

資 料

福島第一原子力発電所事故後4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}・稲富直彦^{*1§}・高田兵衛^{*1}・長谷川一幸^{*1}・池上隆仁^{*1}・渡邊幸彦^{*2}・
山田 裕^{*3}・渡部輝久^{*3}・鈴木千吉^{*3}・御園生 淳^{*3}・森菌繁光^{*3}・日下部正志^{*1}

¹³⁷Cs and ⁹⁰Sr Concentration Changes in Seawater and Bottom Sediments Collected from
2011 to 2014 around Japan after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant Accident

Ryosuke S. Isono^{*1}, Naohiko Inatomi^{*1§}, Hyoe Takata^{*1}, Kazuyuki Hasegawa^{*1},
Takahito Ikenoue^{*1}, Yukihiko Watanabe^{*2}, Hiroshi Yamada^{*3}, Teruhisa Watabe^{*3},
Chiyoshi Suzuki^{*3}, Jun Misonoo^{*3}, Shigemitsu Morizono^{*3} and Masashi Kusakabe^{*1}

要約: 海洋生物環境研究所では1984年以降、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を継続的に調査している。福島第一原発事故後4年目の2014年度における原子力発電所沖合海域及び、福島第一原子力発電所周辺海域における海水中の¹³⁷Cs濃度は、多くの海域で事故前と同程度の値であったが、福島県を中心とした隣接県では事故前の水準を超える値が認められ、福島第一原子力発電所から10km圏内の表層水は、30km圏外の濃度より一桁程度高い水準が継続していた。一方、⁹⁰Sr濃度は、全ての海域(10km圏内では計測せず)で、ほぼ事故前の水準に低下した。2014年度における原子力発電所沖合海域の海底土中の¹³⁷Cs濃度は、福島県を中心とした太平洋沿岸の海域(宮城、福島第一、福島第二、茨城、静岡)と新潟海域ではなお、事故前5年間の値を超えるレベルが維持されていた。

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 the monitoring survey 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. Four years after the accident, the concentrations of ¹³⁷Cs in seawater and bottom sediments off Fukushima were still maintained at the level one order of magnitude higher than those observed before the accident. The concentration of ⁹⁰Sr in seawater decreased to the pre-accident levels in all monitoring stations.

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

(2015年8月5日受付, 2015年9月30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)

*2 公益財団法人海洋生物環境研究所 実証試験場 (〒945-0017 新潟県柏崎市荒浜四丁目7-17)

*3 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)

§ E-mail: inatomi@kaiseiken.or.jp

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(以下、原子力発電所等周辺海域と示す)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、福島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1983～2013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; 磯野ら, 2015)。本報告では主に2014年度(2014年2月～2015年2月)の調査結果をもとに、福島第一原発事故に由来する核種について事故後4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26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 調査海域、測点配置、試料採取の方法、放射性核種分析法等は、各調査の開始当初より同様に継続されており、以下では、2014年度の調査の概要を示す。

全国の17原子力発電所沖に合計15海域(原子力発電所等周辺海域)を設定し(第1図)、各海域にそれぞれ4測点が設けられている。これらは、1983年以降の調査開始時に設定された定点であり2014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、新たな観測点が福島モニタリング海域に設定されており、2014年度は同原発から30km圏外に位置する沖合海域32点と外洋海域10点、10km圏内の沿岸海域7点において調査を行った(第2図)。第2図Cには、原子力発電所等周辺海域調査として、事故前から設けられている宮城、福島第一、福島第二及び茨城海域の定点を併せて示した。

海水試料の採取 原子力発電所等周辺海域では2014年5～6月に1回、1試料当たり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(海面から1m下)と下層(海底

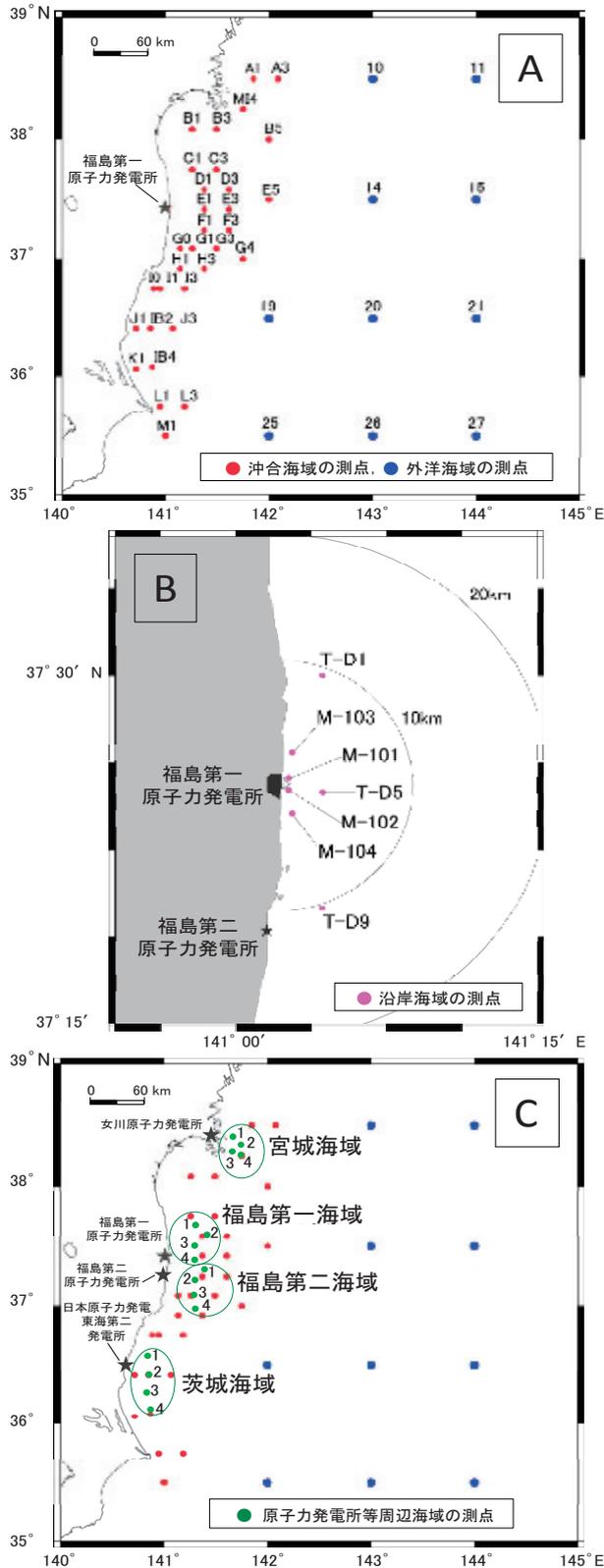


第1図 全国17ヶ所の原子力発電所沖に設定した15の調査海域(原子力発電所等周辺海域)。

から10～40m上)の2層について行った。福島モニタリング海域のうち沖合海域では5月、8月、11月及び2015年1～2月の4回、外洋海域では5月、11月の2回、沿岸海域では毎月1回、1試料当たり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(海面から0.5m下)のみから採水を行った。いずれの海水試料も濾過はせず、海水1L当たり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 原子力発電所等周辺海域では全測点において、海水試料採取後にエクスマンバジ採泥器またはボックスコアラ(一辺45cm四方ステンレス製のボックスにより最大40cm程度の深さの柱状試料が採取される)で海底土を採取した。福島モニタリング海域では沖合海域の32測点において、海水試料採取後にマルチプルコアラ(内径8cmのアクリルパイプ8連により柱状試料を採取し水密を保つ機構により攪乱の少ない試料が採取される)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



第2図 福島第一原子力発電所周辺の沖合（福島モニタリング海域）に設定した測点（2014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: 原子力発電所等周辺海域の宮城、福島第一、福島第二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第2図Aと同じ。

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0.3 mBq/L，⁹⁰Srが約0.4 mBq/L，海底土では¹³⁷Csが約0.7 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。

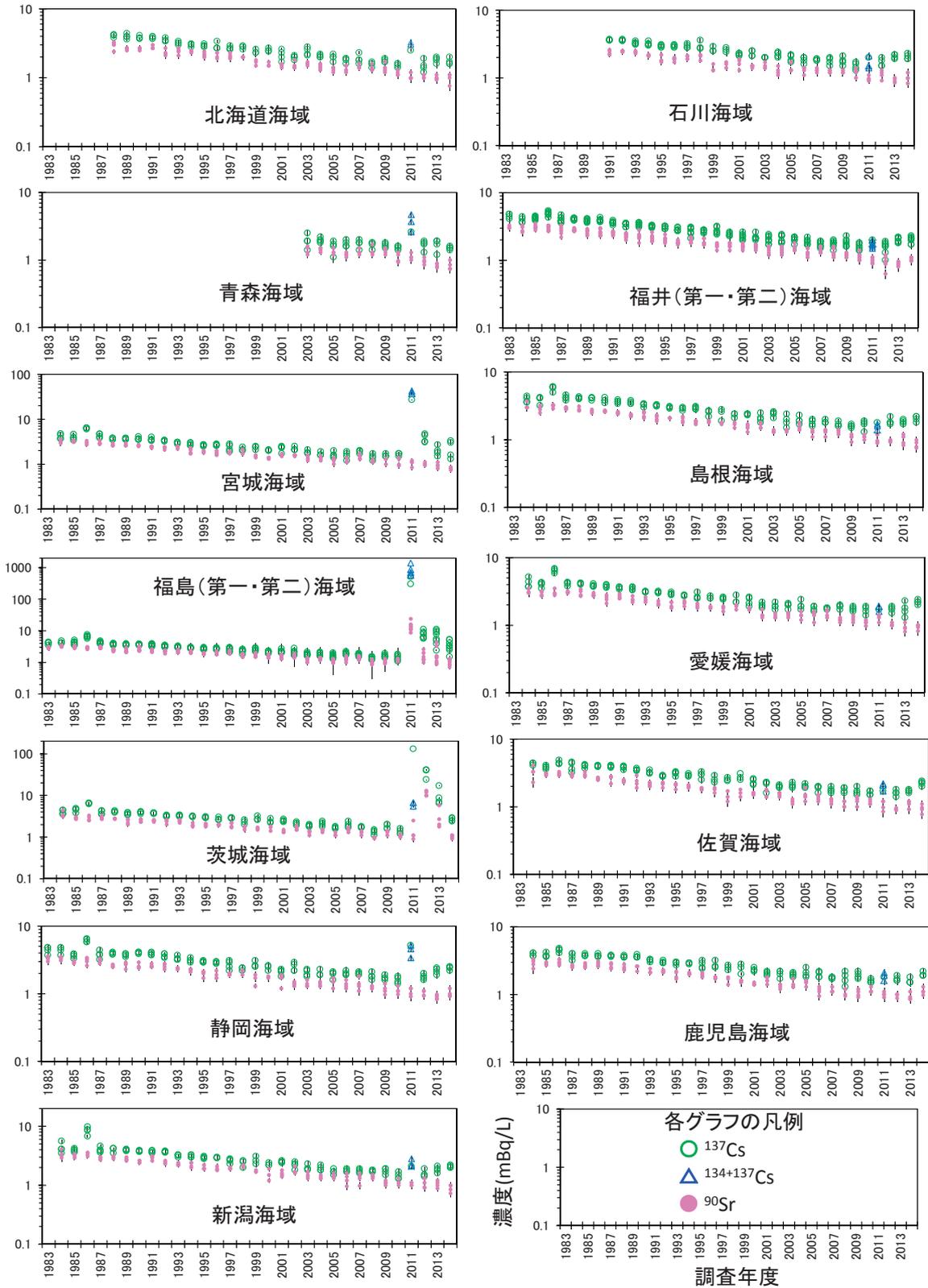
結果と考察

海水中の¹³⁷Cs及び⁹⁰Sr 1983~2014年度に原子力発電所等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1.1~1.9 mBq/L，⁹⁰Srが0.92~1.4 mBq/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。その後2014年度までの海水中の¹³⁷Cs濃度推移は，青森，宮城，福島第一，福島第二及び茨城海域において減少傾向，石川，福井第一・第二，島根，愛媛，佐賀，鹿児島，の各海域では，事故前のレベルから微増傾向，その他の海域については，事故前のレベルと同程度の値が継続している状況が認められた。事故後4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。

原子力発電所等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27 mBq/L，

磯野ら：福島第一原発事故後4年間の¹³⁷Csと⁹⁰Sr濃度の推移



第3図 1983～2014年度に原子力発電所等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。

福島第一海域が300 mBq/L、福島第二海域が510 mBq/L、茨城海域が130 mBq/L、静岡海域が5.2 mBq/Lであり、事故前5年間の最大値（2.4 mBq/L）を超えていた（第4図）。2012年度の¹³⁷Cs濃度は、宮城、福島第一、福島第二及び茨城海域では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2.0 mBq/Lであり事故前5年間の水準に低下した。以降、これらの海域では¹³⁷Cs濃度が年々低下する傾向にあり、2014年度の¹³⁷Cs濃度の最大値は、宮城海域が3.3 mBq/L、福島第一海域が5.3 mBq/L、福島第二海域が5.1 mBq/L、茨城海域が2.9 mBq/Lであり事故前5年間の水準と同程度か約2倍であった。

原子力発電所等周辺海域の表層水で観測された2011年度の⁹⁰Sr濃度は、福島第一海域が8.8～24 mBq/L、福島第二海域が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）。2014年度の⁹⁰Sr濃度の最大値は、福島第一海域が1.2 mBq/L、福島第二海域が1.3 mBq/L、茨城海域が1.1 mBq/Lであり、ほぼ事故前5年間の水準に低下した。

福島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向が顕著であった（第6図）。福島第一原発から30km圏外において、表層水の¹³⁷Cs濃度は、2011年4月に最高値の186 Bq/Lが観測され、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0.01 Bq/L前後、2014年度に0.01 Bq/L以下になった。福島第一原発から10km圏内での表層水の¹³⁷Cs濃度は、2015年1月に0.005（測点T-D5）～0.14 Bq/L（測点M-101）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（第2図の測点参照）。

2014年度においても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、福島県を中心とし、宮城県から千葉県北部に至る沖合海域の沿岸部や、沿岸海域であり、事故前5年間の水準の数倍以上の値が検出されている。福島第一原発を中心とした沿岸部で濃度が高い結果について、前報では、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; Takata *et al.*, 2015）が関

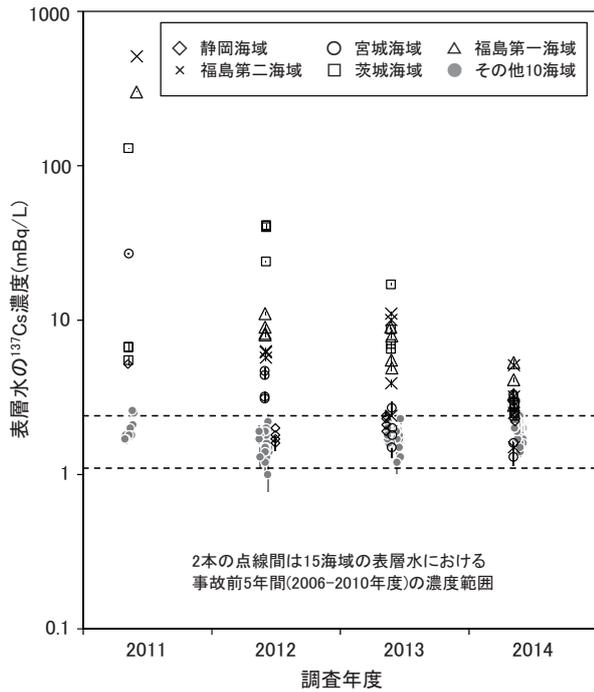
係するものと推察している。

海底土中の¹³⁷Cs 1983～2014年度に原子力発電所等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、各調査年度内で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、0.72～7.1 Bq/kg-dryの範囲にあった。

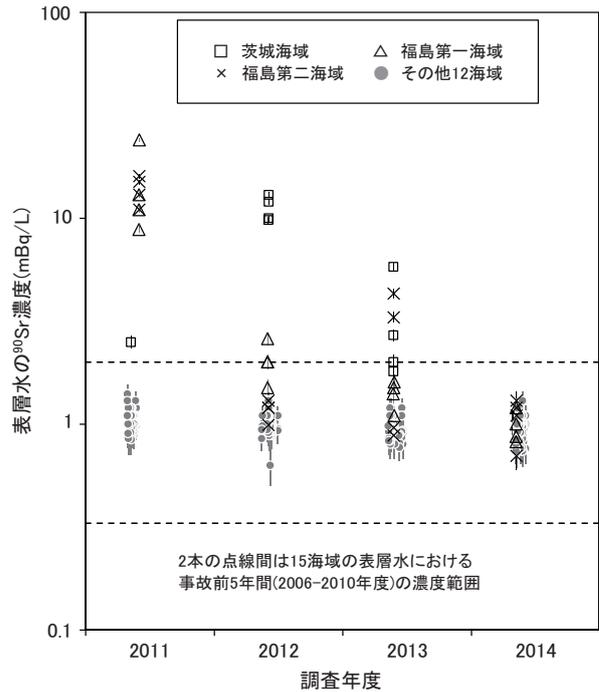
2011年度は福島第一原発事故の影響を受けて、福島県を中心とした太平洋沿岸（宮城、福島第一、福島第二、茨城、静岡）と新潟海域で海底土中の¹³⁷Cs濃度に上昇が認められた。事故後4年間の¹³⁷Cs濃度の経年変化を第8図に示した。原子力発電所等周辺海域の海底土中で観測された2011年度の¹³⁷Cs濃度は、宮城海域が16～75 Bq/kg-dry、福島第一海域が51～220 Bq/kg-dry、福島第二海域が16～65 Bq/kg-dry、茨城海域が3.8～27 Bq/kg-dry、新潟海域が3.1～19 Bq/kg-dryであり、これらの海域の多くの測点で事故前5年間の最大値（7.7 Bq/kg-dry）を超えていた。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年度は福島第一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。2014年度は福島第一海域の一部測点（測点3,310Bq/kg-dry）で前年度を上回ったほか、全海域を通してほぼ横ばいであった。

福島モニタリング海域の海底土中で観測された¹³⁷Cs濃度分布は、全体的に測点毎の値のバラつきが大きいのが、沖合に比べ沿岸部で高くなる傾向が継続しながら時間の経過に従い濃度が下がりつつある傾向が認められた。沿岸部（深度200m以浅）の濃度は必ずしも福島第一原発との距離との関係は明確では無く、宮城及び茨城県沖合においても相対的に高い値が認められた（第9図）。

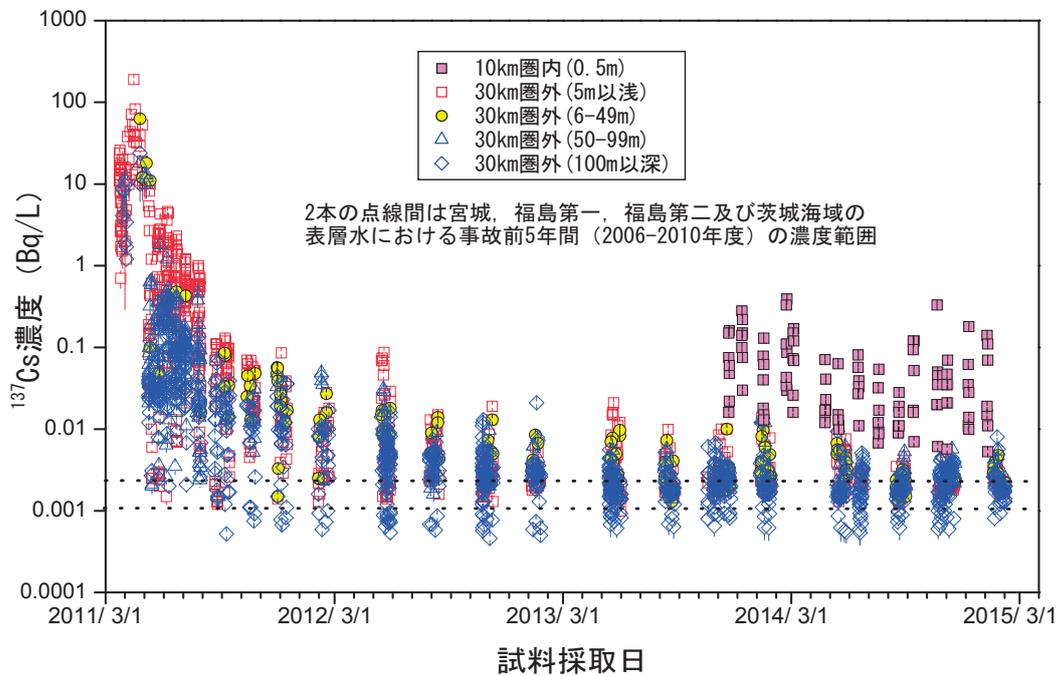
以上のように、福島第一原発事故の影響により海底土中の¹³⁷Cs濃度が上昇した海域では、経年的な濃度の低下傾向は認められるものの、その傾向は海水に比べ緩やかであった。この理由について、海底土中では物理的拡散効果が海水に比べ小さい事



第4図 原子力発電所等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4年間の変化。各値の縦棒は計数誤差(1σ)を示す。

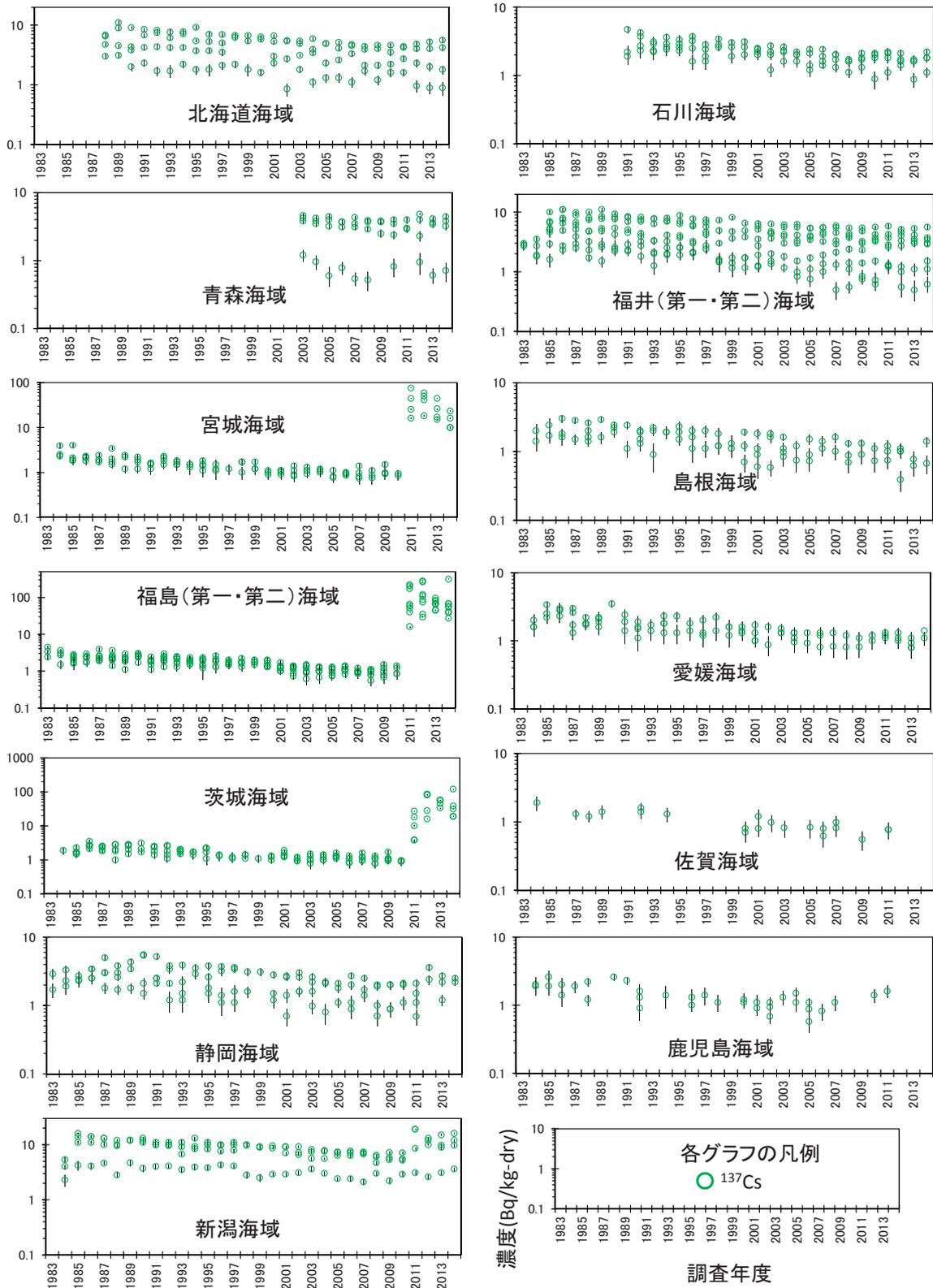


第5図 原子力発電所等周辺海域の表層水で観測された⁹⁰Sr濃度の福島第一原子力発電所事故後4年間の変化。各値の縦棒は計数誤差(1σ)を示す。



第6図 福島第一原子力発電所周辺の沖合(福島モニタリング海域)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。

磯野ら：福島第一原発事故後4年間の¹³⁷Csと⁹⁰Sr濃度の推移

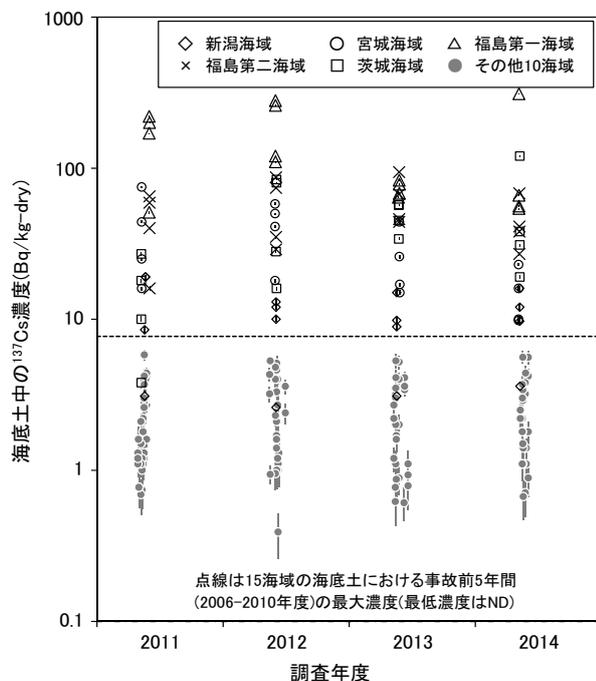


第7図 1983～2014年度に原子力発電所等周辺海域の海底土表層3cmで観測された¹³⁷Cs濃度。図中にプロットが無い場合は、該当する調査年度の全測点で値が検出下限値以下であったことを示す。各値の縦棒は計数誤差(1σ)を示す。

に加え、事故後、大気経路で広域的に付加された後、河川等による陸からの流出、福島第一原発からの直接漏洩 3.5×10^{15} Bq (Tsumune *et al.*, 2013)の一部が、沈降し堆積する効果、等の影響が指摘されている。なお、日下部 (2014) では沖合海域の海底土表層3cmに留まる¹³⁷Csの総量が、2011年9月時点で 5.3×10^{13} Bq, 2013年11月時点で 2.2×10^{13} Bqと見積もっており、その減少傾向から、沖合海域の海底土中の¹³⁷Csの実効半減期約2年と算出している。また、新潟海域の海底土への福島第一原発事故影響に関連して、新潟県の報告によると、2014年10月時点においても、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おり (新潟県, 2015), 事故後4年経過した状況においても、新潟県沿岸から新潟海域の調査点へ福島第一原発由来の¹³⁷Csが付加されている可能性を示唆している。

まとめ

福島第一原発事故から4年経過した2014年度において、海水中の¹³⁷Cs濃度は確実に低下し、多くの海域で事故前5年間で同程度の水準であったが、福島県を中心とした隣接県では事故前の水準を超



第8図 原子力発電所等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4年間の変化。各値の縦棒は計数誤差(1 σ)を示す。

える値が認められた。⁹⁰Sr濃度は、全ての海域で、ほぼ事故前5年間の水準に低下した。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発生していることから、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。福島第一原発周辺の沖合における海底土中の¹³⁷Cs濃度は、測点毎に大きく上下するものの、時間の経過に従い低下する傾向が認められた。同海域全体では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、その要因解明は今後の課題である。

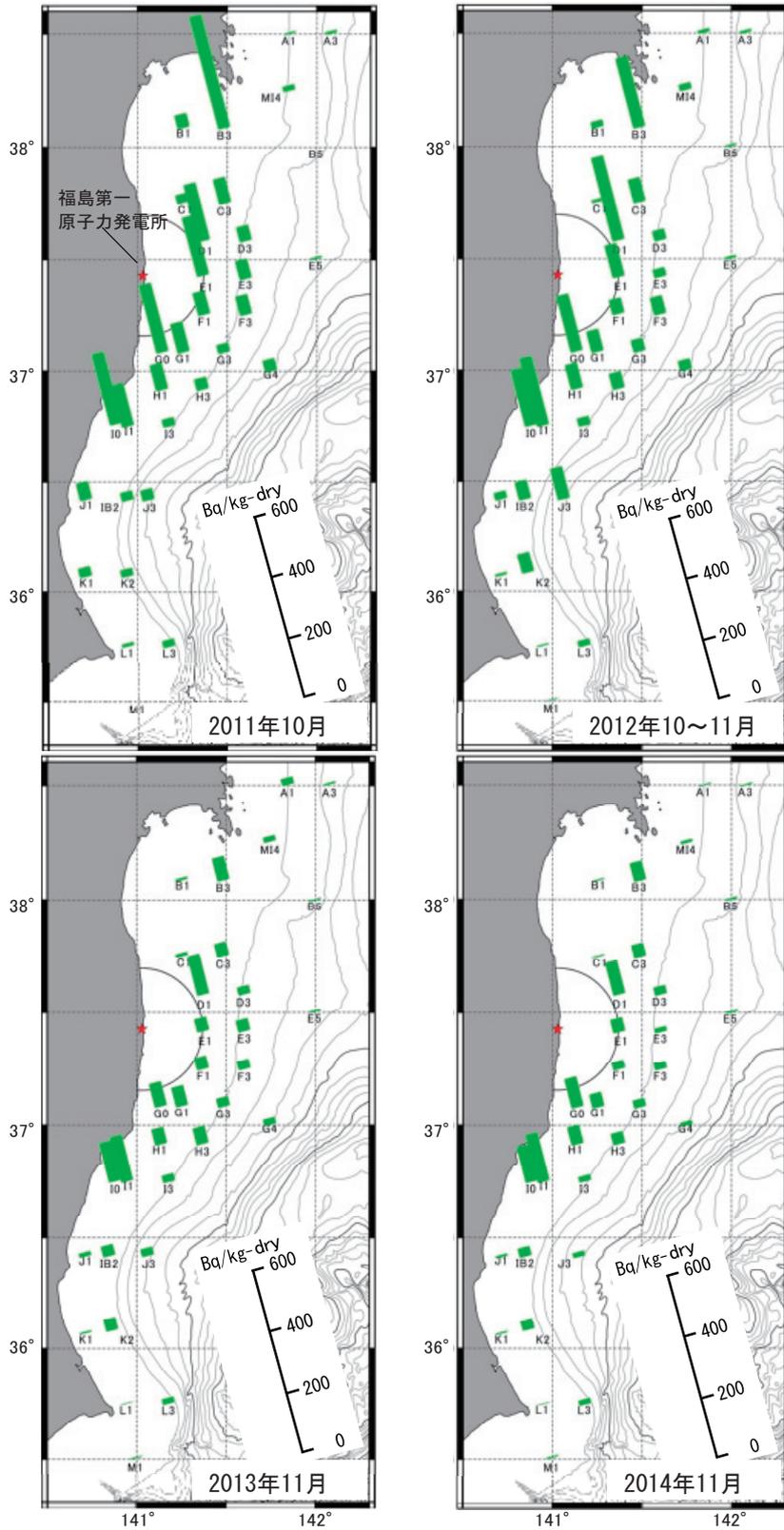
謝辞

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。2014年度の本事業実施に際し、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皆様へ、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及び三洋テクノマリン株式会社、海洋試料分析では、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.
- 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・森菌繁光・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¹³⁷Cs及び⁹⁰Sr濃度の推移. 海生研研報, **No. 20**, 57-65.
- 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

磯野ら：福島第一原発事故後4年間の ^{137}Cs と ^{90}Sr 濃度の推移



第9図 福島第一原子力発電所周辺の沖合（福島モニタリング海域）の海底土表層3cmで観測された ^{137}Cs 濃度の経年変化。等深線は200mピッチで示す。

- 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 ^{134}Cs and ^{137}Cs in the Fukushima river systems at heavy rains by Typhoon Roke in September 2011. *Biogeosciences*, **10**, 6215-6223.
- 新潟県 (2015). 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 (2014年版). (http://www.pref.niigata.lg.jp/HTML_Article/801/423/hukusima_2014.pdf). (2015年7月17日アクセス)
- 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 M. Kusakabe (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 ^{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.
- 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 ^{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—. 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 ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の濃度変遷. ぶんせき, **10**, 539-542.
- 高田和男・鈴木 讓 (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, **38**, 128-139.
- Takata, H., Hasegawa, K., Oikawa, S., Kudo, N., Ikenoue, T., Isono, R.S. and Kusakabe, M. (2015). Remobilization of radiocesium on riverine particles in seawater: The contribution of desorption to the export flux to the marine environment. *Mar. Chem.*, **176**, 51-63.
- 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.
- 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.