

資 料

日本周辺海域環境での ^{90}Sr 及び ^{137}Cs 濃度の長期的推移 - 昭和58年度～平成24年度までの調査結果 -

及川真司^{*1 §}・高田兵衛^{*1}・磯山直彦^{*2}・稲富直彦^{*1}・
渡部輝久^{*2}・鈴木千吉^{*2}・御園生淳^{*2}・森蘭繁光^{*2}・日下部正志^{*2}

Temporal Changes of ^{90}Sr and ^{137}Cs Concentration in the Waters around Japanese Archipelago from 1983 to 2012

Shinji Oikawa^{*1 §}, Hyoe Takata^{*1}, Naohiko Isoyama^{*2}, Naohiko Inatomi^{*1},
Teruhisa Watabe^{*2}, Chiyoshi Suzuki^{*2}, Jun Misonoo^{*2}, Shigemitsu Morizono^{*2}
and Masashi Kusakabe^{*2}

要約: 公益財団法人海洋生物環境研究所は, 文部科学省(旧 科学技術庁, 現 原子力規制委員会原子力規制庁)からの委託事業として, 昭和58年度に開始された「海洋環境における放射能調査及び総合評価事業」に参画してきた。本事業の一環として, 全国の原子力発電所等の前面海域(計15海域)で海水, 海底土および海産生物を採取し, ^{90}Sr や ^{137}Cs などの人工放射性核種の継続的な調査を行ない, 全国規模での評価に資する情報を提供してきた。平成23年3月に発生した福島第一原子力発電所事故以降, 海洋環境における放射能問題には強い関心が寄せられてきた。本稿では, 昭和58年度から平成24年度までに得られた調査結果をもとに, 海洋環境放射能の長期的変遷に加え, 福島第一原子力発電所事故を受けて福島県沖で緊急的に実施した海洋放射能調査等の概略を取りまとめた。

キーワード: 海洋環境, 放射能, ^{90}Sr , ^{137}Cs , 福島第一原子力発電所事故

Abstract: We have participated in a radioactivity monitoring program launched by the Japanese government in 1983 to assess the marine environments adjacent to major nuclear facilities including all commercial nuclear power stations in Japan. Both ^{90}Sr and ^{137}Cs have been detected since the beginning of the program in the waters. Concentrations of ^{90}Sr and ^{137}Cs in seawater have been on a long-term downtrend except a prompt rise of ^{137}Cs caused by the Chernobyl accident in 1986, and reached the level corresponding to 1-2 mBq/L for both radionuclides before the Fukushima accident in 2011. The ^{137}Cs in surface sediments (upper 3cm) also have been on a downtrend and gradually decreased thereafter the 1990s. The most recent results before the accident suggested that the ^{137}Cs concentration would not be more than 8 Bq/kg-dry for the sediments. This paper also summarizes the ^{90}Sr and ^{137}Cs monitoring data in the waters soon after the Fukushima accident, and there was a remarkable change in radiocesium in surface waters during first 7 months; the radiocesium reached a maximum in mid-April 2011 and decreased exponentially with time. Concentrations of ^{137}Cs in the surface sediments varied spatially by two orders of magnitude and there was no correlation between ^{137}Cs and the proximity of the location to the accident site.

Key words: marine environment, radioactivity, ^{90}Sr , ^{137}Cs , Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident

(2013年11月25日受付, 2013年12月27日受理)

*1 公益財団法人 海洋生物環境研究所 中央研究所 (〒299-5105 千葉県夷隅郡御宿町岩和田300番地)
E-mail: oikawa@kaiseiken.or.jp

*2 公益財団法人 海洋生物環境研究所 事務局 (〒162-0801 東京都新宿区山吹町347番地 藤和江戸川橋ビル7階)

まえがき

我が国の原子力発電所は、冷却水として大量の海水を利用することから、すべて海に面した場所に立地している。世界屈指の魚食国である我が国では、原子力と漁業の共存のために漁場環境の安全を担保することが必須の課題となっている。この一環として1983（昭和58）年度より科学技術庁（当時）の海洋環境における放射能調査及び総合評価事業（以後、「評価事業」とする）が開始され、公益財団法人海洋生物環境研究所（以後、「海生研」とする）は科学技術庁の委託を受けて当初より本評価事業に参画し、国の指針である「環境放射線モニタリング指針」（原子力安全委員会、2008）に沿って現在まで継続した調査を行ってきた。調査の内容としては、全国の原子力発電所を対象に、その前面海域において海水、海底土及び海産生物に含まれる人工放射性核種のうち、比較的半減期の長い放射性ストロンチウム（ ^{90}Sr 、海水のみ）及び放射性セシウム（ ^{137}Cs ）を軸に長期的な定点観測を行い、原子力施設からの異常放出のないことを実証することが主体となっている。また、平成3年度からは青森県六ヶ所村に建設が進む使用済み核燃料再処理施設の本格稼働を前に、トリチウム（ ^3H ）とプルトニウム（ $^{239+240}\text{Pu}$ ）を対象核種に加えた調査体制をとることになり、その結果を蓄積してきた（Oikawa *et. al.*, 2011）。

2011（平成23）年3月、東京電力福島第一原子力発電所事故の発生を契機に文部科学省による福島県沖合海域の重点的な海洋放射能調査（文部科学省、2011）に海生研も参画することとなり、上述の全国調査とは別に宮城、福島及び茨城県沖合での海水及び海底土に含まれる ^{134}Cs と ^{137}Cs を中心にモニタリング調査を実施し、この結果は速やかに文部科学省（2013（平成25）年4月に原子力規制委員会原子力規制庁に移管）から公表されてきた。

本稿は、海生研がこれまで展開してきた評価事業について高田・鈴木（2003）や及川ら（2013）の報告を交え、長期的推移の視点から俯瞰して取りまとめたものである。

なお、本稿に記載された内容のうち、海水に含まれる ^{90}Sr と ^{137}Cs 及び海底土に含まれる ^{137}Cs の調査結果を中心に、チェルノブイリ原子力発電所事故以前から先の福島第一原子力発電所事故以降の2011（平成23）年度までに得られた一連の調査結

果の一部は及川ら（2013）によりすでに公表されているので、本稿では2012（平成24）年度の調査結果を加えたものとした。また、福島県沖合海域を対象に実施した緊急的なモニタリング調査結果の一部についてもOikawa *et. al.*（2013）やKusakabe *et. al.*（2013）がすでに公表しているので、本稿ではこれに2012（平成24）年度の調査結果を加えたものとした。

方 法

調査対象海域と測点 本評価事業で海生研が実施している海洋放射能調査の対象海域は、北海道から鹿児島に至る原子力発電所等の沖合20～30kmの全15海域であり、各海域に原子力発電所を中心とした4測点を設け定点観測の体制を整えた（第1図参照）。なお、福島第一原子力発電所事故を受けて福島県沖合海域で実施したモニタリングの測点については、まとめて後述する。

試料に含まれる放射性核種の分析法は、試料採取の方法や前処理方法を含め、JIS等のいわゆる公定法が存在せず、文部科学省により作成された放射能測定法シリーズ（全34集）（文部科学省、1976～2008）が事実上公的な方法として認知されている。本評価事業においてもこのシリーズに準拠した方法を用い、継続的に調査を行ってきた。



第1図 海洋放射能調査で対象としている原子力発電所等周辺海域。

評価事業における海水試料の採取 調査対象海域の各測点で、年一回、春期（4～6月）に100～200 Lの海水をバンドン型大型採水器で採取した。なお、採水は表層及び下層で採水した。下層については海底面からおよそ10 m上で採水したものを下層海水とした。採取した海水は6M塩酸を20 Lの海水に対して40 mL添加して塩酸酸性とし、分析開始まで適切に保管管理を行った。なお、海水採取の際には、塩分、水温、圧力（深度）などを継続的に観測できるCTD（Conductivity Temperature Depth profiler）等の観測機器を装着し、そのデータを解析・監視することで適切な採水が行われたことを検証した。

評価事業における海底土試料の採取 調査対象海域の各測点で、年一回、春期（4～6月）に湿重量で約2.5 kgの海底土（表層3cm）を大型エクマンバー型採泥器（Ekman-Birge bottom sampler）やボックスコーラー等で採取した。具体的には、表層を乱すことなく30 cm四方程度のステンレス製ボックスに採取した海底土試料に、プラスチック製の筒を試料表層部から押し込んで柱状試料として分取したのち、表層から3 cmまでの海底土を切り出して目的とする試料を得た。採取した海底土は、採取直後に目視により泥色や泥質判定を行い、船上でそのまま冷凍保管とした。冷凍保管した海底土試料は実験室に持ち帰り、常温で自然解凍させたのち、熱風乾燥機等により105℃で一昼夜以上乾燥させた。その後、土塊を摩砕・ふるい分けを行い、砂質の場合はそのまま、泥質の場合は微粉碎したものを試料とした。

^{90}Sr 及び ^{137}Cs の放射化学分析 海水試料及び海底土試料に含まれる ^{90}Sr 及び ^{137}Cs は先の文部科学省放射能測定法シリーズのうち、 ^{90}Sr については「放射性ストロンチウム分析法」（文部科学省、2003）、 ^{137}Cs については「放射性セシウム分析法」（文部科学省、1976）に従い分析を行った。

海水試料を50L分取し、酸性条件下で一定量のセシウム担体を添加したのち、リンモリブデン酸アンモニウム（ $(\text{NH}_4)_3\cdot\text{PO}_3\cdot 12\text{MoO}_3\cdot x\text{H}_2\text{O}$; ammonium phosphomolybdate; AMP）を用いたバッチ法で吸着捕集した（この際の上澄みは ^{90}Sr 分析に供する）。次いでAMPを少量の6M水酸化ナトリウム溶液に溶解させたのち、塩酸酸性とし、陽イオン交換樹脂カラム法でセシウムを分離・精製した。精

製したセシウムを含む試料溶液に塩化白金酸溶液を加え、ヘキサクロロ白金酸（IV）塩のうち、とりわけ溶解度の小さい塩化白金酸セシウム（ $\text{Cs}_2[\text{PtCl}_6]$ ）として沈殿させた。この沈殿をろ紙上に回収し、一定形状として測定用線源とし、これに含まれる ^{137}Cs を低バックグラウンドベータ線測定装置（low background beta counter; Aloka LBC-471Q等）で定量した。なお、2011（平成23）年3月に発生した東京電力福島第一原子力発電所事故により環境に付加された ^{134}Cs の影響が無視できないため（後述の「ガンマ線スペクトロメトリー」を参照）、2011（平成23）年度の海水試料の分析結果に限り合算値「 ^{137}Cs （+ ^{134}Cs ）」として扱った。また、2012（平成24）年度からはベータ線測定に代わり、セシウムを吸着させたAMPを化学分離せずに一定形状としてガンマ線スペクトロメトリーで直接 ^{137}Cs を定量した。

一方、AMPでセシウムを吸着捕集した際の上澄みに含まれるストロンチウムは、陽イオン交換樹脂カラム法による予備濃縮を行ったのち、沈殿分離法及び陽イオン交換樹脂カラム法でストロンチウムを精製した。精製したストロンチウムを含む溶液に一定量の鉄担体を添加し、アンモニア水を加えて水酸化鉄（III）沈殿に ^{90}Y を共沈分離させた。この上澄み溶液を塩酸酸性として約2週間放置させ、 ^{90}Sr - ^{90}Y の放射平衡に達成させたあと、再度、鉄担体を添加させ、アンモニア水を加えて水酸化鉄（III）沈殿に ^{90}Y を共沈させた。この沈殿をろ紙上にマウントし、低バックグラウンドベータ線測定装置（Aloka LBC-481Q等）で ^{90}Y を定量した。ここで定量した ^{90}Y は既知時間で ^{90}Sr から生長した ^{90}Y であり、放射平衡の理論式から逆算して海水試料に含まれる ^{90}Sr の定量値とした。

なお、得られた ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の定量値は減衰補正し、試料採取日の放射能濃度としている。また、これら放射化学分析での定量下限値は、海水試料のうち、 ^{90}Sr について3,600秒測定で約0.4 mBq/L、 ^{137}Cs について5,400秒測定で約0.5 mBq/Lである。なお、放射化学分析に関する解説は及川（2012）や及川ら（2013）によって取りまとめられているので、併せて参照していただきたい。

ガンマ線スペクトロメトリー 海水試料のうち、一部（各海域の測点1（表層））については、1986（昭和61）年4月に起こったチェルノブイリ原子力発電所事故を契機に、前述のベータ線測定による

^{137}Cs 放射化学分析では ^{134}Cs が存在した場合にベータ線の弁別ができないことなどから正確な定量値が得られないことを考え、セシウムを分離精製して得た塩化白金酸セシウムを井戸型ゲルマニウム半導体検出器（検出器が凹状になっている中に試料を入れる）で測定して ^{137}Cs を定量した。

一方、海底土に含まれる ^{137}Cs は、海底土試料をプラスチック製容器に分取・定容し、文部科学省放射能測定法シリーズのうち「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー」（文部科学省、1992）の方法に従い、同軸型ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリーで定量した。

ゲルマニウム半導体検出器による ^{137}Cs の定量下限値は、7万秒～14万秒測定で、海水試料の場合で約0.7 mBq/L、海底土試料の場合で約0.9 Bq/kg-乾燥土（以下、「Bq/kg-dry」）である。

福島県沖合海域でのモニタリング調査 福島第一原子力発電所事故後、海生研は文部科学省の指示を受け、宮城、福島及び茨城県沖合の周辺海域での海洋放射能調査を開始する運びとなり、福島第一原子力発電所沖合30 km圏外周付近（第2図B）での表層海水を対象とした調査から、順次調査対象海域や層を拡大・拡充し、2013（平成25）年度の時点において東日本太平洋沖の広い範囲を対象としている（第2図C）（及川ら、2011；日下部、2012；高田ら、2013；Oikawa *et. al.*, 2013；Kusakabe *et. al.*, 2013）。これら定点において、

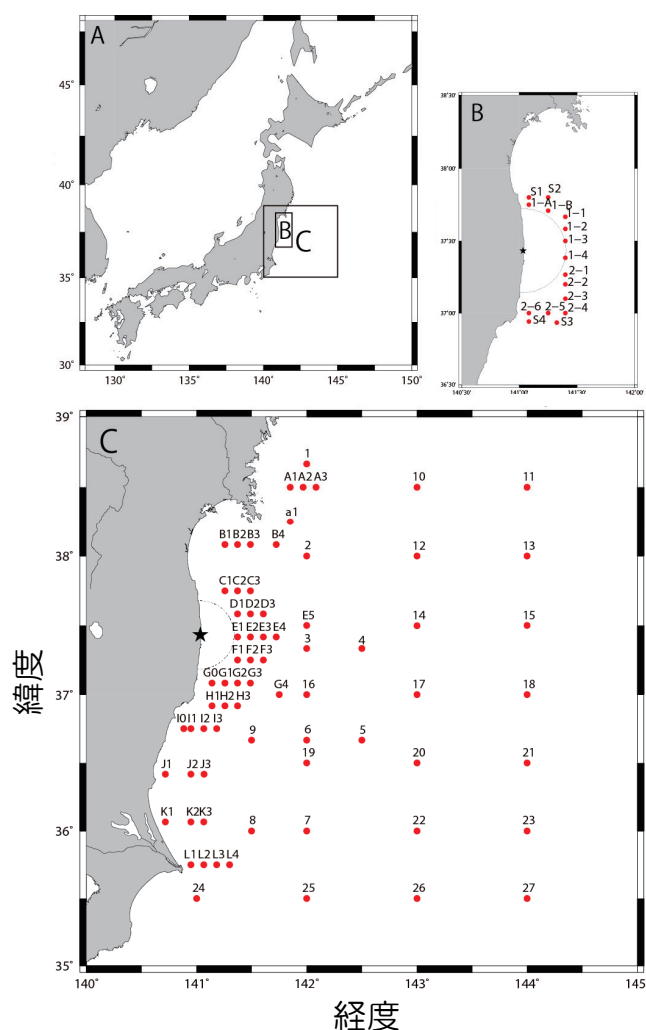
- ・原則毎日（2011（平成23）年3月23日～3月末）（第2図B参照）
- ・原則2～3日おきに1回程度（2011（平成23）年4月～5月7日）（第2図B参照）
- ・原則月2回（2011（平成23）年5月9日～7月末）（第2図C参照（ただし、単に数字だけの測点（主に東経142°～144°に属する測点）は除く））
- ・原則月1回（2011（平成23）年7月以降）（第2図C参照）
- ・年4回（2011（平成24）年度以降）（第2図C参照（ただし、単に数字だけの測点（主に東経142°～144°に属する測点）は年2回））

の調査実施体制を整え、海水及び海底土の採取を行ってきた（試料採取日時の詳細はOikawa *et. al.*, 2013のSupplementを参照）。

結果と考察

海水に含まれる ^{137}Cs の放射化学分析に関する留意事項

本評価事業開始以来、海水に含まれる ^{137}Cs を定量するにあたり、化学分離・精製後、塩化白金酸セシウムとして測定用試料を調製し、より低い濃度レベルまで定量できるベータ線測定法を適用してきた。しかしながら、福島第一原子力発電所の事故で核分裂生成物の一つとして多量の ^{137}Cs が放出されると同時に、ほぼ同量の放射エネルギーに達する放射化生成物の ^{134}Cs （半減期2年）も放出された（Aoyama *et. al.*, 2012；Buesseler *et. al.*, 2012；Oikawa *et. al.*, 2013）。前述の通り、ベータ線測定による方法では ^{134}Cs と ^{137}Cs を区別できないため、 ^{137}Cs を定量した2011（平成23）年度の結果に



第2図 福島県沖合海域でのモニタリング調査対象点（A：日本周辺海域，B：福島第一原子力発電所事故直後の測点，C：平成25年10月現在の対象測点）（Oikawa *et. al.*, 2013を参照）。

については、 ^{137}Cs ($+^{134}\text{Cs}$) として区別している。ただし、ベータ線測定装置の「 ^{137}Cs の測定効率」で ^{134}Cs を定量した場合、およそ85%の効率になるため、若干の過小評価になる場合もあると考えたが、計数誤差を考慮した場合、ほとんど無視できることを確認している。また、ガンマ線スペクトロメトリーによる ^{134}Cs 定量の際には、壊変の際に ^{134}Cs から複数本の異なるガンマ線が放出されることにより、サム効果 (cascade summing effect) が起こり、本来計数すべきカウントよりも少なく結果が得られる場合がある (Inoue *et. al.*, 2012) ので、 ^{134}Cs の定量を必要とする場合には、その補正をした (本評価事業では ^{134}Cs は対象外核種であるが、分析測定を行う上では、その存在を無視できない)。

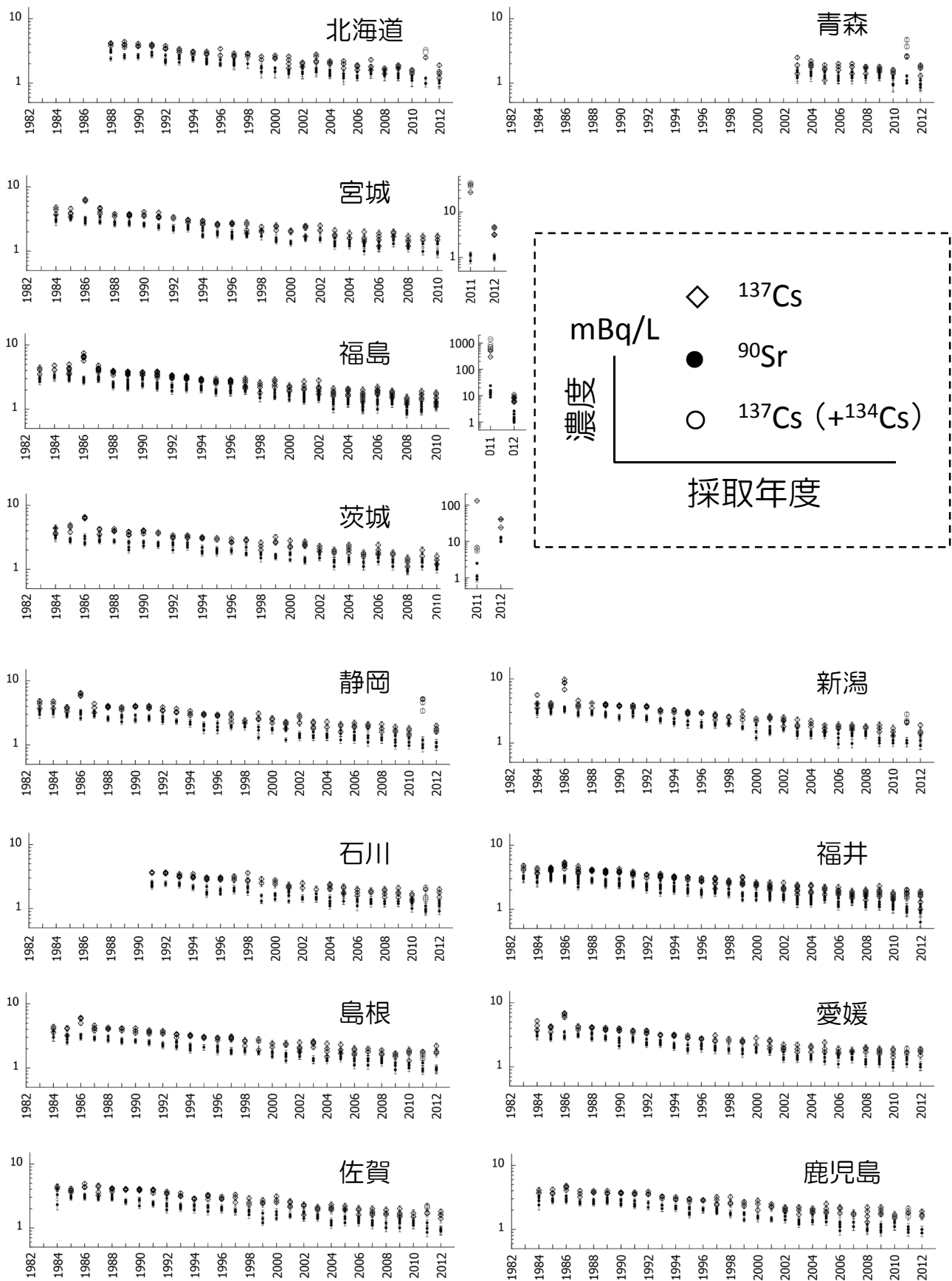
海水中 ^{90}Sr 及び ^{137}Cs 濃度の長期変遷 本評価事業を開始した1983 (昭和58) 年度から2012 (平成24) 年度までの調査結果のうち、表層海水に含まれる ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の経年変化を第3図に示した。表層海水の ^{90}Sr 濃度及び ^{137}Cs 濃度は、本評価事業を開始した1983 (昭和58) 年度より継続して検出されており、全海域を通して ^{137}Cs 濃度は ^{90}Sr 濃度よりも若干高い傾向で、いずれも減少傾向にあった。これらは、1945 (昭和20) 年以降に北半球を中心に盛んに実施された大気圏核爆発実験に起因するもので、UNSCEARのとりまとめ (UNSCEAR, 2000) によると、大気中に放出された ^{90}Sr の量は622 PBq (P (ペタ) は 10^{15})、 ^{137}Cs の量は948 PBqに達するとされ、 ^{137}Cs のほうが多い。いずれの海域においても同じような傾向 ($^{137}\text{Cs} > ^{90}\text{Sr}$) や濃度レベルにあることは、大気圏核爆発実験が禁止されてから時間経過とともに北太平洋において2000年代までにほぼ均一に拡散されたこと (廣瀬, 2011) を反映している。1986 (昭和61) 年4月に起こったチェルノブイリ原子力発電所事故の影響を受けて一時的に表層海水に含まれる ^{137}Cs 濃度の上昇が確認された海域が多くあった。これらについて、ベータ線計測による方法だったために ^{134}Cs の存在を確認できないが、その翌年には元の ^{137}Cs 濃度レベルに戻っていることを確認できた。本評価事業を開始して以来、チェルノブイリ原子力発電所事故の影響を受けた一部結果を除き、 ^{90}Sr と ^{137}Cs の濃度レベルや漸減傾向は各海域で大きな差は認められず、全国的にほぼ同じで、2010 (平成22) 年度までの結果については、過去数年1~2

mBq/L程度の濃度レベルで推移していた。海水に含まれる ^{90}Sr と ^{137}Cs の濃度の変遷について、対数近似式を当てはめて見かけの半減期を求めると、 ^{90}Sr や ^{137}Cs の物理的半減期よりも短い12~20年という結果が得られた (及川ら, 2013)。これは、放射性核種自身の物理壊変で減少する分に加え、海水の移流や拡散、あるいは生物・非生物起源の粒子による除去などに起因していると考えられる。

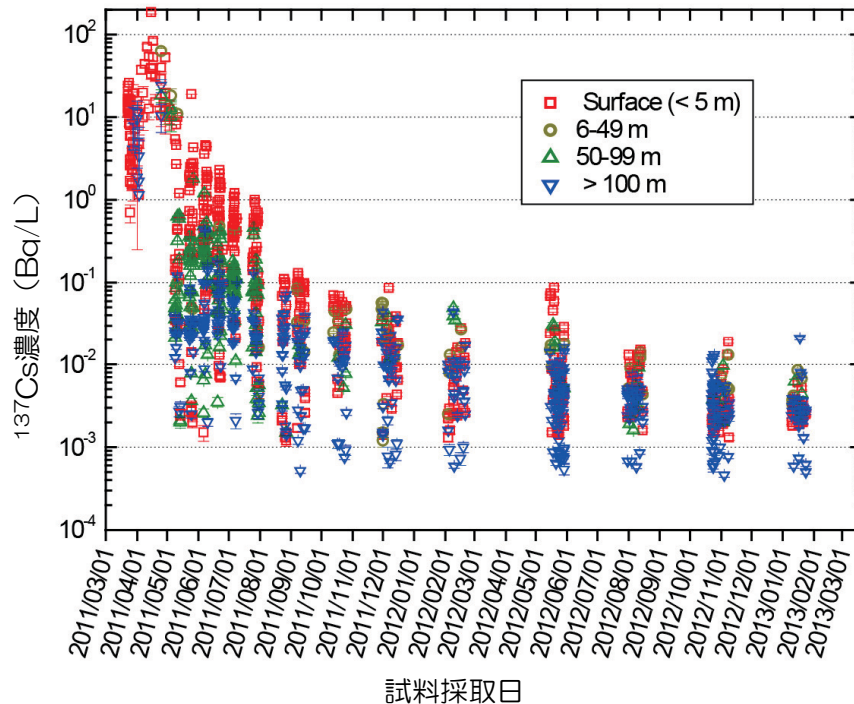
各海域においての各論は及川ら (2013) により取りまとめられているので併せて参照いただきたいが、特に福島第一原子力発電所に近い宮城及び福島海域では、 ^{137}Cs 濃度についてチェルノブイリ原子力発電所事故の影響を明確に確認できると同時に、2011 (平成23) 年度の結果においても福島第一原子力発電所事故の影響によるものと考えられる ^{137}Cs ($+^{134}\text{Cs}$) 濃度の大幅な上昇が確認された。

福島県沖合海域調査で得た福島第一原子力発電所事故以降の海水中 ^{137}Cs 濃度の推移 2011 (平成23) 年3月から実施した福島県沖合海域を中心とする緊急的モニタリング調査の結果のうち、海水の結果についてはすでに一部についてOikawa *et. al.* (2013) によりまとめられている。その概略は次の通りである。2011 (平成23) 年3月末の海への汚染水直接漏えいの後、2011 (平成23) 年4月上旬には福島第一原子力発電所沖合30 km圏付近の測点において、 ^{137}Cs は最大190 Bq/L程度まで増加した (第4図)。その後、 ^{137}Cs は指数関数的に減少し、事故から約2年経過後において、その濃度レベルは事故以前のものに戻りつつあるが、一部の海域では未だ高いところもある (及川ら, 2013)。また、半減期の短い ^{134}Cs もいまだ検出されており、これら $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放射能比を事故当初に逆算 (放射能を半減期補正すること) してみると、事故当初の放射能比 ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$) がほぼ1であったこと (Aoyama *et. al.*, 2012 ; Buesseler *et. al.*, 2012 ; Oikawa *et. al.*, 2013) に矛盾しない結果になっている。事故後1ヶ月半が経過した2011 (平成23) 年5月上旬に宮城、福島及び茨城県沖合で実施した調査において、表層以深 (深度5mから海底直上付近) での海水に含まれる ^{137}Cs 濃度は2.0 mBq/Lから11 Bq/Lの範囲にあり、全ての観測点における平均値は約47 mBq/Lであった。同5月下旬の調査で得られた平均値は60 mBq/L、同6月上旬の調査では平均値が95 mBq/Lになり、一月

及川ら：日本周辺海域の ^{90}Sr と ^{137}Cs 濃度の長期的推移



第3図 海域別の表層水中の ^{90}Sr 、 ^{137}Cs および ^{137}Cs (+ ^{134}Cs) 濃度の経年変化 (対象測点は第1図参照) (1983年度 (昭和58年度) から2012年度 (平成24年度) までの結果)。(及川ら (2013) の結果に2012年度の結果を追記してある)。



第4図 福島県沖合海域でのモニタリング調査対象定点で得られた海水中の ^{137}Cs 濃度の経時変化（対象点は第2図参照）（2011年（平成23年）3月～2013年（平成25年）3月までの結果）。(Oikawa *et. al.* (2013) に文部科学省公表値を追記してある)。

の間に2倍程度に達した。とりわけ、同6月に実施した調査では、福島第一原子力発電所から半径30 km圏に近い測点（D1, E1及びF1）での深度50m及び100 mにおいて、表層とほぼ同じ濃度（約0.4 Bq/L）までに達している（Oikawa *et. al.*, 2013）。

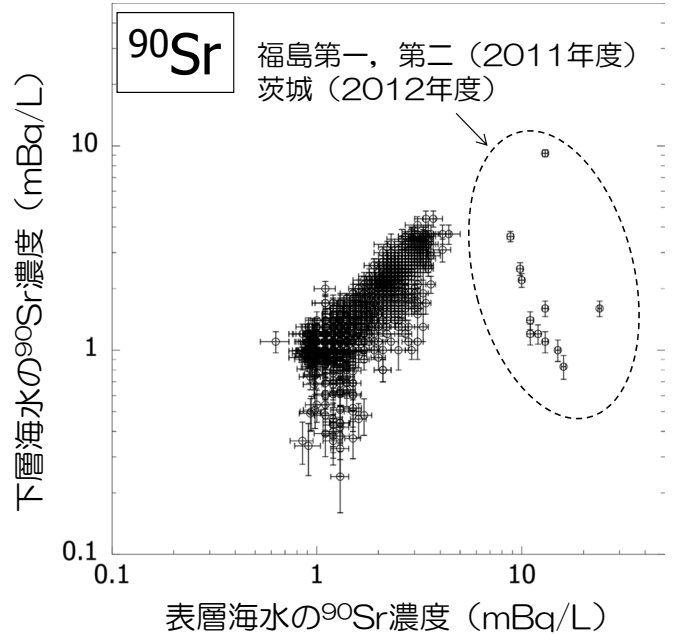
福島県沖合及び隣接する沖合海域の水塊構造は、黒潮、親潮及び津軽暖流等が混じり合うなど複雑で、季節変化も大きい（Hanawa and Mitsudera, 1987）。表層海水に含まれる ^{137}Cs 濃度は2011（平成23）年5月から6月までは複雑に変化し、宮城県・仙台湾から福島県沖合にかけて1～10 Bq/Lと高い値を維持していたが、福島県の小名浜沖よりも南に位置する茨城県沖合においては0.1 Bq/L程度であった（Oikawa *et. al.*, 2013）。これは、この時期の海流も関与すると思われるが、この海域では比較的海水温が高く、塩分も高い暖水塊が存在しており（Aoyama *et. al.*, 2012）、高い ^{137}Cs 濃度の海水が小名浜沖から南方への海域へ拡散・移流することを妨げていたと考えられる（Oikawa *et. al.*, 2013）。2011（平成23）年6月以降、この暖水塊が茨城県沖合から次第に無くなり、高い ^{137}Cs 濃度を持つ海水が徐々に南方海域へ拡散していた（高田ら, 2013）。その理由は低い放射性セシウム濃度

の外洋海水との混合や、移流によるものと考えられる。一方、2011（平成23）年9月～12月において、茨城県の近傍海域や宮城県の仙台湾内では頻度は少ないものの、数十～数百mBq/Lの比較的高い ^{137}Cs 濃度が観測された。これは、茨城県の近傍海域においては、塩分が32 psuよりも低い値を持つ測点があることから、要因のひとつとして陸域由来の ^{137}Cs を含む河川水が海洋に流入していることが挙げられる（Nagao *et. al.*, 2013）。2011（平成23）年3月の直接漏えいの影響が減少した6月以降でも、宮城県の仙台湾内や茨城県沖合近傍の海域において高い ^{137}Cs 濃度レベルが観測されたことは、河川や断続的に続く福島第一原子力発電所からの管理下でない汚染された海水の流出などが少なからず影響している可能性がある。事故以前での海域調査では、海水中の ^{137}Cs 濃度は1～1.5 mBq/L程度（及川ら, 2013）であったことを考えると、事故後数ヶ月の短い期間で ^{137}Cs が表層から深い層へと移動していることが明らかにされた。

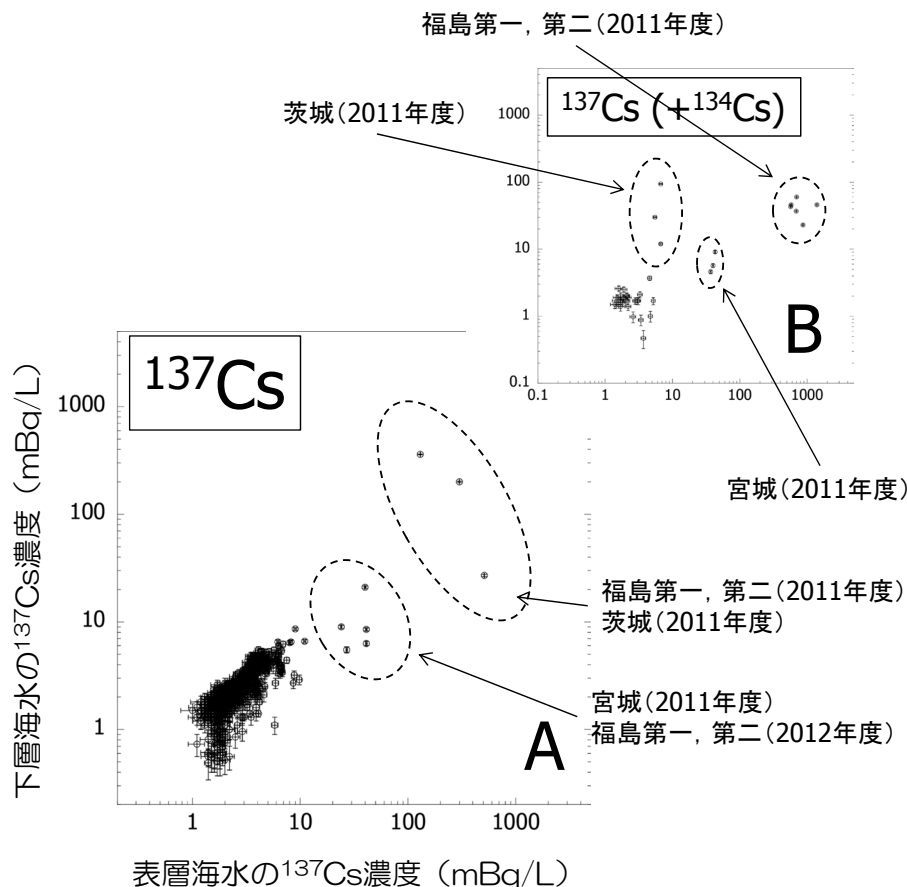
福島県沖合及び隣接する海域において、2012（平成24）年5月～2013（平成25）年1月までの調査で、表層海水に含まれる ^{137}Cs 濃度は福島第一原子力発電所から比較的遠方に位置する測点では事故以前

の水準になっているところがある一方で、比較的高い $0.01\sim 0.1\text{ Bq/L}$ 付近の値が検出されているなど事故以前の水準に戻っていない測点もある。また東日本はもとより、日本海においても ^{134}Cs が見出されている (Inoue *et. al.*, 2013)。今後、河川を通じた陸域からの流入や海底堆積物からの再懸濁等の様々な移行経路を把握することも含め、継続的な調査・監視を行う必要があると考えられる。

海水中の ^{90}Sr 及び ^{137}Cs 濃度の関係 1983 (昭和58) 年度から2012 (平成24) 年度までの調査で得られた ^{90}Sr と ^{137}Cs のデータのうち、 ^{90}Sr について表層と下層の放射能濃度比を第5図に示した。福島第一原子力発電所事故以前までは、表層及び下層水に含まれる ^{90}Sr は同程度であったのに対し、この事故以降、表層水で10倍程度の高い濃度を観測するなど過去の傾向と異なる結果が福島海域及び茨城海域で見られた。これは ^{90}Sr がGlobal Fallout由来のものに加え、福島第一原子力発電所事故で漏洩した高濃度の ^{90}Sr を含む汚染水によるものが表層



第5図 表層水及び下層水に含まれる ^{90}Sr の放射能濃度比 (対象点は第1図参照) (1983年度 (昭和58年度) から2012年度 (平成24年度) までの結果)。(及川ら (2013) の結果に2012年度の結果を追記してある)。



第6図 表層水及び下層水に含まれる ^{137}Cs の放射能濃度比 (対象測点は第1図参照) (1983年度 (昭和58年度) から2012年度 (平成24年度) までの結果)。(A : ^{137}Cs の結果, B : ^{137}Cs (+ ^{134}Cs) で平成23年度までの結果) (及川ら (2013) の結果に2012年度の結果を追記してある)。

から加わったためとみられる。

一方、 ^{137}Cs の場合についても、これまでの調査結果では表層と下層ではほぼ同じ濃度であったが、事故後に宮城、福島及び茨城海域で採取した表層海水で過去の傾向と異なる結果が得られた（第6図A）。2011（平成23）年度に限っては「 ^{137}Cs （+ ^{134}Cs ）」濃度としたので、その関係を第6図Bに示した。とりわけ、茨城海域の結果は唯一表層と下層の濃度関係が逆転（下層のほうが高い）した結果が得られた。同時期の様子についてAoyama *et. al.* (2012) も指摘しているように、北方からの南下流と黒潮とその支流による渦流など複雑な海流があることや、広く黒潮系水に覆われていること、南下してきた汚染水を含む海水が黒潮系水の下に潜ることなど、異なる水塊が混じることにより起因して、上下層の逆転が生じたと考えられる。

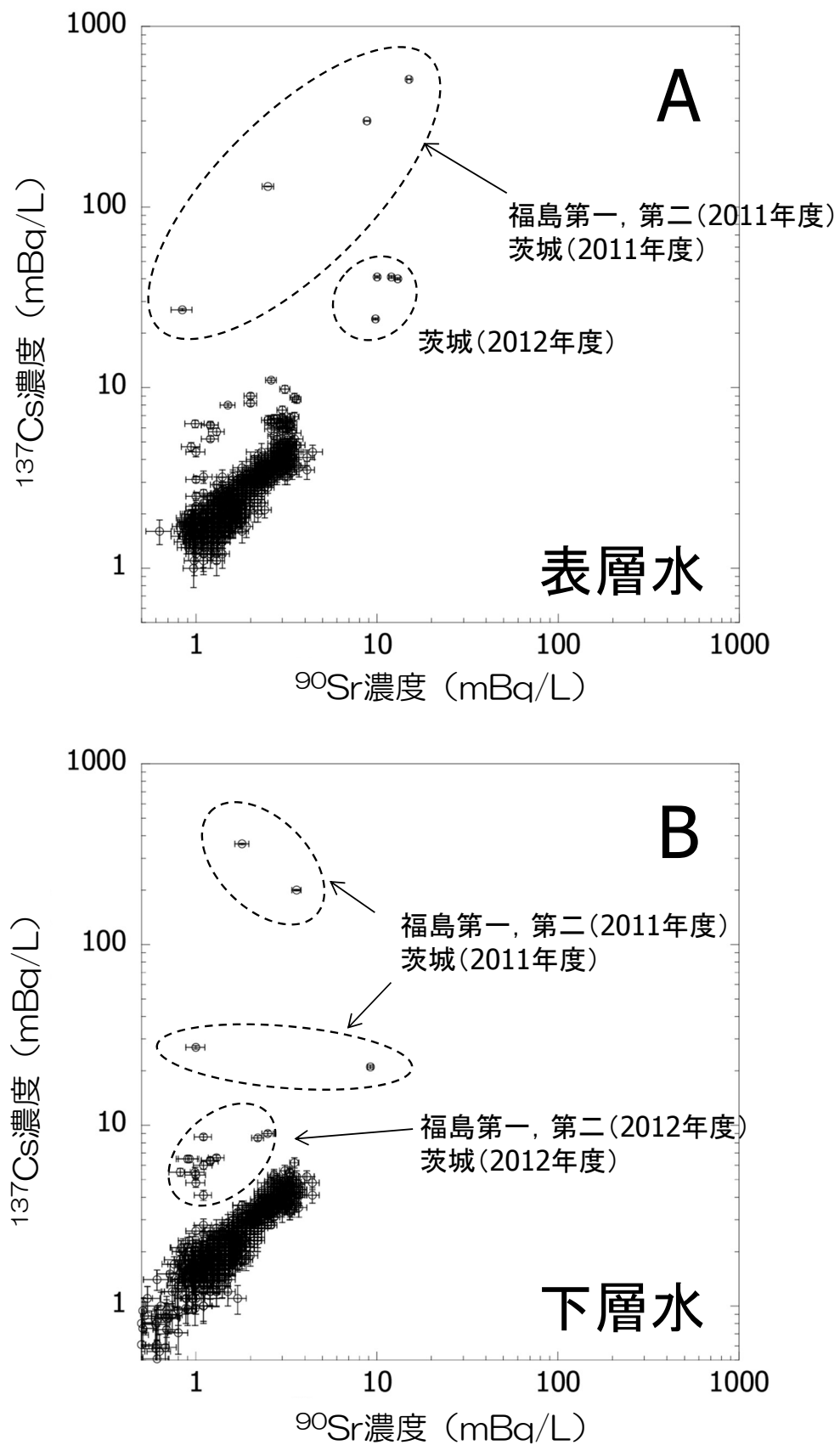
表層水に含まれる ^{90}Sr と ^{137}Cs （「 ^{137}Cs （+ ^{134}Cs ）」も含む）の放射能濃度比を第7図Aに、同じく下層水で得られた放射能濃度比を第7図Bに示した。両者ともに福島第一原子力発電所事故以前まではほぼ一定であったことが読み取れる。しかしながら、表層水において過去の結果と比較して大きく異なる点が数か所（福島第一、第二（2011（平成23）年）及び茨城（2011（平成23）年、2012（平成24）年））あり、事故直後に多量の ^{137}Cs が大気経由で付加されたことや、汚染水の直接漏洩による ^{90}Sr の影響も顕著に見られた。これは主に大気経由で拡散したと考えられる放射性セシウム（核分裂で生成した不安定な放射性Te、I及びXeなどの原子核が短時間で壊変し、 ^{55}Cs 原子核が生成する）と汚染水の漏洩によって放出した ^{90}Sr では、大気由来の ^{137}Cs 量が明らかに多く、事故直後の2011（平成23）年度に採取した福島及び茨城海域の表層水においては ^{137}Cs の方が高くなったと考えられる。一方、事故直後の2011（平成23）年度に福島及び茨城海域で採取した下層水においても ^{137}Cs のみが高い結果であったが、その1年後の2012（平成24）年度に採取した下層水では、事故以前の濃度レベル近くまで下がっていた。

福島第一原子力発電所事故で海洋環境に多くの放射性核種が付加され、その種類や量についての推定も多くの研究者によってなされてきた。例えばTsumune *et. al.* (2012, 2013) の試算では ^{137}Cs として $3.5 \pm 0.7 \text{ PBq}$ （Pは 10^{15} ）の放出があったとされる。今回の福島第一原子力発電所事故に起因する多量の放射性セシウムは事故当初には短期間

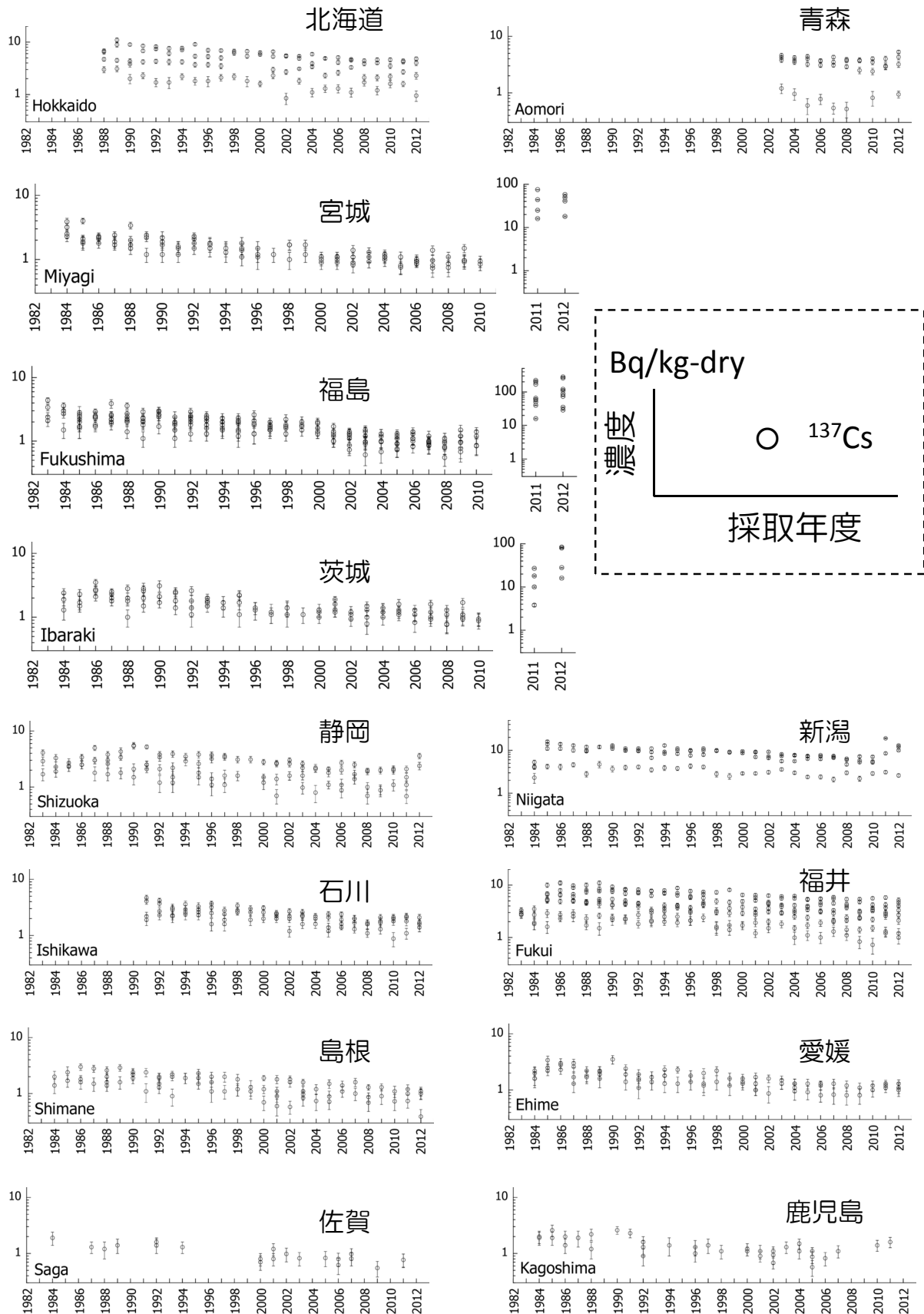
に大気経由で広範囲に、さらに汚染水の直接漏洩により局所的汚染を与え（Oikawa *et. al.*, 2013）、その後も漏洩は終息していないようである（Kanda, 2013）。福島県沖合海域は黒潮、親潮、沿岸に沿った南方への流れなどが季節的に変化する複雑な海域であるため、コンピュータによる海流拡散シミュレーション（Masumoto *et. al.*, 2012；Nakano and Povinec, 2012；Tsumune *et. al.*, 2012）とともに、海域における継続した調査は、今後も欠かすことはできないであろう。

評価事業で得た海底土中 ^{137}Cs 濃度の長期変遷 本評価事業を開始した1983（昭和58）年度から2012（平成24）年度までの調査結果のうち、海底土中の ^{137}Cs の経年変化を第8図に示した。海底土中の ^{137}Cs 濃度は、海水中の ^{137}Cs 濃度が全国ほぼ一定水準にあるのに対し、海域毎に異なっている。この濃度差は、海底土の性状により異なる傾向があり、泥質で高く、砂質で低くなる。本評価事業で対象とする海域のうち、水深の深い北海道、新潟及び福井海域の測点では泥や細砂混じりの泥の場合が多く、その他の海域では砂質あるいは泥混じりの細砂が多いことに対応して ^{137}Cs 濃度も変化している。海底土に含まれる ^{137}Cs は泥質が優占した深い測点でより高い濃度が観測されている。また、海底土に含まれる ^{137}Cs は、海水の場合とは異なり、同じ採取年度であっても、同一海域内の4測点間のばらつきが大きいことや、場所（砂質の場合）によっては検出されないことも多々あったが、全国の海域の結果を通してみると、いずれも漸減傾向がみられた。また、一部海域の表層海水に見られたチェルノブイリ原子力発電所事故に起因すると考えられる ^{137}Cs の顕著な上昇はいずれの海域でも確認されていない。

各海域においての各論は及川ら（2013）により取りまとめられているので併せて参照いただきたいが、特に福島第一原子力発電所に近い宮城、福島及び茨城海域では2011（平成23）年度の結果において、過去の変動範囲を外れ、福島海域においてはおよそ200倍相当の220 Bq/kg-dryに達する値を観測するなど、福島第一原子力発電所事故の影響によるものと考えられる ^{137}Cs 濃度の大幅な上昇が観測された。また、その翌年である2012（平成24）年度の結果においても、福島海域において280 Bq/kg-dryの値を観測するなど元の水準に戻っていない。



第7図 海域別の表層水及び下層水に含まれる ^{90}Sr と ^{137}Cs の放射能濃度比（対象測点は第1図参照）（1983年度（昭和58年度）から2012年度（平成24年度）までの結果）。（A：表層水の結果，B：下層水の結果）（及川ら（2013）の結果に2012年度の結果を追記してある）。



第8図 海域別の海底土（表層3cm）中の ^{137}Cs 濃度の経年変化（対象測点は第1図参照）（1983年度（昭和58年度）から2012年度（平成24年度）までの結果）。（及川ら（2013）の結果に2012年度の結果を追記してある）。

福島第一原子力発電所事故以前までの結果において、海底土に含まれる¹³⁷Cs濃度の漸減傾向はどの海域においても海水の濃度に追従しているようである。この長期的な観測の結果を基に、福島沖合海域での¹³⁷Csの減少に関し、微分方程式を介した解析により4か月～16年（幾何平均値で2.22年）の半減期であることが計算された（Watabe *et. al.*, 2013）。

福島県沖合海域調査で得た福島第一原子力発電所事故以降の海底土中¹³⁷Cs濃度の推移 2011（平成23）年5月より採取を開始した（測点は第2図B参照）。その後、2ヶ月毎あるいは3ヶ月毎の継続的な調査を行ってきた。第9図に2011（平成23）年5月から2013（平成25）年1月までに得られた¹³⁷Cs濃度の水平分布とその時系列変化を示す。水平的には大きな濃度変化を示し、その濃度範囲は2～580 Bq/kg-dryで、事故前と比べると最大2桁の上昇を示した。比較的低い濃度を示したのは主に北側（宮城県の金華山沖）と南側（千葉県の銚子沖）の測点（A1, A3, L1及びL3）であるが、高い濃度を示した海域（測点）は必ずしも福島第一原子力発電所に近接している訳ではない。調査の初期段階（2011（平成23）年5月～7月）では、北側の測点（B1, C1及びD1）が比較的他の測点より高い濃度を示し、同時に測点J1においても高い濃度が観測された。2011（平成23）年9月以降は宮城県・仙台湾に位置する測点B3で特異的に高い濃度を観測した。

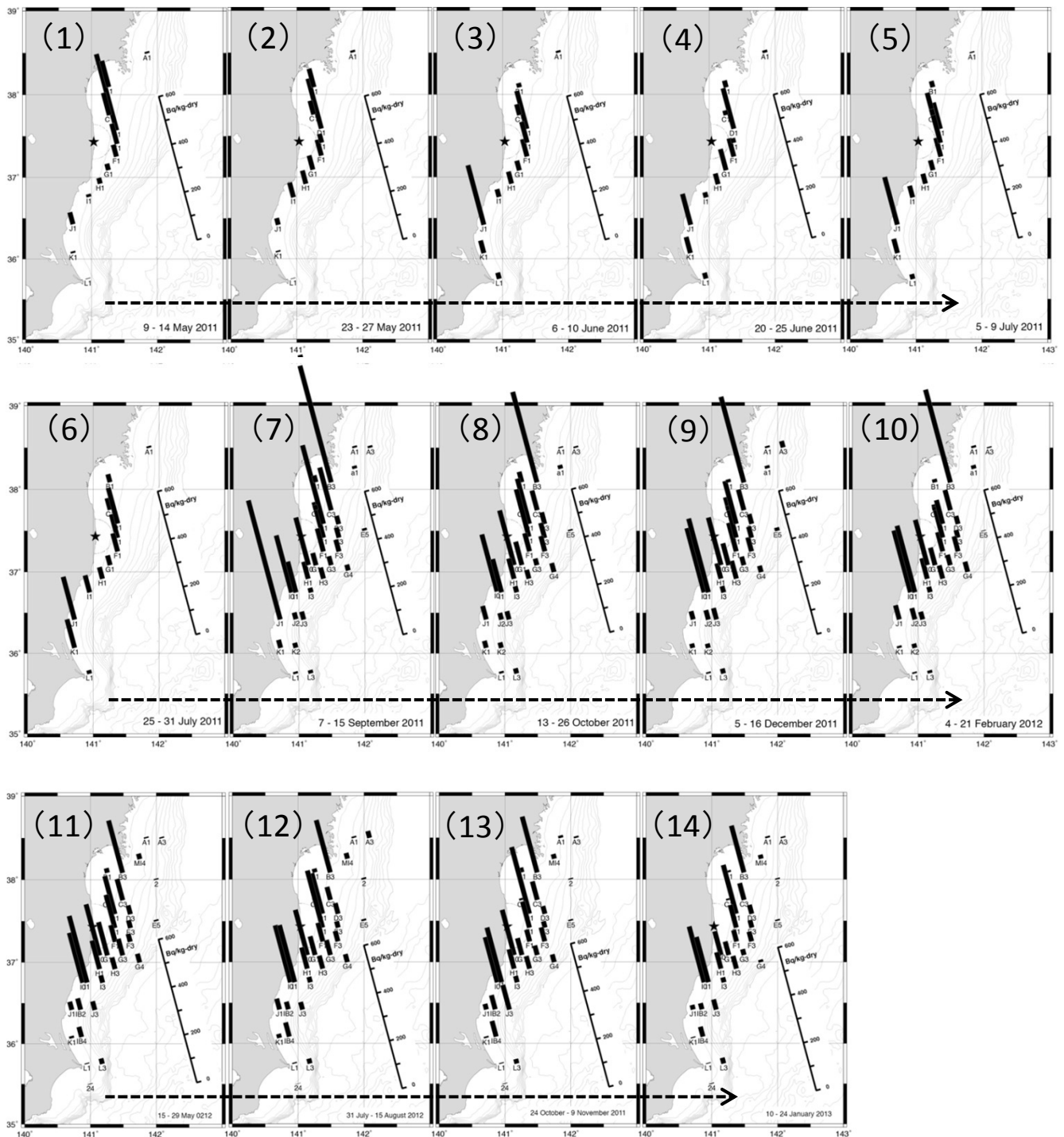
調査開始以降、宮城県沖から茨城県沖に位置するB3, D1, E1, G0, I0及びI1の測点で得られた海底土に含まれる¹³⁷Cs濃度はほぼ持続的に約200 Bq/kg-dryかまたはそれ以上の高濃度を維持していた。このうち、測点B3において際立った減少が確認された。これは海底に堆積した土壌粒子の水平移動又は生物攪乱（bioturbation）により¹³⁷Csが底泥堆積物の表層から下方への移動又はその両方に起因すると考えられる。また、水平的な¹³⁷Csの濃度分布は主に汚染水の移動経路と海底下の堆積物の性状に依存する、すなわち、有機物を多く含む又は粒径の小さい粘土鉱物に富む堆積物と高い¹³⁷Cs濃度の汚染水が接触することで、高い¹³⁷Cs濃度を示す堆積物が出現すると推定されている（Kusakabe *et. al.*, 2013 ; Otosaka and Kobayashi, 2013）。

現時点で調査海域に堆積しているであろう¹³⁷Cs

量を評価するため、表層3cmに存在する量（0.161 Bq/cm²）とその海域の面積（22,177 km²）から蓄積量（inventory）を計算したところ、2012年2月の段階でおよそ 3.8×10^{13} Bqと見積もられる（Kusakabe *et. al.*, 2013）。実際には、¹³⁷Csは堆積物の表層3 cmよりも深い位置にも存在し、また調査海域よりも外側（遠方）にすでに輸送された分も存在するため、この見積もりは過小評価と考えられる。事実、福島第一原子力発電所から汚染水の直接漏洩により海洋に付加された¹³⁷Cs量についてはいくつかの見積もりがあり、その量は $2 \times 10^{15} \sim 2.7 \times 10^{16}$ Bqになるとされる（Masumoto *et. al.*, 2012 ; Tsumune *et. al.*, 2012, 2013）。この量から、事故で放出された¹³⁷Csの全体量のうち、少なくとも0.1～2 %に相当する量が調査海域に堆積していると計算される（日下部, 2012 ; Kusakabe *et. al.*, 2013）。今後、堆積した放射性セシウムがどのようにふるまうのか、あるいはその移行挙動に関して、放射線防護の観点のみならず、漁場の安全を確保し、不要な風評被害を払しょくするためにも、今後も継続的な調査が必要不可欠であろう。

謝 辞

本稿に示したデータ等は文部科学省（旧 科学技術庁、現 原子力規制委員会原子力規制庁）からの委託業務「海洋環境における放射能調査及び総合評価」の成果の一部であり、文部科学省からホームページ等を通じて公表されている内容を一部含むものである。本評価事業を実施するにあたり、全国漁業協同組合連合会、各県漁業協同組合連合会及び地元漁業協同組合の方々には、本評価事業へのご理解とご協力を賜った。また、海水や海底土の試料採取に際しては、作業船舶運航関係者の方々並びに作業員の方々に多大なご協力を頂いた。データの取りまとめや放射能分析に関して公益財団法人海洋生物環境研究所諸氏ならびに公益財団法人日本分析センター、独立行政法人日本原子力研究開発機構、株式会社環境総合テクノス及び一般財団法人九州環境管理協会の協力を頂いた。本稿取りまとめに際し、公益財団法人海洋生物環境研究所 清野通康博士、土田修二博士、道津光生博士ならびに馬場将輔博士にご助言を頂いた。合わせて感謝申し上げる。



第9図 福島県沖合海域でのモニタリング調査対象定点で得られた海底土中の ^{137}Cs 濃度の経時変化（対象測点は第2図参照）（2011年（平成23年）5月～2013年（平成25年）1月まで（(1)～(14)の順で図式化）の結果）。(Kusakabe *et. al.* (2013) に文部科学省公表値を追記してある）。

引用文献

- Aoyama, M., Tsumune, D., Uematsu, M., Kondo, F. and Hamajima, Y. (2012). Temporal variation of ^{134}Cs and ^{137}Cs activities in surface water at stations along the coastline near the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident site, Japan. *Geochemical J.*, **46**, 321–325.
- Buesseler, K. O., Jayne, S. R., Fisher, N. S., Rypina, I. I., Baumann, H., Baumann, Z., Breier, C. F., Douglass, E. M., George, J., Macdonald, A. M., Miyamoto, H., Nishikawa, J., Pike, S. M. and Yoshida S. (2012). Fukushima-derived radionuclides in the ocean and biota off Japan. *PNAS*, **109**, 5984–5988.
- 原子力安全委員会 (2008). 環境放射線モニタリング指針 (平成20年3月), 1–75. <http://www.nsr.go.jp/archive/nsc/anzen/sonota/houkoku/houkoku20080327.pdf> (2013年11月時点)
- Hanawa, K. and Mitsudera, H. (1987). Variation of water system distribution in the Sanriku coastal area. *J. Oceanogr. Soc. Japan*, **42**, 435–446.
- 廣瀬勝己 (2011). 海洋の放射性物質の動態と計測. *ぶんせき (Bunseki)*, 2011年第8号, 446–450.
- Inoue, M., Kofuji, H., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Yoshida, K., Fujimoto, K., Takada, T. and Isoda, Y. (2012). Lateral variation of ^{134}Cs and ^{137}Cs concentrations in surface seawater in and around the Japan Sea after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.*, **109**, 45–51.
- Inoue, M., Kofuji, H., Oikawa, S., Murakami, T., Yamamoto, M., Nagao, S., Hamajima, Y. and Misonoo, J. (2013). Spatial variations of low levels of ^{134}Cs and ^{137}Cs in seawaters within the Sea of Japan after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Appl. Radiat. Isot.*, **81**, 340–343.
- Kanda, J. (2013). Continuing ^{137}Cs release to the sea from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant through 2012. *Biogeosciences*, **10**, 6107–6113.
- 日下部正志 (2012). 海洋における人工放射性核種の動態. *海洋と生物*, **200**, 217–230.
- Kusakabe, M., Oikawa, S., Takata, H. and Misonoo, J. (2013). Spatiotemporal distributions of Fukushima-derived radionuclides in nearby marine surface sediments. *Biogeosciences*, **10**, 5019–5030.
- Masumoto, Y., Miyazawa, Y., Tsumune, D., Tsubono, T., Kobayashi, T., Kawamura, H., Estournel, C., Marsaleix, P., Lanerolle, L., Mehra, A. and Garraffo, Z.D. (2012). Oceanic dispersion simulations of ^{137}Cs released from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Elements*, **8**, 207–212.
- 文部科学省 (1976–2008). 放射能測定法シリーズ (全34集). 文部科学省. 東京.
- 文部科学省 (1976). 放射能測定法シリーズ3, 放射性セシウム分析法, 昭和51年改訂. 文部科学省, 東京, 1–56.
- 文部科学省 (1992). 放射能測定法シリーズ7, ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー, 平成4年改訂. 文部科学省, 東京, 1–362.
- 文部科学省 (2003). 放射能測定法シリーズ2, 放射性ストロンチウム分析法, 平成15年改訂. 文部科学省, 東京, 1–161.
- 文部科学省 (2011). 海域モニタリング行動計画, 平成23年3月22日 プレスリリース. http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/8000/7810/24/204_20110322.pdf (2013年11月時点)
- Nagao, S., Kanamori, M., Ochiai, S., Tomihara, S., Fukushi, K. and Yamamoto, M. (2013). Export of ^{134}Cs and ^{137}Cs in the Fukushima river systems at heavy rains by Typhoon Roke in September 2011. *Biogeosciences*, **10**, 6215–6223.
- Nakano, M. and Povinec, P.P. (2012). Long-term simulations of the ^{137}Cs dispersion from the Fukushima accident in the world ocean. *J. Environ. Radioact.*, **111**, 109–115.
- 及川真司 (2012). 海洋環境試料の放射能分析. *海洋と生物*, **200**, 206–216.
- Oikawa, S., Takata, H., Watabe, T., Misonoo, J. and Kusakabe, M. (2013). Distribution of the Fukushima-derived radionuclides in seawater in the Pacific off the coast of Miyagi, Fukushima, and Ibaraki Prefectures, Japan. *Biogeosciences*, **10**, 5031–5047.
- Oikawa, S., Watabe, T., Inatomi, N., Isoyama, N., Misonoo, J., Suzuki, C., Nakahara, M.,

- Nakamura, R., Morizono, S., Fujii, S., Hara, T. and Kido, K. (2011). Plutonium isotopes concentration in seawater and bottom sediment off the Pacific coast of Aomori sea area during 1991–2005. *J. Environ. Radioact.*, **109**, 302–310.
- 及川真司・渡部輝久・日下部正志・中原元和・御園生 淳 (2011). 海洋環境放射能と生物影響. 海洋と生物, **194**, 262–272.
- 及川真司・渡部輝久・高田兵衛・鈴木千吉・中原元和・御園生 淳 (2013). 日本周辺の海水, 海底土, 海産生物に含まれる ^{90}Sr 及び ^{137}Cs 濃度の長期的推移～チェルノブイリ事故前から福島第一原子力発電所事故後まで～. 分析化学 (Bunseki Kagaku), **62**, 455–474.
- Otosaka, S. and Kobayashi, T. (2013). Sedimentation and remobilization of radiocesium in the coastal area of Ibaraki, 70 km south of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant. *Environ. Monit. Assess.*, **185**, 5419–5433.
- 高田兵衛・及川真司・渡部輝久・吉川貴志・御園生 淳・日下部正志 (2013). 福島県沖合を中心とした海洋放射能汚染の現状. 海洋と生物, **206**, 269–282.
- 高田和男・鈴木 譲 (2003). わが国の原子力発電所周辺海域における海産生物, 海底土および海水中 ^{137}Cs 濃度の長期傾向. 保健物理 (Hoken Butsuri), **38**, 128–139.
- Tsumune, D., Tsubono, T., Aoyama, M. and Hirose, K. (2012). Distribution of oceanic ^{137}Cs from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model. *J. Environ. Radioact.*, **111**, 100–108.
- Tsumune, D., Tsubono, T., Aoyama, M., Uematsu, M., Misumi, K., Maeda, Y., Yoshida, Y. and Hayami, H. (2013). One-year, regional-scale simulation of ^{137}Cs radioactivity in the ocean following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Biogeosciences*, **10**, 5601–5617.
- UNSCEAR 2000 report (2000). United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with scientific annexes. Annex C: Exposures to the public from man-made sources of radiation, 158–291. <http://www.unscear.org/docs/reports/annexc.pdf>
- Watabe, T., Oikawa, S., Isoyama, N., Suzuki, C., Misonoo, J. and Morizono, S. (2013). Spatiotemporal distribution of ^{137}Cs in the sea surrounding Japanese Islands in the decades before the disaster at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant in 2011. *Sci. Total Environ.*, **463–464**, 913–921.