

資 料

福島第一原子力発電所事故後3年間における
日本周辺の海水及び海底土中の¹³⁷Cs及び⁹⁰Sr濃度の推移

磯野良介^{*1§}・高田兵衛^{*1}・山田 裕^{*2}・稲富直彦^{*1}・渡部輝久^{*2}・
鈴木千吉^{*2}・御園生 淳^{*2}・森菌繁光^{*2}・日下部正志^{*1}

¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr Concentration Changes in Seawater and Bottom Sediments Collected from
2011 to 2013 around Japan after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident

Ryosuke S. Isono^{*1§}, Hyoe Takata^{*1}, Hiroshi Yamada^{*2},
Naohiko Inatomi^{*1}, Teruhisa Watabe^{*2}, Chiyoshi Suzuki^{*2}, Jun Misonoo^{*2},
Shigemitsu Morizono^{*2} and Masashi Kusakabe^{*1}

要約: 全国の原子力発電所沖合海域及び福島第一原子力発電所の周辺海域において、海水と海底土中の人工放射性核種の濃度調査を2013年度も継続して実施した。福島第一原発事故後、各海域における事故由来核種の濃度は経年的に減少した。事故後3年目の2013年において、海水と海底土中の¹³⁷Cs濃度が事故前の水準より一桁高い海域は、福島県沖を中心とする太平洋沿岸の海域であった。海水中の⁹⁰Srは事故前の数倍の濃度が、福島県及び茨城県沖で確認された。

キーワード: 海水, 海底土, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, 福島第一原子力発電所事故

Abstract: Marine Ecology Research Institute has been conducting monitoring of marine radioactivity in the coastal sea nearby all nuclear power stations around Japan since 1983 and in the waters off Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant (FNPP) in response to the FNPP accident since 2011. Concentration of radionuclides driven from the FNPP showed decline over time after the accident in each monitoring area. Three years after the accident, the concentrations of ¹³⁷Cs in seawater and bottom sediments were still maintained at the level one order of magnitude higher than those observed in the waters off Fukushima before the accident. The concentrations of ⁹⁰Sr in seawater exceeded the pre-accident values by several folds in the sea off Fukushima and Ibaraki.

Key words: seawater, bottom sediment, ¹³⁷Cs, ⁹⁰Sr, Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident

まえがき

(公財)海洋生物環境研究所は、全国の原子力発電所に隣接する海域において、人工放射性核種の濃度調査を1983年度から行っている。これに加え東京電力福島第一原子力発電所(以後、福島第一原発と略す)事故が発生した2011年3月以降は、福

島第一原発周辺の沖合(以後、モニタリング海域と示す)において、同原発から飛散・漏洩した人工放射性核種の拡散状況を明らかにする調査を実施している。これらの調査のうち1983~2012年度の結果については、既に詳細な報告がなされている(高田・鈴木, 2003; 及川ら, 2013, 2014)。本報告では主に2013年度(2013年5月~2014年1月)の

(2014年12月24日受付, 2015年1月19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: isono@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)

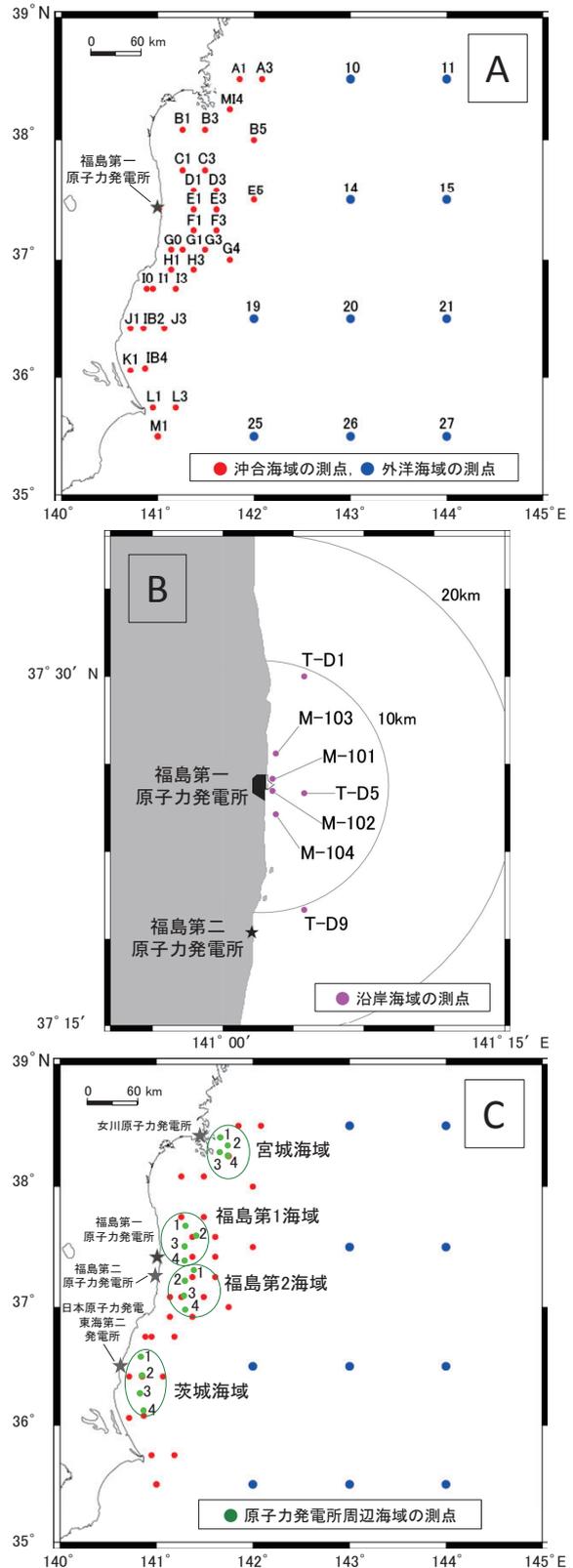
調査結果をもとに、福島第一原発事故に由来する核種について事故後3年間の濃度推移を紹介する。なお、本報告は、原子力規制庁の委託により当研究所が実施した「平成25年度海洋環境における放射能調査及び総合評価事業」の成果の一部をとりまとめたものである。

方法

調査海域と測点 原子力発電所周辺海域として全国の原子力発電所沖に合計で15海域を設定し、各海域でそれぞれ4つの測点を設けた（第1図）。これらの測点は、調査開始当時に設定された定点であり2013年度も引きつづき同一測点で調査を行った。また、福島第一原発事故後、新たな観測点がモニタリング海域に設定されており、2013年度は同原発から30km圏外に位置する沖合海域に32点と外洋海域に10点に加え、同原発から10km圏内の沿岸海域に7点を設定した（第2図）。第2図には、原子力発電所周辺海域の宮城、福島第1、福島第2及び茨城海域における測点1~4の位置を併せて示した。



第1図 全国17ヶ所の原子力発電所沖に設定した15の調査海域（原子力発電所周辺海域）。



第2図 福島第一原子力発電所周辺の沖合（モニタリング海域）に設定した測点（2013年度）。A: 福島第一原子力発電所から30km圏外の測点（沖合海域と外洋海域），B: 福島第一原子力発電所から10km圏内の測点（沿岸海域），C: 原子力発電所周辺海域の宮城，福島第1，福島第2及び茨城海域における測点1~4の位置。赤丸，青丸で示される測点は図Aと同じ。

海水試料の採取 原子力発電所周辺海域では5～6月に年1回、1試料当り100～200Lの海水をバンドン型採水器で採取した。採水は同一測点において、表層（1m層）と下層（海底面から約10m上層）の2層について行った。モニタリング海域では5～6月、8月、11月及び1月の年4回、外洋海域では5月、10～11月の年2回、沿岸海域では月に1回、1試料当り60～80Lの海水をバンドン型採水器で採取した。沖合及び外洋海域では同一測点において2～7層、沿岸海域では表層（0.5m層）のみで採水を行った。いずれの海水試料も濾過はせず、海水1L当り2mLの6M塩酸または濃硝酸を採水直後に添加した。

海底土試料の採取 原子力発電所周辺海域では全測点において、海水試料採取後にエクマンバージ採泥器またはボックスコアラーで海底土を採取した。モニタリング海域では32測点において、海水試料採取後にマルチプルコアラーで海底土を採泥した。各採泥器で採取した海底土の表面から深さ3cmまでの層を約2.5kg分取し、放射能測定用試料とした。海底土試料は分析に供するまで、冷蔵または冷凍保存した。

試料の放射能分析 海水試料の¹³⁷Csは放射性セシウム分析法（文部科学省，1976）に従って化学分離により調製した測定試料をガンマ線スペクトロメトリー（文部科学省，1992）で、同試料の⁹⁰Srは放射性ストロンチウム分析法（文部科学省，2003）に従ってイオン交換樹脂を用いて分離したストロンチウム分画からミルキング手法で分離した⁹⁰Yを低バックグラウンドベータ線計測により定量した。海底土は乾燥処理した後プラスチック製容器へ一定量分取し、ガンマ線スペクトロメトリーにより¹³⁷Csを定量した。各試料の定量下限値は海水では¹³⁷Csが約0.7 mBq/L、⁹⁰Srが約0.4mB/L、海底土では¹³⁷Csが約0.9 Bq/kg-dryである。これら分析法の詳細は及川（2012）、及川ら（2013）を参照されたい。

結果と考察

海水中の¹³⁷Cs及び⁹⁰Sr 1983～2013年度に原子力発電所周辺海域で観測した表層水の¹³⁷Cs及び⁹⁰Sr濃度を第3図に示した。過去の大気圏核爆発実験に由来する¹³⁷Cs及び⁹⁰Srは、各海域の表層水でそれぞれの調査開始年度から継続して確認された。海域によ

りチェルノブイリ原子力発電所事故に起因する¹³⁷Cs濃度の一時的な上昇が1986年度に認められるが、それ以外は2010年度までいずれの海域でも¹³⁷Cs及び⁹⁰Sr濃度は一定の放射能比を保ちながら、同様な漸減傾向を示した。その減少率（見かけの半減期）は及川ら（2013）によると、各核種の物理的半減期（¹³⁷Cs: 30.0年、⁹⁰Sr: 28.7年）より短い12～20年程度である。福島第一原発事故前の2010年度の各海域における表層水の濃度は¹³⁷Csが1.1～1.9mBq/L、⁹⁰Srが0.92～1.4mBq/Lの範囲にあった。

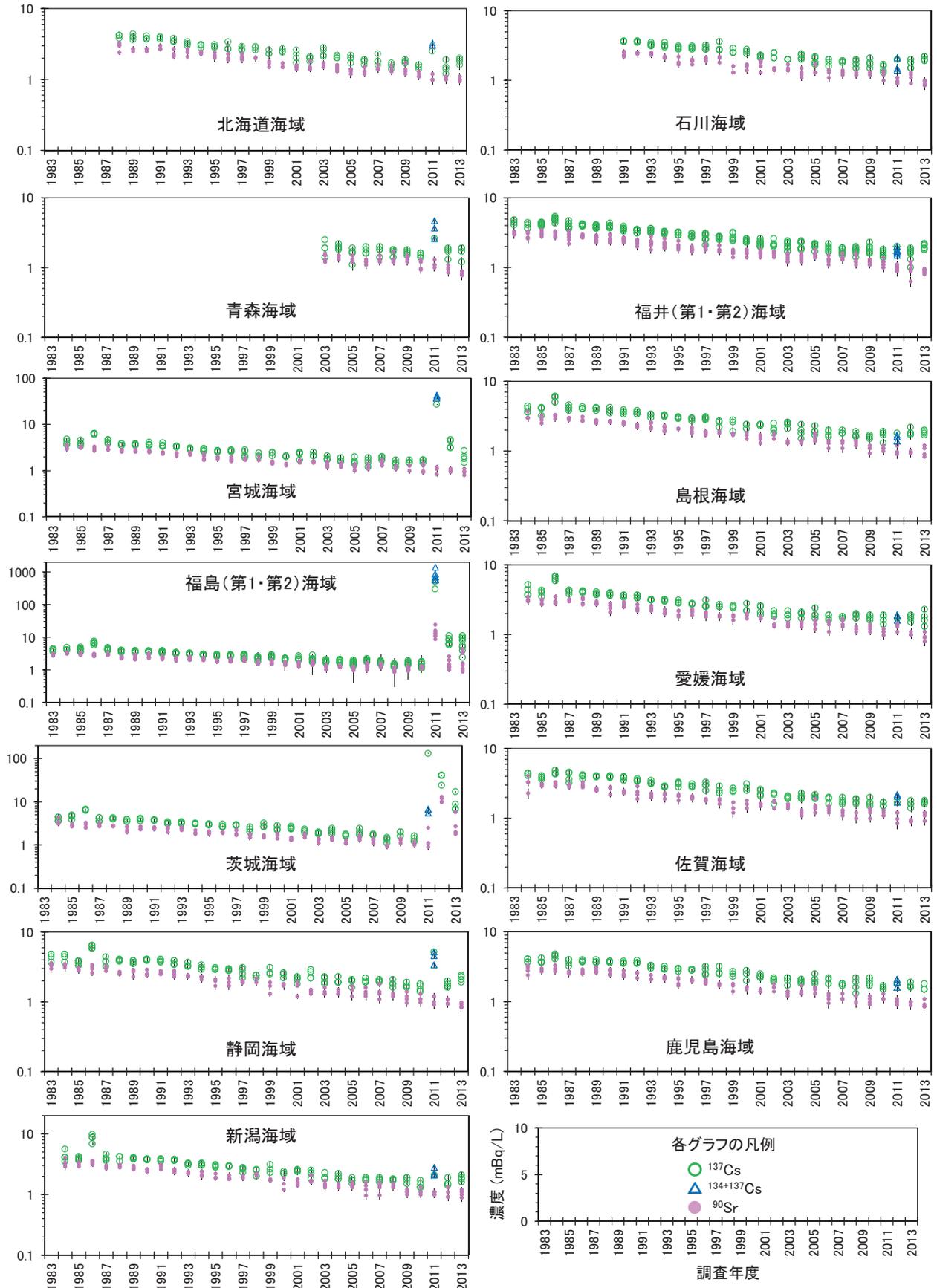
2011年度は福島第一原発事故の影響を受けて、海水中の¹³⁷Cs濃度は福島県及びその近隣県のみならず他の一部の県の沖合においても上昇した。事故後3年間の経年変化について¹³⁷Cs濃度を第4図、⁹⁰Sr濃度を第5図に示した。なお、図には事故による付加がないと考えられる事故前5年間（2006～2010年度）に15海域で観測された濃度の範囲を破線で示した。

原子力発電所周辺海域の表層水で観測された2011年度の¹³⁷Cs濃度は、宮城海域が27mBq/L、福島第1海域が300mBq/L、福島第2海域が510 mBq/L、茨城海域が130 mBq/L、静岡海域が5.2mBq/Lであり、事故前5年間の最大値（2.4mBq/L）を超えていた（第4図）。2012年度の¹³⁷Cs濃度は、宮城、福島第1、福島第2及び茨城海域では2011年度と比べそれぞれ1桁ほど低下し、静岡海域では最大値が2.0mBq/Lであり事故前の水準に低下した。2013年度の¹³⁷Cs濃度は、福島第1、福島第2及び茨城海域では事故前5年間の最大値に比べそれぞれ数倍から1桁高かったが、宮城海域では最大値が2.7mBq/Lであり事故前の水準に低下した。一方、各海域の底層水中の¹³⁷Cs濃度は、表層水と同程度もしくはより低い値を示すことが一般であるが、2013年度に表層水の1.9mBq/Lを超える3.6mBq/Lが静岡海域測点2で観測された。

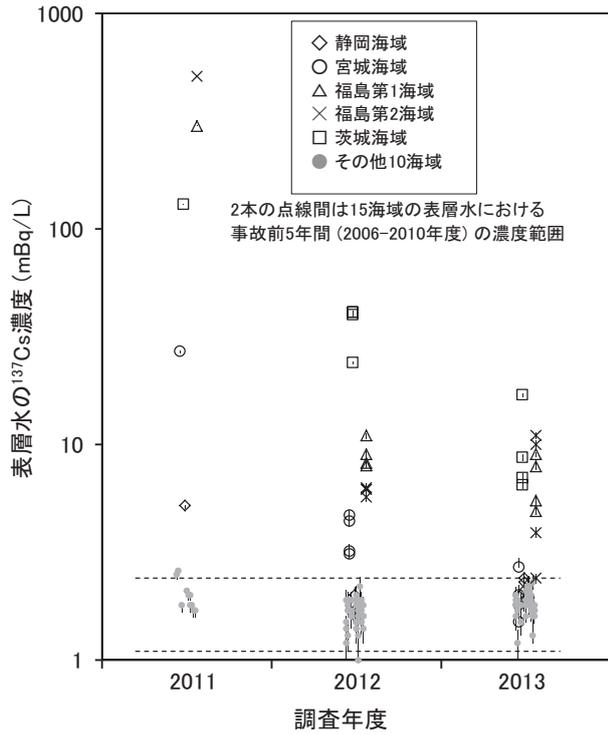
原子力発電所周辺海域の表層水で観測された2011年度の⁹⁰Sr濃度は、福島第1海域が8.8～24 mBq/L、福島第2海域が11～16 mBq/L、茨城海域が0.90～2.5 mBq/Lであり、事故前5年間の最大値（2.0 mBq/L）を超える測点があった（第5図）。2013年度の⁹⁰Sr濃度は、福島第1海域では最大値が1.6mBq/Lであり事故前の水準に低下したが、福島第2海域が0.88～4.3mBq/L、茨城海域が1.8～5.8 mBq/Lであり事故前より高濃度の測点があった。

モニタリング海域で観測された海水中の¹³⁷Cs濃度は、事故後大きく上昇し、特に表層水はその傾

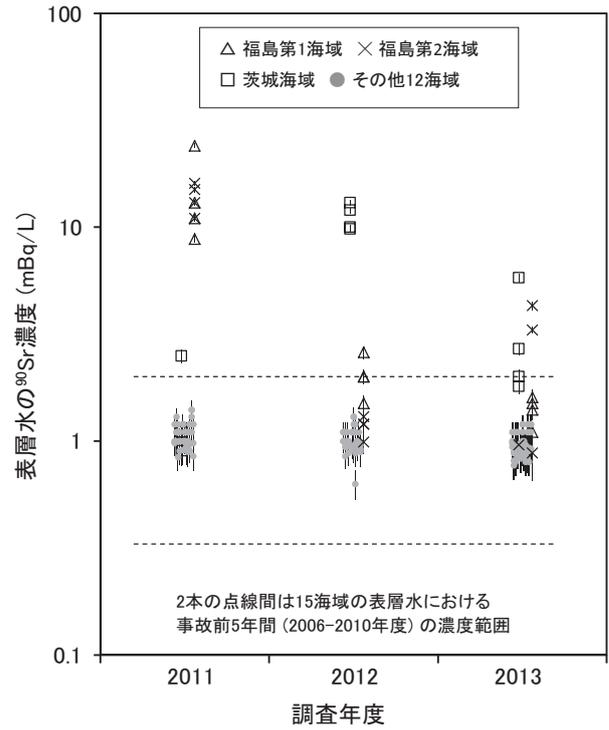
磯野ら：福島第一原発事故後の¹³⁷Csと⁹⁰Sr濃度の推移



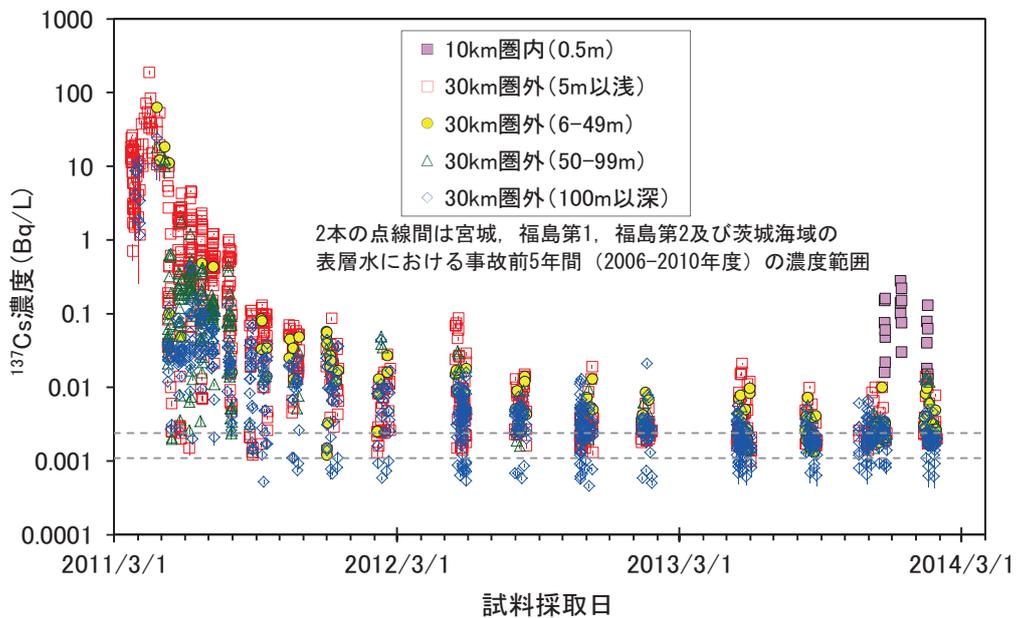
第3図 1983～2013年度に原子力発電所周辺海域の表層水で観測された¹³⁷Cs及び⁹⁰Sr濃度。2011年度にベータ線計測した試料には¹³⁷Csの他、¹³⁴Csが含まれる可能性があるため¹³⁴⁺¹³⁷Csと標記した。各値の縦棒は計数誤差(1σ)を示す。



第4図 原子力発電所周辺海域の表層水で観測された¹³⁷Cs濃度の福島第一原子力発電所事故後3年間の変化。各値の縦棒は計数誤差(1σ)を示す。



第5図 原子力発電所周辺海域の表層水で観測された⁹⁰Sr濃度の福島第一原子力発電所事故後3年間の変化。各値の縦棒は計数誤差(1σ)を示す。



第6図 福島第一原子力発電所周辺の沖合（モニタリング海域）の海水中で観測された¹³⁷Cs濃度の経日変化。10km圏内での調査は2013年11月から開始した。各値の縦棒は計数誤差(1σ)を示す。Oikawa et al. (2013) 及び及川・高田 (2014) の結果に原子力規制庁の公表値を加えグラフを修正した。

向が顕著であった（第6図）。表層水の¹³⁷Cs濃度は、福島第一原発から30km圏外において2011年4月に最高値の186Bq/Lが観測された以降、同年10月にかけて急速に低下した後は減少傾向が緩やかになり、2013年度には0.01Bq/L前後の水準になった。2013年度に0.01Bq/L以上の¹³⁷Cs濃度が観測された測点は宮城県沖のB3、福島県沖のC1、F1及びH1、茨城県沖のI0、I1、J1及びK1であった（第2図の測点参照）。千葉県沖で観測された¹³⁷Csの最大値はM1の0.0043Bq/Lであり、事故前5年間のおよそ2倍の水準であった。2014年1月における10km圏内での表層水の¹³⁷Cs濃度は0.013（測点T-D9）～0.13 Bq/L（測点M-102）の範囲にあり、福島第一原発近傍の測点では30km圏外の濃度より一桁高い水準にあった。

2013年において福島第一原発事故によると考えられる¹³⁷Cs濃度の上昇が海水にみられる海域は、福島県を中心とする宮城県から千葉県北部の太平洋沿岸であった。海水中の¹³⁷Cs濃度は事故直後に比べると格段に低下しているものの、事故前の水準に戻るには至っていない。これは主に福島第一原発からの¹³⁷Csの漏洩が継続していること（青山, 2014）、また、陸域に降下した¹³⁷Csの一部が河川を通じて海域に供給されること（Nagao *et al.*, 2013; Ueda *et al.*, 2013）が関係するものと推察される。

海底土中の¹³⁷Cs 1983～2013年度に原子力発電所周辺海域で観測した海底土中の¹³⁷Cs濃度を第7図に示した。海底土中の¹³⁷Csは、海水と異なり同一海域でも測点による濃度差が大きく、試料を採取した深度が増すと濃度が増加する傾向が認められた。水深数100m以深から採取された海底土では、底質はほとんど泥で占められ¹³⁷Cs濃度は4Bq/kg-dryを超えたが、泥に細砂が混じる海底土では2Bq/kg-dry以下の値が観測された。水深100m以浅から採取された海底土では、底質はほとんどが泥と細砂の混合物で¹³⁷Cs濃度は2Bq/kg-dry以下であり、細砂に粗砂が混じる海底土の多くでは検出下限値以下が観測された。第7図に示した海底土中の¹³⁷Cs濃度には、各調査年度内ではばらつきがみられるものの、調査開始時から事故前までの期間を通覧すると、それぞれの海域で減少傾向がみられた。なお、1986年に発生したチェルノブイリ原子力発電所事故に起因する¹³⁷Cs濃度の上昇は、いずれの海域の海底土でも確認されなかった。福島第一原発事故

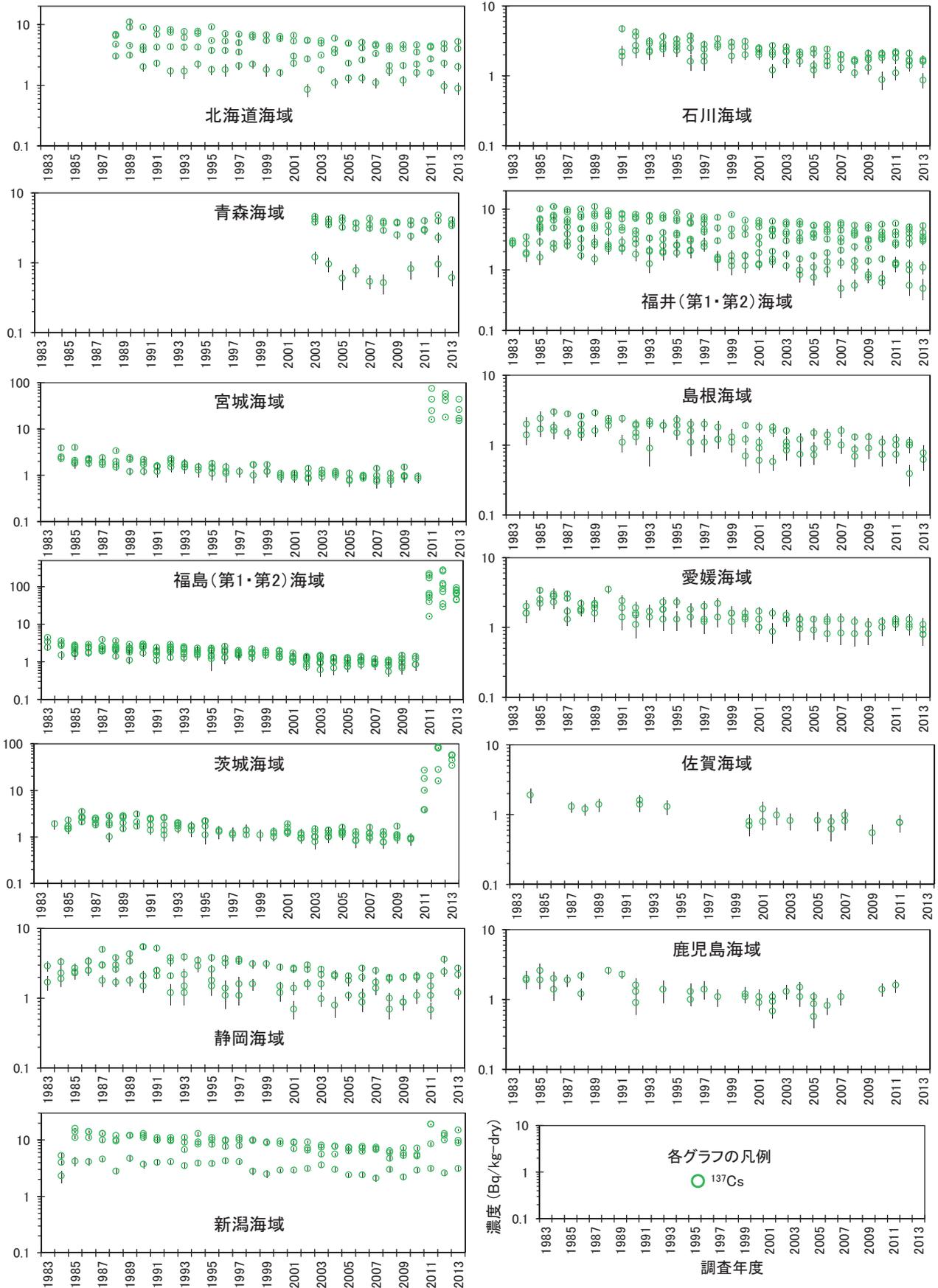
前の2010年度の各海域における海底土中の¹³⁷Cs濃度は、0.72～7.1Bq/kg-dryの範囲にあった。

2011年度は海水と同様、福島第一原発事故の影響を受けて、福島県を中心とした太平洋沿岸と新潟海域で海底土中の¹³⁷Csに濃度上昇が認められた。事故後3年間の¹³⁷Cs濃度の経年変化を第8図に示した。原子力発電所周辺海域の海底土中で観測された2011年度の¹³⁷Cs濃度は、宮城海域が16～75Bq/kg-dry、福島第1海域が51～220Bq/kg-dry、福島第2海域が16～65 Bq/kg-dry、茨城海域が3.8～27Bq/kg-dry、新潟海域が3.1～19Bq/kg-dryであり、これらの海域の多くの測点で事故前5年間の最大値（7.7Bq/kg-dry）を超えていた（第8図）。これらの海域における海底土中の¹³⁷Cs濃度は、2012年度に低下がほとんど認められなかったが、2013年度は福島第1海域で前年度の約半分に低下するものの、他海域の一部測点では濃度増加が認められた。

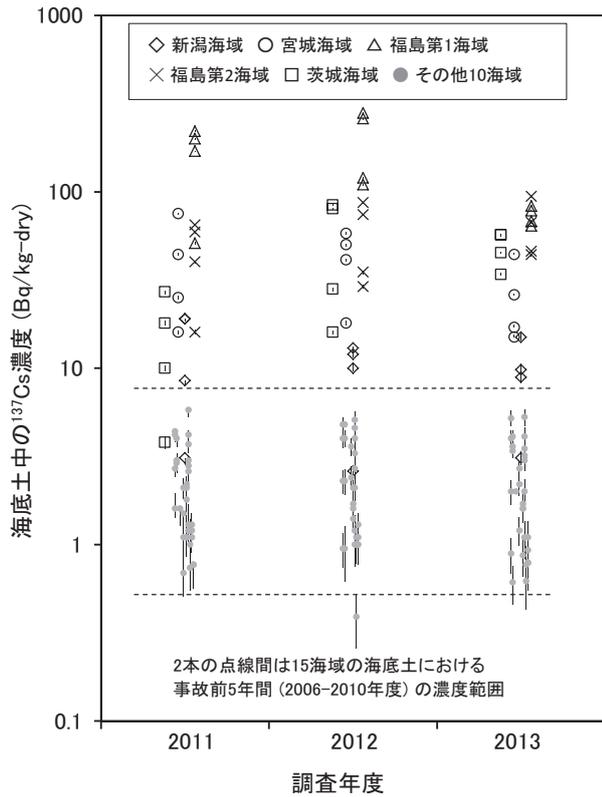
モニタリング海域の海底土中で観測された¹³⁷Cs濃度は、同原発に近いほど高くなる傾向は必ずしも確認されず、宮城及び茨城県沖合でも同原発沖合より高い値が確認され、測点毎で値が大きく変化した（第9図）。2013年度における海底土中の¹³⁷Cs濃度は、いくつかの測点で100Bq/kg-dryを超える値が引き続き観測された。

2013年において福島第一原発事故によると考えられる¹³⁷Cs濃度の上昇が海底土にみられる海域は、海水と同様に福島県を中心とする宮城県から茨城県の太平洋沿岸の他に新潟県沖であった。太平洋沿岸の海底土にみられる高濃度の¹³⁷Csは、希釈効果の大きい海水と異なり、事故後に福島第一原発から直接漏洩した 3.5×10^{15} Bq（Tsumune *et al.*, 2013）にのぼる¹³⁷Csの一部が、物理的な希釈を受けず沈降した現場の海底土に留まることで生じていると考えられる。なお、日下部（2014）は同原発沖合の周辺海域の海底土表層3cmに留まる¹³⁷Csの総量が、2011年9月の 5.3×10^{13} Bqが2013年11月の 2.2×10^{13} Bqまで低下する試算結果を得ている。新潟県の場合では、阿賀野川及び大河津分水の河口域で採取した底土中から、福島第一原発事故の影響の指標となる¹³⁴Csと併せ、¹³⁷Csが比較的高い濃度で検出されている（新潟県, 2014）。事故後、これらの底土の一部が本調査の新潟海域の観測点まで運ばれたことで、¹³⁷Csの濃度上昇を招いたと推察される。

磯野ら：福島第一原発事故後の¹³⁷Csと⁹⁰Sr濃度の推移



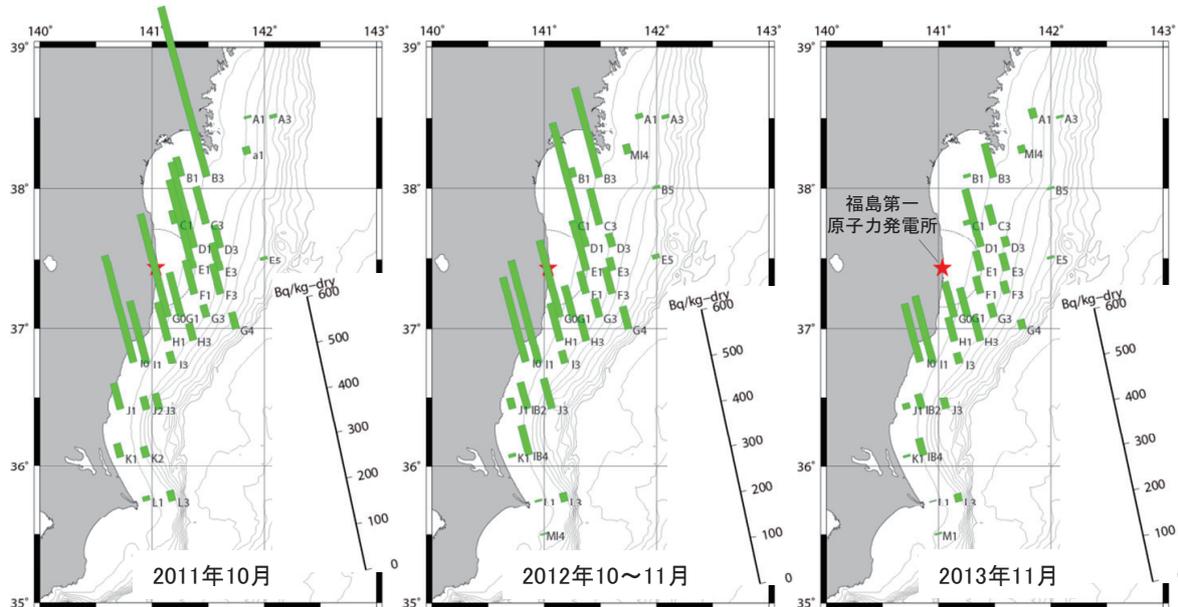
第7図 1983～2013年度に原子力発電所周辺海域の海底土表層3cmで観測された¹³⁷Cs濃度。図中にプロットが無い場合は、該当する調査年度の全測点で値が検出下限値以下であったことを示す。各値の縦棒は計数誤差(1σ)を示す。



まとめ

福島第一原発事故から3年経過した2013年において、事故の影響が海水及び海底土に大きく残る海域は福島県を中心とする太平洋沿岸であった。海水中の¹³⁷Csの濃度は確実に低下しているものの、事故前の水準に戻っていない。福島第一原発で生じる汚染水の処理は、事故当時に比べ格段に進展しているものの、海洋への流出は現在も続いていることから、海洋での人工放射性核種の濃度調査が今後も重要である。なお、静岡海域の底層水にみられた¹³⁷Csの濃度増加の原因は不明であり、一時的な現象であったかを今後の調査により明らかにする計画である。福島第一原発周辺の沖合における海底土の¹³⁷Cs濃度は、測点毎に大きく上下するものの、海域全体では¹³⁷Csの物理的半減期を超える速度で低下する傾向が試算されている（日下部，2014）が、低下を招く要因はほとんど明らかにされておらず、今後の課題である。

第8図 原子力発電所周辺海域の海底土表層3cmで観測された¹³⁷Cs濃度の福島第一原子力発電所事故後3年間の変化。各値の縦棒は計数誤差（1σ）を示す。



第9図 福島第一原子力発電所周辺の沖合（モニタリング海域）の海底土表層3cmで観測された¹³⁷Cs濃度の経年変化。

謝 辞

本報告で用いたデータは、文部科学省及び原子力規制庁から受託した「海洋環境における放射能調査及び総合評価事業」の成果の一部である。2013年度の本事業実施に際し、全国漁業協同組合連合会、各道県漁業協同組合連合会及び地元漁業協同組合の皆様、ご理解とご協力を賜った。試料採取では、海洋エンジニアリング株式会社、試料分析では、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皆様のご協力を頂いた。記して心より感謝いたします。

引用文献

- 青山道夫 (2014). 東京電力福島第一原子力発電所事故に由来する汚染水問題を考える. 科学, **84**, 0856-0864.
- 日下部正志 (2014). 福島県および近隣県沖海域における海水・海底土中の放射性核種濃度の時系列変化. 海洋と生物, **No.212**, 277-282.
- 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.
- Nagao, S., Kanamori, M., Ochiai, S., Tomihara, S., Fukushi, K. and Yamamoto, M. (2013). Export of ¹³⁴Cs and ¹³⁷Cs in the Fukushima river systems at heavy rains by Typhoon Roke in September 2011. *Biogeosciences*, **10**, 6215-6223.
- 新潟県 (2014). 福島第一原子力発電所事故に伴う新潟県内の放射線等の監視結果 (2013年版). http://www.pref.niigata.lg.jp/HTML_Article/709/294/hukusima_2013,2.pdf (2014年11

月閲覧)

- 及川真司 (2012). 海洋環境試料の放射能分析. 海洋と生物, **No.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 Prefecture, Japan, *Biogeosciences*, **10**, 5031-5047.
- 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⁹⁰Sr及び¹³⁷Cs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.
- 及川真司・高田兵衛・磯山直彦・稲富直彦・渡部輝久・鈴木千吉・御園生 淳・森菌繁光・日下部正志 (2014). 日本周辺海域環境での⁹⁰Sr及び¹³⁷Cs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—. 海生研研報, **No.19**, 1-15.
- 及川真司・高田兵衛 (2014). 福島県沖合を中心とした太平洋側海域での海水中の⁹⁰Sr及び¹³⁷Csの濃度変遷. ぶんせき, **10**, 539-542.
- 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¹³⁷Cs濃度の長期傾向. 保健物理, **38**, 128-139.
- Tsumune, D., Tsubono, T., Aoyama, M., Uematsu, M., Misumi, K., Maeda, Y., Yoshida, Y. and Hayami, H. (2013). One-year, regional-scale simulation of ¹³⁷Cs radioactivity in the ocean following the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Biogeosciences*, **10**, 5601-5617.
- Ueda, S., Hasegawa, H., Kakiuchi, H., Akata, N., Ohtsuka, Y. and Hisamatsu, S. (2013). Fluvial discharges of radiocaesium from watersheds contaminated by the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident, Japan. *J. Environ. Radioact.* **118**, 96-104.