

2. 補完・解析・文献調査等

福島県周辺海域・東京湾における各放射性核種の鉛直・水平分布、時系列変化に寄与する要因を明らかとするため、以下の補完・解析・文献調査を行った。

補完調査：福島県周辺海域の測点 M-F1 の海水（章 2-1-1-1）を層別に採水・測定し、測点 M-E1 の海底土（章 2-1-2-5）及び東京湾の測点 E-T2 の海底土（章 2-2-2-4）の柱状試料を層別に測定することで、 ^{134}Cs ・ ^{137}Cs （測点 M-F1 では ^{137}Cs のみ）の鉛直分布からこれら核種の動態を検証した。また、東京湾において、表層海底土（深さ 3 cm まで）よりも下層を含めた ^{134}Cs ・ ^{137}Cs 蓄積量（0～20 インベントリ）を評価するため、深さ 20 cm までの柱状海底土試料を採取した（章 2-2-2-3）。

解析調査：海水・海底土中の各放射性核種の分布や傾向を把握し、変動要因を推定するため、環境要因との関係（章 2-1-1-2、2-1-2-1、2-2-1-3～5）や濃度・蓄積量の時系列変化パターンの推定（章 2-1-2-2～4、2-2-2-2）を行った。また、水産物の ^{137}Cs 濃度との関係についても考察した（章 2-2-3）。

文献調査：研究例が多い東京湾の物質循環等の情報を概説する（章 2-2-1-1、2-2-2-1）とともに、各章での考察のために適宜文献を引用した（章 2-1-3、2-2-4）。

2-1. 福島県周辺海域

2-1-1. 海水

2-1-1-1. ^{137}Cs 鉛直分布

福島県周辺海域における海域モニタリングにおいて実施されている沖合海域調査の測点のうち、海岸線に近く、東電福島第一原発からの直線距離が近い測点 M-F1 において海水中の放射性セシウムの鉛直分布を調査した。事故から約 2 か月後の平成 23 年 5 月から 7 月まで、2 週間に 1 度の頻度で表層と 100 m 層に加えて 50 m 層（中間層）の採水を実施した。本年度事業では事故直後の値と比較するために、令和 4 年 8 月に表層、50 m 層（中間層）、120 m 層（下層）で海水試料を採取し、 ^{137}Cs の分析を行った。 ^{137}Cs 濃度の鉛直分布を図 2-1-1 に示す。平成 23 年度においては、 ^{137}Cs 濃度は表層（最高値：1900 mBq/L）において高く、中間層・下層（最高値：210 mBq/L）で低くなる傾向にあった。陸域や東電福島第一原発港湾内の低塩分・低密度水の流入により、表層の濃度が上昇した可能性がある。Tsumune *et al.*¹⁾ は、東電福島第一原発からの直接漏えいにより、平成 23 年 3 月 26 日から 5 月末までに 3.5 ± 0.7 PBq の ^{137}Cs が海洋へ放出されたと報告している。津旨らの数値シミュレーションによると、直接漏えいにより放出された高濃度の ^{137}Cs は、4 月は主に沿岸流により南側に移行し、その後東向きに流れている黒潮と黒潮続流によって運ばれ、5 月末までに移流・拡散により ^{137}Cs 濃度は 10 Bq/L 以下に減少したとしている。帰山ら²⁾も平成 23 年の福島沖複数測点の ^{137}Cs 濃度が顕著な鉛直変化（検出下限値未満～69 mBq/L）を示すことを報告し、 ^{137}Cs が放出された水塊とそれ以外の水塊が複雑に入り混じっていることを示唆している。一方で、令和 4 年度調査結果においては表層、中間層、下層ともに 1.3～1.4

mBq/L であり、 ^{137}Cs は顕著な鉛直分布を示さず、事故前の水準（2000 年代後半の東電福島第一原発沖：表層で 1.6~1.8 mBq/L^{3, 4)}）になっていることが確認された。令和 4 年度では、陸域・沿岸海域からの沖合海域への ^{137}Cs 流入は大幅に減少したと考えられる。

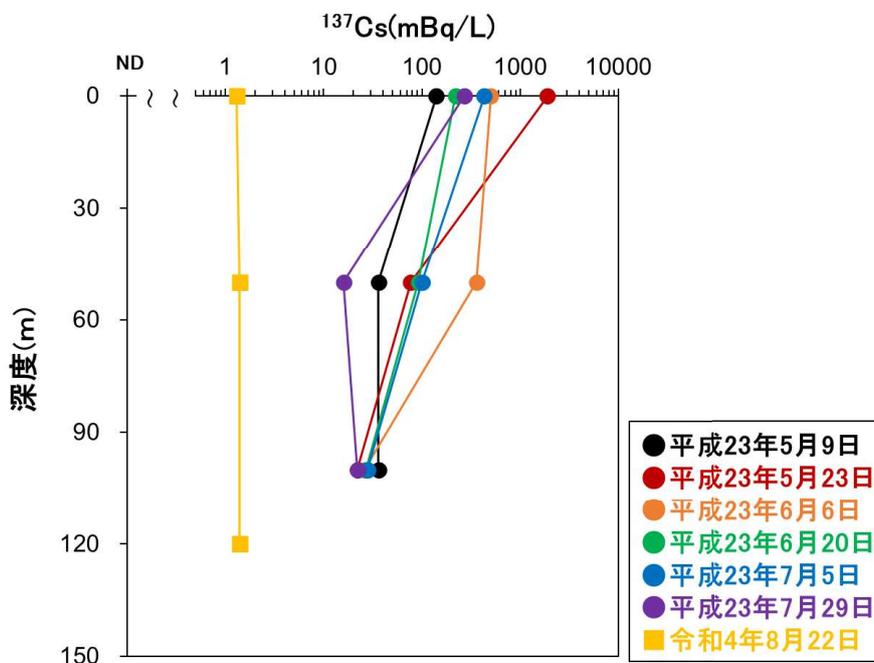


図 2-1-1 平成 23 年 5~7 月・令和 4 年 8 月の M-F1 における海水中の ^{137}Cs 濃度の鉛直分布

2-1-1-2. トリチウム濃度の変動傾向

Takahata *et al.*⁵⁾は、事故直後に測定した福島県周辺海域の表面海水中の ^{137}Cs 濃度とトリチウム濃度に正の相関が見られ、両核種は同一の起源であると指摘している。また、彼らは、平成 23 年 3 月 26 日から 4 月 6 日までの直接漏えいにより、福島第一原発から 0.05 PBq のトリチウムが福島県周辺海域に放出されたと見積もっている。福島県周辺における海域モニタリングにおいて実施されている近傍海域調査のうち、測点 M-101、M-102、M-103、M-104 は沖合海域に比べて、トリチウム濃度が 1 桁以上高い場合がある（図 1-4-13 を参照）。特に M-101 において、平成 26 年から平成 27 年前半で高く、最大で 1880 mBq/L であった。平成 27 年秋以降は濃度が低下し、500 mBq/L 未満となった（図 2-1-2）。この間に海側遮水壁の閉合があり、町田ら⁶⁾は、港湾内海水のトリチウム濃度が海側遮水壁閉合後に 1 桁程度低下していることを報告している。そのため、近傍海水のトリチウム濃度の変動傾向については今後も確認していく。

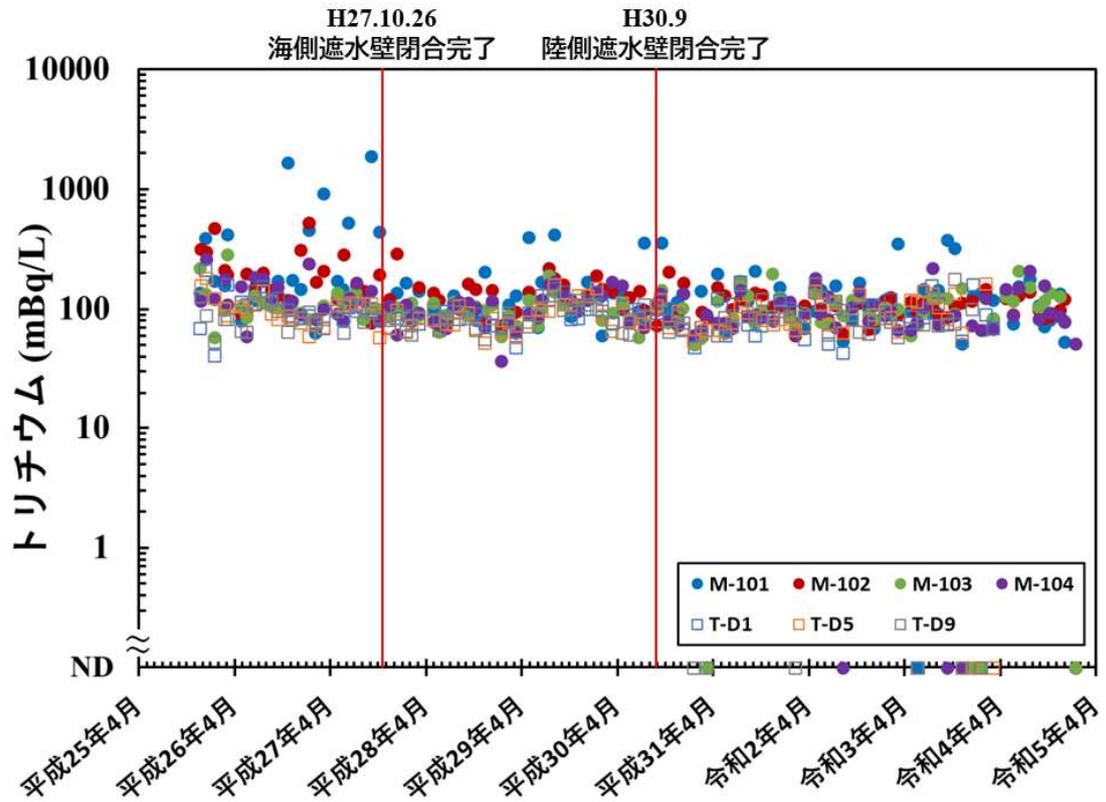


図 2-1-2 近傍海域におけるトリチウム濃度の時系列変化

(注) NDは検出下限値(全期間平均:44 mBq/L)未満を示す。

2-1-2. 海底土

2-1-2-1. ^{137}Cs 水平分布

令和4年度に沖合海域で採取した表層海底土試料の ^{137}Cs 濃度の水平分布を図2-1-3に示す。 ^{137}Cs 濃度は比較的広い範囲で分布しているものの、特に東電福島第一原発沿岸南部及び東部において他の測点に比べて高い値を示した。

Kusakabe *et al.*⁷⁾では、海底土中の ^{137}Cs 濃度が高い測点でシルト及び粘土の存在比が高い傾向にあることを指摘している。また、工藤ら⁸⁾は、日本の沿岸海域において、 ^{137}Cs 濃度は粒径と負の相関関係にあることを指摘している。本調査においても、表層海底土試料について ^{137}Cs 濃度と含水率（一般に粒径が小さいと含水率が高くなる）の関係を調べたところ、正の相関関係（ $r=0.50$ 、 $p<0.0001$ ）が確認された（図2-1-4）。今回明らかとなった ^{137}Cs の水平分布パターンも、各海域の海底土の性状（含水率及びそれに寄与する粒径・泥質）の違いをある程度反映したものと考えられる。

その一方で、図2-1-4の回帰直線から大きく外れ、含水率に対して ^{137}Cs 濃度が高い試料（含水率：30～60%、 ^{137}Cs ：>50 Bq/kg-乾燥土）があることから、海底土の性状以外の分布要因も考えられる。工藤ら⁸⁾は日本の沿岸海域のうち東電福島第一原発事故の影響が大きい海域（事故後に原発由来核種である ^{134}Cs が検出された海域）で ^{137}Cs と粒径の間に相関が見られないことを指摘し、事故による局所的な ^{137}Cs 付加が海底土の性状に関わらず起こっていることを示唆した。東電福島第一原発沿岸の南部及び東部の50 Bq/kg-乾燥土を超える測点では、特別に ^{137}Cs が蓄積しやすい底質ではなかったものの、事故の影響が他測点より大きかったため、相対的に高い値が測定された可能性がある。それに加え、気象擾乱に伴う陸上からの付加や移動経路等も ^{137}Cs 分布に関係していると考えられるため、これら要因も考慮した解析も必要である。

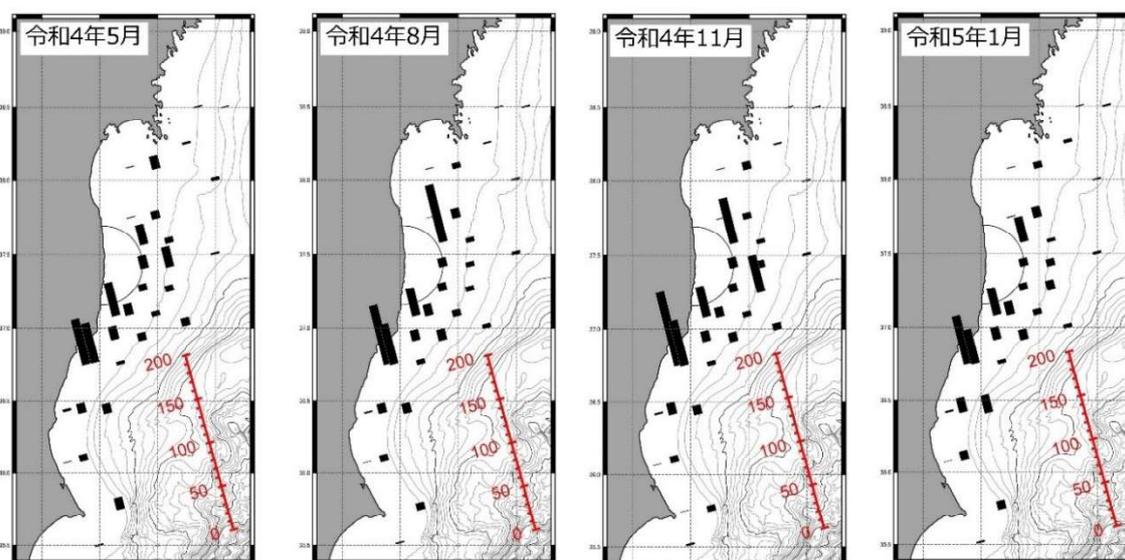


図2-1-3 令和4年度の沖合海域表層海底土における ^{137}Cs 濃度の水平分布

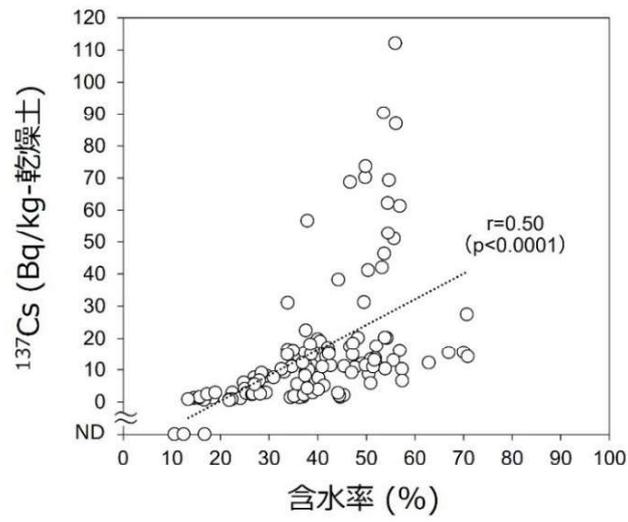


図 2-1-4 令和 4 年度に沖合海域で採集された表層海底土試料における含水率と ^{137}Cs 濃度との関係

(注) ND は検出下限値 (令和 4 年度: 0.38 Bq/kg-乾燥土) 未満を示す。

2-1-2-2. ¹³⁷Cs 時系列変化

本モニタリングで対象とした海域における表層海底土 ¹³⁷Cs 濃度の時系列変化を図 2-1-5 に示す。平成 23 年 9 月から観測期間の幾何平均値を計算して図中にプロットした。約 11 年半で、幾何平均値は 46 Bq/kg-乾燥土から 8.4 Bq/kg-乾燥土まで指数関数的に減少しているものの、減少速度は鈍化傾向にある。そこで、幾何平均値の時系列データについて、2 重指数関数^{※1}的な減少を仮定すると、幾何平均値は以下の式を用いて算出される^{9,10)}。

$$C(t) = a e^{-\frac{\ln(2)}{T_1} \times t} + b e^{-\frac{\ln(2)}{T_2} \times t} \quad \dots (1)$$

パラメータ等は以下のとおりとした。

C(t) : 時刻 t における ¹³⁷Cs 濃度 (Bq/kg-乾燥土)

a : t=0 における短期成分濃度 (Bq/kg-乾燥土)

T₁ : 短期成分の実効半減期 (年)

t : 東電福島第一原発事故からの年数 (年)

b : t=0 における長期成分濃度 (Bq/kg-乾燥土)

T₂ : 長期成分の実効半減期 (年)

このうち、a、b、T₁、T₂ は未知パラメータである。これらについて、以下の収束条件を全て満たし、残差二乗和が最小となるよう回帰計算を行った。

$$10 < a < 100$$

$$5.0 < b < 100$$

$$1.0 < T_1 < 3.0$$

$$3.0 < T_2 \leq 30.1$$

なお、収束条件の設定については、真値と推定される値を含む、十分広い範囲を設定した。また、長期成分の実効半減期 (T₂) については、¹³⁷Cs の物理学的半減期である 30.1 年を最大値と設定した。

回帰計算の結果を図 2-1-5 に示す。短期成分及び長期成分の実効半減期は、それぞれ約 1.5±0.1 年及び 30.1 年と計算された。短期成分の実効半減期は ¹³⁷Cs の物理学的半減期 (30.1 年) よりもはるかに短く、溶出・拡散・下層への移行による素早い減少を反映していると考えられる。東電福島第一原発から放出された半径 1 μm の放射性セシウム含有粒子は 13℃ の海水中で 10 年以内に完全に溶解すると推定されており^{11,12)}、短期成分の一例として想定される。近年の減少速度の鈍化は、溶出・拡散しやすい状態のものが既に減少し、海底土から漏出しにくい長期成分の寄与割合が増加しているためと考えられる。

※1 ここでは、実効半減期の異なる 2 成分 (短期成分と長期成分) の指数関数による一次結合により定義される曲線を指す。

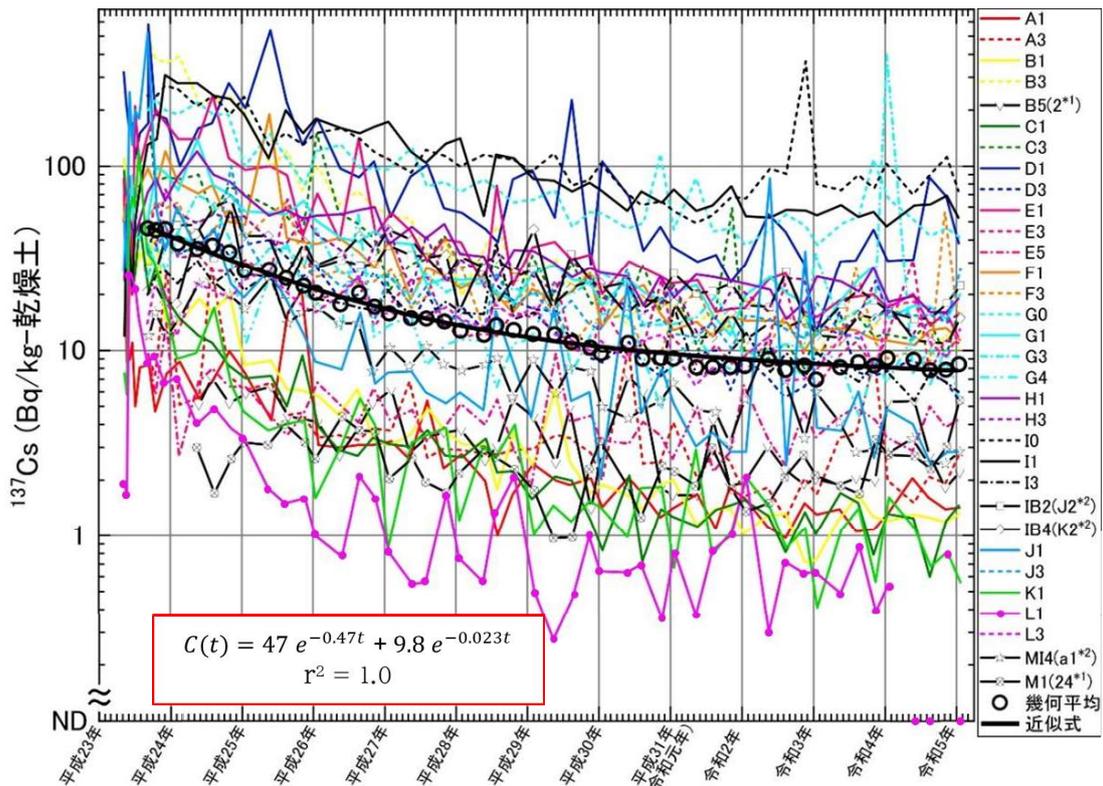


図 2-1-5 各測点における海底土の ^{137}Cs 濃度の時系列変化

(注 1) 測点番号の「M-」を省く。

(注 2) NDは検出下限値(令和 4 年度:平均 0.38 Bq/kg-乾燥土)未満を示す。

*1 平成 25 年度調査より測点名を変更した(2→B5、24→M1)。

*2 平成 24 年度調査より測点名を変更した(J2→IB2、K2→IB4、a1→MI4)。

2-1-2-3. ^{137}Cs 時系列変化(測点毎)

章 2-1-2-2 にて、福島沖における海底土中の ^{137}Cs 濃度の平均的な時系列変化は 2 重指数関数により記述され、初期は短期成分、近年は長期成分が優占することが示された。そこで、調査期間を、全期間(平成 23 年 9 月 7 日～令和 5 年 1 月 22 日)、前半期(平成 23 年 9 月 7 日～平成 29 年 5 月 3 日)、後半期(平成 29 年 5 月 15 日～令和 5 年 1 月 22 日)に分け(前項のモデルにおける短期成分 4 半減期の前後で区分した)、各測点、各期間の時系列について以下の式を用いた指数関数フィッティングを行った。

算出された実効半減期は測点間で差が大きく、図示に適さなかった。そのため、実効半減期の指標として、減衰係数を図 2-1-6 に示した。図中の、各測点位置から左上に引かれた緑線と右下に引かれた赤線はそれぞれ濃度の増加・減少傾向を示している。線の長さは減衰係数の絶対値を表し、長いほど実効半減期は短くなり、減少傾向が顕著であることを示している。

全期間で見ると、全測点で ^{137}Cs が減衰傾向にあり、沿岸においてこの傾向が顕著である。実効半減期は金華山沖 M-B3 (図 2-1-6 左の赤矢印) で最も短く 2.3 年、銚子沖 M-M1 (図

2-1-6 左の青矢印) で最も長く 28 年であった。前半期については、全地点で減衰傾向にあった。特に沿岸にて傾向が顕著であり、実効半減期は金華山沖 M-B3 (図 2-1-6 中央の赤矢印) で最も短く 1.3 年であった。一方で、後半期では全測点において減衰傾向は鈍化し、最も実効半減期が短い測点 (M-B1、図 2-1-6 右の黒矢印) で 4.9 年であった。また、いくつかの測点 (M-F3、M-I0、M-J3、M-L3、M-M3) ではわずかに増加した。

前半期では、沿岸において ^{137}Cs 減衰が顕著であった (図 2-1-6 中央)。この海域は、平成 23~25 年において、海底土から高い ^{137}Cs 濃度が報告された海域 (宮城県から茨城県の沿岸域) と重複している^{13,14)}。事故直後に ^{137}Cs が沿岸域に広範に放出され、前半期の内に急速に散逸していったと考えられる。一方で、後半期では、いずれの測点でも測点間で減衰傾向が均一化していると考えられる (図 2-1-6 右)。

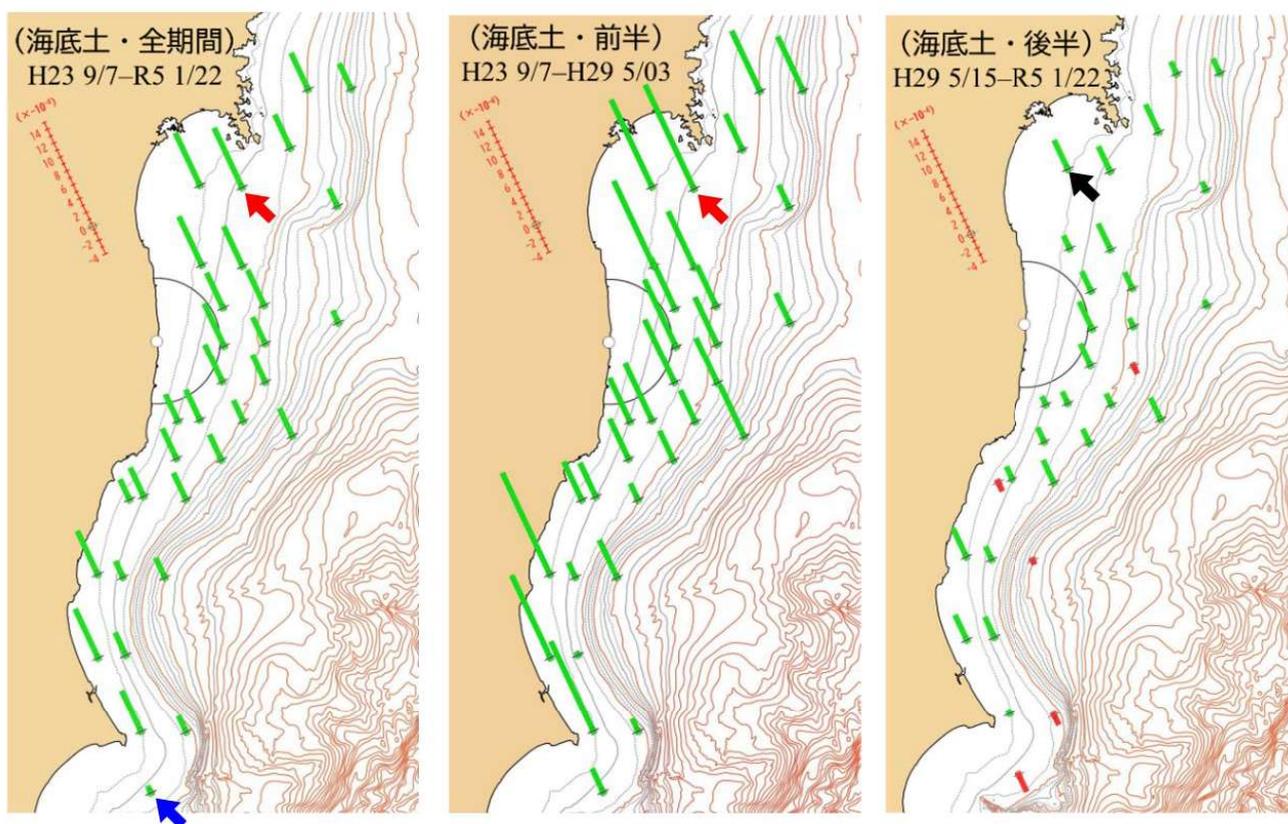


図 2-1-6 各測点の海底土における ^{137}Cs 濃度時系列変化に基づき計算された減衰係数

(注 1) 棒線の長さ (左上にスケールを示す) は減衰係数の絶対値、各測点位置から左上に引かれた緑線が減少傾向、右下向きに引かれた赤線が増加傾向を表す。

(注 2) 図中の矢印は本文中で言及された測点を示す (本文を参照)。

2-1-2-4. 海底土に含まれる ^{137}Cs のインベントリ

海域全体での ^{137}Cs 量の時系列変化を検証するため、表層海底土に存在する ^{137}Cs の総量の推定を行った。表層海底土 (0~3 cm) に含まれる ^{137}Cs の存在量 (以下、0~3 インベントリという) は以下の式を用いて算出した。

$$0\sim 3 \text{ インベントリ (kBq/m}^2\text{)} = 10 \times \rho_s \times C \times (1-\phi) \times D/1000 \dots (2)$$

パラメータ等は以下のとおりとした。

ρ_s : 土粒子密度 (g/cm^3)

C : ^{137}Cs 濃度 (Bq/kg-乾燥土)

ϕ : 空隙率

D : 試料厚 (cm)

土粒子密度は Berner¹⁵⁾ によって報告されている一般的な堆積物密度 2.5 g/cm^3 を用いた。また、空隙率 ϕ は成田・乙坂¹⁶⁾ に従い以下の式を用いて算出した；

$$\text{空隙率 } \phi = (w/100 \times \rho_s) / ((1-w/100) \times \rho_w) + (w/100 \times \rho_s) \dots (3)$$

パラメータ等は以下のとおりとした。

w : 含水率 (%)

ρ_s : 土粒子密度 (g/cm^3)

ρ_w : 純水の密度 (g/cm^3)

なお、土粒子密度は前述したとおり Berner¹⁵⁾ によって報告されている一般的な堆積物密度 2.5 g/cm^3 を、純水の密度は 0.9982 g/cm^3 (20.0°C の際の値) を用いた。

インベントリの算出に先立ち、本モニタリング測点が網羅できるよう、北緯 38 度 40 分、北緯 35 度 20 分及び 800 m の等深線で囲まれた領域をポロノイ分割^{*1}した (図 2-1-7)。なお、東電福島第一原発から半径 30 km 圏内の領域は、本モニタリングでは海底土を採取していないため対象としなかった。本モニタリングの対象海域を含む ^{137}Cs の総量は、上述した方法で算出した表層の ^{137}Cs インベントリと分割領域の面積を積算することで対象領域内の ^{137}Cs の総量を推定した。

推定結果を図 2-1-8 に示す。表層海底土に含まれる ^{137}Cs の推定総量は平成 23 年度から令和 4 年度にかけて、40 TBq から 6.1 TBq まで減少しており、約 11 年半で表層海底土に存在する ^{137}Cs の 8 割程度が減少していることが推定された。しかしながら、同海域における東電福島第一原発事故以前の ^{137}Cs の総量が 0.74 TBq と推定されている⁷⁾ ことから、東電福島第一原発事故以前と比べて依然高い状況にあると言える。なお、東電福島第一原発から海洋に放出された ^{137}Cs のうち、2011 年 9 月における東電福島第一原発 30 km 圏内を含めた

^{*1} ポロノイ分割とは、空間上に離散的に配置された複数の点 (母点) に対し、隣接する母点について相互に同一距離にある点の集合によって作られる直線によって分割する方法である。本事業では、この方法により調査海域を複数の多角形に分割し、中心に置かれる各測点の値を分割された各面の代表値と見なした。

海底土に含まれる ^{137}Cs の総量を 230 TBq と推定している⁷⁾ ことから、2022 年 1 月にはおよそ 3% が表層海底土に存在しているの見積もられた。

また、章 2-1-2-2 の 2 重指数関数曲線を用いて回帰計算を行って得られた結果を図 2-1-8 に示した。短期成分及び長期成分の実効半減期は、それぞれ約 1.5 ± 0.2 年及び 30.1 年と計算された。なお、表層海底土の ^{137}Cs 濃度と推定総量が減少している原因としては、

- (1) 海底土の下層への移動
- (2) 海底土からの溶出・脱着等
- (3) 海底土の再浮遊と水平移動

等が指摘されている。このことについて、Otosaka¹⁷⁾ は、平成 23~27 年の間に海底土表層から深さ 10 cm に堆積した ^{137}Cs の 4~7 割が 10 cm よりも深い層に移行していることを指摘している。また、海底土からの溶出・脱着は、河口域から沖合海域において生じていることが報告されており^{18, 19)}、中でも Otosaka *et al.*¹⁸⁾ は海底土に含まれる ^{137}Cs の年間の溶出率を総量の概ね 6% と推定している。加えて、台風等の攪乱により再浮遊した粒子が水平方向に輸送されることが報告されている^{20, 21)}。

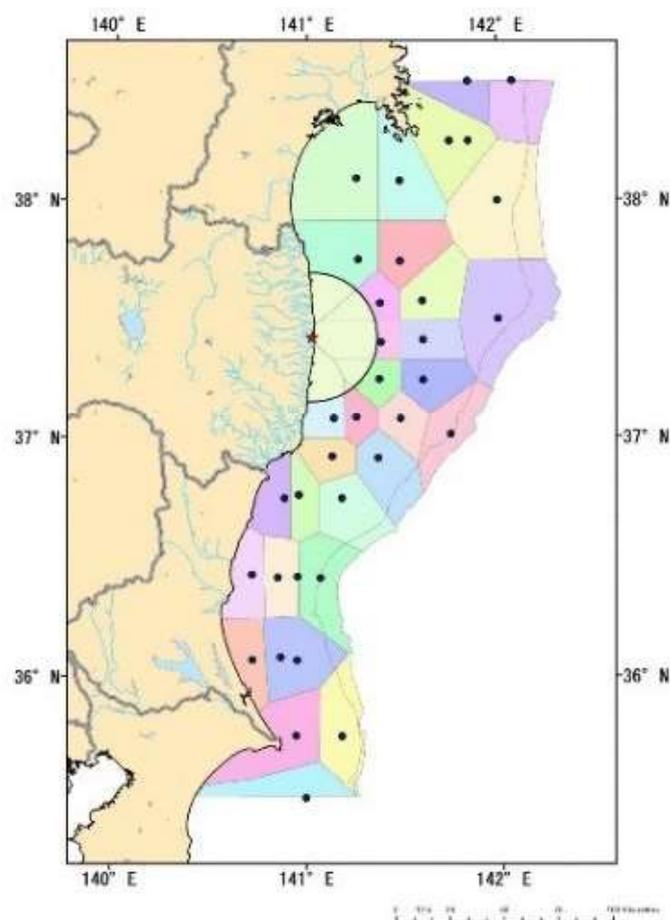


図 2-1-7 沖合海域表層海底土の ^{137}Cs 総量推定の対象とした海域とボロノイ図

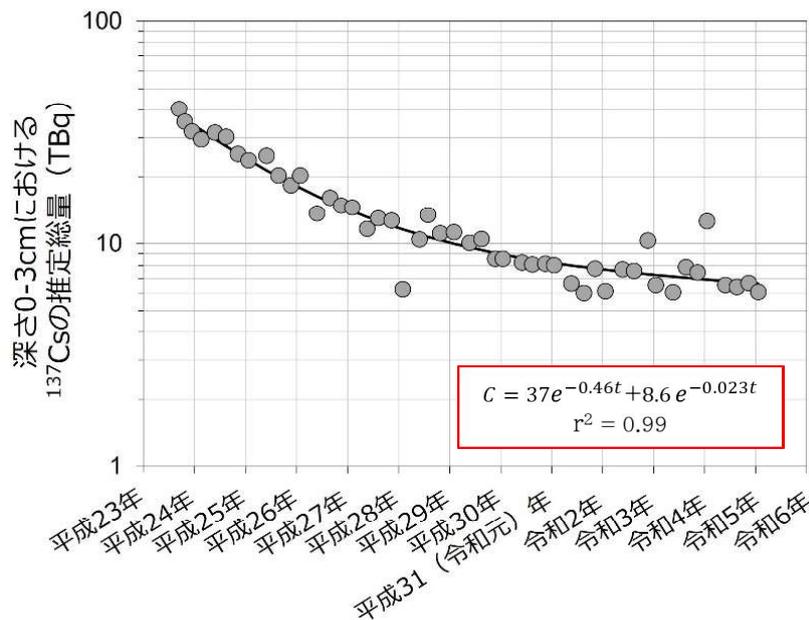


図 2-1-8 対象海域の表層海底土の¹³⁷Cs 推定総量の時系列変化

(注) 図中黒線は2重指数関数による近似曲線を示す。

2-1-2-5. 柱状海底土試料中の¹³⁴Cs・¹³⁷Cs鉛直分布

海底土試料中の¹³⁴Cs・¹³⁷Csの鉛直分布を把握するために、測点 M-E1 で採取した柱状海底土試料を1.5～3 cm ごとにスライスし、¹³⁴Cs・¹³⁷Cs濃度を測定した。結果を図 2-1-9 に示す。なお、同測点における柱状海底土の採取は平成 24 年度から 27 年度にかけては年 2 回実施されており、本調査では 7 年ぶりの採取となった。

平成 24 年度から 27 年度の調査では、海底土の表層 3 cm 以深からも¹³⁴Cs・¹³⁷Csが検出され、両核種の鉛直分布は類似していた。一方で、令和 4 年度の調査では¹³⁷Csのみ検出され、¹³⁴Csは検出下限値未満であった。両核種の放射性濃度のピークは、平成 24～26 年度では深さ 0～5 cm にあったが、平成 27 年度には深さ 5～7 cm となっており、下層への移行が示唆される。令和 4 年度では¹³⁷Csの分布が深さ 0～15 cm においてほぼ均一化するに至った。

本調査により、海底土試料に含まれる¹³⁴Cs・¹³⁷Cs放射能は、3 cm 以深にも検出されることが明らかになった。そのため、3 cm 以深を考慮したインベントリによる比較・評価を行う必要がある。そこで、章 2-1-2-4 で述べた方法を用いて各層における¹³⁷Csインベントリを算出し、深さ 0～6 cm^{※1}を上層、6～12 cm を下層として積算し、層間比較を行った。

測点 M-E1 で採取した柱状海底土試料の上層・下層に含まれる¹³⁷Csインベントリの時系列変化を図 2-1-10 に示す。平成 24 年 5 月時点では下層は上層の 1/6 程度であった。以後、表層のインベントリは経時的に減少している一方で、下層では時間経過とともに増加し、

※1 調査開始時には既に 3～6 cm への¹³⁷Cs移行が進んでおり、時系列的な変化を明確にするため、深さ 3 cm (表層海底土の採取深度) ではなく、6 cm で層別した。

平成 27 年 10～11 月調査において上層のインベントリを上回った。その後は、上層・下層ともに減少しており、令和 4 年度 8 月調査では平成 24 年 5 月調査の 2 割程度まで減少した。これらの結果から、海底土表層や上層に存在する ^{137}Cs の下層への移行は無視できないと考えられる。

沓掛ら²²⁾は福島沖において想定される海底上へ沈降物が堆積する速度 (0.5 cm/年以下) のみでは下層への急速な移行を説明できないことを指摘した。図 2-1-9 に示された ^{134}Cs ・ ^{137}Cs 濃度のピークは事故後 4 年間で 5～7 cm まで下降しており (1 cm/年以上)、堆積速度を大幅に上回ることから、堆積とは別の ^{134}Cs ・ ^{137}Cs 下降要因が示唆される。この要因として、Otosaka & Kobayashi²³⁾ は海底土の空隙への浸透及び生物攪乱を、沓掛ら²²⁾は海底土の粒度組成に依存する ^{137}Cs 吸脱着を示唆しており、本補完調査の結果と合致する要因の特定が今後の課題である。

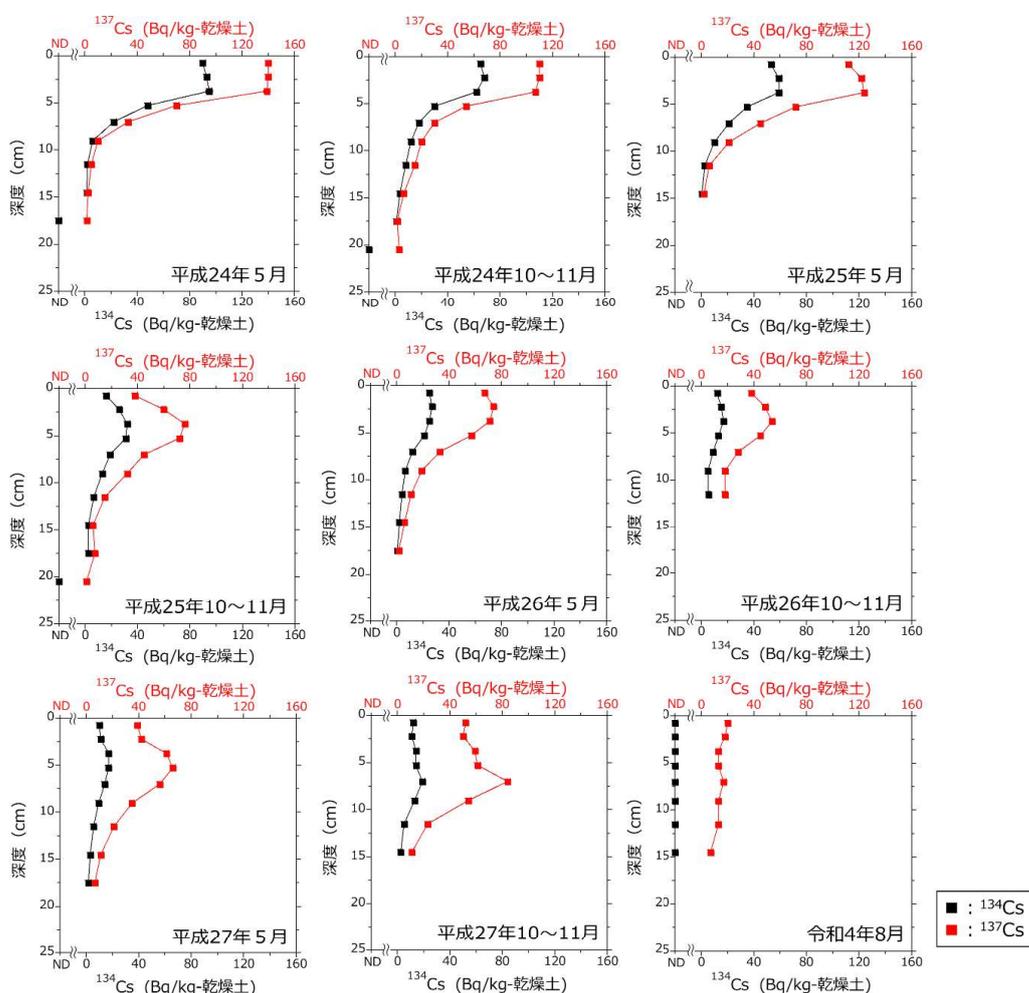


図 2-1-9 平成 24～27 年度・令和 4 年度の測点 M-E1 における ^{134}Cs ・ ^{137}Cs 濃度の鉛直分布
 (注) NDは検出下限値(令和 4 年度平均値 ^{134}Cs :0.81 Bq/kg-乾燥土、 ^{137}Cs :0.78 Bq/kg-乾燥土)未滿を示す。

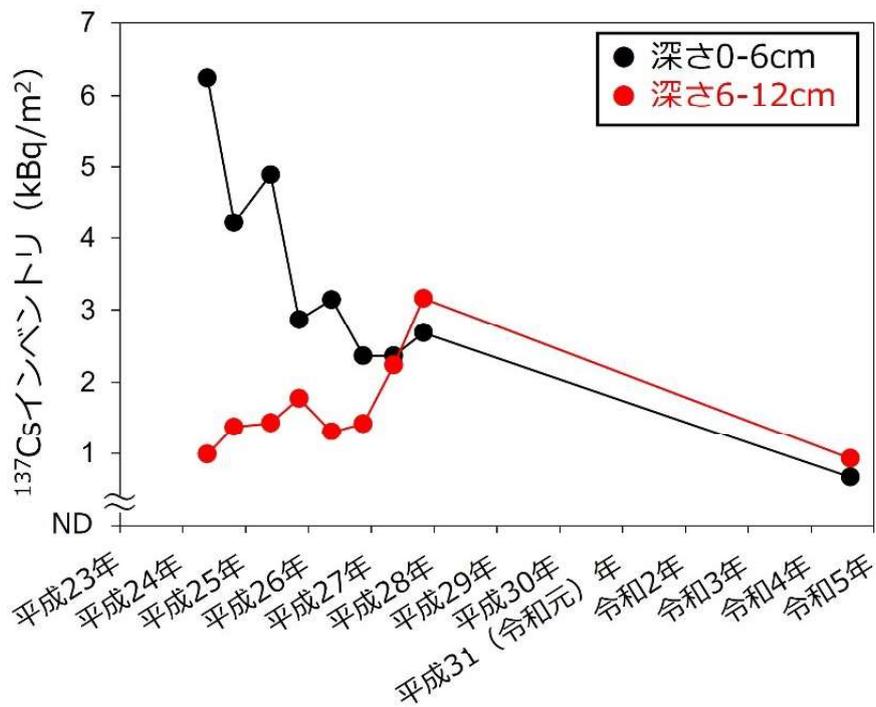


図 2-1-10 平成 24～27 年度・令和 4 年度の測点 M-E1 における、海底土の上・下層の ^{137}Cs インベントリの時系列変化

2-1-3. 引用文献

- 1) 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. *Journal of Environmental Radioactivity*, **111**, 100–108.
- 2) 帰山秀樹・安倍大介・重信裕弥・藤本賢・小埜恒夫・中田薫・森田貴己・渡邊朝生 (2014). 東京電力福島第一原子力発電所事故以降の日本周辺海域における海水の ^{134}Cs および ^{137}Cs 濃度. *海の研究*, **23**, 127–146.
- 3) 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*, **62**, 455–474.
- 4) 青山道夫 (2021). 放出された放射能を追いかけてわかったこと (2) —福島沿岸および外洋でのセシウムとトリチウム. *科学*, **91**, 406–412.
- 5) Takahata, N., Tomonaga, Y., Kumamoto, Y., Yamada, M. and Sano, Y. (2018). Direct tritium emissions to the ocean from the Fukushima Dai-ichi nuclear accident. *Geochemical Journal*, **52**, 211–217.
- 6) 町田昌彦・岩田亜矢子・山田進・乙坂重嘉・小林卓也・船坂英之・森田貴己 (2022). 福島第一原発港湾から流出したトリチウム量の経時変化の推定; 流出量変化の要因分析と福島事故前後の日本および世界の原子力施設との排出量比較. *日本原子力学会和文論文誌*, **21**, 33–49.
- 7) Kusakabe, M., Inatomi, N., Takata, H. and Ikenoue, T. (2017). Decline in radiocesium in seafloor sediments off Fukushima and nearby prefectures. *Journal of Oceanography*, **73**, 529–545.
- 8) 工藤なつみ・及川真司・日下部正志 (2020). 日本沿岸域における海底土の ^{137}Cs 放射能濃度と化学的及び物理的要素との相関関係. *分析化学*, **69**, 599–606.
- 9) Kambayashi, S., Zhang, J. and Narita, H. (2017). Spatial assessment of radiocaesium in the largest lagoon in Fukushima after the TEPCO Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Station accident. *Marine Pollution Bulletin*, **15**, 344–352.
- 10) JAEA-Technology (2019). 平成 30 年度東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の分布データの集約.
- 11) Okumura, T., Yamaguchi, N., Dohi, T., Iijima, K. and Kogure, T. (2019). Dissolution behaviour of radiocaesium-bearing microparticles released from the Fukushima nuclear plant. *Scientific Report*, **9**, 3520.
- 12) 奥村大河 (2021). 福島第一原発事故により放出された放射性セシウム含有微粒子の内部構造と物理化学的性質. *地球化学*, **55**, 31–40.
- 13) 磯野良介・高田兵衛・山田裕・稲富直彦・渡部輝久・鈴木千吉・御園生淳・森園繁光・日下部正志 (2015). 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 ^{137}Cs 及び ^{90}Sr 濃度の推移. 海生研研報, **20**, 57–65.
- 14) 高田兵衛・日下部正志・稲富直彦・長谷川一幸・池上隆仁・渡邊幸彦・渡部輝久・鈴木千吉・御園生淳・森蘭繁光 (2016). 日本全国の海水・海底土中放射性 Cs の長期変遷. 海生研研報, **22**, 17–24.
 - 15) Berner, R.A. (1980). Early diagenesis: a theoretical approach. Princeton University Press, Princeton NJ.
 - 16) 成田尚史・乙坂重嘉 (2018). 堆積物の物理的性質 (含水率, 現場密度および空隙率). 日本海洋学会 (編), 海洋観測ガイドライン-第四版-, G502JPr1:001-012. https://kaiyogakkai.jp/jos/guide_line/jp/Vol1_10JP20180801protected.pdf (令和 5 年 2 月閲覧)
 - 17) Otsuka, S. (2017). Processes affecting long-term changes in ^{137}Cs concentration in surface sediments off Fukushima. *Journal of Oceanography*, **73**, 559-570.
 - 18) Otsuka, S., Kambayashi, S., Fukuda, M., Tsuruta, T., Misonou, T., Suzuki, T. and Aono, T. (2020). Behavior of radiocesium in sediments in Fukushima coastal waters: Verification of desorption potential through pore water. *Environmental Science and Technology*, **54**, 13778–13785.
 - 19) Kambayashi, S., Zhang, J. and Narita, H. (2021). Significance of Fukushima-derived radiocaesium flux via river-estuary-ocean system. *Science of The Total Environment*, **793**, 148456.
 - 20) Otsuka, S., Nakanishi, T., Suzuki, T., Satoh, Y. and Narita, H. (2014). Vertical and Lateral Transport of Particulate Radiocesium off Fukushima. *Environmental Science and Technology*, **48**, 12595–12602.
 - 21) Buesseler, K. O., German, C. R., Honda, M. C., Otsuka, S., Black, E. E., Kawakami, H., Manganini, S. J. and Pike, S. M. (2015). Tracking the fate of particle associated Fukushima Daiichi cesium in the ocean off Japan. *Environmental Science and Technology*, **49**, 9807–9816.
 - 22) 沓掛洋志・竹内一浩・中田喜三郎 (2013). 福島第一原子力発電所より放出された ^{137}Cs の海底堆積過程の解析. *Journal of Advanced Marine Science and Technology Society*, **19**, 13–25.
 - 23) Otsuka, 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. *Environmental Monitoring and Assessment*, **185**, 5419–5433.

2-2. 東京湾

2-2-1. 海水

2-2-1-1. 文献調査

本モニタリング事業における解析調査の参考とするために、東京湾の海水中における ^{134}Cs ・ ^{137}Cs の存在量や動態等に関連する文献資料の収集整理を行った。

潮汐による干満を平均で1 mとした場合、上げ潮時に湾口部から9.6億 m^3 流入、引き潮時に同量が太平洋へと流出することから、潮の満ち引きによって1日で交換する水量は、東京湾全体の1/8になる¹⁾。河川から流入する水量は0.26億 $\text{m}^3/\text{日}$ と見積もられ、海水交換量の1/37に相当する¹⁾。東京湾へ流入する主な河川は、江戸川、荒川、多摩川、鶴見川等があり、流域面積は荒川が2,940 km^2 で最も広く、次いで多摩川が1,240 km^2 であった²⁾。平成24年までの10年間の年平均流量を整理した結果では、江戸川が約67 m^3/sec 、荒川が約59 m^3/sec 、多摩川が約28 m^3/sec 、鶴見川が約6 m^3/sec であり、これらの河川を通じ年間約50億 m^3 の淡水が東京湾に流入していた²⁾。降雨等を含めた淡水総流入量は、年間約140億 m^3 の淡水流入があると推定されている²⁾。

三崎（神奈川県側）から金谷（千葉県側）よりも湾の外側では、水塊は非常に均質な状態となっていた一方、江戸川、荒川等の流量が多い河川が集中する東京湾の北西側において、塩分が低くなる傾向があり、変動はあるものの顕著な経年変化は見られないとされる²⁾。東京湾の湾奥部では、増水による鉛直循環の発達で表層の低塩分水の流出と底層の高塩分（高酸素）水の流入・湧昇を引き起こして、淡水と栄養塩の供給増加に伴う塩分低下・貧酸素化の影響を相殺するとされる³⁾。

江戸川河川水の ^{134}Cs ・ ^{137}Cs 濃度と河口流量に基づく推定では、東京湾への放射性物質流入量は、事故の翌年以降では事故発生年の14~19%と概算された⁴⁾。江戸川の ^{134}Cs ・ ^{137}Cs は本流の利根川流域の堆積物に由来しており、その量を踏まえると、減少には時間を要すると考えられる⁴⁾。1日の干満によって東京湾全体の1/8の海水が交換されるとする試算に基づくと、河川を通じて湾内に流入した ^{134}Cs ・ ^{137}Cs は速やかに拡散・移送されると考えられるが、粒子態の ^{134}Cs ・ ^{137}Cs については、沈降した後に海底土中の濃度変動に影響すると考えられる。

2-2-1-2. ^{137}Cs 時系列変化

東電福島第一原発事故前から調査が行われてきたK-T1の観測データを含め、令和4年度までに東京湾の海域モニタリングで得られた海水試料の ^{137}Cs 濃度の時系列データを図2-2-1に示す。

東電福島第一原発事故前から観測が行われている湾奥のK-T1の ^{137}Cs 濃度は、平成23年の事故後の観測では51.4 mBq/L に上昇したが、年変動はあるものの概ね右肩下がり減少している。一方で、湾奥部の測点であるE-T2、E-T3、E-T4の令和4年度モニタリングの結果では、わずかに上昇傾向が認められた(図1-4-17、1-4-18)。今後これらの測点についてはモニタリング

データを注視する必要がある。

モニタリングを実施した測点の全体の傾向を把握するために、平成 24 年 7 月から各観測期間の幾何平均^{※1}を計算して、図 2-2-1 中にプロットした。

平成 24 年からの約 9 年半で、幾何平均値は 16 mBq/L から 2.4 mBq/L まで指数関数的に減少している。幾何平均値の時系列について、2 重指数関数^{※2}的な減少を仮定し、以下の式を用いた^{5, 6)}。

$$C(t) = a e^{-\frac{\ln(2)}{T_1} \times t} + b e^{-\frac{\ln(2)}{T_2} \times t} \quad \dots (1)$$

パラメータ等は以下のとおりとした。

C (t) : 時刻 t における ¹³⁷Cs 濃度 (mBq/L)

a : t=0 における短期成分濃度 (mBq/L)

T₁ : 短期成分の実効半減期 (年)

t : 東電福島第一原発事故からの年数 (年)

b : t=0 における長期成分濃度 (mBq/L)

T₂ : 長期成分の実効半減期 (年)

このうち、a、b、T₁、T₂ は未知パラメータである。これらについて、以下の収束条件を満たし、残差二乗和が最小となるよう回帰計算を行った。なお、収束条件の設定については、真値と推定される値を含む、十分広い範囲を設定した。

$$0 < a < 50$$

$$0 < b < 25$$

$$1.0 < T_1 < 10$$

$$10 < T_2 \leq 30.1$$

回帰計算の結果を図 2-2-1 に示す。短期成分及び長期成分の実効半減期は、それぞれ 1.9±0.3 年及び 30.1 年と計算された。令和 4 年時点で、短期成分は事故後 6 半減期、長期成分は事故後 0.4 半減期を経過したところであり、近年における長期成分の優占が示唆され

※1 幾何平均値は、n 個の測定値に対して、その総乗の n 乗根で定義される数値。指数関数的減衰関数で全体の傾向を表す際には、幾何平均値が算術平均値（本文中では平均値と記す）の代替として用いられる。

※2 ここでは、実効半減期の異なる 2 成分（短期成分と長期成分）の指数関数による一次結合により定義される曲線を指す。このように記述する考え方については、濃度の減衰に、移行拡散による移動、溶脱・着脱等存在形態の変化、物理的崩壊等の複数の要因が関わり、それらが 2 つの成分の減衰パラメータに配分、包含されると見なすものである(各要因の配分・寄与率等は推定できないため言及していない)。なお、減衰の鈍化要因として放射性核種の新たな付加がある場合も想定出来るが、今回は相対的にその影響が無視できるとみなしている。

る。短期成分の短い実効半減期は、 ^{137}Cs の拡散による減少を反映していると考えられる。一方で、 ^{137}Cs が広範囲に低濃度で存在する場合、拡散による濃度低下は起こりにくく、減衰速度は物理学的半減期に近づいていく。今後は長期成分の寄与率増加による減衰速度の鈍化が想定されるが、現時点（令和4年度幾何平均：2.4 mBq/L）で既に事故前（1.6 mBq/L）に近い ^{137}Cs 濃度である。今後は事故前に日本周辺の各海域（北海道沖、福島県沖、福井県沖、鹿児島県沖等）で報告されていた（実効半減期：12~20年⁷⁾、15~20年⁸⁾）のと同様に、物理学的半減期（=長期成分の実効半減期）よりやや早く漸減し続けると推察される。

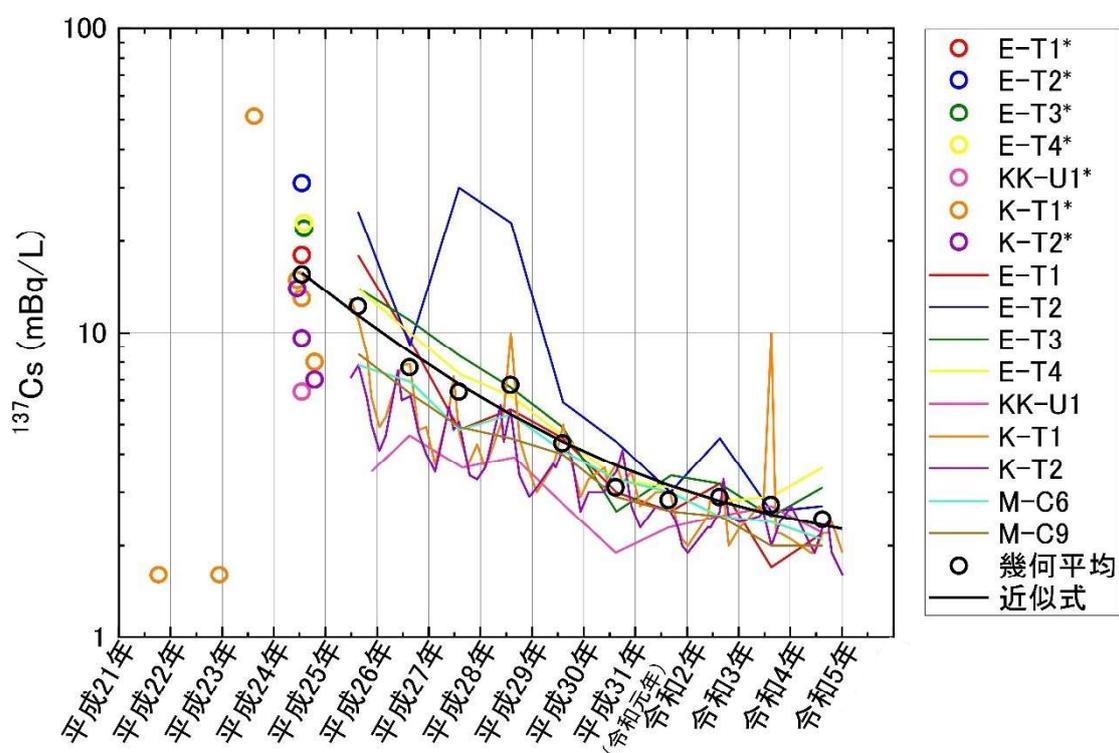


図 2-2-1 東京湾海水の ^{137}Cs 濃度の時系列変化

* 平成24年度以前の値は文部科学省⁹⁾・千葉県¹⁰⁾・環境省¹¹⁾・海上保安庁¹²⁾の調査事業を参照したため、それ以降の値とは異なる形式で示した。

2-2-1-3. 湾中央部における ^{137}Cs 変動要因（懸濁粒子）

章 2-2-1-2 の海水中の ^{137}Cs 濃度の時系列変化（図 2-2-1）によると、K-T1・K-T2（以下、「湾中央部」という）では短期的な変動を示しながら減少していた。この濃度変動の原因として、陸域からの流入や海底土の再懸濁等による ^{137}Cs 付着粒子の流入量の変動が考えられる。本事業では平成 30 年度から濁度^{※1} 観測を実施しており、 ^{137}Cs 濃度との関係を検証した。なお、本事業では海水をろ過していないため、 ^{137}Cs 濃度は溶存態（イオン等のフィルターを通過する状態）と粒子態（粒子に付着しフィルターを通過しない状態）の合算値となっている。

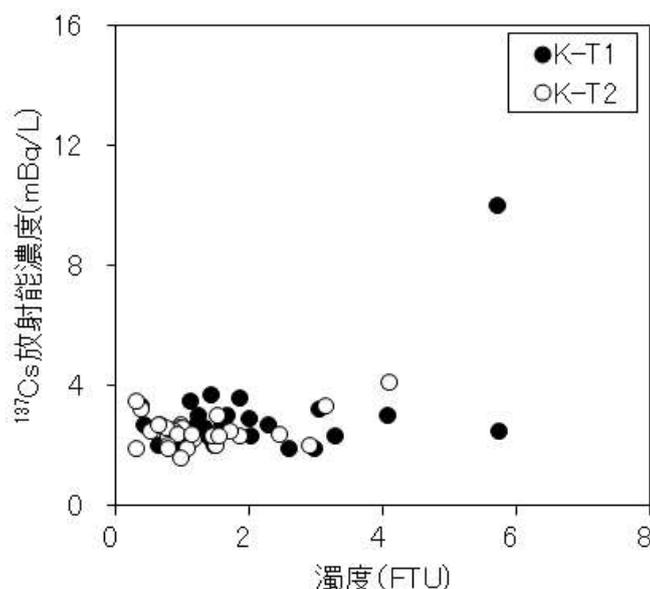


図 2-2-2 平成 30 年度から令和 4 年度の湾中央部海水における ^{137}Cs 濃度と濁度の関係

図 2-2-2 に平成 30 年度から令和 4 年度事業の湾中央部における海水試料の ^{137}Cs 濃度と採水時の水深 1 m 付近の濁度（ホルマジン換算^{※2}）の関係を示す。令和 3 年 8 月の調査時には高濁度（5.7 FTU^{※2}）かつ高 ^{137}Cs 濃度（10 mBq/L）であり、同時期の公共用水域調査の速報値においても平常時の 3 倍程度高い濁度が報告されているため¹¹⁾、豪雨等による ^{137}Cs 付着懸濁粒子の供給が示唆される。その一方で、平成 30 年度から令和 4 年度において、 ^{137}Cs 濃度と濁度の相関係数は

※1 濁度(Turbidity)は、水の濁りの程度を数値で表したものである。精製水 1 L に対し、標準物質(カオリンやホルマジン等)を 1 mg 含ませ、均一に分散させた懸濁液の濁りが濁度 1 度と定義される。このとき用いる標準物質によって濁りの状態は異なるため、「度(カオリン)や度(ホルマジン)」のように物質を記述する必要がある。

※2 本事業では、平成 30 年度からホルマジン標準液を用いて校正した観測機器で濁度観測を実施している。単位の FTU は Formazin Turbidity Unit の略であり、ホルマジン濃度 1 mg/L の水溶液における濁度が 1 FTU と定義されている。ホルマジン換算の濁度の単位名は統一されておらず、文献によっては Nephelometric Turbidity Units (NTU)あるいは Formazin Nephelometric Unit (FNU)と呼ばれる場合もあるが、どちらの定義も FTU と同じである。

K-T1:r=0.03(令和3年度8月期調査を除いた値)

K-T2:r=0.34(p=0.07)

となり、有意な相関が認められなかった。夏季の東京湾奥における生物起源粒子 (^{137}Cs 濃度が低いと考えられる) の濁度への寄与率が8割以上と報告されており¹³⁾、 ^{137}Cs が付着していない懸濁粒子による濁度上昇も考えられる。 ^{137}Cs 付着懸濁粒子の影響評価には、濁度上昇に関係する粒子を特定する必要があり、今後の課題である。

2-2-1-4. 湾央部における ^{137}Cs 変動要因 (河川流量・降水量)

令和元年の東日本台風(台風第19号・ハギビス)の後に宮城県や福島県の沿岸域において、海水 ^{137}Cs 濃度(溶存態・粒子態ともに)の一時的な増加が確認されている^{14, 15)}。東京湾においても降雨等に起因した河川流量の増加により海水の ^{137}Cs 濃度が増加する可能性がある。そこで、水文水質データベース¹⁶⁾を用い、東京湾へ流入する河川のうち、荒川、江戸川、多摩川の河川流量を積算して東京湾への合計流入量を算出した。なお、引用した観測所と所在地は以下のとおりである。

荒川：太郎右衛門橋(所在地：埼玉県桶川市柏原)

江戸川：流山(所在地：千葉県流山市流山)

多摩川：石原(所在地：東京都調布市多摩川三丁目)

図2-2-3に ^{137}Cs 濃度と河川流量、図2-2-4に ^{137}Cs 濃度と地域気象観測システム(AMeDAS)¹⁷⁾のデータに基づく江戸川臨海観測点における降水量の時系列変化を示す。降水量・河川流量が増加した後に ^{137}Cs 濃度が上昇する明瞭な関係性は確認されなかった。一方で、 ^{137}Cs 濃度と塩分の関係を見ると(図2-2-5)、湾外の静岡海域から高塩分低 ^{137}Cs 濃度が報告されている^{20~24)}のに対し、K-T1において令和3年8月に顕著な低塩分かつ高 ^{137}Cs 濃度が確認されたことから、河川経由の顕著な ^{137}Cs 流入が示唆される。しかし他の海水試料については塩分と ^{137}Cs の顕著な関係は確認されなかった。陸域に沈着した ^{137}Cs の浸食・河川輸送は必ずしも河口域の流量・降水量を反映したものではなく、 ^{137}Cs が局在する地域¹⁸⁾の降水量についても考慮する必要がある。また、多摩川水系野川での研究では、 ^{137}Cs を吸着する有機物の分解により ^{137}Cs が放出されていることが示唆されており¹⁹⁾、陸域から東京湾への ^{137}Cs 輸送過程は極めて複雑と考えられる。加えて東京湾では、1日の間に海水の1/8が潮汐の影響で交換されるため¹⁾、流入量増加の数日後に採水した場合、すでに ^{137}Cs が湾外に拡散している可能性もある。湾奥部における ^{137}Cs 変動要因については、今後より詳細な調査が必要である。

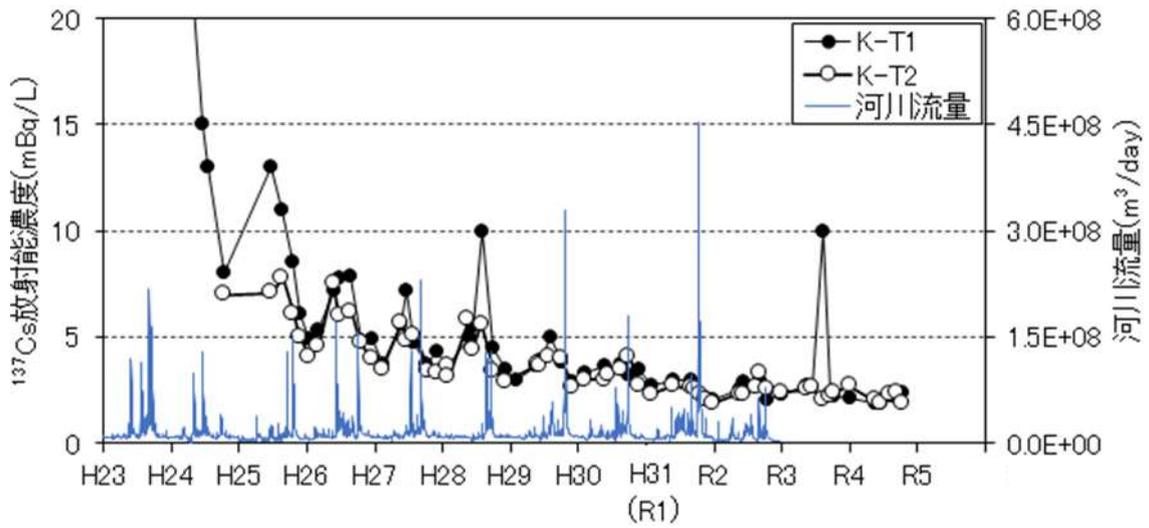


図 2-2-3 湾中部海水の ^{137}Cs 濃度と東京湾流入 3 河川（多摩川、荒川、江戸川）

流量合計値¹⁶⁾の時系列変化

(注) 令和3年以降は3河川流量合計データが本報告書作成時（令和4年3月）に公表前であったため図中に表記せず。

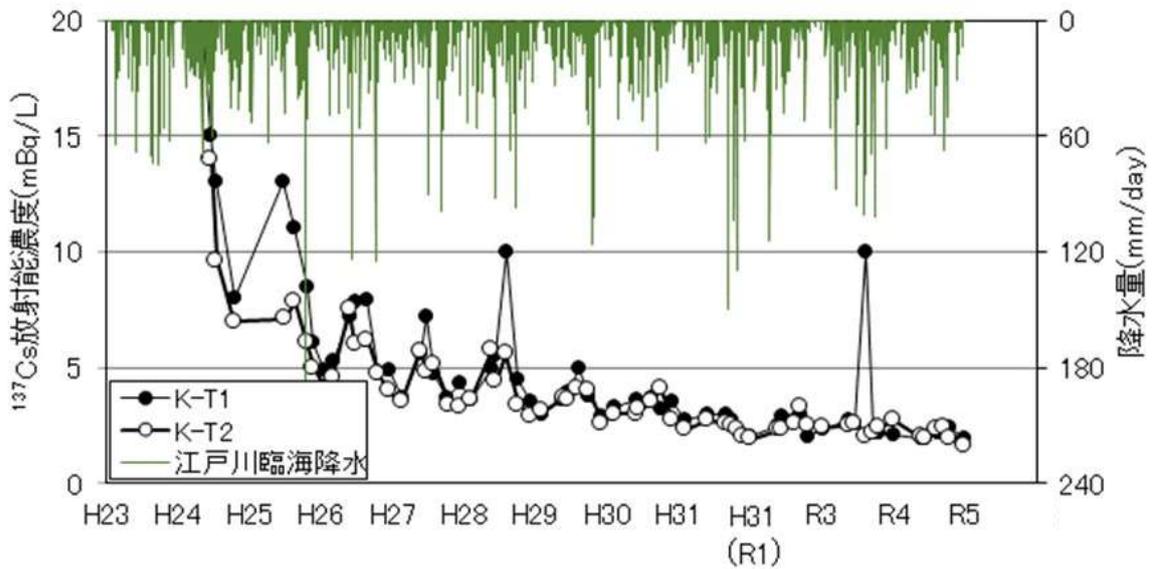


図 2-2-4 湾中部海水の ^{137}Cs 濃度と地域気象観測システム(AMeDAS)の江戸川臨海観測点日降水量¹⁷⁾の時系列変化

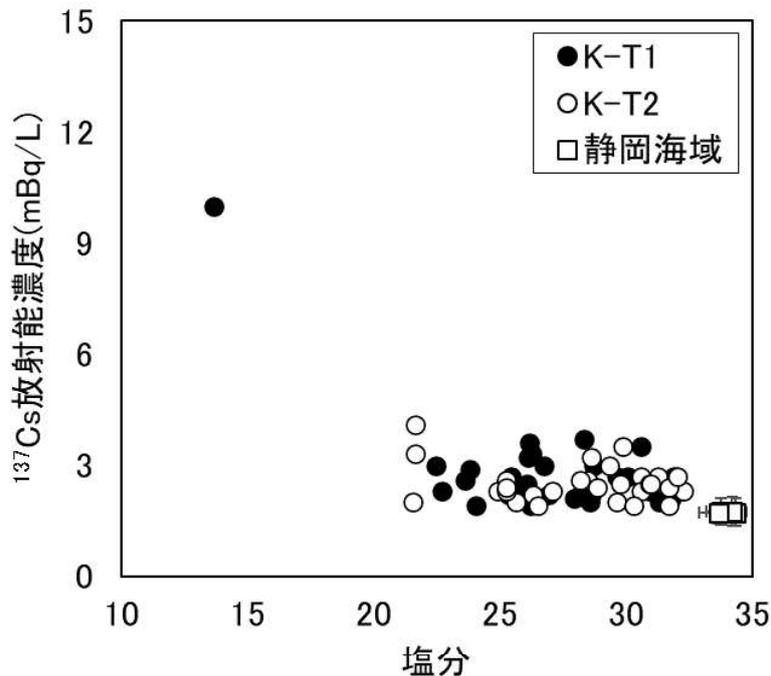


図 2-2-5 湾中部・湾外（静岡海域）の海水における ^{137}Cs 濃度と塩分の関係

（注 1）静岡海域の値は原子力施設等防災対策等委託費（海洋環境における放射能調査及び総合評価）事業^{20~24}）を参照した。

（注 2）静岡海域については、湾外における一般的な ^{137}Cs 濃度・塩分を示すために、各年度の平均値と、測点間での標準偏差を示した。

2-2-1-5. 湾口部における ^{137}Cs 変動要因

東京湾における海水中の ^{137}Cs 変動要因を考察するために、東京湾湾口部（KK-U1）と湾外（静岡海域、原子力施設等防災対策等委託費（海洋環境における放射能調査及び総合評価）事業で調査）^{20~24}）の表層海水における ^{137}Cs 濃度の時系列変化を比較した（図 2-2-6）。

平成 24 年度には、KK-U1 の ^{137}Cs 濃度は湾外の静岡海域と比べおよそ 3 倍の値（6.4 mBq/L）であったが、その後は漸減傾向を示し、平成 29 年度以降は湾外海水と同程度であった。一方で、平成 31（令和元）年度以降は KK-U1 において湾外よりも ^{137}Cs 濃度が 0.5 mBq/L ほど高い値となっている。KK-U1 では低塩分の際に最大 0.8 mBq/L ほど濃度が上昇しており（図 2-2-7）、湾奥部海水（陸域の影響により、相対的に低塩分・高 ^{137}Cs 濃度）が多く流入した際に、湾口部の ^{137}Cs が増加すると考えられる。東京湾では、1 日の干満で海水の 1/8 が交換しており、それに伴う湾奥部・湾外海水の移動が ^{137}Cs 濃度の変動に寄与している可能性がある¹⁾。

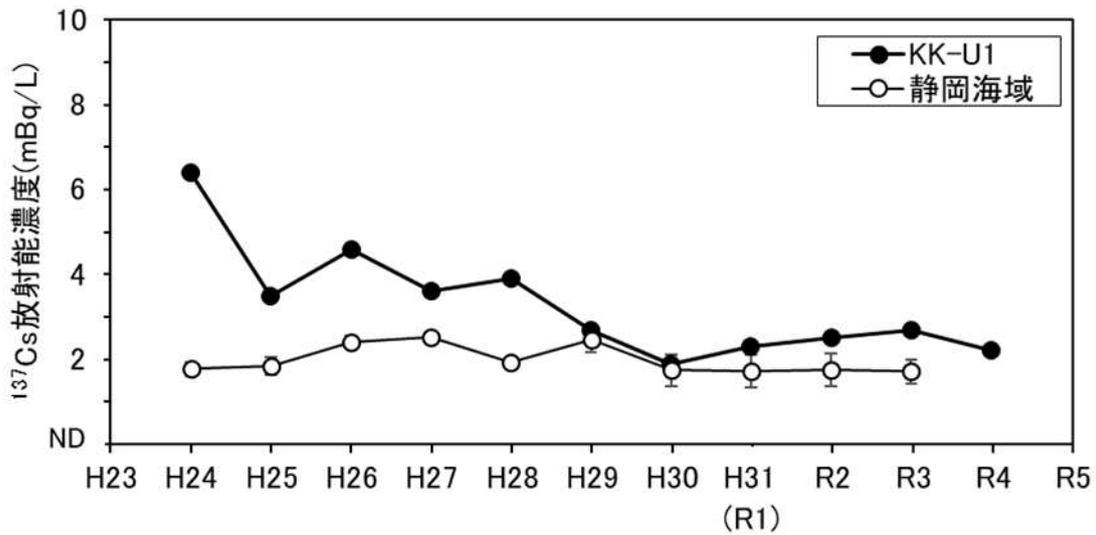


図 2-2-6 東京湾湾口部・湾外（静岡海域）の海水における ¹³⁷Cs 濃度の時系列変化
 (注 1) 静岡海域の値は原子力施設等防災対策等委託費（海洋環境における放射能調査及び総合評価）事業^{20~24)}及び Takata *et al.*²⁵⁾を参照した静岡海域の値は原子力施設等防災対策等委託費（海洋環境における放射能調査及び総合評価）事業^{20~24)}を参照した。
 (注 2) 静岡海域では、毎年 4 測点で調査が実施されているため、全測点の平均値と測点間での標準偏差を示した。

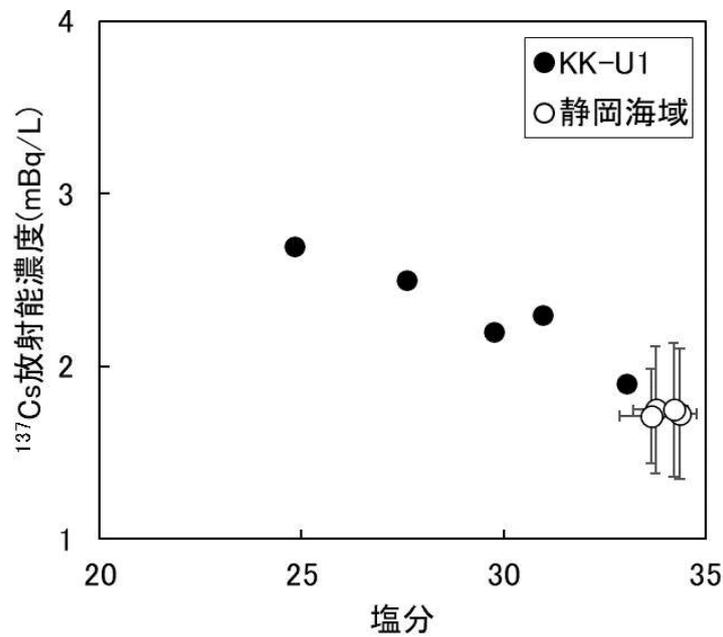


図 2-2-7 平成 30 年度から令和 4 年度事業における東京湾湾口部・湾外（静岡海域）の海水における ¹³⁷Cs 濃度と塩分の関係

(注 1) 静岡海域の値は原子力施設等防災対策等委託費（海洋環境における放射能調査及び総合評価）事業^{20~24)}を参照した。
 (注 2) 静岡海域については、湾外における一般的な ¹³⁷Cs 濃度・塩分を示すために、各年度の平均値と、測点間での標準偏差を示した。