰Pb inputs to this lake was found to be incorporated into sediment. Residence times *via* sedimentation in the epilimnion and hypolimnion were estimated to be 27 (6-40) and 22 (5-45) days, respectively, for ²¹⁰Pb and 95 (47-146) and 32 (7-109) days for ²¹⁰Po. These residence times suggest that there is a difference between ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in the extent of their cycling in the water column, with a more rapid removal of ²¹⁰Pb than ²¹⁰Po. Overall, ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po were, furthermore, found to be removed more efficiently during the transit periods of high biological productivity, such as plankton blooms.

Key words: Lead-210, Polonium-210, Removal process, Scavenging, Sedimentation, Biogeochemical cycle, Lake Biwa

- * 金沢大学理学部附属低レベル放射能実験施設
〒923-1224 石川県能美郡辰口町和気オ24
- ** 滋賀県琵琶湖研究所
〒520-0806 滋賀県大津市打出浜1-10
- *** 現在, (財)環境科学技術研究所
〒039-3212 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駱
字家ノ前1-7

1. はじめに

大気や河川を通じて湖内に運び込まれる外来性物質,あるいは湖内で生産されたプランクトンなどの自生性物質は生物・化学的作用を受けて固相へと移行する。更にこれらはその場の環境条件の影響を受けながら深層を経て湖底に堆積する。湖底では堆積した物質

が続成作用を受け、一部は水中に回帰する。世界各地で湖沼の水質汚濁が深刻化している現在、吸着、脱離、沈降、拡散、堆積などの複雑なメカニズムの結果として起こる湖沼生態系の変化を予測し、水質を保全する施策を策定するための物質循環機構解明の研究が重要かつ緊急の課題となっている。

海洋には、湖沼と同様に、大気や河川を通じて流入したウラン (U) やトリウム (Th) 壊変系列の天然放射性核種及び大気圏核実験等に由来するセシウム 137 (^{137}Cs) などの人工放射性核種が微量ではあるが広く分布・存在している。これらの放射性核種は、注目する成分のトレーサーになるだけでなく、固有の物理的半減期で減少することに加え、その供給源と供給量がよく把握されているために存在量を測定するだけで水圏で起こっている種々の過程の時間や速度の変化を提供してくれる側面を持ち合わせている。海洋学の分野では、たとえば、水中で粒子との反応性が高く固相を形成しやすいトリウム同位体 (^{230}Th , ^{234}Th)、プロトアクチニウム 231 (^{231}Pa)、鉛 210 (^{210}Pb) 及びポロニウム 210 (^{210}Po) を水中の粒子の鉛直・水平方向の輸送及び生物地球化学的プロセス解明のトレーサーとして利用するなど、海洋内で起こっている諸現象解明のトレーサーとして多くの放射性核種が利用されその有効性が実証されてきた (例えば, Bacon *et al.*, 1976; Brewer *et al.*, 1980; Spencer *et al.*, 1981; Anderson *et al.*, 1983; Fleer and Bacon, 1984; Tsunogai *et al.*, 1985, 1988; 角皆, 1987; Kasemsupaya *et al.*, 1989; 原田, 1989; Nozaki *et al.*, 1976, 1987, 1991; Isotopic Tracers in U. S. JGOFS, 1990; Wei and Murry, 1994)。

一方、湖沼系ではその利用は広がりつつあるものの、海洋と比べて、湖盆形成、周辺地形、集水域などの性状が様々であり、内部での諸過程が季節変化や湖底及び縁辺からの影響を受けやすく、さらに非定常的な一時的あるいは突発現象によって支配される部分があるなど余りにも複雑なためにその利用は数少ない (Stumm, 1985; Schuler *et al.*, 1991; Balistreri *et al.*, 1995)。これまでに放射性核種を利用した湖沼の物質循環研究の対象は、北米 (例えば, Talbot and Andren, 1984; Hawley *et al.*, 1986; Balistreri *et al.*, 1995) やスイスを中心とするヨーロッパ (例えば, Benoit and Hemond, 1987, 1990; Dominik *et al.*, 1989; Santschi, 1989; Santschi *et al.*, 1988, 1990; Schuler *et al.*, 1991; Robbins *et al.*, 1992; Wieland *et*

al., 1991, 1993; Vogler *et al.*, 1996) の主として貧栄養湖に限られてきた。

著者らは、放射性核種利用の一環として、中栄養湖の琵琶湖を研究フィールドにウラン壊変系列に属する ^{210}Pb ($T_{1/2}=22.3\text{ y}$, β^-) 及び ^{210}Po ($T_{1/2}=138.38\text{ d}$, α) をトレーサーとした湖沼における物質循環研究を始めた。地表より大気に拡散したラドン 222 (^{222}Rn) の放射壊変によって生成した ^{210}Pb が、大気降下物として湖沼表面へもたらされる。 ^{210}Po は、 ^{210}Pb の β^- 壊変により短寿命のビスマス 210 (^{210}Bi) ($T_{1/2}=5.0\text{ d}$, β^-) を経て生成される。 ^{210}Pb や ^{210}Po は、上記したように湖水中で粒子との親和性が高く、難溶性物質が湖水から除去される過程を調べるトレーサーになりうる。琵琶湖でも、湖内の物質循環の鍵を握るものとして主栄養塩や重金属の湖水からの沈降粒子による除去過程に注目し、セジメントトラップを用いた研究がこれまでにいくつか行われてきた (Toyoda *et al.*, 1968; 前田ほか, 1987; 手塚ほか, 1990; Hama *et al.*, 1990; Takahashi *et al.*, 1995; 杉山, 1996; 杉山ほか, 1998)。これらにより、沈降する粒子束や組成の季節変化及び水深との関係など、その全体像がある程度明らかにされてきたが、トラップそのものが鉛直方向の沈降粒子のみを補集しているのかどうかなどの検討課題 (Binford and Brenner, 1986; Bloesch and Evans, 1982; Butman, 1986) も多く、新たな動的側面の情報が得られる手法が望まれている。

本研究では、琵琶湖で1.5年間約1ヶ月間隔で湖水中の ^{210}Pb , ^{210}Po 濃度の深度分布を継続測定し、それと併せて大気及び流入河川からの ^{210}Pb 供給量、さらに湖底堆積物中の ^{210}Pb 蓄積量も測定して、年間を通じてのこれら核種の供給、内部での循環、除去過程を含む循環メカニズムを解明することを目的とした。

2. 琵琶湖の概要

琵琶湖の表面積は674 km²、貯水量は275億トン、最大幅22.8 km、長軸 (瀬田～塩津) 63.5 km の大きな湖であり、Fig. 1 に示すように、琵琶湖大橋を基準に北が北湖、南が南湖と呼ばれている。北湖と南湖は、地質的な差異だけでなく、水質も生物相も異なる。北湖の表面積は616 km²、貯水量は273億トンで平均深度は44 m (最大深度は湖西の安曇川沖で104 m) である。一方、南湖の表面積は58 km²、貯水量は0.2億トンで最大深度は8 m 平均深度は3.5 m であり、琵琶湖全貯水量の1%にも満たない (Table 1 : Lake

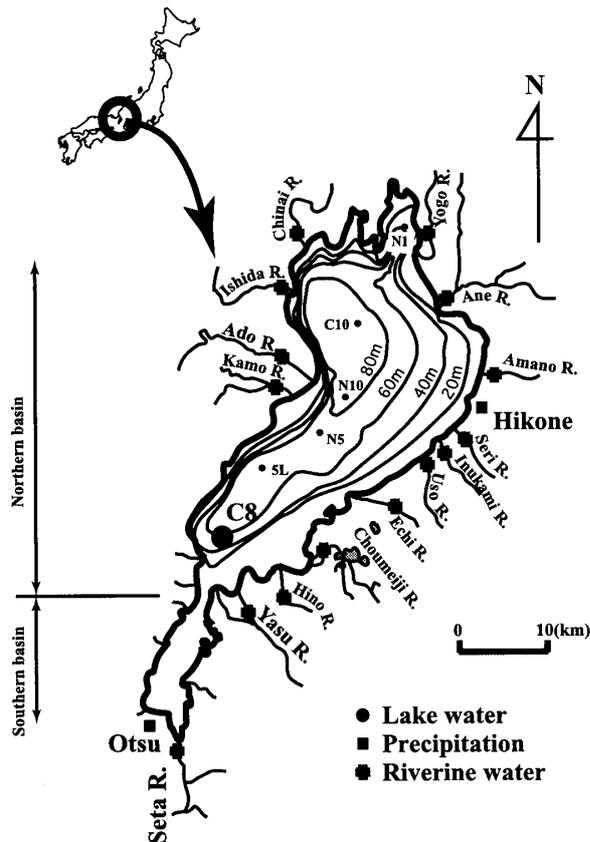


Fig. 1 Location map of Lake Biwa showing sampling sites of lake water, riverine water, precipitation and sediment.

Biwa Research Institute and National Institute for Research Advancement, 1984)。集水域3,174 km²は、滋賀県の面積に匹敵し、流入河川は小水路まで含めると500河川以上になるが一級河川に限定すると121河川になる。琵琶湖からの流出河川は瀬田川（1905年に南郷洗堰を建設し、水位調整開始）で、下流で宇治川、淀川と名を変えて大阪湾に注いでいる。また、1890年に建設された琵琶湖疏水からも京都方面に湖水を供給している（横山, 1995）。それらの流出量は、合計で年間約51億トンと見積られている（滋賀県琵琶湖研究所, 1988）。

琵琶湖は、年1回成層する亜熱帯湖に属し、4月上旬から成層し始め8月頃に水温躍層の深度が最も浅く、10 m程度までになる。それから12月初旬に向かって徐々に水温躍層の深度が下がり、翌年の1～3月に循環期に入る。表層水はほとんどの場合pH 6.8～9.1を示す。pHは水深とともに下がり、堆積物と水との境界付近ではpH 6.8～7.7になる（例えば、滋賀県琵琶湖環境部環境政策課, 1999）。湖水の生物及び化学

Table 1 Physical Dimensions of Lake Biwa.

	Unit	North Basin	South Basin	Total
Surface Area	km ²	616	58	674
Volume	x 10 ⁹ m ³	27.3	0.2	27.4
Maximum depth	m	104	8	104
Mean depth	m	44	3.5	41
Length of shoreline	km	-	-	235
Residence time of Water	y	5.5	0.04	5.5
Catchment area	km ²	-	-	3174

的特性は長年調査されており、溶存酸素濃度は8月頃に水温躍層付近で有機物の分解のために低くなる傾向にあるが、年間を通じて無酸素状態になる時期は存在しない（Ueda *et al.*, 1998）。北湖および南湖の水の滞留時間は、それぞれ約5.5年、約0.04年と推定されている（Lake Biwa Research Institute and National Institute for Research Advancement, 1984; Tezuka, 1992）。

3. 調査方法と試料採取及び測定

3.1 調査方法

年間を通じての²¹⁰Pb及び²¹⁰Poの湖底への除去過程を含む循環メカニズムを把握する観点から、調査対象を次の4項目(1)～(4)に分けた。

- (1) 大気からの降水などによる²¹⁰Pb供給量
- (2) 河川からの孔径0.45 μm フィルターを通過する溶存態及び孔径0.45 μm フィルターに捕集される懸濁態成分としての²¹⁰Pb及び²¹⁰Po供給量
- (3) 湖水中の両核種の溶存態及び懸濁態成分の鉛直濃度分布
- (4) 湖底堆積物中の²¹⁰Pb蓄積量

特に(1)と(3)に重点を置き、系への供給と存在量の変化を時間分解能よく追跡するために、約1ヶ月間隔で同期させて採取を実施した。

3.2 試料採取

3.2.1 大気降下物 琵琶湖研究所（滋賀県大津市）と滋賀県立大学（滋賀県彦根市）の屋上に有効面積0.2 m²の水盤を設置し（Fig. 1）、1997年2月～1998年8月まで、湖水採取と同期させて約1ヶ月間隔で大気からの降下物（湿性降下物＋乾性降下物）を採取した。採取した試料は洗液と共に20 ℓ容折り畳み式ポリエチレンタンクに移し、研究室に持ち帰った。

3.2.2 河川水 全流入量の約83%を占める主な14河川（滋賀県琵琶湖研究所, 1988）の河口付近で採水（1993年8月10～13日）を行った（Fig. 1）。また、

両核種の流出量を評価するために南郷洗堰の直前の瀬田川でも採水を実施した。河川水は、35ℓ容ポリエチレンバケツに採水し、直ちにダイヤフラム式加圧ポンプを用いて孔径0.45 μm ニトロセルロース製メンブランフィルター (ADVANTEC 製, 直径142 mm) でろ過した。ろ液は直接20ℓ容折り畳み式ポリエチレンタンクに受け、濃硝酸を0.1 mol/l 程度の硝酸溶液になるように添加してから研究室に持ち帰った。フィルターもポリエチレン容器に入れて持ち帰った。ろ液中に含まれるものを溶存態成分、フィルター上に補集された成分を懸濁態成分として分析に供した。

3.2.3 湖水 これまでに数多くの水質データが蓄積されている北湖南部に位置する琵琶湖研究所の定点観測地点 C8 (Fig. 1; 135°58'00"N, 35°10'30"E; 水深51 m) を採水場所として選定した。湖水の採取は、1997年2月～1998年6月の期間で、大気降下物採取と同期させて約1ヶ月間隔で実施した。琵琶湖研究所所有の実験船“はっけん号”に乗船し、C8地点で4～6層の採水を、5ℓニスキン型採水器を24本放射状に取付けたロゼット型採水器を用いて行った。実際の採水では、F-Probe (Fine Scale Profiler: 高精度多項目水質プロファイラー) を採水に先だって湖水中に下ろし、水温、電気伝導度、pH、クロロフィル-a 蛍光度、光透過率の鉛直分布を把握した上で採水深度を決定した。成層期 (4月～12月) には、表層 (0～1 m)、表層中部と水温躍層の上部および水温躍層下の中部、下部の5層で、一方、循環期 (1月～3月) には表層 (0～1 m)、10 m、20 m、40 m の4層で各層約20ℓ採水した。採取した湖水は、一旦35ℓ容ポリエチレンバケツに移し、河川水と同様な処理を施して、ろ液と懸濁物を得た。この操作と並行して各深度の試水の一部を分取して浮遊懸濁物 (SPM: Suspended Particle Matter) 濃度測定用の試料も調整した。この試料は、1～2ℓを用い孔径0.45 μm セルロース混合アセテート系フィルター (ADVANTEC 製; 直径47 mm, 予め蒸留水でよく洗浄し、80℃で恒量に成るまで乾燥させ秤量したもの) で吸引ろ過して得た。これらの試料以外に、²¹⁰Pb の先行核²²⁶Ra からの²¹⁰Pb 寄与を評価するために、1993年2月にC8地点を含む北湖6地点 (Fig. 1) で2 m、30 m、更に水深に依存して40～80 m 深さの3層で各層約20ℓ採水した。その後、同様にろ過し濃硝酸を0.1 mol/l 程度の硝酸溶液になるように添加してから研究室に持ち帰った。

3.2.4 湖底土 C8点での²¹⁰Pb 蓄積量を評価するために、内径5 cm, 長さ60 cm のアクリル製のパイプを装備した重力型採泥器 (橋本科学社製, K. K. 式採泥器) を用いて堆積物コア試料を数本採取した。保存性の良好な試料について、直ちに1 cm 深さ毎に切断した。試料は、ポリエチレン容器に入れて密閉し、研究室に持ち帰った。

3.3 分析・測定

3.3.1 大気降下物中の²¹⁰Pb 測定 持ち帰った試料は、直ちに粉末状の陽イオン及び陰イオン交換樹脂 (The Graver Company が開発したパウデックス樹脂: Powdex® PCH 及び PAO, オルガノ製) を各30 g ずつ混合して詰めた2段のカラム (内径5 cm, 樹脂相の長さ5 cm) に通し、²¹⁰Pb を100%の回収率で補集した (Kimura, 1978; Matsuura and Kitagawa, 1983; Yamamoto *et al.*, 1998)。カラムから樹脂を取り出した後、乾燥・均一化し、一定容器に詰めたものを線源として、²¹⁰Pb から放出されるガンマー線 (γ線) 46.5 keV (放出比, 4.05%) を低エネルギー用ゲルマニウム (Ge) 半導体検出器 (Low Energy Photon Spectrometer, LEPS) を用いて測定した。比較試料には、²¹⁰Pb 濃度の既知量を上記の樹脂に均一に混ぜたものを測定試料と同一の容器に入れたものを用いた。なお、²¹⁰Po については採取期間 (約1ヶ月間) 中での²¹⁰Pb から成長する²¹⁰Po 寄与があり、今回その補正が困難なために測定を実施しなかった。

3.3.2 河川及び湖水試料の²¹⁰Pb と²¹⁰Po 測定 溶存態及び懸濁態に分けた試料は、山本ほか (1994) の分析スキームに従って化学分離し、銀板上に Po (²¹⁰Po と化学収率補正のために添加した²⁰⁹Po トレーサー) を析出させた。この銀板を測定線源として、表面障壁型シリコン (Si) 半導体検出器を用いたアルファ (α) 線スペクトロメトリーにより²¹⁰Po を定量した。一方、ベータ (β) 線放射体の²¹⁰Pb は濃度が低く、非破壊γ線スペクトロメトリーでは十分な測定精度を得にくいため、²¹⁰Po 析出後の試料について、残存している²¹⁰Po (²⁰⁹Po) を陰イオン交換法により完全に除去した後、数ヶ月放置して²¹⁰Pb から成長した²¹⁰Po を上記と同様な方法で処理・測定することにより間接的に²¹⁰Pb を定量した (Yamamoto *et al.*, 1997)。

3.3.3 湖水試料の²²⁶Ra 測定 試水20ℓに化学収率補正用のトレーサー²²⁵R (²²⁹Th の娘核種) を添加後、Yamamoto *et al.* (1989) の方法に従って放射化学分離を行い、精製した Ra を銀板上に電着し表面障壁型

Si 半導体検出器で測定した。

3.3.4 湖底土中の過剰 ^{210}Pb 測定 約 80°C で乾燥後、乳鉢で十分に粉碎し試料を調整した。各試料の全量あるいは一部をとり油圧式のプレス(10トン)で直径5cmの線源を作成し、線源の重量を秤定した後、汚染防止と ^{222}Rn の損失を防ぐためにポリエチレン袋で二重に包み約1ヶ月間保存した。その後、低エネルギー用Ge半導体検出器および通常のGe半導体検出器で測定した。比較試料として、NBL(New Brunswick Laboratory)が市販しているウラン標準試料の既知濃度を特級・塩化ナトリウム試薬に均一に混ぜたもの及び特級KCl試薬を用いた。この測定によって、 ^{226}Ra (^{214}Pb より放出される295.2 keVと351.9 keVの γ 線より測定)および ^{210}Pb (46.5 keV)の定量を行った。測定した ^{210}Pb は、堆積物中の ^{226}Ra から成長した ^{210}Pb と湖水を通じて外部から供給された ^{210}Pb を含んでいる。ここでは、測定した全 ^{210}Pb 濃度から ^{226}Ra 濃度を差し引いた残りの成分を過剰 ^{210}Pb として、この成分が堆積物に蓄積されている量を評価した。

4. 結果と考察

4.1 湖面への大気からの ^{210}Pb 降下量

琵琶湖湖岸の大津市(琵琶研究所)及び彦根市(滋賀県立大学)において約1ヶ月間隔で観測した ^{210}Pb 降下量の変化をFig. 2に示す。1997年4月~1998年7月までの大津市、彦根市での ^{210}Pb 降下量は、それぞれ $0.32\sim 1.48\text{ Bq/m}^2\cdot\text{d}$ ($0.70\sim 3.24\text{ dpm/cm}^2\cdot\text{y}$)、 $0.26\sim 1.50\text{ Bq/m}^2\cdot\text{d}$ ($0.57\sim 2.29\text{ dpm/cm}^2\cdot\text{y}$)で、両地点とも冬季に高く夏季に低い明瞭な季節変動を示

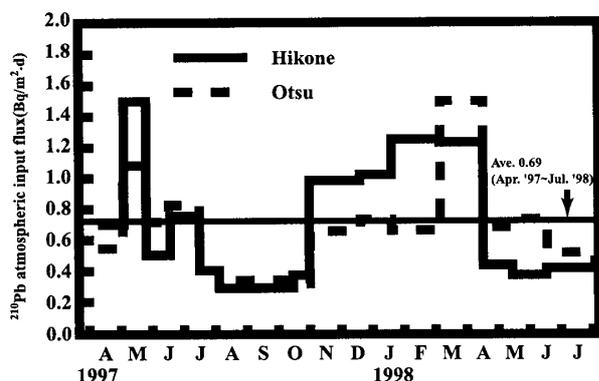


Fig. 2 Time series of atmospheric deposition of ^{210}Pb at Otsu and Hikone-Cities, Siga Prefecture. Data represent average fluxes measured throughout about one month.

した。大津市と彦根市の ^{210}Pb 降下量には採取時期により多少差異が見られるが、年間の降下量は、大津市(降水量:1,517 mm)で 253 Bq/m^2 (1.52 dpm/cm^2)、彦根市(降水量:1,663 mm)で 263 Bq/m^2 (1.58 dpm/cm^2)で顕著な差はなかった。琵琶湖周辺における ^{210}Pb 降下量の測定は、全く行われていない。吉田ほか(1996)は、琵琶湖周辺の未耕地20地点で採取した30cm深さの土壌コア一試料中の ^{210}Pb を測定し、その過剰 ^{210}Pb 蓄積量から大気降下物由来の ^{210}Pb 降下量を $230\sim 372\text{ Bq/m}^2\cdot\text{y}$ ($1.4\sim 2.2\text{ dpm/cm}^2\cdot\text{y}$)、平均 $290\text{ Bq/m}^2\cdot\text{y}$ ($1.7\text{ dpm/cm}^2\cdot\text{y}$)と推算した。北部地域が南部地域にくらべ1.5倍程度高い ^{210}Pb 蓄積量を示したが、全体としての平均値は、実測値と近似している。従って、彦根市での実測値をこの地域の代表的なフラックスとした。また、この実測値は、Tsunogai *et al.*(1985, 1988)の中国大陸沿岸からの距離と平均降水量で規格化した ^{210}Pb 降下量の経験式より推定した琵琶湖への ^{210}Pb 降下量約 $260\text{ Bq/m}^2\cdot\text{y}$ ($1.6\text{ dpm/cm}^2\cdot\text{y}$)ともほぼ一致する。琵琶湖での ^{210}Pb 降下量は、データが蓄積している大阪府富田林市での1986~1993年の平均 $140\text{ Bq/m}^2\cdot\text{y}$ ($0.84\text{ dpm/cm}^2\cdot\text{y}$) (恵ほか, 1999)の約2倍、日本海に面した石川県の当施設での1991~1998年の平均 $830\text{ Bq/m}^2\cdot\text{y}$ ($4.99\text{ dpm/cm}^2\cdot\text{y}$) (Yamamoto *et al.*, 1998)の1/3程度である。

琵琶湖全体での ^{210}Pb 降下量は彦根市での値に湖の表面積を乗じて 177 GBq/y (北湖: 162 GBq/y , 南湖: 15 GBq/y)と算出した。なお、 ^{210}Po 降下量は、大気及び降水で $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比が 0.1 前後(Tada, 1988)と観測されていることから、 ^{210}Po の降下フラックスは 18 GBq/y と推算した。

4.2 流入河川からの ^{210}Pb 及び ^{210}Po 供給量

主な14流入河川及び流出河川の瀬田川について測定した溶存態及び懸濁態 ^{210}Pb 、 ^{210}Po 濃度の結果をTable 2に示す。流入河川についての溶存態 ^{210}Pb 、 ^{210}Po 濃度は、それぞれ $0.18\sim 0.61\text{ mBq/l}$ 、 $0.21\sim 0.49\text{ mBq/l}$ で、河川間の ^{210}Pb 濃度の変動は3.4倍、 ^{210}Po のそれは2.3倍であった。一方、懸濁態 ^{210}Pb 、 ^{210}Po 濃度は、それぞれ $0.44\sim 0.61\text{ mBq/l}$ 、 $0.31\sim 3.47\text{ mBq/l}$ で、愛知川を除く全ての河川で溶存態成分より高い濃度を示した。河川間の懸濁態 ^{210}Pb 濃度の変動は4.7倍、 ^{210}Po のそれは6.1倍で対応する溶存態成分の変動幅より大きい。河川への ^{210}Pb 及び ^{210}Po の主な流入経路として、(1)大気からの河川表面への直接降下、(2)集水域の土壌表面に蓄積している成分の降水などによる表層土壌の

Table 2 Concentration of ^{210}Pb and ^{210}Po in river waters flowing anoutflowing to Lake Biwa (Aug. 1993).

River	River basin (km ²)	Water flow (10 ⁸ ton/y)	Concentration(mBq/L)				Activity Ratio ($^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$)	Concentration(mg/L) SPM	Inflow(Bq/m ² ·y)	
			Pb-210		Po-210				Pb-210	Po-210
			Dissolved	Particulate	Dissolved	Particulate				
Inflow										
Yogo	71	1.1	0.61 ± 0.05	0.76 ± 0.06	0.24 ± 0.02	0.49 ± 0.05	0.53	3.8	0.24	0.13
Ane	369	6.1	0.40 ± 0.03	0.82 ± 0.06	0.21 ± 0.02	0.44 ± 0.07	0.53	2.7	1.21	0.64
Amamo	112	1.2	0.36 ± 0.03	1.75 ± 0.10	0.21 ± 0.02	0.95 ± 0.11	0.55	6.1	0.41	0.23
Seri	64	0.7	0.31 ± 0.03	0.68 ± 0.06	0.25 ± 0.20	0.56 ± 0.07	0.82	3.8	0.11	0.09
Inukami	105	1.1	0.35 ± 0.02	0.93 ± 0.08	0.44 ± 0.03	0.60 ± 0.06	0.81	3.9	0.23	0.19
Uso	96	0.8	0.26 ± 0.03	1.07 ± 0.09	0.36 ± 0.03	0.83 ± 0.07	0.89	6.2	0.17	0.15
Echi	202	2.6	0.54 ± 0.04	0.44 ± 0.03	0.41 ± 0.03	0.31 ± 0.06	0.73	2.1	0.41	0.30
Tyomeiji	78	0.6	0.25 ± 0.03	2.61 ± 0.15	0.42 ± 0.03	3.47 ± 0.21	1.36	18.3	0.28	0.38
Hino	211	1.8	0.37 ± 0.03	1.33 ± 0.11	0.49 ± 0.03	1.15 ± 0.09	0.96	12.0	0.50	0.48
Yasu	384	3.7	0.20 ± 0.02	1.32 ± 0.11	0.21 ± 0.02	1.12 ± 0.05	0.88	15.4	0.91	0.80
Chinai	49	0.8	0.61 ± 0.05	0.75 ± 0.04	0.32 ± 0.03	0.78 ± 0.05	0.81	1.8	0.18	0.14
Ishida	54	1	0.28 ± 0.04	0.77 ± 0.04	0.29 ± 0.02	0.63 ± 0.03	0.88	2.0	0.17	0.15
Ado	307	4.9	0.18 ± 0.02	0.53 ± 0.04	0.24 ± 0.02	0.54 ± 0.03	1.10	5.3	0.56	0.62
Kamo	43	0.6	0.36 ± 0.02	1.16 ± 0.05	0.32 ± 0.03	1.27 ± 0.07	1.05	6.6	0.15	0.15
Outflow										
Seta	674	51	0.18 ± 0.03	0.70 ± 0.06	0.19 ± 0.02	0.44 ± 0.03	0.72	3.8	7.29	5.22

侵食と溶解に伴う流出, (3)河川への ^{222}Rn を含む地下水の漏出に伴う河川中での ^{222}Rn からの ^{210}Pb と ^{210}Po の成長が考えられている (Benoit and Hemond, 1987)。(1)については, 集水域の全表面積と全河川表面積の比較からこの寄与は無視できる。懸濁態 ^{210}Pb 及び ^{210}Po 濃度を単位懸濁物重量当りに換算すると, それぞれ0.09~0.42 mBq/mg, 0.07~0.43 mBq/mgとなり, 同時に測定した ^{238}U 濃度よりも2~20倍高く放射非平衡状態にある (Kofuji *et al.*, 1998)。溶存態及び懸濁態成分中の $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は, それぞれ0.4~1.7, 0.5~1.3の範囲で, 降水中の値0.1よりも数倍高い。これらのことから, 琵琶湖流入河川への ^{210}Pb 及び ^{210}Po の主な供給源は(2)及び(3)を支持していると推測した。溶存・懸濁態の存在比や $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比の変動要因は, 集水域の地形や水の滞留時間等の内的なもの, 降雨等による河床の侵食など外的なものが考えられる。特に後者は突発的に起こるので, 河川水の濃度や放射能比の決定要因を定量的に説明するのは困難であるが, 定常的には集水域での水の滞留時間と地下の土質がこれらの値を決定している要因である考えられる。

次に, これらの結果に基づいて, 河川経路による琵琶湖への ^{210}Pb 及び ^{210}Po 供給量を試算した結果をTable 2に示す。 ^{210}Pb 及び ^{210}Po は, 湖内に溶存態及び懸濁態成分として供給されるので, ここでは両成分の和として取り扱った。 ^{210}Pb , ^{210}Po 濃度の合計値は, それぞれ0.81~2.9 mBq/l及び0.36~3.9 mBq/lとなる。河川水中の懸濁物量は, 地域や気象条件によって大きく変動することが予想できるので, 単純平均値で

はなく, 測定した河川の年間流入水量 (滋賀県琵琶湖研究所, 1988) による荷重平均として扱い, ^{210}Pb 及び ^{210}Po 平均濃度を, それぞれ1.3 mBq/l, 1.0 mBq/lと見積った。河川の年間全流入量37億トン (滋賀県琵琶湖研究所, 1988) であるので, 河川経路の ^{210}Pb 及び ^{210}Po の流入量は, それぞれ約4.2 GBq/y, 約3.4 GBq/yとなる。

4.3 湖水中の ^{210}Pb 及び ^{210}Po

1997年2月~1998年6月にかけてC8地点で測定した湖水の試料採取日での溶存態及び懸濁態成分の ^{210}Pb と ^{210}Po 濃度測定結果をTable 3に示す。表には, 同時に測定した懸濁物濃度も併せて示してある。Fig. 3に成層期および循環期の代表的な ^{210}Pb 及び ^{210}Po 濃度の深度分布を示した。

^{210}Pb についてみると, いずれの期間も懸濁態 ^{210}Pb 濃度の方が溶存態 ^{210}Pb 濃度より高く, 成層期(4月~12月初旬)で水温躍層の上層と下層とで特に懸濁態 ^{210}Pb 濃度に差がある。湖水の上下混合が進んだ循環期(1月~3月)では, 懸濁態及び溶存態 ^{210}Pb 濃度はそれぞれ水深によらずほぼ一定である。一方, ^{210}Po 濃度は, ^{210}Pb 濃度と同様, 懸濁態成分の方が溶存態成分よりも高いが, それぞれの深度分布は ^{210}Pb と比べて大きな変動を示さない。

そこで, 水温躍層ができる平均水深20 mを基準に上下2層(以後, 上層を表層, 下層を深層と呼ぶ)に分けて検討した。表層及び深層での平均濃度は, 採水深度の間隔を考慮した重み付き平均で求めた。

^{210}Pb , ^{210}Po 濃度及びSPM濃度の変動幅(最低値, 最高値)とそれぞれの平均濃度の経時変化をFig. 4

Table 3 Summary of seasonal activities of dissolved and particulate ^{210}Pb and ^{210}Po and concentration of suspended particle matter (SPM) in Lake Biwa.

Date	Depth (m)	Water Temp. (°C)	Concentration(mBq/L)				Concentration(mg/L)
			Pb-210		Po-210		
			Dissolved	Particulate	Dissolved	Particulate	
Feb. 3. '97	0	7.8	0.49 ± 0.03	0.67 ± 0.03	0.12 ± 0.01	0.13 ± 0.09	0.63
	10	7.8	0.54 ± 0.04	0.75 ± 0.03	0.14 ± 0.02	0.17 ± 0.01	0.60
	20	7.8	0.38 ± 0.04	0.79 ± 0.04	0.10 ± 0.01	0.20 ± 0.01	0.56
	40	7.8	0.34 ± 0.03	0.68 ± 0.03	0.07 ± 0.01	0.18 ± 0.01	0.52
	Epilimnion(0-20m)		0.49 ± 0.04	0.74 ± 0.03	0.12 ± 0.02	0.17 ± 0.03	0.60
	Hypolimnion(20-51m)		0.35 ± 0.03	0.72 ± 0.03	0.07 ± 0.01	0.19 ± 0.01	0.53
May. 8. '97	0	15.2	0.29 ± 0.02	0.87 ± 0.03	0.08 ± 0.01	0.29 ± 0.01	0.90
	10	13.2	0.56 ± 0.04	0.94 ± 0.05	0.09 ± 0.01	0.14 ± 0.01	0.50
	20	11.7	0.43 ± 0.03	0.69 ± 0.04	0.12 ± 0.02	0.14 ± 0.01	0.40
	30	11.0	0.47 ± 0.03	0.63 ± 0.03	0.09 ± 0.01	0.14 ± 0.01	0.30
	40	11.1	0.26 ± 0.03	0.50 ± 0.03	0.11 ± 0.02	0.15 ± 0.01	0.30
	Epilimnion(0-20m)		0.46 ± 0.03	0.86 ± 0.04	0.10 ± 0.01	0.18 ± 0.01	0.57
Hypolimnion(20-51m)		0.35 ± 0.03	0.56 ± 0.03	0.11 ± 0.02	0.15 ± 0.01	0.31	
May. 26. '97	0	16.4	0.32 ± 0.05	1.06 ± 0.05	0.02 ± 0.01	0.20 ± 0.01	0.67
	5	15.8	0.20 ± 0.02	1.28 ± 0.07	0.05 ± 0.01	0.24 ± 0.01	0.60
	15	15.2	0.38 ± 0.04	0.99 ± 0.04	0.04 ± 0.01	0.21 ± 0.01	0.50
	20	11.8	0.39 ± 0.04	1.03 ± 0.05	0.03 ± 0.01	0.14 ± 0.01	0.62
	40	8.9	0.20 ± 0.03	0.37 ± 0.03	0.06 ± 0.01	0.11 ± 0.01	0.20
	Epilimnion(0-20m)		0.31 ± 0.03	1.11 ± 0.05	0.04 ± 0.01	0.21 ± 0.01	0.57
Hypolimnion(20-51m)		0.26 ± 0.03	0.56 ± 0.04	0.05 ± 0.01	0.12 ± 0.01	0.32	
Jun. 17. '97	0	22.7	0.16 ± 0.02	0.63 ± 0.05	0.05 ± 0.01	0.09 ± 0.01	0.60
	10	19.6	0.19 ± 0.03	0.95 ± 0.08	0.15 ± 0.02	0.11 ± 0.02	0.40
	18	16.8	0.18 ± 0.02	0.56 ± 0.05	0.07 ± 0.01	0.10 ± 0.01	0.50
	24	10.9	0.24 ± 0.02	0.54 ± 0.04	0.09 ± 0.01	0.12 ± 0.02	0.40
	40	9.0	0.22 ± 0.02	0.54 ± 0.04	0.07 ± 0.01	0.11 ± 0.02	0.30
	Epilimnion(0-20m)		0.18 ± 0.03	0.75 ± 0.06	0.10 ± 0.01	0.10 ± 0.01	0.48
Hypolimnion(20-51m)		0.23 ± 0.02	0.54 ± 0.04	0.08 ± 0.01	0.11 ± 0.02	0.33	
Jul. 17. '97	0	24.5	0.20 ± 0.02	0.84 ± 0.05	0.05 ± 0.01	0.10 ± 0.01	0.70
	9	22.5	0.40 ± 0.04	0.66 ± 0.05	0.05 ± 0.01	0.10 ± 0.01	0.40
	15	18.3	0.16 ± 0.02	0.48 ± 0.05	0.06 ± 0.01	0.09 ± 0.01	0.60
	23	14.1	0.18 ± 0.03	0.34 ± 0.04	0.10 ± 0.01	0.08 ± 0.01	0.50
	40	8.8	0.12 ± 0.03	0.32 ± 0.04	0.04 ± 0.01	0.08 ± 0.01	0.30
	Epilimnion(0-20m)		0.26 ± 0.03	0.63 ± 0.05	0.05 ± 0.01	0.10 ± 0.01	0.55
Hypolimnion(20-51m)		0.13 ± 0.03	0.33 ± 0.04	0.06 ± 0.01	0.08 ± 0.01	0.36	
Aug. 5. '97	0	27.5	0.70 ± 0.23	0.41 ± 0.05	0.15 ± 0.02	0.09 ± 0.01	0.76
	4	25.9	0.30 ± 0.06	0.30 ± 0.04	0.04 ± 0.01	0.08 ± 0.01	0.54
	8	22.7	0.15 ± 0.03	0.34 ± 0.05	0.05 ± 0.01	0.25 ± 0.04	0.42
	40	8.6	0.13 ± 0.03	0.44 ± 0.03	0.03 ± 0.01	0.10 ± 0.01	0.40
	Epilimnion(0-20m)		0.23 ± 0.06	0.34 ± 0.05	0.05 ± 0.01	0.20 ± 0.03	0.48
	Hypolimnion(20-51m)		0.13 ± 0.03	0.44 ± 0.03	0.03 ± 0.01	0.10 ± 0.01	0.40

に、また ^{210}Pb 、 ^{210}Po 濃度の水柱インベントリーの変化を Fig. 5 に示した。表層の溶存態及び懸濁態 ^{210}Pb 濃度は、それぞれ0.10~0.46 mBq/l、0.33~1.15 mBq/lの範囲を変動し、測定期間での平均濃度は0.20 mBq/l及び0.79 mBq/lであった。表層水中 ^{210}Pb の平均78% (59~88%) が懸濁態として存在している。溶存態 ^{210}Pb 濃度は1997年5月に最高値、1997年10月に最低

値を示したが、それ以外の時期は特徴的な季節変動を示さない。それとは対照的に、懸濁態 ^{210}Pb 濃度は成層しつつある4~6月頃のプランクトンブルーム期に高く、成層が最も発達する8月頃に最低になり、その後再び増加する明瞭な変化を示した。一方、深層での溶存態 ^{210}Pb 濃度は0.13~0.34 mBq/l (平均0.18 mBq/l)、懸濁態 ^{210}Pb 濃度は0.29~0.96 mBq/l (平均

Table 3 Continue

Date	Depth (m)	Water Temp. (°C)	Concentration(mBq/L)				Concentration(mg/L) SPM
			Pb-210		Po-210		
			Dissolved	Particulate	Dissolved	Particulate	
Oct. 13. '97	0	19.9	0.07 ± 0.01	0.49 ± 0.07	0.09 ± 0.01	0.20 ± 0.03	0.91
	18	-	0.12 ± 0.02	0.91 ± 0.14	0.05 ± 0.01	0.16 ± 0.02	0.61
	20	-	0.14 ± 0.02	0.45 ± 0.07	0.10 ± 0.01	0.25 ± 0.04	0.40
	22	-	0.33 ± 0.05	0.33 ± 0.05	0.08 ± 0.01	0.19 ± 0.03	0.51
	40	-	0.08 ± 0.01	0.37 ± 0.06	0.05 ± 0.01	0.10 ± 0.01	0.31
	51	8.2	0.13 ± 0.02	0.13 ± 0.02	0.11 ± 0.02	0.13 ± 0.02	0.30
	Epilimnion(0-20m)		0.07 ± 0.01	0.51 ± 0.08	0.08 ± 0.01	0.19 ± 0.03	0.89
Hypolimnion(20-51m)		0.16 ± 0.02	0.33 ± 0.05	0.07 ± 0.01	0.13 ± 0.02	0.37	
Oct. 31. '97	0	18.0	0.22 ± 0.03	0.74 ± 0.11	0.10 ± 0.02	0.23 ± 0.03	0.70
	20	18.0	0.12 ± 0.02	0.51 ± 0.08	0.07 ± 0.01	0.19 ± 0.03	0.80
	22	17.0	0.13 ± 0.02	0.57 ± 0.08	0.08 ± 0.01	0.23 ± 0.02	0.60
	25	12.0	0.29 ± 0.04	0.31 ± 0.05	0.15 ± 0.02	0.19 ± 0.02	0.53
	40	8.0	0.20 ± 0.03	0.33 ± 0.05	0.06 ± 0.01	0.19 ± 0.03	0.40
	Epilimnion(0-20m)		0.17 ± 0.03	0.62 ± 0.09	0.09 ± 0.01	0.21 ± 0.03	0.75
Hypolimnion(20-51m)		0.22 ± 0.03	0.35 ± 0.05	0.09 ± 0.01	0.19 ± 0.03	0.46	
Dec. 19. '97	0	11.7	0.24 ± 0.04	0.94 ± 0.14	0.12 ± 0.02	0.21 ± 0.03	0.50
	10	11.7	0.30 ± 0.04	0.73 ± 0.11	0.12 ± 0.02	0.41 ± 0.06	0.40
	30	11.4	0.29 ± 0.04	0.66 ± 0.10	0.12 ± 0.02	0.30 ± 0.05	0.50
	35	11.1	0.21 ± 0.03	0.70 ± 0.10	0.09 ± 0.01	0.13 ± 0.02	0.50
	45	8.7	0.16 ± 0.02	0.32 ± 0.05	0.11 ± 0.02	0.14 ± 0.02	0.25
	Epilimnion(0-20m)		0.28 ± 0.04	0.78 ± 0.12	0.12 ± 0.02	0.36 ± 0.05	0.42
Hypolimnion(20-51m)		0.22 ± 0.03	0.52 ± 0.08	0.11 ± 0.02	0.20 ± 0.03	0.39	
Whole Lake(0-51m)		0.24 ± 0.04	0.62 ± 0.09	0.11 ± 0.02	0.26 ± 0.04	0.40	
Jan. 20. '98	0	9.2	0.12 ± 0.02	0.77 ± 0.12	0.06 ± 0.01	0.30 ± 0.02	0.60
	10	9.2	0.23 ± 0.03	0.72 ± 0.11	0.04 ± 0.01	0.25 ± 0.01	0.60
	20	9.2	0.19 ± 0.03	0.89 ± 0.13	0.07 ± 0.01	0.30 ± 0.02	0.50
	47	9.1	0.12 ± 0.02	0.77 ± 0.11	0.07 ± 0.01	0.30 ± 0.02	0.50
	Epilimnion(0-20m)		0.19 ± 0.03	0.78 ± 0.12	0.05 ± 0.01	0.28 ± 0.02	0.58
	Hypolimnion(20-51m)		0.14 ± 0.02	0.80 ± 0.12	0.07 ± 0.01	0.30 ± 0.02	0.50
Whole Lake(0-51m)		0.16 ± 0.02	0.79 ± 0.12	0.07 ± 0.01	0.29 ± 0.02	0.53	
Mar. 3. '98	0	8.4	0.24 ± 0.03	0.90 ± 0.16	0.06 ± 0.01	0.21 ± 0.01	0.70
	10	8.1	0.22 ± 0.03	0.82 ± 0.16	0.07 ± 0.01	0.21 ± 0.01	0.67
	20	8.0	0.19 ± 0.03	0.83 ± 0.15	0.09 ± 0.01	0.21 ± 0.01	0.40
	45	7.8	0.22 ± 0.03	0.81 ± 0.14	0.07 ± 0.01	0.23 ± 0.01	0.50
	Epilimnion(0-20m)		0.22 ± 0.03	0.84 ± 0.15	0.07 ± 0.01	0.21 ± 0.01	0.61
	Hypolimnion(20-51m)		0.21 ± 0.03	0.82 ± 0.14	0.07 ± 0.01	0.22 ± 0.01	0.47
Whole Lake(0-51m)		0.21 ± 0.03	0.83 ± 0.15	0.07 ± 0.01	0.22 ± 0.01	0.52	
Apr. 17. '98	0	-	0.29 ± 0.09	0.55 ± 0.08	0.08 ± 0.02	0.15 ± 0.05	0.31
	10	-	0.20 ± 0.06	1.04 ± 0.16	0.08 ± 0.04	0.19 ± 0.08	1.09
	20	-	0.20 ± 0.04	1.15 ± 0.17	0.07 ± 0.02	0.17 ± 0.06	0.80
	25	-	0.16 ± 0.05	0.96 ± 0.14	0.06 ± 0.02	0.23 ± 0.08	0.80
	40	-	0.10 ± 0.12	0.56 ± 0.08	0.05 ± 0.02	0.12 ± 0.05	0.55
	Epilimnion(0-20m)		0.22 ± 0.06	0.94 ± 0.14	0.08 ± 0.03	0.18 ± 0.07	0.82
Hypolimnion(20-51m)		0.12 ± 0.10	0.72 ± 0.11	0.05 ± 0.02	0.16 ± 0.06	0.64	

0.55 mBq/l) の範囲を変動し、深層水中²¹⁰Pbも表層水中²¹⁰Pbとほぼ同割合の平均73% (61~85%) が懸濁態として存在している。深層での溶存態及び懸濁態²¹⁰Pb濃度は、いずれも表層より低い傾向にある。全測定期間での溶存態及び懸濁態成分合わせた平均

²¹⁰Pb濃度は0.83 mBq/l (0.49~1.21 mBq/l) であった。その水柱の²¹⁰Pbインベントリー (Fig. 5) は27~67 Bq/m²の範囲を変動し平均48 Bq/m²であった。春季のプランクトンブルーム期と初冬から始まる循環期で高く、夏季に低くなるこの変動パターンは、大気か

Table 3 Continue

Date	Depth (m)	Water Temp. (°C)	Concentration(mBq/L)				Concentration(mg/L)	
			Pb-210		Po-210			
			Dissolved	Particulate	Dissolved	Particulate		
May. 13. '98	0	-	0.25 ± 0.03	1.32 ± 0.06	0.32 ± 0.02	0.21 ± 0.04	0.80	
	10	-	0.21 ± 0.03	1.25 ± 0.06	0.08 ± 0.05	0.18 ± 0.05	0.60	
	15	-	0.18 ± 0.03	0.97 ± 0.05	0.03 ± 0.01	0.16 ± 0.04	0.60	
	20	-	0.22 ± 0.02	0.91 ± 0.05	0.05 ± 0.01	0.12 ± 0.04	0.50	
	25	-	0.18 ± 0.03	0.61 ± 0.05	0.08 ± 0.04	0.09 ± 0.04	1.20	
	40	-	0.16 ± 0.01	0.50 ± 0.03	0.05 ± 0.02	0.09 ± 0.03	0.93	
		Epilimnion(0-20m)		0.21 ± 0.03	1.16 ± 0.06	0.12 ± 0.03	0.18 ± 0.04	0.64
	Hypolimnion(20-51m)		0.17 ± 0.02	0.56 ± 0.04	0.06 ± 0.03	0.09 ± 0.03	0.97	
Jun. 17. '98	0	-	0.19 ± 0.01	0.85 ± 0.26	0.08 ± 0.02	0.12 ± 0.03	0.60	
	10	-	0.20 ± 0.02	0.96 ± 0.18	0.13 ± 0.03	0.13 ± 0.03	0.40	
	20	-	0.19 ± 0.01	0.51 ± 0.15	0.11 ± 0.02	0.08 ± 0.02	0.60	
	35	-	0.19 ± 0.03	0.53 ± 0.08	0.09 ± 0.02	0.12 ± 0.03	0.50	
	45	-	0.18 ± 0.09	0.27 ± 0.09	0.09 ± 0.02	0.16 ± 0.04	0.50	
		Epilimnion(0-20m)		0.20 ± 0.02	0.82 ± 0.19	0.11 ± 0.03	0.12 ± 0.03	0.50
		Hypolimnion(20-51)		0.19 ± 0.05	0.41 ± 0.09	0.09 ± 0.02	0.13 ± 0.03	0.51
Jun. 26. '98	0	-	0.29 ± 0.07	0.51 ± 0.07	0.07 ± 0.03	0.18 ± 0.03	-	
	10	-	0.21 ± 0.05	0.44 ± 0.07	0.12 ± 0.03	0.15 ± 0.02	-	
	30	-	0.19 ± 0.06	0.35 ± 0.05	0.06 ± 0.02	0.12 ± 0.02	-	
	45	-	0.14 ± 0.07	0.27 ± 0.08	0.04 ± 0.02	0.08 ± 0.02	-	
		Epilimnion(0-20m)		0.23 ± 0.06	0.46 ± 0.07	0.11 ± 0.03	0.16 ± 0.02	-
		Hypolimnion(20-51m)		0.16 ± 0.07	0.31 ± 0.07	0.05 ± 0.02	0.10 ± 0.02	-

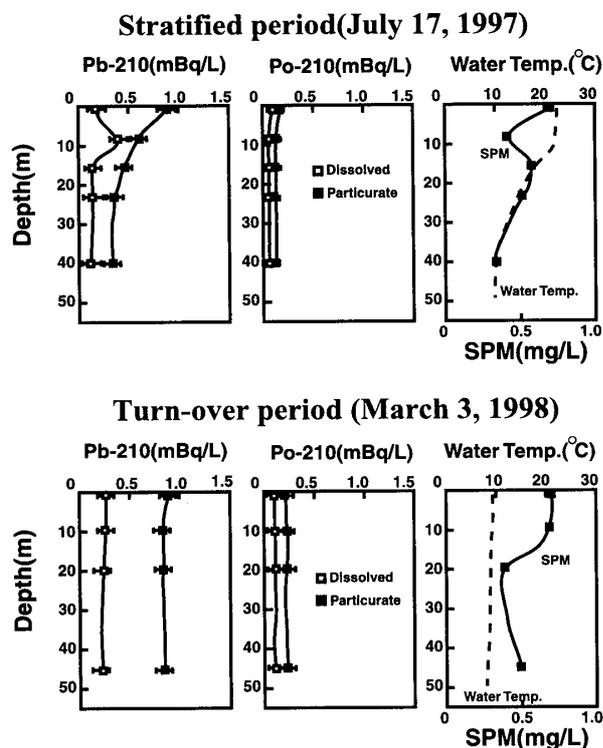


Fig. 3 Vertical profiles of dissolved and particulate ^{210}Pb and ^{210}Po , and temperature and suspended particle matter during the stratified and turn-over periods in Lake Biwa.

らの ^{210}Pb 降下量の変動パターン (Fig. 2) と極めてよく類似しており, このことは湖水中での ^{210}Pb 滞留時間が少なくとも測定間隔約1ヶ月よりも短いことを示唆している。

表層の溶存態及び懸濁態 ^{210}Po 濃度は, それぞれ0.04~0.13 mBq/l, 0.10~0.36 mBq/l の範囲で, 平均濃度は0.08 mBq/l 及び0.20 mBq/l であった。深層での溶存態 ^{210}Po 濃度は0.03~0.13 mBq/l (平均0.07 mBq/l), 懸濁態 ^{210}Po 濃度は0.08~0.30 mBq/l (平均0.16 mBq/l) の範囲を変動した。表層, 深層共に ^{210}Po の約70%が懸濁態として存在している。懸濁態 ^{210}Po 濃度は ^{210}Pb のその変動パターンと幾分異なり, 初冬のターンオーバー期後にピークをもつような変動を示し, 両元素の挙動の違いを示唆している。溶存態及び懸濁態 ^{210}Po 濃度は, 表層及び深層いずれの層においても対応する ^{210}Pb 濃度とくらべて放射平衡よりも低くなっている。そのレベルは, $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比で0.3~0.4であり, 世界の幾つかの湖沼で見出されている1.0以上の値 (Benoit and Hemond, 1987, 1990) は, いずれの測定期間においても検出していない。溶存, 懸濁態成分を合わせた水柱 ^{210}Po インベントリーは, 7.6~20.5 mBq/m² の範囲を変動し, 平均13.6 mBq/m² であった。その $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比は平均0.31

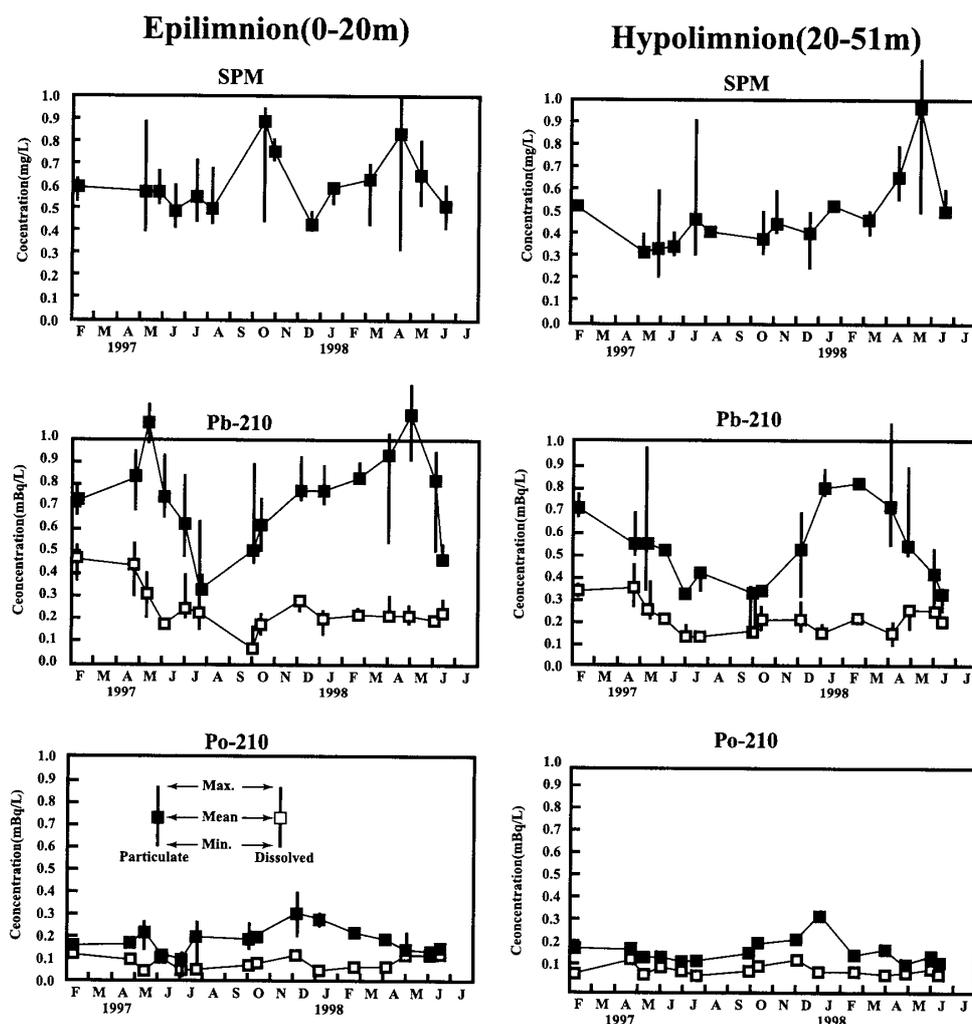


Fig. 4 Mean dissolved (open squares) and particulate (closed squares) concentrations of ^{210}Pb and ^{210}Po in surface (0-20 m) and deep (20-51 m) water shown as a function of time in Lake Biwa. Suspended particulate matter (SPM) time series trends are presented in the upper part.

(0.19~0.44) で、概して、大気からの供給0.1前後の比より大きい。

湖水中の ^{210}Pb は、外部から供給される成分と先行核 ^{226}Ra から成長してくる成分を含む。湖水中の溶存態 ^{226}Ra 濃度は、循環期の北湖で平均 0.06 ± 0.03 mBq/lであった。この濃度は ^{210}Pb 濃度よりも一桁低いことから、湖水中の ^{210}Pb 濃度に対する ^{226}Ra の寄与は非常に少ないと考える。

湖水中のSPM濃度は表層及び深層で、それぞれ0.40~1.09 mg/l, 0.25~1.20 mg/lの間を変動し、平均値では深層(0.49 mg/l)の方が表層(0.60 mg/l)より幾分低く、深層における浮遊懸濁物質中の有機物起源粒子の消費・分解(半田, 1986)を反映している

ものとする。表層では1997年10月と1998年4月、深層では1998年5月に濃度ピークを観測した。1997年10月13日の表層のみのピークは、調査直前の大雨のための集水域から河川経由の土壌懸濁粒子の流入に起因する。1998年4月及び1998年5月の表層及び深層でのピークは、プランクトンブルーム期に対応している。前年の同時期には顕著なピークを認めていないが、植物(動物)プランクトンの増加によると推測した。従って、琵琶湖のSPM濃度変動は、ブルーム期での植物(動物)プランクトンの増加と大雨に由来する外来性物質の流入に大きく支配されていると考える。

4.4 湖底の ^{210}Pb 蓄積量

湖水を採取したC8地点付近での過剰 ^{210}Pb 法で評

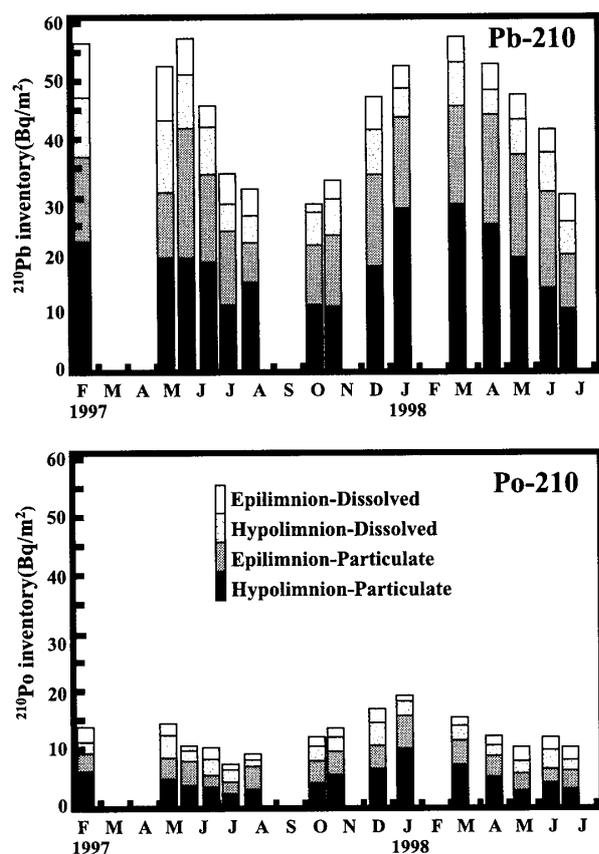


Fig. 5 Variation of the total inventories of dissolved and particulate ^{210}Pb and ^{210}Po in Lake Biwa.

価した堆積速度は $51 \text{ mg/cm}^2 \cdot \text{y}$ 、その過剰 ^{210}Pb 濃度の深度分布と堆積速度から試算した堆積物表層への ^{210}Pb フラックスは $220 \sim 230 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ ($1.3 \sim 1.4 \text{ dpm/cm}^2 \cdot \text{y}$)であった。また、過剰 ^{210}Pb の総蓄積量は $10,000 \text{ Bq/m}^2$ と見積った。琵琶湖北湖での堆積速度については、試料採取場所によって $1 \sim 220 \text{ mg/cm}^2 \cdot \text{y}$ の幅広い値が報告 (Kamiyama *et al.*, 1982; Yoshida, 1997) されているが、今回の試料採取地点を含む50 m以深の地点では、概ね $20 \sim 50 \text{ mg/cm}^2 \cdot \text{y}$ の範囲にある。堆積物表層への ^{210}Pb フラックスは、前述した大気からの ^{210}Pb 降下量 $263 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ ($1.5 \text{ dpm/cm}^2 \cdot \text{y}$)と比べて僅かに少ない程度である。

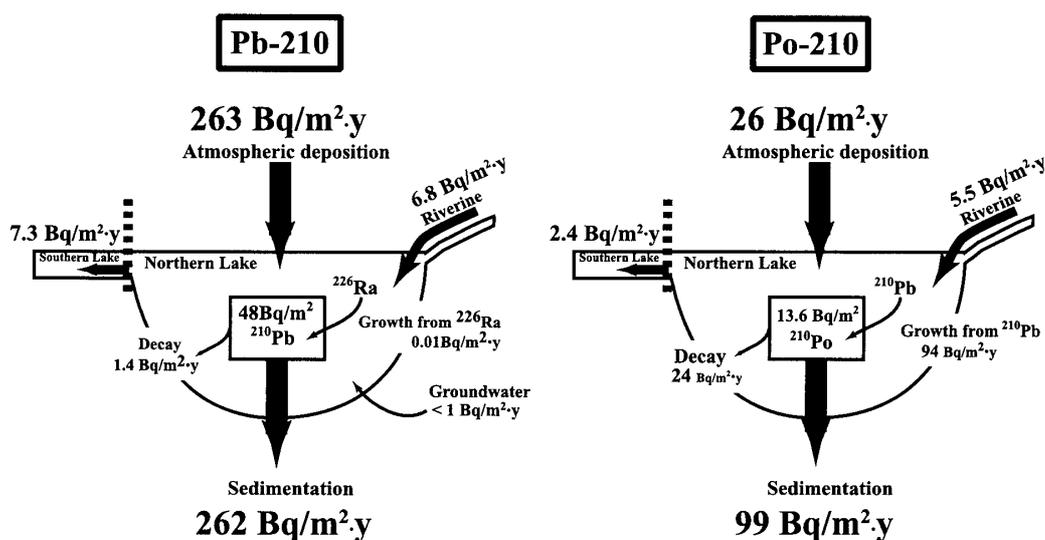
4.5 湖水での ^{210}Pb 及び ^{210}Po の動態

4.5.1 湖全体としての ^{210}Pb 及び ^{210}Po の収支

湖への ^{210}Pb の主な供給源としては、まず大気から湖面への直接供給 $263 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ がある。次に河川由来の供給について考えると、集水域の土壌分布や降雨など様々な要因により大きく変化することが予想される。

今回は河川経由の ^{210}Pb 供給量の見積もりに1993年8月の観測値のみを用いるが、後述するように湖全体での物質収支を計算した結果、水中から堆積物への ^{210}Pb 除去量と、堆積物の分析結果から導かれた ^{210}Pb 堆積速度はほぼ等しい値が得られた。したがって、今回見積もられた河川水経由の ^{210}Pb 供給量は代表的な値としても差し支えないと考える。このことは同時に観測した ^{210}Po についても同様である。 ^{210}Pb 及び ^{210}Po の河川経由の供給量は1993年8月の両核種の濃度と河川別流入量 (滋賀県琵琶湖研究所, 1988) を用いて算出し、河川由来の供給量を $6.8 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ であると推定した。その他に、地下水経由の ^{210}Pb 供給と湖水中の ^{226}Ra からの供給の可能性がある。地下水からの ^{210}Pb の直接供給は、この核種の地下水での滞留時間が1日以下と非常に短いことを考慮するとその寄与は無視しても差し支えないと考える (山本ほか, 1994; Yamamoto *et al.*, 1997)。湖に漏出する地下水に含まれる ^{222}Rn から湖水中で成長する ^{210}Pb (in-situ growth ^{210}Pb) の影響については、漏出地下水量および ^{222}Rn 濃度は空間的・時間的に大きく変動するためその評価は極めて困難であるが、琵琶湖岸の湖底からの年間地下水流入量の推定値 $7.1 \sim 11.4$ 億トン (単位面積あたりの漏出量は比良山地を後背地にもつ湖西岸地域が多いが、総地下水流入量は漏出面積の大きい湖東岸地域の方が圧倒的に多い; 滋賀県琵琶湖研究所, 1986)、および堀内、村上 (1986) の湖東岸地域の地下水 ^{222}Rn 濃度 ($< 1 \text{ Bq/l}$) を用いて ^{210}Pb を試算すると $1 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ 以下になり、その寄与は非常に少ないものと考えられる。湖水中の ^{226}Ra から成長する ^{210}Pb については、溶存態 ^{226}Ra 濃度は ^{210}Pb よりも一桁低い平均 0.06 mBq/l であるので、 ^{226}Ra からの供給は無視できるものと推測した。

一方、湖水からの除去 (消失) は、湖底への除去 ($220 \sim 230 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$) 以外に、流出河川からの流出、放射壊変が考えられる。流出河川からの ^{210}Pb 除去量は瀬田川からの流出水量が水量調整によって変動するため季節的に大きく異なるが、一次近似として瀬田川の ^{210}Pb 濃度 (Table 2; 溶存態及び懸濁態成分合わせて 0.88 mBq/l) に瀬田川と琵琶湖疏水の年間流出水量 (約51億トン) を掛けたものを北湖の表面積で除して $7.3 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ と推定した。更に、放射壊変による ^{210}Pb の除去量は、採取期間中の平均存在量 48 Bq/m^2 (琵琶湖北湖の平均水深44 mに換算) を用いて、 $1.4 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ と試算した。以上の結果をまとめた琵琶湖

Fig. 6 Mass balance of ^{210}Pb and ^{210}Po in lake Biwa.

の ^{210}Pb 収支を Fig. 6 に示す。この図から、湖への ^{210}Pb 供給源の97%が大気からの降下物に由来し、湖面への供給量とほぼ同量が湖底に除去され蓄積されていることがわかる。更に、湖水に存在する ^{210}Pb 量は、定常状態で年間降下量のわずか18%程度にすぎないことが明らかになった。なお、 ^{210}Po の供給源については、降下物から $26 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ (^{210}Pb 降下量の10%を割当)、河川から $5.5 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ 、親核種 ^{210}Pb からの成長量が $94 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$ と推定し、各要素が全供給源に占める割合は、大気：21%、河川：4%、親核種からの成長：75%で琵琶湖の ^{210}Po 供給は大気と親核種からの成長で約96%を占めている (Fig. 6)。

4.5.2 2-Box モデルによる収支 湖内での ^{210}Pb 及び ^{210}Po の挙動は、外的要因や湖内の物理、化学、生物的要因によって常に変化する。特に、成層する湖では表層と深層で生物活性や物理・化学的な条件（水温、溶存酸素など）だけでなく存在する浮遊懸濁物あるいは沈降粒子の質・量も異なる。このため、本研究では水温躍層で2分、すなわち、表層と深層に分けた2-Box モデルで水柱の ^{210}Pb 及び ^{210}Po の収支解析を試みた。湖面から水温躍層の平均深度20 mまでを表層、20 mから琵琶湖の平均深度44 mまでを深層とした。また、琵琶湖は北湖と南湖に区分されているが、南湖の貯水量は全貯水量の1%にも満たないので北湖のみの収支を取り扱うこととし、表層と深層での ^{210}Pb 及び ^{210}Po 輸送の規模と動的挙動を知るために溶存態成分と懸濁態成分に対して Balistrieri *et al.* (1995) のモデルを適応して物質収支を組み立てた (Fig. 7)。

収支計算の期間は、観測間隔が1ヶ月以内である1997年5月8日～1998年6月26日である。

第一次近似として以下に示す仮定をした。

- (1) 成層期間中での表層—深層境界付近の溶存 ^{210}Pb 及び ^{210}Po の拡散による交換は起きない。
- (2) 大気から降下物として供給される ^{210}Pb は湖水表層で全て溶存態 ^{210}Pb になる (Maring and Duce, 1990)。
- (3) 河川からの ^{210}Pb 及び ^{210}Po 供給量は、溶存態及び懸濁態成分の平均濃度に各サンプリング期間の日数に対応する流入水量を乗じて推定。
- (4) 湖からの流出は、表層での溶存態及び懸濁態成分の平均濃度に各サンプリング期間の日数に対応する流出水量を乗じて推定。
- (5) 表層と深層間の ^{210}Pb 及び ^{210}Po の移行は全て懸濁態成分が担う。

表層 (E: epilimnion) での溶存態 (d: dissolved) ^{210}Pb の各サンプリング期間の変化量 ($I_{d,E}/t$) は、大気 (Fatmos)、河川 (Finflow) 及び ^{226}Ra からの成長 (Fprod) による供給と河川からの流失 (Foutflow)、放射壊変 (Fdecay) 及び溶存態から懸濁態への移行 (スカベンジング: Fscav) による除去のプロセスを分けて次式となる。

$$I_{d,E}/t = (\text{Fatmos}) + (\text{Finflow})_d + (\text{Fprod})_{d,E} - (\text{Foutflow})_d - (\text{Fdecay})_{d,E} - (\text{Fscav})_E \dots (1)$$

表層での懸濁態 (p: particulate) ^{210}Pb の各サンプリング期間の変化量 ($I_{p,E}/t$) は、表層から深層への沈降

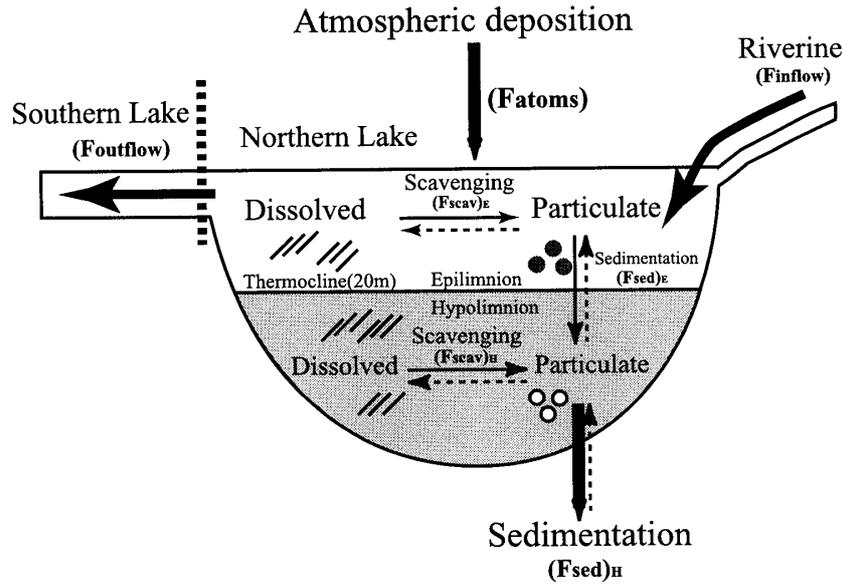


Fig. 7 Fluxes of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po considered in 2-box model calculation. Fluxes include atmospheric input (Fatmos), inflow from rivers (Finflow), outflow to the southern lake (Foutflow), production from parent nuclides (Fprod) and radioactive decay (Fdecay), transformations from dissolved to particulate phase (Fscav) and sedimentation of particulate nuclides (Fsed). The model used by Balistreri *et al.* (1995) was modified here with a minor changes.

(セディメンテーション: Fsed) による除去の項を加えて、次のようになる。

$$I_{p,E}/t = (F_{inflow})_p + (F_{prod})_{p,E} + (F_{scav})_E - (F_{outflow})_p - (F_{decay})_{p,E} - (F_{sed})_E \dots(2)$$

深層での溶存態²¹⁰Pb に対する式は、次式で示すことができる。

$$I_{d,H}/t = (F_{prod})_{d,H} - (F_{decay})_{d,H} - (F_{scav})_H \dots(3)$$

同様に、深層での懸濁態²¹⁰Pb バランスは次式で示すことができる。

$$I_{p,H}/t = (F_{prod})_{p,H} + (F_{scav})_H + (F_{sed})_E - (F_{decay})_{d,H} - (F_{sed})_H \dots(4)$$

(Fsed)_H が深層から湖底堆積物へ除かれる²¹⁰Pb フラックスである。

一方、²¹⁰Po についても、その式は上記の²¹⁰Pb 収支で用いた式と本質的に同じであるが、成長に関しては先行核を²²⁶Ra ではなくて²¹⁰Pb とした。Fig. 8 に各測定期間の²¹⁰Pb 及び²¹⁰Po についての収支結果をそれぞれまとめて示した。

表層および深層の溶存態、懸濁態成分の²¹⁰Pb 及び

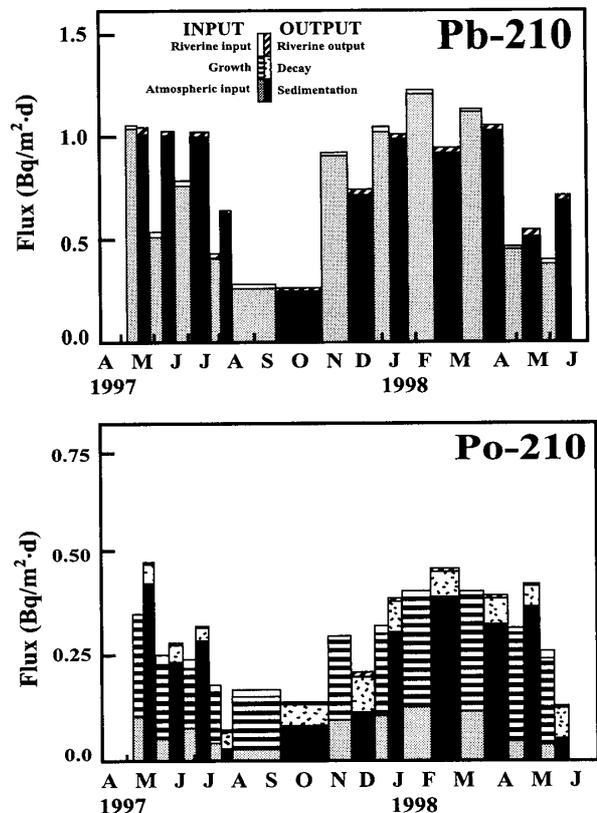


Fig. 8 Relative magnitude of total inputs and outputs of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po to Lake Biwa.

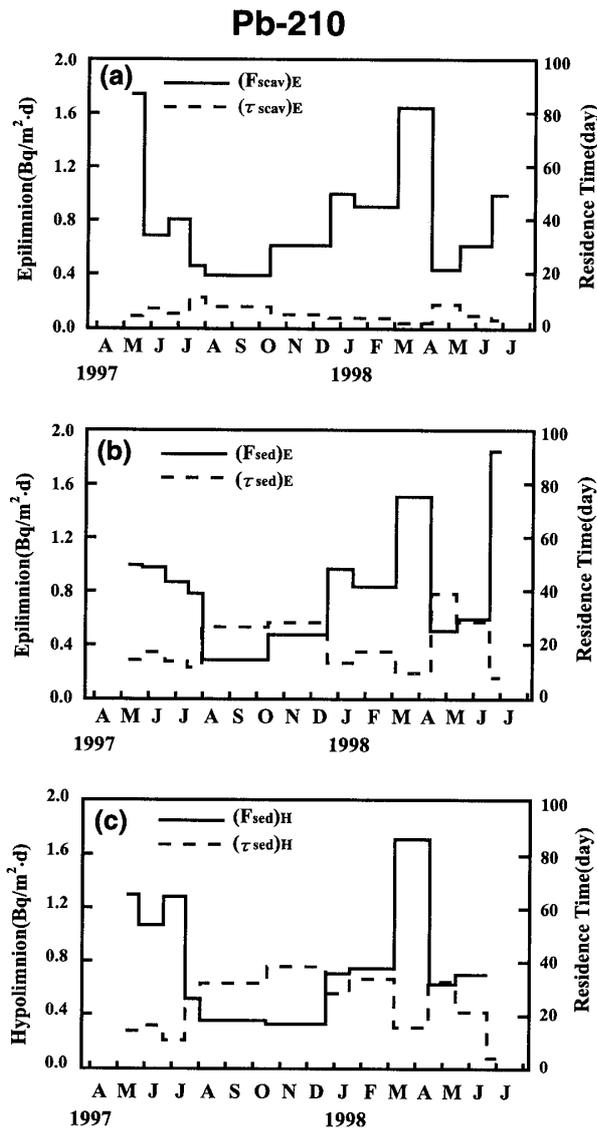


Fig. 9 Time variations of ²¹⁰Pb mean scavenging (a) and sedimentation (b) fluxes in the epilimnion and mean sedimentation (c) flux in the hypolimnion of Lake Biwa. The corresponding mean scavenging and sedimentation residence times (τ) are shown by dashed lines.

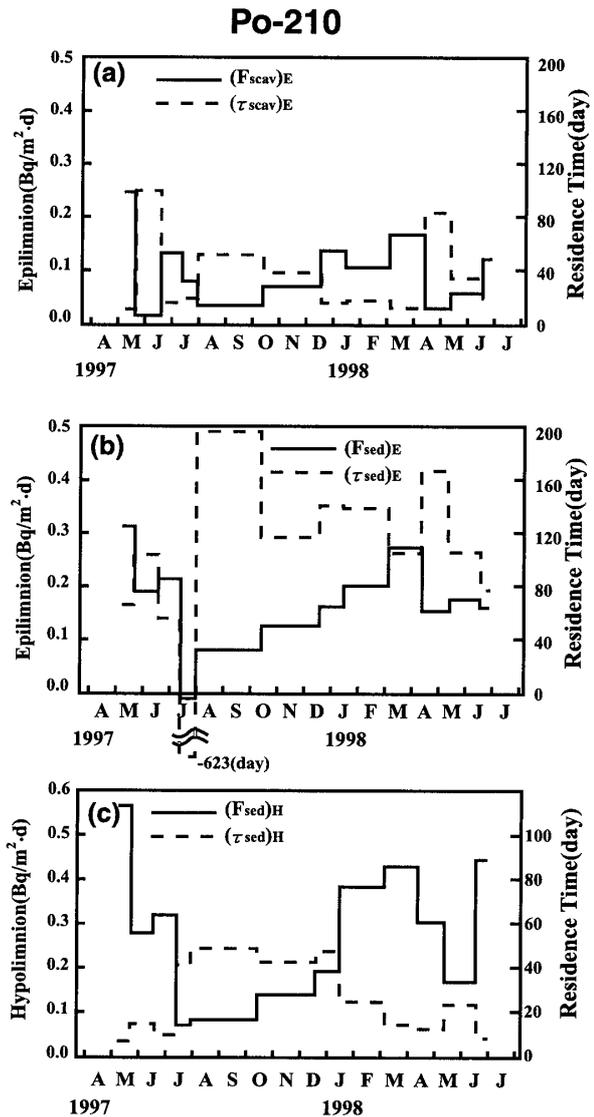


Fig. 10 Time variations of ²¹⁰Po mean scavenging (a) and sedimentation (b) fluxes in the epilimnion and mean sedimentation (c) flux in the hypolimnion of Lake Biwa. The corresponding mean scavenging and sedimentation residence times (τ) are shown by dashed lines.

²¹⁰Po のスカベンジング (scavenging) とセディメンテーション (sedimentation) に関する滞留時間 (τ_{scav} と τ_{sed}) は、各サンプリング期間の (F_{scav}) 及び (F_{sed}) とそれに対応する期間の溶存態、懸濁態成分の ²¹⁰Pb 及び ²¹⁰Po の平均インベントリー (ave I) を用いて下記式より算出した。

$$(\tau_{scav}) = (\text{ave } I)_d / (F_{scav}) \quad \dots\dots\dots(5)$$

$$(\tau_{sed}) = (\text{ave } I)_p / (F_{sed}) \quad \dots\dots\dots(6)$$

Fig. 9 及び Fig. 10 に、²¹⁰Pb 及び ²¹⁰Po について得た結果をそれぞれ示した。

4.5.3 表層の²¹⁰Pb 各期間の表層における溶存態²¹⁰Pb から懸濁態²¹⁰Pb へのスカベンジング・フラックス (F_{scav})_E は、0.37~1.74 Bq/m²・d の範囲で変動し平均 0.78 ± 0.04 Bq/m²・d であった (Fig. 9(a))。

(F_{scav})_E は, Fig. 11(a)に示すように, 供給量の97%を占める大気からの²¹⁰Pb フラックスの季節変化と極めてよく似た変化パターンを示す ($R=0.99$, $n=11$)。このことは, 大気からの²¹⁰Pb が一端は溶存態になりその²¹⁰Pb 濃度に比例して速やかに沈降粒子も含む懸濁粒子にスカベンジングされることを意味している。事実, 各採取期間での表層の溶存態²¹⁰Pb の (τ_{scav})_E は2.5~11日で平均6.5日あり, 溶存態²¹⁰Pb の速やかな懸濁粒子への移行を伺わせている。同じような結果が北米の Sammamich 湖においても報告されている (Balistrieri *et al.*, 1995)。

懸濁態²¹⁰Pb の表層から深層へのセディメンテーション・フラックス (F_{sed})_E は, 0.33~1.84 Bq/m²·d の範囲で変動し, 循環期から春先に向かって高く, 成層期後半 (8~12月) に低くなる傾向が見られる (Fig. 9 (b))。表層から深層への移行が大きくなる循環期は, 表層と深層の混合が活発である時期に対応し, 春先はプランクトンブルーム期, すなわち, 基礎生産が増大する時期に対応している。夏期の (F_{sed})_E の減少は, 水温躍層の発達に伴う沈降粒子の躍層付近での停滞に加え, 表層で活発化するプランクトンの分解過程に伴う沈降粒子束そのものの減少 (半田, 1986;

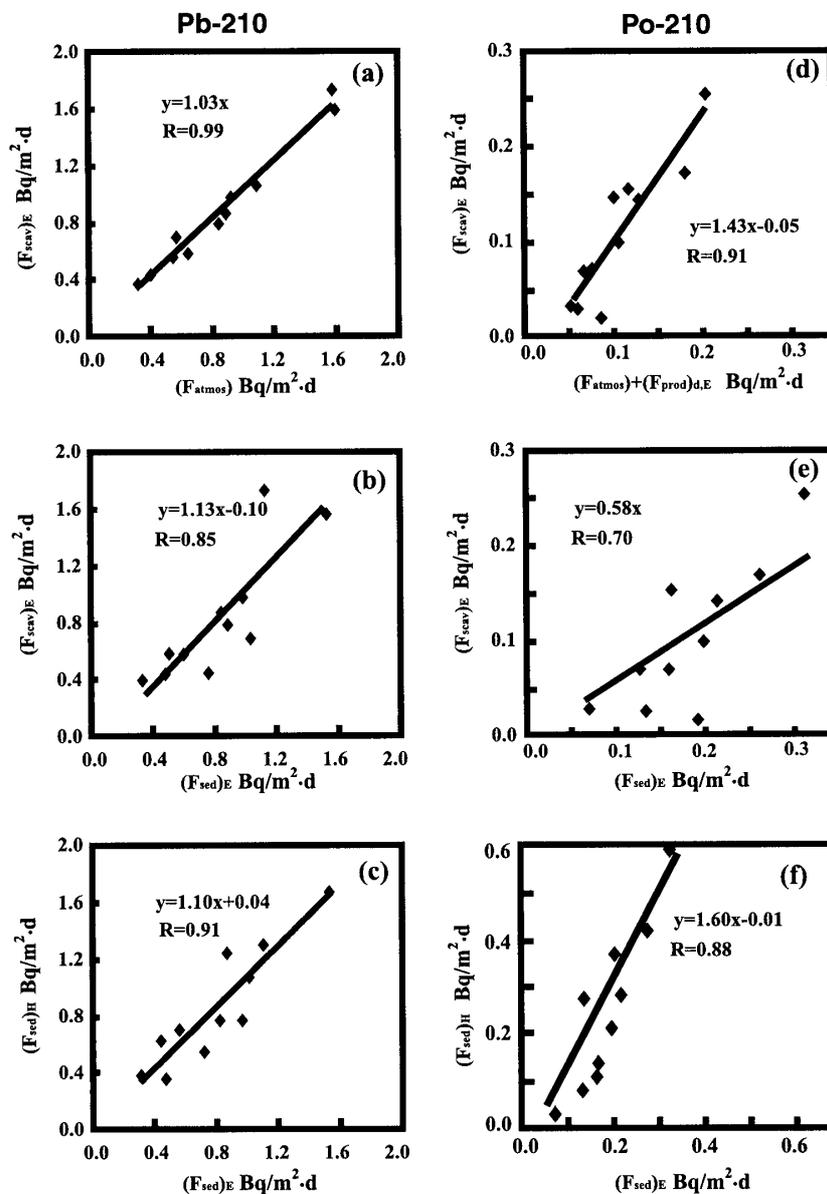


Fig. 11 Relation between atmospheric and scavenging and sedimentation fluxes of ²¹⁰Pb ((a) - (c)) and ²¹⁰Po ((d) - (f)) in Lake Biwa.

由水ほか, 1998) に起因すると考える。(Fsed)_Eの季節変動は, 溶存態から懸濁態への(Fscav)_Eの変動と調和的(Fig. 11(b))であり, 概して懸濁粒子によりスカベンジングされた²¹⁰Pbが深層に移行していると考ええる。懸濁態²¹⁰Pbの(τsed)_Eは, 平均26.9日(5.5~39.6日)で溶存態の(τscav)_Eと比べて2~3倍長い。

4.5.4 深層の²¹⁰Pb 深層での(Fscav)_Hについては, 供給源が深層の溶存態²²⁶Raからの成長のみになるので, その量は-0.08~0.17 Bq/m²・dと小さい。懸濁粒子による深層から湖底への(Fsed)_Hは, 0.26~1.68 Bq/m²・dの範囲で変化した(Fig. 9(c))。

(Fsed)_Hは成層期前半が最も大きく, 成層期後半にかけて漸減し循環期に入ると徐々に増加する季節変動を示した。この季節変動は, 表層からの(Fsed)_Eの季節変動と類似しており(Fig. 11(c)); R=0.91, n=11), 近似直線の傾きが1に近いことから, 表層で除去された²¹⁰Pbとほぼ同量が深層から湖底に移行していることが示唆される。深層での懸濁態²¹⁰Pbの(τsed)_Hは平均22日(4.8~44.8日), その平均沈降速度は1.1 m/dとなり, 深層においても水柱からの²¹⁰Pbの急速な除去が示唆される。表層での²¹⁰Pbの平均沈降速度は0.7 m/d程度であるので, 深層の方が幾分速い沈降速度を持つことになり, 前田ほか(1987)が以前に実施したセジメントトラップによる沈降粒子フラックスの観測結果とも矛盾しない。琵琶湖では年間を通じて深層が無酸素状態になることはないが, 杉山ほか(1998)は湖底からのマンガン(Mn)の溶出が生じていることを報告しており, 深層での沈降速度増大にこのような自生性物質の凝集も関与しているものと考えられる(Benoit and Hemond, 1990)。観測期間中の²¹⁰Pbの水中から湖底への年間の移行フラックスは約250 Bq/m²・yとなり, この値は湖水採取地点の湖底土に含まれる過剰²¹⁰Pbインベントリーから予想される湖底への年間²¹⁰Pbフラックス量220~230 Bq/m²・yにほぼ等しく, このモデルの妥当性を裏付けている。

4.5.5 表層の²¹⁰Po 各期間の表層における溶存態²¹⁰Poから懸濁態²¹⁰Poへのスカベンジング・フラックス(Fscav)_Eは, 0.01~0.25 Bq/m²・dの範囲で変動し, 採取期間での平均は0.09 Bq/m²・dであった(Fig. 10(a))。この変動幅は²¹⁰Pbのそれと比較して約5倍大きく, ²¹⁰Po/²¹⁰Pb放射能比で0.55±0.05である溶存態²¹⁰Pbと²¹⁰Po濃度の違いを考慮しても, 溶存態

²¹⁰Pbのスカベンジング・フラックスの変動幅よりも2倍以上大きい。この違いは, この2つの元素の持つ, 異なった循環サイクルを反映しており, ²¹⁰Poは²¹⁰Pbと比較するとスカベンジングされにくい, または再生(回帰)しやすい傾向があると言える。Benoit and Hemond (1990)はポロニウムがスカベンジングしにくい原因の一つとして, ポロニウムが容易に溶存有機炭素(DOC)と錯形成することを挙げている。²¹⁰Po供給源の大部分を占める大気降下物(Fatom)_Eと湖内の²¹⁰Pbからの成長に由来するフラックス(Fprod)_{d, E}の和とスカベンジング(Fscav)_Eを比較すると²¹⁰Pbの場合より相関が低い(Fig. 11(d))。

懸濁態²¹⁰Poの表層から深層へのセディメンテーション・フラックス(Fsed)_Eは, 平均0.06 Bq/m²・dで, -0.01~0.30 Bq/m²・dの範囲を変化した(Fig. 10(b))。表層の懸濁態²¹⁰Poの(τsed)_Eは, 平均95日(47~146日)で懸濁態²¹⁰Pbの平均26.9日より長い。夏期に(Fsed)_Eが負の値を示すことは, 計算過程の多くの不確定性要因に起因する可能性もなくはないが, ²¹⁰Pbには見られなかった特徴である。海洋では²¹⁰Poの栄養塩との相関性や生体内及び遺骸等への濃集が報告されており, ²¹⁰Pbより²¹⁰Poの方が急速に沈降あるいは回帰する糞粒(faecal pellets)などの有機系粒子との親和性が高いことが指摘されている(Kharkar *et al.*, 1976; Heyraud *et al.*, 1976; Beasley *et al.*, 1978; Heyraud and Cherry, 1983; Kadko, 1993; Larock *et al.*, 1996; Jeffree *et al.*, 1997; Tateda and Yamamoto, 1997)。琵琶湖では, この時期は植物プランクトンの分解や動物プランクトンによる消費が活発化する時期(Nakanishi *et al.*, 1992; Takahashi *et al.*, 1995)に対応しており, 同じメカニズムが中栄養湖の琵琶湖でも支配的であるならば, この時期の負の値は, 表層で生物起源の有機系粒子へ移行した²¹⁰Poが深層へ移行する過程でその母体が分解され, その一部が溶出して表層に回帰したためではないかと考える。今回の結果は, ²¹⁰Poのセディメンテーション・フラックス(Fsed)_Eが負であるものの, その絶対量は小さい。そこで, より詳細な挙動を解明するためには, 今回2つに分けた水柱を更に細かい層に分割する, 観測間隔を更に短くする等の改良, 改善が必要である。(Fscav)_Eと(Fsed)_Eを比較したFig. 11(e)を見ると²¹⁰Pbの場合(Fig. 11(b))とは異なり, その傾きは²¹⁰Pbの約半分である。これは²¹⁰Poの半減期が²¹⁰Pb

に比べ短いことを差し引いても溶存態から懸濁態へ移行しにくいことを示している。

4.5.6 深層の ^{210}Po 深層から湖底への $(F_{\text{sed}})_H$ は $0.02\sim 0.48 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{d}$ の範囲で変動し、観測期間での平均フラックスは $0.13 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{d}$ であった (Fig. 10 (c))。このフラックスの季節変動は表層から深層への懸濁態 ^{210}Po の移行フラックスに準じているが、その近似直線の傾きは1.6と大きく ^{210}Pb の場合と大きく異なる (Fig. 11(f))。これは ^{210}Po の場合 ^{210}Pb と異なり、除去過程で親核種 (^{210}Pb) からの供給の寄与が大きいため、表層より深層の (F_{sed}) が大きくなると考えられる。深層の懸濁態 ^{210}Po の $(\tau_{\text{sed}})_H$ は、平均32日 ($6.5\sim 109$ 日) で、平均沈降速度は 1.4 m/d ($0.2\sim 3.7 \text{ m/d}$) と試算した。表層の懸濁態 ^{210}Po の $(\tau_{\text{sed}})_E$ 95日の1/3程度である。懸濁態 ^{210}Pb のセディメンテーションに関する平均滞留時間 $(\tau_{\text{sed}})_H$ と比べると、表層 ^{210}Po の $(\tau_{\text{sed}})_E$ は3~4倍長く、深層 ^{210}Po の $(\tau_{\text{sed}})_H$ との差はそれほど顕著ではない。これらの結果は、表層の ^{210}Po は有光層で分解を受けやすい生物起源粒子が優先的な吸着母体となっているのに対して、そのような粒子が減少している深層では逆に ^{210}Pb と ^{210}Po の親和性の差が少ない非生物のデトリタス (岩屑) が吸着母体になっていること示唆している。

4.6 ^{210}Pb と ^{210}Po の除去率

上記したように琵琶湖の ^{210}Pb および ^{210}Po の濃度あるいは水柱インベントリーは、年間を通じて一定ではなくて、供給量に依存して絶えず変化している。従って、どの時期に効率よく湖水から湖底に両核種が除去されているかなどの情報は、 $(F_{\text{sed}})_H$ の単なる比較からでは得ることができない。そこで、その目安を下記の除去率 (Eff) を用いて検討した。除去率は、ある観測日 t_1 での溶存態と懸濁態成分合わせた全インベントリー (I_{t_1}) にその次の測定日 t_2 までの期間中 ($t = t_2 - t_1$) の供給量を加えた合計量に対するその観測期間の除去量の割合として定義し、下記式で与えた。

$$\text{Eff} = \frac{\{(F_{\text{sed}})_H \cdot t\}}{\{I_{t_1} + ((F_{\text{atom}}) + (F_{\text{inflow}}) + (F_{\text{prod}})) \cdot t\}} \dots\dots\dots (7)$$

このようにして得た結果を Fig. 12に示す。除去率が1.0の場合は、観測期間中に湖水中に存在する ^{210}Pb および ^{210}Po が全て湖底に除去されたことを意味する。

^{210}Pb の除去率は0.26~0.62の約2.5倍の範囲で変動し、観測期間中の平均は0.40であった (Fig. 12)。成

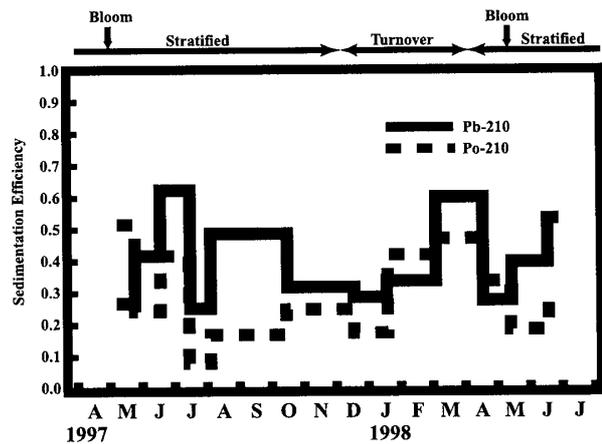


Fig. 12 Seasonal variation in the removal efficiency of ^{210}Pb and ^{210}Po from lake water.

層前半になる1997年6月と1998年4月及び6月には効率が相対的に高く、プランクトンブルーム期に ^{210}Pb が最も効率良く除去されていることが分かる。夏期の1997年7~8月及び循環期の1997年12月から1998年3月には0.2~0.3と除去率が相対的に低くなる。1997年10月の効率の増加は、この時期の大雨による外来性物質の流入に伴う懸濁粒子の増加に起因しているものと考えられ、上記した生物起源粒子以外に突発現象として河川水によって運搬されてくる非生物のデトリタス (岩屑) が ^{210}Pb 除去に与える影響も無視できない。一方、 ^{210}Po の除去率は0.08~0.51 (平均0.29) で ^{210}Pb より低く、除去されにくいことが分かる。その季節変動パターンはプランクトンブルーム期に効率良く除去される点では ^{210}Pb と類似しているが、ブルーム期直後 (6月) での違いが顕著である。

5. ま と め

湖沼における物質循環研究への放射性核種の利用の一環として、琵琶湖を研究フィールドに大気降下物、河川、湖沼および湖底堆積物中のウラン壊変系列に属する ^{210}Pb および ^{210}Po を測定し、年間を通じてのこれら核種の湖底への除去過程を含む循環メカニズムの解明を試みた。その結果から、

- (1) 琵琶湖への ^{210}Pb および ^{210}Po の主な供給源は、 ^{210}Pb については降下物 (97%)、 ^{210}Po については降下物 (21%) と湖水中の ^{210}Pb からの成長 (75%) である。
- (2) 供給された ^{210}Pb (約 $260 \text{ Bq/m}^2 \cdot \text{y}$) の大部分 (220~230 $\text{Bq/m}^2 \cdot \text{y}$) が、湖底に除去され蓄積されている

る。

- (3) 湖水中の ^{210}Pb および ^{210}Po は、いずれも70~80%が懸濁態成分として存在しており、その濃度の深度分布は成層期では表層が高くなり、湖水の上下混合が進んだ循環期では溶存および懸濁態成分共に水深によらずほぼ一定であった。溶存および懸濁態 ^{210}Po 濃度は、表層および深層いずれの層においても対応する ^{210}Pb 濃度と比べて放射平衡よりも低く、そのレベルは $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ 放射能比で0.3~0.4で世界の幾つかの湖で見出されている1.0以上の比は検出していない。
- (4) 溶存および懸濁態成分合わせての ^{210}Pb インベントリーは27~67 Bq/m²の範囲を変動し平均48 Bq/m²であった。春季のプランクトンブルーム期と初冬から始まる循環期で高く、夏期に低くなる変動パターンは、大気からの ^{210}Pb 降下量の変動パターンと極めてよく類似している。 ^{210}Po インベントリーは平均13.6 Bq/m² (7.6~20.5 Bq/m²)で、 ^{210}Pb と異なり初冬のターンオーバー期にピークをもつ季節変動を示し、両核種の挙動の違いを示唆している。
- (5) 表層における ^{210}Pb のスカベンジング及びセディメンテーションに関しての滞留時間は平均6.5日 (2.5~11日) および27日 (5.5~40日) である。深層でのセディメンテーションに関しての滞留時間は平均22日 (4.8~45日) で、湖に供給された ^{210}Pb が速やかに表層から深層さらに湖底に移行している。
- (6) 表層および深層 ^{210}Po のセディメンテーションに関しての滞留時間は、それぞれ平均95日 (47~146日) および32日 (6.5~109日) と推定された。 ^{210}Pb と比較すると、表層での値は3.5倍長く、深層では両者の違いはそれほど顕著ではない。このことは、表層の ^{210}Po は分解を受けやすい生物起源粒子が優先的な吸着母体となっているのに対して、そのような粒子が相対的に減少している深層では、逆に ^{210}Pb と ^{210}Po の親和性の差が少ない非生物のデトリタスが吸着母体になっているののではないかと考える。
- (7) ^{210}Pb 及び ^{210}Po 共に年間を通じてプランクトンブルーム期に最も効率良く除去されることが判明した。

謝 辞

湖水及び堆積物採取にあたり琵琶湖研究所“はっけん号”の乗組員の方々には多大な協力を頂いたことを

記して感謝します。雨水採取にあたり多大な協力を頂いた滋賀県立大学環境科学部伏見碩二教授に感謝致します。静岡大学理学部鈴木款教授及び金沢大学理学部上野馨(元)教授には示唆に富んだアドバイスを頂いた。記して感謝致します。

文 献

- Anderson, R. F., Bacon, M. P. and Brewer, P. G. (1983) Removal of ^{230}Th and ^{231}Pa from the open ocean. *Earth Planet. Sci. Lett.* **62**, 7-23.
- Bacon, M. P., Spencer, D. W. and Brewer, P. G. (1976) $^{210}\text{Po}/^{226}\text{Ra}$ and $^{210}\text{Po}/^{210}\text{Pb}$ disequilibria in seawater and suspended particulate matter. *Earth Planet. Sci. Lett.* **32**, 277-296.
- Balistrieri, L. S., Murray, J. W. and Paul, B. (1995) The geochemical cycling of stable Pb, ^{210}Pb , and ^{210}Po in seasonally anoxic Lake Sammamish, Washington, USA. *Geochim. Cosmochim. Acta* **59**, No. 23, 4845-4861.
- Beasley, T. M., Heyraud, M., Higgs, J. J. W., Cherry, R. D. and Fowler, S. W. (1978) ^{210}Po and ^{210}Pb in zooplankton fecal pellets. *Mar. Biol.* **44**, 325-328.
- Benoit, G. and Hemond, H. F. (1987) A biogeochemical mass balance of ^{210}Po and ^{210}Pb in an oligotrophic lake with seasonally anoxic hypolimnion. *Geochim. Cosmochim. Acta* **51**, 1445-1456.
- Benoit, G. and Hemond, H. F. (1990) ^{210}Po and ^{210}Pb remobilization from lake sediments in relation to iron and manganese cycling. *Environ. Sci. Technol.* **24**, 1224-1234.
- Binford, M. W. and Brenner, M. (1986) Dilution of ^{210}Pb by organic sedimentation in lakes of different trophic states, and application to studies of sediment-water interactions. *Limnol. Oceanogr.* **31**, 584-595.
- Bloesch, J. and Evans, R. D. (1982) Lead-210 dating of sediments compared with accumulation rates estimated by natural markers and measured with sediment traps. *Hydrobiol.* **92**, 579-586.
- Brewer, P. G., Nozaki, Y., Spencer, D. W. and Fleer, A. P. (1980) Sediment trap experiments in the deep North Atlantic: Isotopes and elemental

- fluxes. *J. Mar. Res.* **38**, 703-728.
- Butman, C. A. (1986) Sediment trap biases in turbulent flows: Results from a laboratory flume study. *J. Mar. Res.* **44**, 645-693.
- Dominik, J., Schuler, C. and Santschi, P. H. (1989) Residence times of ^{234}Th and ^7Be in Lake Geneva. *Earth Planet. Sci. Lett.* **93**, 345-358.
- Fleer, A. P. and Bacon, M. P. (1984) Determination of ^{210}Pb and ^{210}Po in seawater and marine particulate matter. *Nucl. Instrum. Methods (in Physics Research)* **223**, 243-249.
- Hama, T., Matsunaga, K., Handa, N. and Takahashi, M. (1990) Nitrogen budget in euphotic zone of Lake Biwa from spring to summer. *J. Plankton Res.* **12**, 125-131.
- 原田晃 (1989) ウラン・トリウム系列核種と海洋での物質循環, 地球化学, **23**, 1-11.
- 半田暢彦 (1986) 琵琶湖における代謝に関する研究. 琵琶湖研究所プロジェクト研究報告書.
- Hawley, H., Robbins, J. A. and Eadie, B. J. (1986) The partitioning of ^7Be in fresh water. *Geochim. Cosmochim. Acta* **50**, 1127-1131.
- Heyraud, M., Fowler, S. W., Beasley, T. M. and Cherry, R. D. (1976) Polonium-210 in euphausiids: A detailed study. *Mar. Biol.* **34**, 127-136.
- Heyraud, M. and Cherry, R. D. (1983) Correlation of ^{210}Po and ^{210}Pb enrichments in the sea-surface microlayer with neuston biomass. *Continental Shelf Res.* **1**, No. 3, 283-293.
- 堀内公子, 村上悠紀雄 (1986) ラドン定量による漏出地下水と湖岸地下水の特性について, 地域環境要因としての地下水研究報告第3集. 文部省環境科学特別研究. B 225-R 12-2, 91-106.
- Isotopic Tracers in U. S. JGOFS (1990) Report of a U.S. JGOFS Workshop on Radiochemistry, Woods Hole, Massachusetts (31, May - 2, June 1988). U. S. JGOFS Planning Report Number 12.
- Jeffree, R. A., Carvalho, F., Fowler, S. W. and Farber-Lorda, J. (1997) Mechanism for enhanced uptake of radionuclides by zooplankton in French Polynesian oligotrophic waters. *Environ. Sci. Technol.* **31**, 2584-2588.
- Kadko, D. (1993) Excess ^{210}Po and nutrient recycling within the California coastal transition zone. *J. Geophys. Res.* **98** (C 1), 857-864.
- Kamiyama, K., Okuda, S. and Koyama, M. (1982) Vertical Distribution of ^{137}Cs and its accumulation rate in lake sediments. *Jpn. J. Limnol.* **43**, 35-38.
- Kasemsupaya, V., Yashima, M., Tsubota, H. and Nozaki, Y. (1989) Comparative behavior of ^{210}Pb and Ra isotopes in the waters of Tokyo Bay and Osaka Bay mixing zones. *Geochem. J.* **23**, 129-138.
- Kharkar, D. P., Thomson, J., Turekian, K. K. and Forster, W. O. (1976) Uranium and thorium decay series nuclides in plankton from the Caribbean. *Limnol. Oceanogr.* **21**, 294-299.
- Kimura, T. (1978) A simple and rapid method of collection of radionuclides in rain water. *Radioisotopes* **27**, 348-349.
- Kofuji, H., Yamamoto, M., Yokota, K. and Komura, K. (1998) Behavior of uranium in a mesotrophic lake - Lake Biwa in Japan -. *International Workshop on Comparative Evaluation of Health Effect of Environmental Toxicants Derived from Advanced Technologies, Chiba*. NIRS-M-130. ISBN-493987-05-8, 3-13.
- Lake Biwa Research Institute and National Institute for Research Advancement (1984) *Data book of world lakes*. The Secretariat, Shiga Conference '84 on Conservation and Management of World Lake Environment, Otsu.
- Larock, P., Hyun, J. -H., Boutelle, S., Burnett, W. C. and Hull, C. D. (1996) Bacterial mobilization of polonium. *Geochim. Cosmochim. Acta* **60**, 4321-4328.
- 前田広人, 三田村緒佐武, 児玉哲夫, 江口充, 来田秀雄, 河合章 (1987) 北湖における物質の沈降, 堆積, 分解及び溶出. 滋賀県琵琶湖研究所研究報告, No. 86-A 05. 琵琶湖湖水の動態に関する実験的研究総合報告書 (II) -物質の鉛直輸送に関する基礎的研究, 29-74.
- Maring, H. B. and Duce, R. A. (1990) The impact of atmospheric aerosols on trace metal chemistry. In *Open Ocean Surface Seawater 3. Lead*. *J. Geophys. Res.* **95** (C 4), 5341-5347.

- Matsuura, H. and Kitagawa, S. (1983) Collection of radionuclides in rainwater by ion exchange resin bed method. *Annual report of Fukui Prefecture Institute of Public Health, Fukui-ken.* **20**, 55-67. (in Japanese)
- 恵和子, 伊藤憲男, 清田俊治, 岡 喬, 松波忠男 (1999) 堺における²¹⁰Pbの地表大気中濃度及び降下量. 第42回日本放射線影響学会講演予稿集. 1-E-9, 88.
- Nakanishi, M., Tezuka, Y., Narita, T., Mitamura, O., Kawabata, K. and Nakano, S. (1992) Phytoplankton primary production and its fate in a pelagic area of Lake Biwa. *Arch. Hydrobiol. Beih. Ergebn. Limnol.* **35**, 47-67.
- Nozaki, Y., Thomson, J. and Turekian, K. K. (1976) The distribution of ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in the surface water of the Pacific Ocean. *Earth Planet. Sci. Lett.* **32**, 304-312.
- Nozaki, Y., Yang, H. S. and Yamada, M. (1987) Scavenging of thorium in the ocean. *J. Geophys. Res.* **92**, 772-778.
- Nozaki, Y., Tsubita, H., Kasemsupaya, V., Yashima, M. and Ikuta, N. (1991) Residence times of surface water and particle-reactive ²¹⁰Pb and ²¹⁰Po in the East China and Yellow Seas. *Geochim. Cosmochim. Acta* **55**, 1265-1272.
- Robbins, J. A., Lindner, G., Pfeiffer, W., Kleiner, J., Stable, H. H. and Frenzel, P. (1992) Epilimnetic scavenging of Chernobyl radionuclides in Lake Constance. *Geochim. Cosmochim. Acta* **56**, 2339-2361.
- Santschi, P. H. (1989) Use of radionuclides in the study of contaminant cycling processes. *Hydrobiol.* **176/177**, 307-320.
- Santschi, P. H., Bollhalder, S., Farrenkothen, K., Lueck, A., Zingg, S., and Sturm, M. (1988) Chernobyl Radionuclides in the environment: Tracers for the tight coupling of atmospheric, terrestrial, and aquatic geochemical processes. *Environ. Sci. Technol.* **22**, 510-516.
- Santschi, P. H., Bollhalder, S., Zingg, S., Lueck, A. and Farrenkothen, K. (1990) The self-cleansing capacity of surface waters after radioactive fallout- evidence from European waters after Chernobyl, 1986-1988. *Environ. Sci. Technol.* **24**, 519-527.
- Schuler, C., Wieland, E., Santschi, P. H., Sturm, M., Lueck, A., Bollhalder, S., Beer, J., Bonani, G., Hofmann, H. J., Suter, M. and Wolfli, W. (1991) A multitracer study of radionuclides in Lake Zurich, Switzerland 1. Comparison of atmospheric and sedimentary fluxes of ⁷Be, ¹⁰Be, ²¹⁰Pb, ²¹⁰Po, and ¹³⁷Cs. *J. Geophys. Res.* **96** (C 9), 17051-17065.
- 滋賀県琵琶湖研究所 (1986) 琵琶湖集水域の現状と湖水への物質移動に関する総合研究. プロジェクト研究記録集, No. 85 A 2. 85-106.
- 滋賀県琵琶湖研究所 (1988) 滋賀県地域環境アトラス—琵琶湖データブック—.
- 滋賀県琵琶湖環境部環境政策課 (1999) 滋賀県環境白書—資料編—, 平成11年度版.
- Shukla, B. S. (1993) *Watershed, river and lake modeling through environmental radioactivity*. Environmental Research & Publications Inc. ISBN 0-9696383-0-2. Canada.
- Spencer, D. W., Bacon, M. P. and Brewer, P. G. (1981) Models of the distribution of ²¹⁰Pb in a section across the North Equatorial Atlantic Ocean. *J. Mar. Res.* **39**, 119-138.
- 杉山雅人 (1996) 琵琶湖懸濁物質における懸濁化学成分の分布と動態 (中西正己編: 琵琶湖における活性中心としての温度躍層). 平成6・7年度科学研究費助成金 (06304048) 研究成果報告書, 55-64.
- 杉山雅人, 木邑奈美, 張田裕之助 (1998) 琵琶湖での沈降粒子の化学組成 (中西正己編: 食物網が担う「第二の生物ポンプ」). 平成10年度科学研究費助成金 (08308031) 研究成果報告書, 36-52.
- Stumm, W. (1985) *Chemical Processes in lakes*. Wiley, ISBN 047-18826-15.
- Tada, T. (1988) Studies on airborne radionuclides in the environment, Master thesis, Kanazawa University, 1-83.
- Takahashi, M., Hama, T., Masunaga, K. and Hanada, N. (1995) Photosynthetic or ganic carbon production and respiratory or ganic carbon consumption in the trophogenic layer of Lake Biwa. *J. Plankton Res.* **17**, 1017-1025.

- Talbot, R. W. and Andren, A. W. (1984) Seasonal variations of ^{210}Pb and ^{210}Po concentrations in an oligotrophic lake. *Geochim. Cosmochim. Acta* **48**, 2053-2063.
- Tateda, Y. and Yamamoto, M. (1997) The residence time of ^{210}Po and ^{210}Pb related to in surface waters off Misaki, Japan. *Radioprotection-Colloques* **32**, C 2, 163-168.
- Tezuka, Y. (1992) Recent trend in the eutrophication of the north basin of lake Biwa. *Jpn. J. Limnol.* **53**, 239-246.
- 手塚靖彦, 中西正己, 中野伸一 (1990) 沈降物質とその組成について (手塚靖彦編; 琵琶湖の有機物生産と生産物の行方に関する研究). 平成元年度科学研究費補助金 (68480005) 研究成果報告書, p. 20-27.
- Toyoda, Y., Horie, S. and Saijyo, Y. (1968) Studies on the sedimentation in Lake Biwa from the viewpoint if the metabolism. *Mitt. Internat. Verein. Limnol.* **14**, 243-255.
- 角皆静男 (1987) 海水からの化学成分の沈降除去に関する“列車と乗客モデル”. 地球化学, **21**, 75-82.
- Tsunogai, S., Shinagawa, T. and Kurata, T. (1985) Deposition of anthropogenic sulfate and Pb-210 in the western North Pacific area. *Geochem. J.* **19**, 77-90.
- Tsunogai, S., Kurata, T., Suzuki, T. and Yokota, K. (1988) Seasonal Variation of atmospheric ^{210}Pb and Al in the Western North Pacific Region. *J. Atoms. Chem.* **7**, 389-407.
- Ueda, T., Kawabata, A., Koitabashi, T. and Narita, T. (1998) Data of regular limnological survey of Lake Biwa. *Technical Report. No. 1*. Center for Ecological Research. Kyoto University.
- Vogler, S., Jung, M. and Margini, A. (1996) Scavenging of ^{234}Th and ^7Be in Lake Constance. *Limnol. Oceanogr.* **41**, 1384-1393.
- Wei, C. -L. and Murry, J. W. (1994) The behavior of scavenged Isotopes in marine anoxic environments. ^{210}Pb and ^{210}Po in the water column of the Black Sea. *Geochim. Cosmochim. Acta* **58**, 1795-1811.
- Wieland, E., Santschi, P. H. and Beer, J. (1991) A multitracer study of radionuclides in Lake Zurich, Switzerland 2. Residence times, removal processes, and sediment focusing. *J. Geophys. Res.* **96** (C 9), 17067-17080.
- Wieland, E., Santschi, P. H., HoHener, P. and Sturm, M. (1993) Scavenging of Chernobly ^{137}Cs and natural ^{210}Pb in Lake Sempach, Switzerland. *Geochim. Cosmochim. Acta* **57**, 2959-2979.
- 山本政儀, 指物和彦, 小藤久毅, 小村和久, 上野馨 (1994) 天然放射性核種をプローブとする地下水の挙動研究. 第38回放射化学討論会講演要旨集, 3 C 18, 321-322.
- Yamamoto, M., Komura, K. and Sakanoue, M. (1997) Long-lived radon daughters, ^{210}Pb and ^{210}Po , in volcanic products and hot and mineral spring waters. *Proc. of 7th Tohwa Univ. Inter. Symp. "Radon and Thoron in the Human Environment"*. Edts. A. Katase & M. Shimo, World Scientific, 485-502.
- Yamamoto, Y., Kofuji, H., Shiraishi, K. and Igarashi, Y. (1998) An attempt to evaluate dry deposition velocity of airborne ^{210}Pb in a forest ecosystem. *J. Radioanal. Nucl. Chem.* **227**, Nos 1-2, 81-87.
- Yamamoto, M., Komura, K. and Ueno, K. (1989) Determination of low-level ^{226}Ra in environmental water samples by alpha-ray spectrometry. *Radiochim. Acta* **46**, 137-142.
- 横山卓雄 (1995) 「移動する湖, 琵琶湖—琵琶湖の生い立ちと未来—」. 法政出版, ISBN 4-938554-71-2.
- 由水千景, 占部城太郎, 野崎健太郎, 吉田丈人, 鏡味麻衣子, 中西正己 (1998) 琵琶湖の沈降粒子に及ぼすプランクトン群集の影響 (中西正己編: 食物網が担う「第二の生物ポンプ」). 平成10年度科学研究費助成金 (08308031) 研究成果報告書, 63-78.
- 吉田義久, 山本政儀, 横田喜一郎, 小藤久毅, 小村和久 (1996) 琵琶湖湖底堆積物中の天然 (^7Be , ^{210}Pb) 及び人工放射性核種 (^{137}Cs , $^{239+240}\text{Pu}$), 第40回放射化学討論会講演予稿集, 2 C 10, 206-207.
- Yoshida, Y. (1997) Study on long- and Short-term behavior of lake sediment using natural (^7Be ,

^{210}Pb and artificial (^{137}Cs , 239 , ^{240}Pu) radionuclides

-Lake Biwa-. Master thesis. Kanazawa University, 1-103.