

総合論文

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—

及川 真司^①, 渡部 輝久², 高田 兵衛¹, 鈴木 千吉², 中原 元和², 御園生 淳²

漁場環境の放射能モニタリングを主たる目的とし、昭和58年度(1983年度)に「海洋環境における放射能調査及び総合評価事業」が開始された。本事業の一環として、全国の原子力発電所の前面海域(計15海域)で海水、海底土及び海産生物を採取し、 ^{90}Sr (海水のみ)や ^{137}Cs などの人工放射性核種の継続的な調査を行い、局所的な影響評価はもとより全国規模での評価を行う上で基礎となる調査結果を蓄積してきた。

これまでの調査結果のうち海水に関しては、昭和61年に発生した旧ソ連邦チェルノブイリ原子力発電所事故の影響を受けて一部の海域で ^{137}Cs 濃度の一時的な上昇が確認されたが、翌年には元の水準に戻り、それ以来 ^{137}Cs の物理的半減期(約30年)よりも短い12~20年の半減期で漸減傾向を続けてきた。またその水準は、福島第一原子力発電所事故前年では1~2 mBq L⁻¹程度であった。事故後平成23年5~6月に全国で採取した海水試料のうち福島近傍海域に加え、北海道や新潟及び佐賀海域の表層海水に事故由来と考えられる放射性セシウムを検出している。一方、海水に含まれる ^{90}Sr は ^{137}Cs と同様な漸減傾向を示していたが事故以降の福島海域で近年にない値を観測したが、その他の海域では事故以前の水準と同様であった。

海底土に含まれる ^{137}Cs 濃度は同一海域であっても採取点間でばらつきが大きく、砂質の場合には検出されないことが多々あったが、調査開始以来、 ^{137}Cs の物理的半減期と同等かそれよりも若干速い漸減傾向を続けており、事故前年の水準は、「検出されない」~8 Bq kg⁻¹乾土程度であった。事故後の調査では、福島海域に加え宮城及び茨城海域で近年にない値を観測したがその他の海域では顕著な上昇は確認されていない。

海産生物の可食部位(筋肉)に含まれる ^{137}Cs 濃度は、浮魚あるいは底魚といった棲息域の違いによる差はみられず、肉食性の食物連鎖上高次なスズキやヒラメが比較的高く、イカ・タコ類で低い結果を得てきた。チェルノブイリ原子力発電所事故の影響として一部魚種(スズキ)で翌年あるいは翌々年に若干の濃度上昇を確認したが、それ以降、 ^{137}Cs の物理的半減期と同等かあるいは若干速い漸減傾向を続け、事故前年の水準は「検出されない」~0.24 Bq kg⁻¹生鮮物程度を示していた。

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年度から継続して得られた海洋環境放射能モニタリング結果の概要について報告し、これまでの海洋環境放射能水準の推移を示すとともに福島第一原子力発電所事故の影響の程度の概略を示した。

1 緒 言

1895年にドイツの物理学者レントゲンによってエックス線が発見されて以来、放射能や放射線に関する学問あるいは利用技術は飛躍的な発展を遂げてきた。とりわけ、原子力発電、非破壊検査や品種改良などの農業・工業利用、そしてがん診断・治療の医学利用など、様々な平和利用の発展は近代社会を支える上で必要不可欠なものになってい

る。一方、原子力の軍事利用の技術開発も主として超大国により進められてきた。1945年以降、北半球を中心に実施された大気圏核爆発実験は543回を数え、多量の放射性核種が放出され地球規模の汚染を与えた¹⁾。現在でも比較的半減期の長い ^{90}Sr (半減期29年)、 ^{137}Cs (同30年)及び $^{239+240}\text{Pu}$ (同2.4万年、6560年)等は環境中に残存し、それらを対象として、気圏、水圏及び陸圏での様々な監視調査、環境放射能モニタリングが行われてきている。

放射能や放射線、あるいは原子力の技術開発には平和利用における有用な面とともに軍事利用による負の側面もあることは否定できない。なかでも原子力発電は基幹電源として重要な位置を占めるようになっている。我が国の原子

① E-mail: oikawa@kaiseiken.or.jp

¹ 公益財団法人海洋生物環境研究所中央研究所海洋環境グループ: 299-5105 千葉県夷隅郡御宿町岩和田300

² 公益財団法人海洋生物環境研究所事務局研究調査グループ: 162-0801 東京都新宿区山吹町347 藤和江戸川橋ビル7階

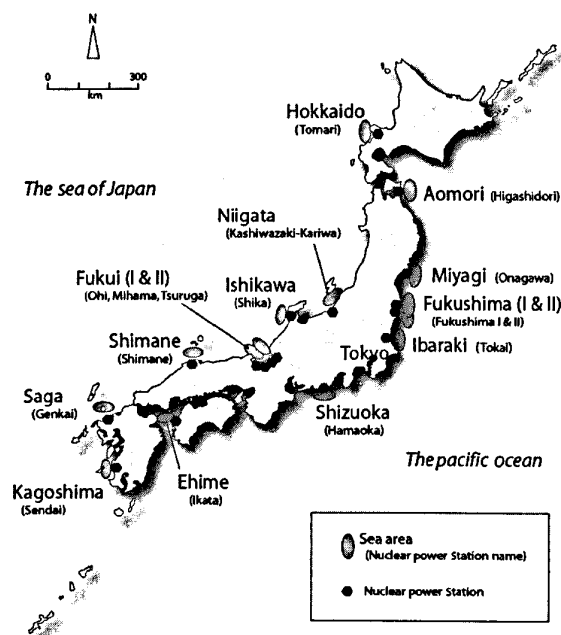


Fig. 1 Map showing the 15 sea areas off the nuclear power stations

力発電所は、大量の海水を冷却水に依存していることから、すべて沿岸に立地しており、漁場環境の安全を担保することが原子力と漁業の共存のために必須のこととなっている。この一環として昭和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、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、環境放射能モニタリング指針²⁾に沿う形で、比較的半減期の長い⁹⁰Sr（海水のみ）及び¹³⁷Csを軸に長期的な定点観測を行い、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⁺²⁴⁰Pu）を対象核種に加えた調査体制をとることとなった。

2011年3月11日に発生した東北地方太平洋沖地震（M9.0）は、我が国での観測史上最大の規模を観測した。宮城県牡鹿半島の東南東沖約130 kmの海底を震源とし、その後頻発した余震の震源域は宮城県沖合から茨城県沖合に至る南北500 km、東西200 kmのおよそ10万平方km²におよぶ広範囲に及んだ³⁾。この地震により発生した津波により東北地方を中心とする太平洋沿岸域において多くの尊い命が犠牲となり、また同時に壊滅的な被害をもたらした

ことは記憶に新しい。この地震に起因した津波により被災した福島第一原子力発電所においては、非常用電源の喪失により水素爆発等の重大な事故が発生し、多量の放射性物質を環境へ付加する事態となった。これにより周辺住民は被ばくを避けるために避難を余儀なくされ、また広範囲にわたる陸域、海域、空域への放射性物質の散逸が起こり、特に畜産や農林水産物への汚染と風評被害を含め、被害や損害は計り知れないほど大きなものとなった。海洋環境においても例外ではなく、海水、海底土及び海産生物への放射性物質の汚染が認められる事態となった。これら海洋への放射性物質の汚染についての概略⁴⁾や放射能・放射線に関する記事⁵⁾は、「ぶんせき」誌で報告がなされている状況である。

本稿では、海生研がこれまで展開してきた評価事業を海洋環境試料の放射性核種分析に係る分析化学（特に放射化学分析）の視点から俯瞰し、海水、海底土及び海産生物試料に含まれる⁹⁰Sr（海水のみ対象）及び¹³⁷Csの調査結果について、高田⁶⁾の報告を含む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直後までに得られた一連の調査結果の一部を対比しつつ報告する。

2 公益財団法人海洋生物環境研究所（海生研）の海洋放射能モニタリング調査

2.1 海洋環境試料の採取と前処理

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の沖合20～30 kmの全15海域とし、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（Fig. 1、詳細地点についてはTable 1）。

環境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⁷⁾（全34集）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。これら方法等については及川⁸⁾により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。

2.1.1 海水 調査対象海域の各測点で、年一回の割合で春期（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の二層採水とし、特に下層は水深の統一的な設定が困難であるため、海底面からおおよそ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海水に対して40 mL添加して塩酸性とし、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（水深）及び溶存酸素量（DO）を継続的に観測できるCTD（conductivity temperature depth profiler）等の観測機器を

Table 1 Sampling sites and four fixed position of the sites [represented by World Geodetic System 84 (WGS85)]

Sampling site		Position of the site ^{a)}		Adjacent nuclear power station/s	Sampling site		Position of the site ^{a)}		Adjacent nuclear power station/s
		N	E				N	E	
Hokkaido	1	43° 10'	140° 16'	Tomari	Ishikawa	1	37° 17'	136° 27'	Shika
	2	43° 05'	140° 16'			2	37° 08'	136° 26'	
	3	43° 02'	140° 18'			3	37° 00'	136° 28'	
	4	42° 59'	140° 13'			4	36° 52'	136° 28'	
Aomori	1	41° 13'	141° 35'	Higashidori	Fukui (I)	1	36° 05'	135° 50'	Mihama, Tsuruga
	2	41° 13'	141° 40'			2	35° 57'	135° 50'	
	3	41° 08'	141° 30'			3	35° 50'	135° 50'	
	4	41° 08'	141° 40'			4	35° 58'	135° 42'	
Miyagi	1	38° 30'	141° 40'	Onagawa	Fukui (II)	1	35° 45'	135° 40'	Ohi, Takahama
	2	38° 25'	141° 45'			2	35° 50'	135° 35'	
	3	38° 20'	141° 40'			3	35° 55'	135° 30'	
	4	38° 15'	141° 45'			4	35° 45'	135° 30'	
Fukushima (I)	1	37° 40'	141° 20'	Fukushima Daiichi	Shimane	1	35° 47'	133° 12'	Shimane
	2	37° 35'	141° 25'			2	35° 41'	133° 04'	
	3	37° 30'	141° 20'			3	35° 48'	132° 56'	
	4	37° 23'	141° 20'			4	35° 40'	132° 52'	
Fukushima (II)	1	37° 16'	141° 25'	Fukushima Daini	Ehime	1	33° 39'	132° 22'	Ikata
	2	37° 12'	141° 20'			2	33° 38'	132° 17'	
	3	37° 06'	141° 19'			3	33° 36'	132° 14'	
	4	37° 00'	141° 20'			4	33° 33'	132° 10'	
Ibaraki	1	36° 36'	140° 52'	Tokai	Saga	1	33° 35'	129° 59'	Genkai
	2	36° 25'	140° 51'			2	33° 37'	129° 53'	
	3	36° 14'	140° 48'			3	33° 37'	129° 46'	
	4	36° 05'	140° 52'			4	33° 34'	129° 44'	
Shizuoka	1	34° 34'	138° 18'	Hamaoka	Kagoshima	1	31° 56'	130° 02'	Sendai
	2	34° 31'	138° 15'			2	31° 45'	130° 01'	
	3	34° 30'	138° 05'			3	31° 41'	130° 04'	
	4	34° 31'	137° 59'			4	31° 35'	130° 09'	
Niigata	1	37° 56'	138° 37'	Kashiwazaki-Kariwa					
	2	37° 50'	138° 35'						
	3	37° 44'	138° 27'						
	4	37° 37'	138° 23'						

a) Represented by World Geodetic System 84 (WGS85).

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。

2・1・2 海底土 調査対象海域の各測点で, 年一回の割合で春期(4~6月)に重量で約2.5 kgの海底土(表層3 cm)を大型エクマンバージ型採泥器(ekman-berge bottom sampler)やボックスコアラー等で採取した。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コア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。

2・1・3 海産生物 海産生物試料は, 調査対象海域周辺で操業している地元漁業協同組合等の協力を賜り, 当該海域で棲息し, かつ漁獲される代表的な魚種を対象とし

た。魚種の選定に当たっては原則として大規模に回遊するものは対象外としたが, 一部, 海と汽水域や淡水域を行き来する周縁魚(スズキ)や回遊性のスルメイカは漁獲量を参考に対象魚種に含めた。主な海産生物種は, スズキ(Japanese sea bass), マダラ(Pacific cod), スケトウダラ(Pollack), アイナメ(Rock trout), マアナゴ(Common Japanese conger), ニベ(Nibe croaker), ヒラメ(Olive flounder), イシガレイ(Stone flounder), マガレイ(Small mouthed sole), マコガレイ(Marbled flounder), クロウシノシタ(Black tonguefish), メバル(Black rockfish), チダイ(Crimson sea bream)等の硬骨魚類, スルメイカ(Japanese common squid), コウイカ(Cuttlefish), ミズダコ(Paroctopus)等の軟体類, アカエイ(Japanese stingray)等のエイ類(軟骨魚類), ホッコクアカエビ(Pink shrimp)のエビ類(甲殻類)など多岐にわたる(Table 2)。これら海産生物試料は, 春期(4~6月頃)及び秋期(10~12月頃)の年二回の割合で1魚種あたり20 kg, 3魚種ずつ計6魚種を採取した。なお, 不漁により予定魚種の採取ができない場合もあり, その際は代替魚種を選定するなど, 魚種に偏りが生じないよう, かつ欠測のないように努

Table 2 Principal fish species (marine organisms) for the marine environmental radioactivity survey program

Sea area	Species of fish ^{a)}			
	First term (April-June)	Romanized Japanese name	Latter term (October-December)	Romanized Japanese name
Hokkaido	Atka mackerel	Hokke	Atka mackerel	Hokke
	Pointhead flounder	Souhachi	Olive flounder	Hirame
	Paractopus	Mizudako	Pollock	Suketoudara
Aomori	Sting fish	Kurosoi	Sting fish	Kurosoi
	Greenling (Rock trout)	Ainame	Greenling (Rock trout)	Ainame
	Atka mackerel	Hokke	Spear squid	Yariika
Miyagi	Pacific cod	Madara	Pacific cod	Madara
	Greenling (Rock trout)	Ainame	Greenling (Rock trout)	Ainame
	Common Japanese conger	Maanago	Common Japanese conger	Maanago
Fukushima (I)	Japanese sea bass	Suzuki	Japanese sea bass	Suzuki
	Black rockfish	Mebaru	Black rockfish	Mebaru
	Stone flounder	Ishigarei	Stone flounder	Ishigarei
Fukushima (II)	Pacific cod	Madara	Pacific cod	Madara
	Small mouthed sole	Magarei	Small mouthed sole	Magarei
	Paractopus	Mizudako	Paractopus	Mizudako
Ibaraki	Olive flounder	Hirame	Olive flounder	Hirame
	Marbled sole	Makogarei	Marbled sole	Makogarei
	Paractopus	Mizudako	Paractopus	Mizudako
Shizuoka	Flat head (Bartailed flathead)	Magochi	Flat head (Bartailed flathead)	Magochi
	Nibe croaker	Nibe	Nibe croaker	Nibe
	Black tonguefish	Kurushinoshita	Black tonguefish	Kurushinoshita
Niigata	Pollock	Suketoudara	Pollock	Suketoudara
	Atka mackerel	Hokke	Atka mackerel	Hokke
	Paractopus	Mizudako	Paractopus	Mizudako
Ishikawa	Japanese argentine	Nigisu	Japanese argentine	Nigisu
	Japanese sandfish	Hatahata	Red halibut	Akagarei
	Pink shrimp	Hokkokuakaebi	Pink shrimp	Hokkokuakaebi
Fukui (I)	Japanese sandfish	Hatahata	Olive flounder	Hirame
	Red halibut	Akagarei	Red halibut	Akagarei
	Japanese common squid	Surumeika	Japanese common squid	Surumeika
Fukui (II)	Red halibut	Akagarei	Red halibut	Akagarei
	Japanese sea bass	Suzuki	Red sea bream	Madai
	Common Japanese conger	Maanago	Common Japanese conger	Maanago
Shimane	Red sea bream	Madai	Red sea bream	Madai
	Olive flounder	Hirame	Olive flounder	Hirame
	Shothole halibut	Mushigarei	Shothole halibut	Mushigarei
Ehime	Gurnard	Kanagashira	Gurnard	Kanagashira
	Cuttlefish	Kouika	Cuttlefish	Kouika
	Southern rough shrimp	Saruebi	White croaker	Shiroguchi
Saga	Japanese sea bass	Suzuki	Japanese sea bass	Suzuki
	Scorpionfish	Kasago	Scorpionfish	Kasago
	Rudder fish	Mejina	Rudder fish	Mejina
Kagoshima	Crimson sea bream	Chidai	Crimson sea bream	Chidai
	Whitefin trevally	Kaiwari	Whitefin trevally	Kaiwari
	Japanese stingray	Akai	Japanese stingray	Akai

a) e.g. Abe and Honma (1997): Modern Encyclopedia of Fish. NTS, Japan. (ISBN4-900830-22-4).

めた。海産生物試料は、可食部を分析対象としており、硬骨魚類に関しては鱗を除去し、頭部、内臓、胃内容物、筋肉等に分割したのち、筋肉部位（原則皮付き）を、イカ・タコなどの軟体類は外套膜・腕足を、エイ類は軟骨部位を含む筋肉部位を、エビ類は筋肉部位を分析に供した。分析試料は 105℃ で乾燥させたのち、450℃ で灰化させ、ふるいを通し灰試料として分析に供する試料とした。

2・2 ⁹⁰Sr 及び ¹³⁷Cs の放射化学分析

比較的半減期の長い ⁹⁰Sr 及び ¹³⁷Cs はともに ²³⁵U からの

核分裂収率が約 6 % と高く、環境放射能モニタリングにおいて、必ずと言ってよいほど対象となる純ベータ線放出核種である。本評価事業で適用した海洋環境試料中の ⁹⁰Sr と ¹³⁷Cs の放射化学分析方法は 2・1 で述べた文部科学省放射能測定法シリーズ⁷⁾のうち、⁹⁰Sr については同シリーズ 2「放射性ストロンチウム分析法⁹⁾」を、¹³⁷Cs については同シリーズ 3「放射性セシウム分析法¹⁰⁾」を適用した。

海水試料の 50～100 L を分取し、セシウム担体を一定量加えたのち、リンモリブデン酸アンモニウム ((NH₄)₃・PO₄・12MoO₃・xH₂O, ammonium phosphomolybdate;

AMP)粉末を加えてセシウムを吸着捕集した。AMPを6M程度の水酸化ナトリウムに溶解させたのち、塩酸酸性とし、陽イオン交換樹脂カラムを通してカリウムやルビジウム等から分離精製した。精製したセシウムを含む溶液に塩化白金酸を加え、ヘキサクロロ白金酸(IV)塩のうち、特に溶解度が小さい塩化白金酸セシウム($\text{Cs}_2[\text{PtCl}_6]$)の形でセシウムを沈殿させ、濾紙上にマウントし、測定用試料とした。測定用試料に含まれる ^{137}Cs を低バックグラウンドベータ線測定装置(low-background beta counter, LBC, 日立アロカメディカル製 LBC-471Q等)で定量した。

一方、ストロンチウムを含む上澄みについては、ストロンチウムを捕集・精製する目的で陽イオン交換法による予備濃縮をしたのち、炭酸塩の沈殿を生成させて海水中に大量に含まれるマグネシウム等からストロンチウムを粗分離した。次いで、塩酸酸性とした試料溶液を陽イオン交換樹脂カラムに通じ、主にカルシウムとの分離精製を行った。精製したストロンチウムを含む溶液に鉄担体(Fe^{3+})を加え、アンモニア水を加えて水酸化鉄(III)の沈殿を生成させた。この際、 ^{90}Sr から生成する ^{90}Y が水酸化鉄(III)沈殿に共沈し、溶液中には ^{90}Sr のみが存在する(スカベンジ操作)。この溶液を約2週間放置させ ^{90}Sr - ^{90}Y の放射平衡を達成させた後、再度鉄担体を加え、次いで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(ミルキング)。この沈殿を濾紙上にマウントし、測定用試料とした。測定用試料に含まれる ^{90}Y を ^{137}Cs と同様に低バックグラウンドベータ線測定装置(low-background beta counter, LBC, 日立アロカメディカル製 LBC-481Q等)で定量した。ここで定量した ^{90}Y は ^{90}Sr から既知時間で生成したもので、 ^{90}Y の放射能から放射平衡の理論に従い ^{90}Sr の放射能を算出した。

なお、得られた結果は半減期補正を行い、試料採取日時点での放射能濃度としている。これら放射化学分析による ^{90}Sr 及び ^{137}Cs の定量下限値は、海水試料のうち、 ^{90}Sr の場合、3600秒の計測でおよそ 0.4 mBq L^{-1} 、 ^{137}Cs の場合、5400秒の計測でおよそ 0.5 mBq L^{-1} である。

2.3 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

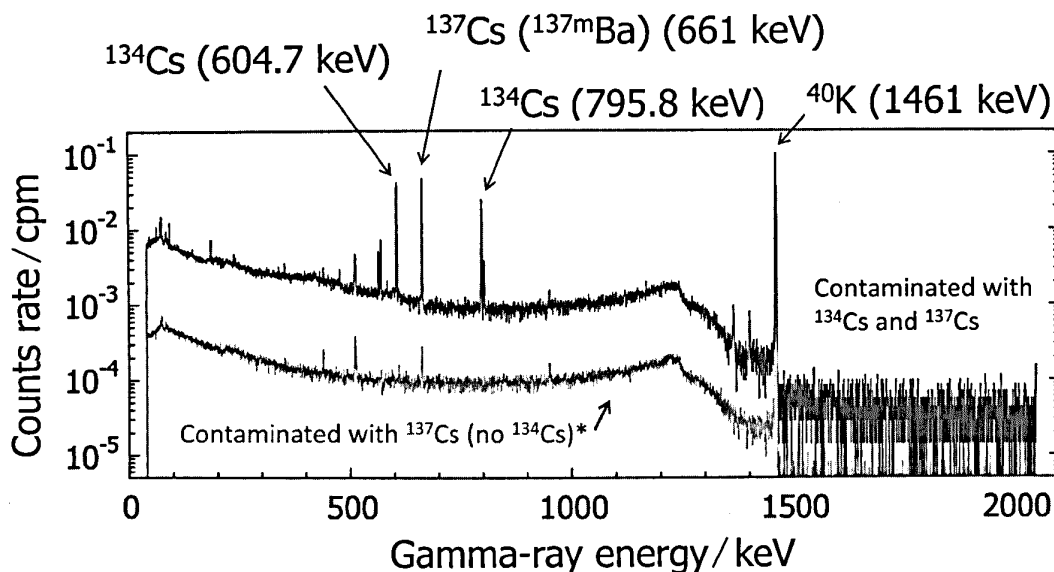
ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリーは、非破壊で多核種同時測定ができる利点があるので、多方面での利用がなされている。本評価事業においては、チェルノブイリ原子力発電所事故の影響評価を行うことを踏まえ、各海域の1測点について海水に含まれる ^{134}Cs 及び ^{137}Cs を定量するため、文部科学省放射能測定法シリーズ3「放射性セシウム分析法¹⁰⁾」及び同シリーズ7「ゲルマニウム半導体検出器によるガンマ線スペクトロメトリー¹¹⁾」に記載された方法を適用した。

酸性とした海水試料にAMPを加えてセシウム(^{134}Cs 及び ^{137}Cs)を選択的に吸着捕集した。次いで水酸化ナトリウム溶液にAMPを溶解し、塩酸酸性とした後、2.2と同様に陽イオン交換樹脂カラム法でセシウムを精製したのち、塩化白金酸セシウムとして固定し、一定形状として測定用試料とした。この試料を凹状に加工した検出器内部に直接少量試料を入れることにより、より高い検出効率を実現した井戸型ゲルマニウム半導体検出器により、海水試料に含まれる ^{134}Cs と ^{137}Cs を定量した。なお、福島第一原子力発電所事故以降の海水試料については、従来まで行ってきた前述の放射化学分析・ベータ線計測法では ^{134}Cs を併別して測定できないので、AMPでセシウムを吸着分離し、このAMPを濾紙上に回収したのち、一定形状とし、ゲルマニウム半導体検出器により ^{134}Cs 及び ^{137}Cs を定量することとした。

一方、海底土試料や灰試料については、それら試料を一定形状の容器に分取・定容し、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により、人工放射性核種である ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 及び天然放射性核種である ^{40}K 等を定量した。Fig. 2にガンマ線スペクトルの一例として、福島第一原子力発電所事故直後にみられた ^{134}Cs 及び ^{137}Cs の汚染が認められる魚肉灰試料と同事故以前に採取された ^{137}Cs のみの汚染が認められる魚肉灰試料の例を示した。

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を行うに際し、計数効率を求めることが必要である。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¹¹⁾」に基づき、試料を定容するプラスチック製U式円筒容器(ポリプロピレン製、 $5\text{ cm} \times 5\text{ cm}\phi$) (以下、「U-8容器」という)に対する計数効率を求めた。 ^{137}Cs については、基準となるU-8容積線源(日本アイソトープ協会等から頒布)として、既知量の ^{137}Cs を含み高さの異なる5種類程度を用意し、 ^{137}Cs の娘核種である $^{137\text{m}}\text{Ba}$ から放出されるガンマ線エネルギー661 keVにおけるピーク計数効率を求めるとともに、高さ補正を行うための係数を算出した。一方、目的核種を含む基準となるU-8容積線源がない場合については、放出するガンマ線エネルギーの異なる複数の放射性核種が既知量含まれたU-8容積線源(例えば、 ^{109}Cd , ^{57}Co , ^{139}Ce , ^{203}Hg , ^{113}Sn , ^{85}Sr , ^{137}Cs , ^{60}Co , ^{88}Y を含む)を用い、相対ピーク効率曲線を求め、目的とするガンマ線エネルギーの計数効率を求めた。運用に際しては、基準となる線源を一定期間繰り返し測定することにより、計数効率に変動が生じていないことなどを確認している。

本法での検出下限値は、核種ごとに多少異なるが、 ^{137}Cs を対象としたとき、70000～140000秒の計測で海水試料の場合およそ 0.7 mBq L^{-1} 、海底土試料の場合でおよそ 0.9 Bq kg^{-1} -乾土(以下、「 $\text{Bq kg}^{-1}\text{-dry}$ 」と表記する)、海産生



*A sample spectrum is set at a tenth second of 1 for convenience of explanation.

Fig. 2 An example of the gamma-ray spectrum of contaminated fish samples

物試料の場合でおよそ 0.03 Bq kg^{-1} - 生重量 (以下, 「 $\text{Bq kg}^{-1}\text{-wet}$ 」と表記する) である。

3 海生研海洋放射能調査の結果

3.1 海水

本評価事業を開始した昭和 58 年度 (1983 年度) から平成 23 年度 (2011 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 Fig. 3 ~ Fig. 6 に示した。調査開始以来, 海水に含まれる ^{137}Cs は化学分離・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, ほは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。ベータ線測定による方法では ^{134}Cs と ^{137}Cs のベータ線を区別できないため, ^{137}Cs を定量した平成 23 年度 (2011 年度) の結果については, $^{134+137}\text{Cs}$ 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¹²⁾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)。

表層海水に含まれる ^{90}Sr 及び ^{137}Cs は Fig. 3 ~ Fig. 6 に示す通り, 本評価事業を開始した昭和 58 年度 (1983 年度) より継続して検出されてきた。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があり, いずれも同じような減少傾向を示していた。これらは, 1945 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。UNSCEAR のとりまとめ¹⁾によると大気中に放出された ^{90}Sr の量は 622 PBq , ^{137}Cs の量は 30700 PBq に達するとされ, ^{137}Cs のほうが圧倒的に多い。Fig. 3 ~ Fig. 6 に示すとおり, ど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では 2000 年代にほぼ均一になったこと⁴⁾を反映している。1986 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 の存在を確認できていないが, 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, 全国的にはほぼ同じで, 平成 22 年度 (2010 年度) までの結果については, 過去数年 $1 \sim 2 \text{ mBq L}^{-1}$ 程度の濃度レベルで推移していた。漸減傾向については, 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

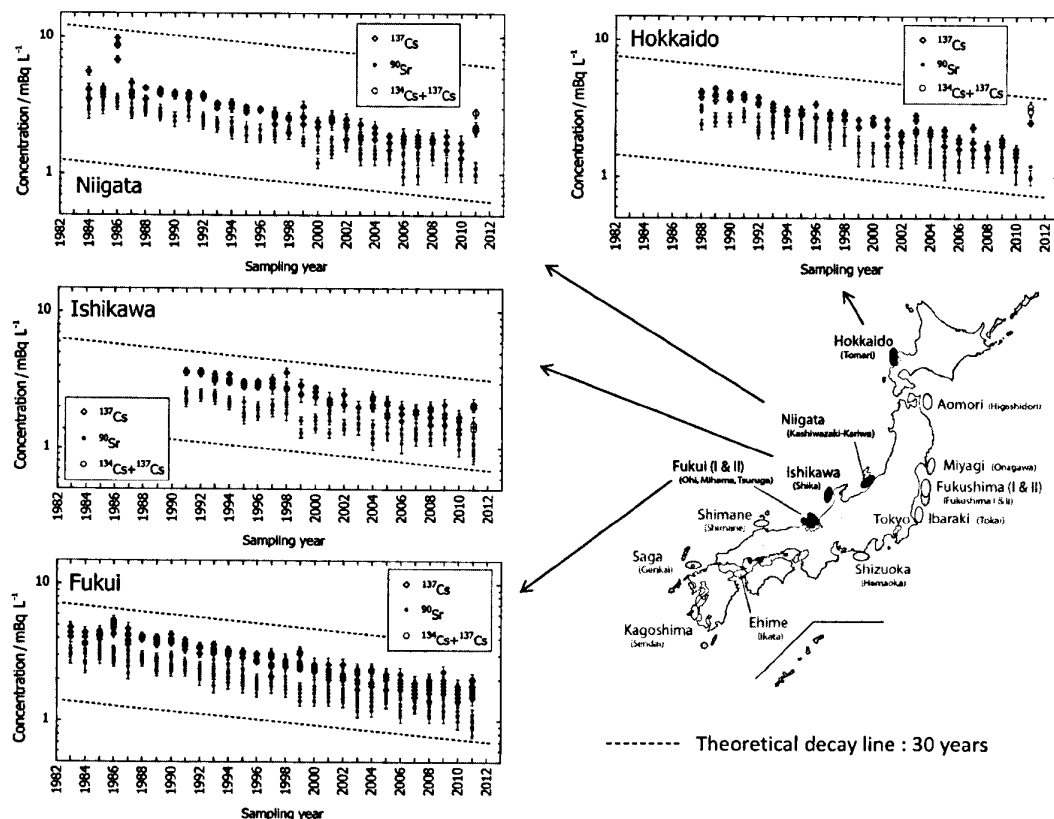


Fig. 3 Temporal changes of the ^{90}Sr , ^{137}Cs and $^{134+137}\text{Cs}$ concentrations in the surface waters off Hokkaido, Niigata, Ishikawa and Fukui Prefectures

The error bar shows one sigma of the counting statistics by beta counting and/or gamma-ray spectrometry.

(Fig. 3～Fig. 6 内に半減期 30 年の減衰線を破線で示してある)よりも短い。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。

日本海側を中心とした結果のうち、Fig. 3 に示した北海道、新潟、石川及び福井海域においては、1986 年のチェルノブイリ原子力発電所事故の影響で新潟海域において ^{137}Cs 濃度の顕著な上昇を、福井海域においては若干の上昇を確認したが、翌年にはその影響は確認されなかった。一方、海水に含まれる ^{90}Sr 濃度の経年変化では、チェルノブイリ原子力発電所事故の影響による上昇は認められない。このことは、チェルノブイリ原子力発電所事故の際に大気中に放出された ^{90}Sr と ^{137}Cs の量がそれぞれ 8 PBq 及び 86 PBq と異なる¹⁾点に加え、事故直後に大気拡散の傾向が強いセシウム (^{134}Cs と ^{137}Cs) が大気を経由して日本海に到達したため、局所的に新潟や福井海域の表層海水において前述のような結果が得られたと考えられる。チェルノブイリ原子力発電所事故以降は、海水に含まれる ^{90}Sr 及び ^{137}Cs 濃度共に見かけの半減期 12～20 年程度で減少傾向を続けてきた。しかしながら、平成 23 年度 (2011 年度) の結果

では、北海道海域で明らかな $^{134+137}\text{Cs}$ 濃度上昇が、新潟及び石川海域において若干の濃度上昇を確認する一方で、 ^{90}Sr については漸減傾向を逸脱することはなかった。この周辺海域では、同時期に Inoue ら¹²⁾¹³⁾により海水中に ^{134}Cs の存在が確認されていることを考慮すると、福島第一原子力発電所事故で大気中に放出されたセシウム (^{134}Cs と ^{137}Cs) を含むブルームが風向や降雨等の影響を受けた結果、特定の海域で $^{134+137}\text{Cs}$ 濃度の上昇を与えたと考えられる。なお、福井海域においてはこの事故の影響による ^{90}Sr や $^{134+137}\text{Cs}$ 濃度の変動は確認されていない。

西日本を中心とする島根、愛媛、佐賀及び鹿児島海域の結果を Fig. 4 に示した。島根、愛媛及び鹿児島海域の ^{137}Cs について、前述と同様にチェルノブイリ原子力発電所事故の影響が確認できた。また、佐賀海域においては、 ^{90}Sr 濃度の変動は確認されていないものの、 $^{134+137}\text{Cs}$ 濃度上昇が確認された。この現象も前述の北海道、新潟及び福島海域と同様に、福島第一原子力発電所事故で大気中に放出されたセシウム (^{134}Cs と ^{137}Cs) を含むブルームが大気拡散で移動した結果、降雨等で当該海域に降下したことに起因すると考えられる。事実、Momoshima ら¹⁴⁾は、佐賀に近い福岡において、平成 23 年 3 月末に空気中のちり (ダスト) が

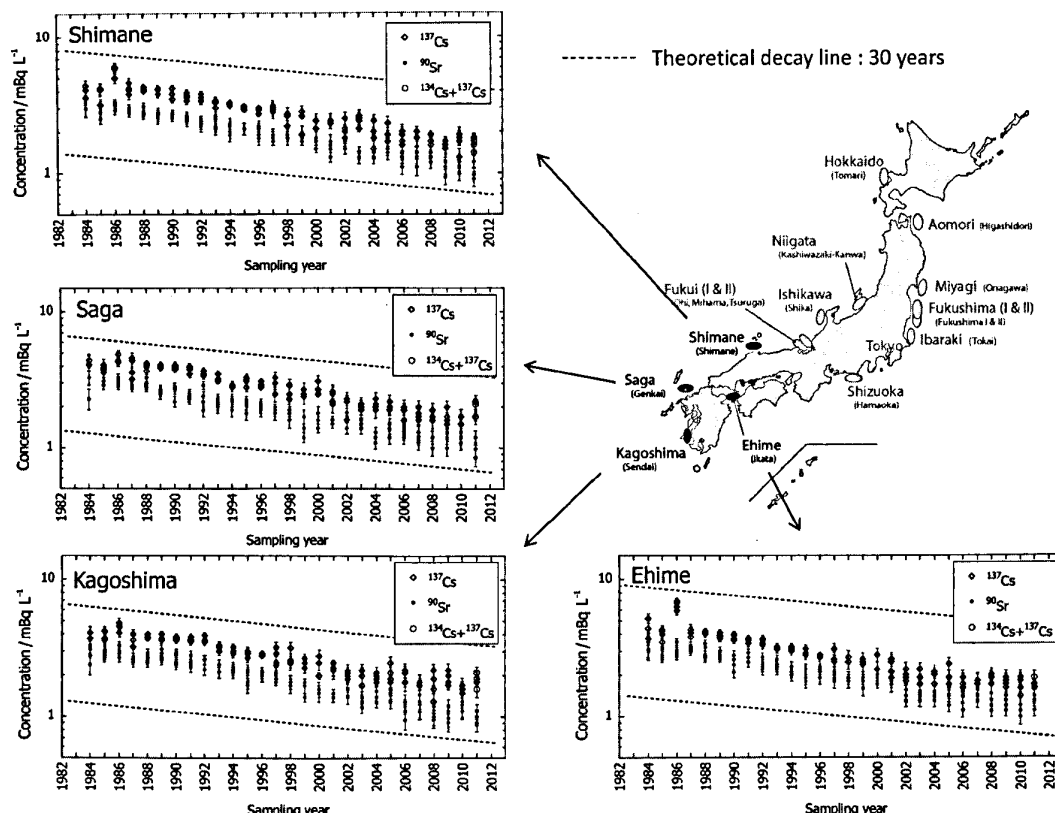


Fig. 4 Temporal changes of the ^{90}Sr , ^{137}Cs and $^{134}+^{137}\text{Cs}$ concentrations in the surface waters off Shimane, Saga, Kagoshima and Ehime Prefectures

The error bar shows one sigma of the counting statistics by beta counting and/or gamma-ray spectrometry.

ら ^{131}I , ^{134}Cs 及び ^{137}Cs を観測し、ダストに含まれる放射性セシウムの放射能比 ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$) がほぼ 1 であることから、福岡においても福島第一原子力発電所に起因する放射性プルームの存在を報告している。

太平洋側に位置する青森、茨城及び静岡海域の結果を Fig. 5 に示した。これら海域では、前述と同様にチェルノブイリ原子力発電所事故の影響を茨城及び静岡海域で確認できると同時に、平成 23 年度 (2011 年度) の結果においても近年観測されたことのない $^{134}+^{137}\text{Cs}$ 濃度上昇が確認された。とりわけ、茨城海域ではこれまでの濃度範囲を大きく超える 130 mBq L^{-1} に達する $^{134}+^{137}\text{Cs}$ 濃度を観測した。後述するが、福島第一原子力発電所事故においては、大気中への放射性物質の拡散放出に加え、損傷した原子炉の冷却のために多量の海水が散布され、その排水が海洋に直接放出されたことにより、膨大な量の放射性物質を含む汚染水が海洋に流れ出した事実がある¹⁵⁾。茨城海域では他の海域では見られない ^{90}Sr 濃度の上昇も確認できることから、大気由来に加え、汚染水の直接漏えいにより起因する ^{90}Sr や $^{134}+^{137}\text{Cs}$ を含む海水が移流・拡散したことが示唆される。Aoyama ら¹⁶⁾ により銚子沖において、2011 年 4 月から 12 月にかけて採取した表層海水に含まれる直接漏えいにより起因す

る ^{134}Cs と ^{137}Cs 濃度変化について同様の報告があり、これらの放射能比 ($^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$) がほぼ 1 であることが報告されている。このことから、本評価事業で観測した結果は、福島第一原子力発電所からの大気放出と直接漏洩の両方の寄与が合算されたものととらえることができる。一方、静岡海域では ^{90}Sr については継続した漸減傾向を維持した結果が得られている一方で、 $^{134}+^{137}\text{Cs}$ 濃度の上昇が確認されていることから、大気経路による輸送のみがあったと推測する。

福島第一原子力発電所に近い宮城及び福島海域の結果を Fig. 6 に示した。前述の茨城及び静岡海域と同様に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、平成 23 年度 (2011 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 $^{134}+^{137}\text{Cs}$ 濃度の大幅な上昇が確認された。とりわけ、福島海域においては事故前の平均的な ^{137}Cs 濃度レベルの約 900 倍に相当する濃度が確認されるなど、これまでに経験したことのない結果となった。また、 ^{90}Sr 濃度変化についても 10 倍程度上昇するなどの事象を確認したことから、福島第一原子力発電所近傍の福島海域では、大気由来と汚染水の直接漏えいによる局所的な汚染を顕著に見いだした。

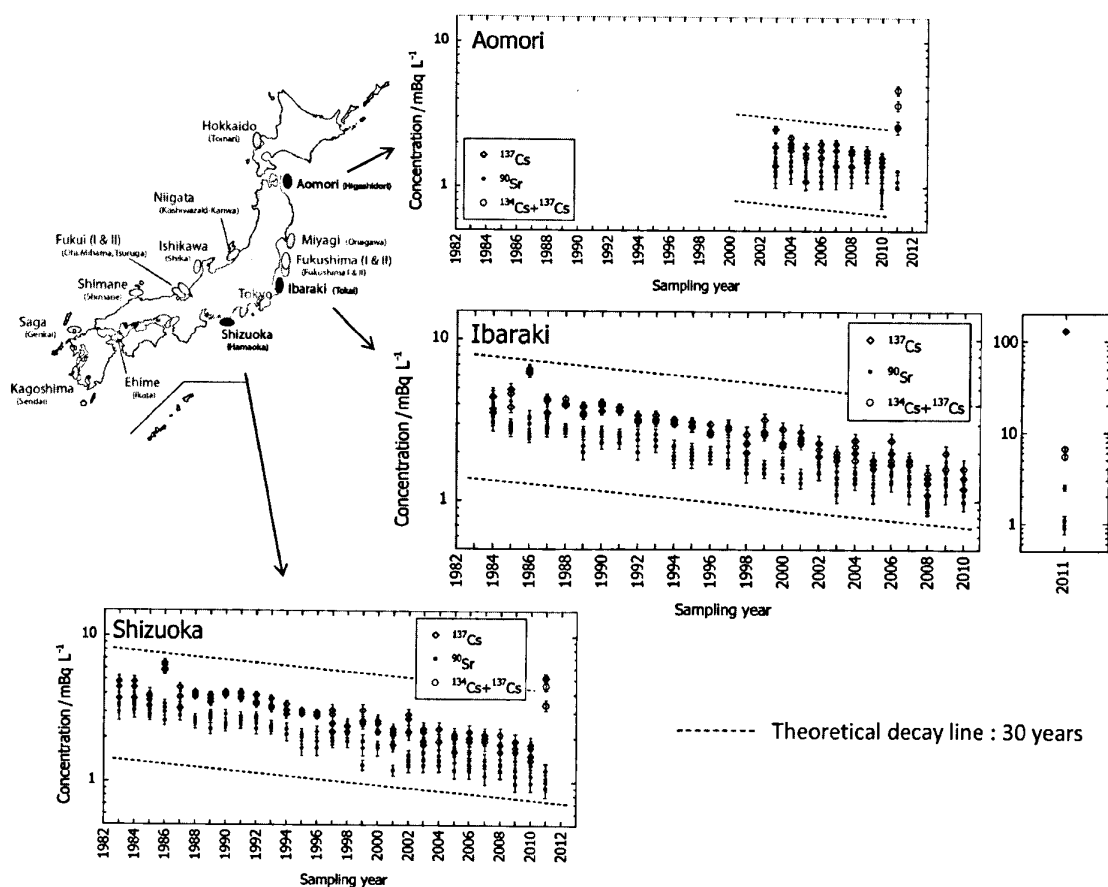


Fig. 5 Temporal changes of the ^{90}Sr , ^{137}Cs and $^{134}+^{137}\text{Cs}$ concentrations in the surface waters off Aomori, Ibaraki and Shizuoka Prefectures

The error bar shows one sigma of the counting statistics by beta counting and/or gamma-ray spectrometry.

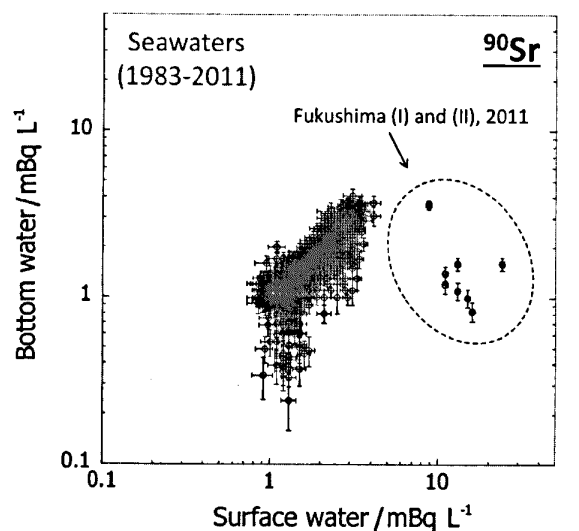
昭和 58 年度 (1983 年度) からの調査で得られた ^{90}Sr と ^{137}Cs は Fig. 3 ~ Fig. 6 に示した通り, 同じような推移で減少してきた。これらすべてのデータについて, ^{90}Sr と ^{137}Cs の関係を Fig. 7 に示した。Fig. 7 (a) から大多数のデータにおいて $^{90}\text{Sr}/^{137}\text{Cs}$ は一定であることが読み取れるが, 福島第一原子力発電所事故に起因する多量の ^{137}Cs が付加されたとみられる宮城, 福島及び茨城海域の測点 1 で観測された計 4 点の結果について, 明らかに過去の傾向を逸脱することが確認できた。福島第一原子力発電所事故後である平成 23 年度 (2011 年度) に採取した表層水に含まれる ^{90}Sr 濃度と $^{134}+^{137}\text{Cs}$ 濃度の相関について, Fig. 7 (b) に示した。福島海域を中心として多くの海域で事故前の放射性セシウム水準を超えており, これは多くの場合大気を経由して付加されたものと考えられる。一方, ^{90}Sr は大気由来ではなく, 高濃度の ^{90}Sr を含む汚染水が漏えいしたことによるもので, 汚染源である福島第一原子力発電所近傍の福島海域のみで高い値が検出されたと思われる。事実, これまで得られた表層海水と下層海水に含まれる ^{90}Sr 濃度は Fig. 8 に示すとおりほぼ同程度であるが, 平成 23 年度

(2011 年度) の福島海域での結果のみが異なる傾向を示した。同様に, ^{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 (各海域の測点 1) で過去の傾向を逸脱する結果が得られた (Fig. 9 (a))。事故後 (平成 23 年度) に採取した表層及び下層海水に含まれる $^{134}+^{137}\text{Cs}$ 濃度の関係を Fig. 9 (b) に示したが, 宮城, 福島及び茨城海域の試料で他とは異なる結果が得られた。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) した結果が得られている。茨城海域は Aoyama ら¹⁶⁾ 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, 当該海域の水温等を継続して観測している茨城県水産試験場等の観測結果からみても, 広く黒潮系水に覆われていることなどの事実があり, 南下してきた汚染水を含む海水が黒潮系水の下に潜るなど, 異なる水塊が混じることによる上下層の逆転が生じたと考えている。

福島県沖合を中心とする太平洋側の海域で, 事故以降, 海水に含まれる ^{134}Cs や ^{137}Cs などの放射性核種について文

部科学省等の調査により連日プレスリリースされるなど, 多くの情報があつたが, 過去の継続的な結果を踏まえて述べた例はほとんどない, 全体を通してみると, 確かに福島第一原子力発電所事故の影響が認められるが, 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Te, I及びXeなどの原子核が短時間で壊変し, Cs原子核が生成する)と汚染水の漏えいによって放出した⁹⁰Srでは明らかに濃度レベルの変化が異なっていた。また, 放出された量の推定も多くの研究者によってなされており, 例えばTsumuneら¹⁵⁾の試算では¹³⁷Csとして 3.5 ± 0.7 PBq (Pは 10^{15})の放出があつたとされる。政府の発表した¹³⁷Cs放出量の試算を基にすると, Global Fallout 総量の1/2500, チェルノブイリ原子力発電所事故時の1/7程度になると推測される¹⁷⁾。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短期間に局所的汚染を与えた¹⁸⁾が, 今後どのように推移していくのか, 不透明な部分が多い。とりわけ, 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, その予測が困難である。コンピュータによる海流拡散シミュレーションも盛んに行われている¹⁵⁾¹⁹⁾²⁰⁾が, 実際の密な観測と継続した調査が必要不可欠である。



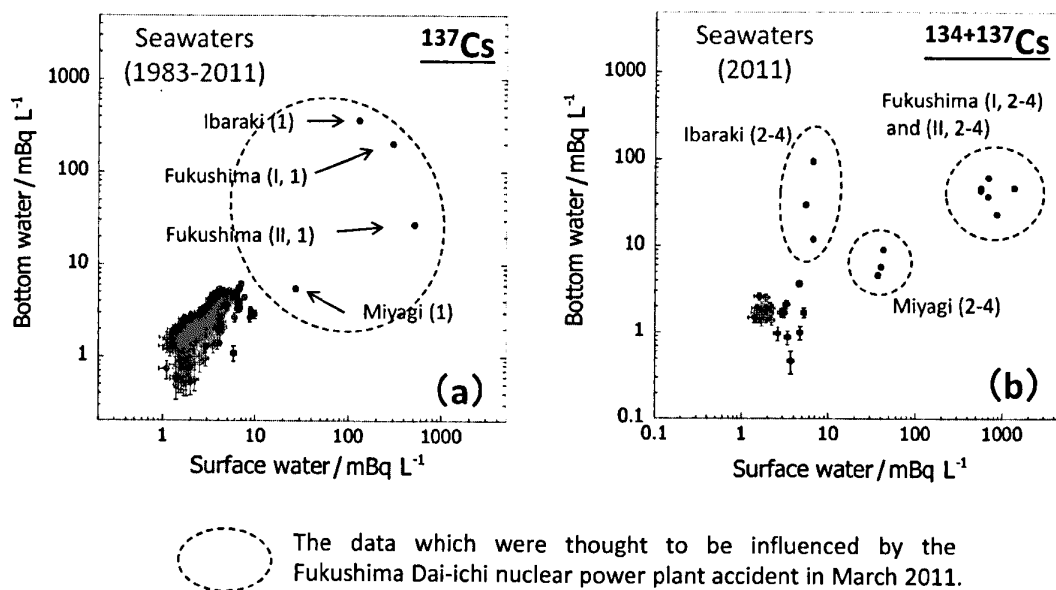
○ The data which were thought to be influenced by the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident in March 2011.

Fig. 8 Scatter diagrams of ⁹⁰Sr concentrations obtained from surface waters and bottom waters (1983-2011)

The error bar shows one sigma of the counting statistics by beta counting.

3.2 海底土

本評価事業を開始した昭和58年度(1983年度)から平成23年度(2011年度)までの調査結果のうち, 海底土に含まれる¹³⁷Csの経年変化をFig. 10~Fig. 13に示した(各図中に半減期30年の減衰線を破線で示した)。海底土に含まれる¹³⁷Cs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



○ The data which were thought to be influenced by the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident in March 2011.

Fig. 9 Scatter diagrams of ¹³⁷Cs concentrations obtained from surface waters and bottom waters. (a) ¹³⁷Cs activity ratio from surface and bottom waters (during 1983-2011 data by beta and gamma counting methods), and (b) ¹³⁴+¹³⁷Cs activity ratio from surface and bottom waters (on 2011 data by beta counting method)

The error bar shows one sigma of the counting statistics by beta counting and/or gamma-ray spectrometry.

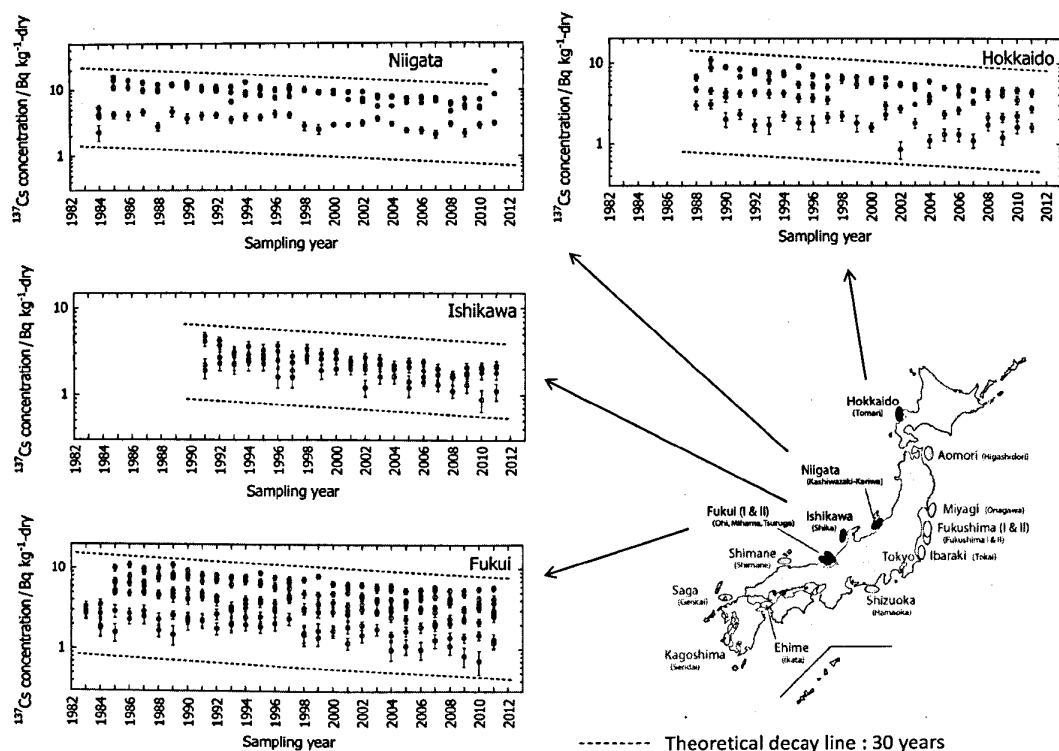


Fig. 10 Temporal changes of the ^{137}Cs concentrations in the bottom sediments off Hokkaido, Niigata, Ishikawa and Fukui Prefectures

The error bar shows one sigma of the counting statistics by gamma-ray spectrometry.

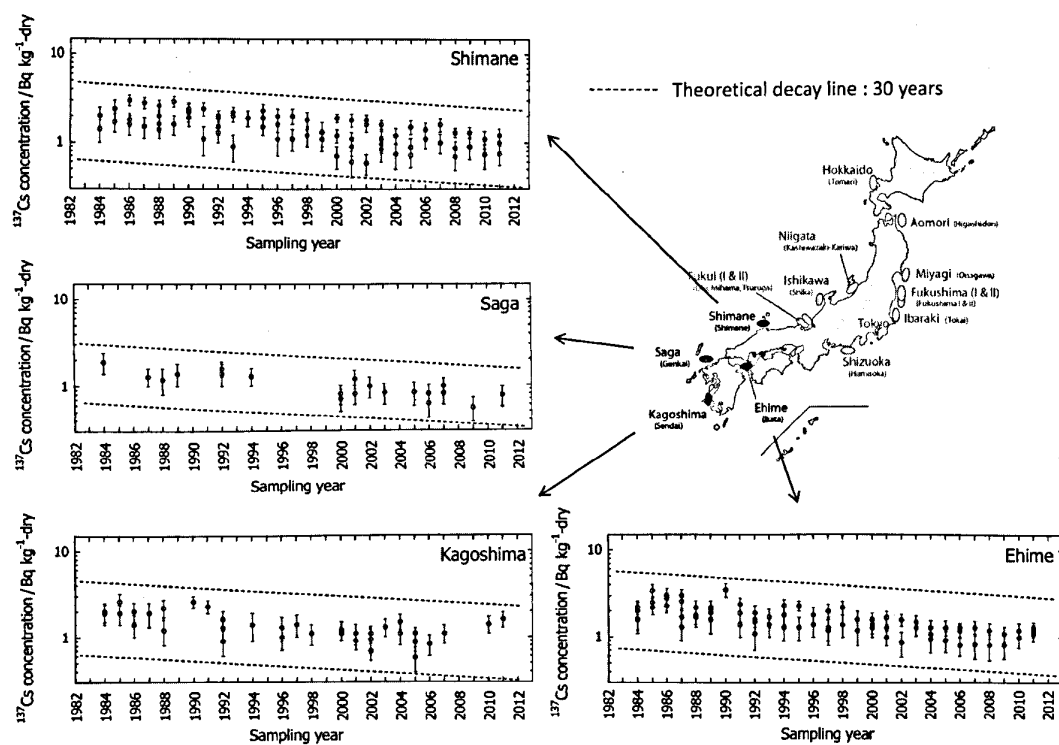


Fig. 11 Temporal changes of the ^{137}Cs concentrations in the bottom sediments off Shimane, Saga, Kagoshima and Ehime Prefectures

The error bar shows one sigma of the counting statistics by gamma-ray spectrometry.

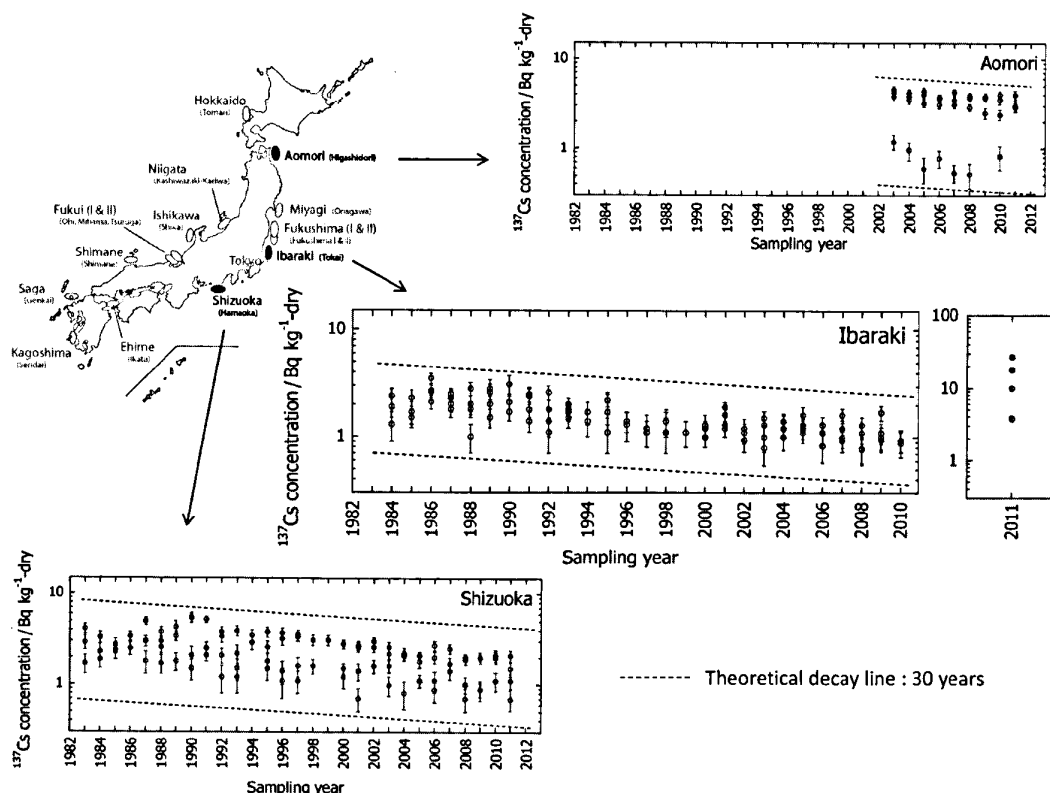


Fig. 12 Temporal changes of the ^{137}Cs concentrations in the bottom sediments off Aomori, Ibaraki and Shizuoka Prefectures

The error bar shows one sigma of the counting statistics by gamma-ray spectrometry.

多々あった。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。

日本海側を中心とした北海道、新潟、石川及び福井海域の結果をFig. 10に示した。新潟海域で平成23年(2011年)5月に採取した海底土の一部から過去最高値の ^{137}Cs 濃度を観測している。なお、新潟海域の結果のうち、昭和59年度(1984年度)から昭和60年度(1985年度)にかけての濃度上昇は、測点を移動させたことに起因しており、何かしらの放出に由来するものではない。

西日本側に位置する愛媛、鳥根、佐賀及び鹿児島海域の結果をFig. 11に示した。これら海域については、 ^{137}Cs 濃度は全国的に低く、検出下限値以下となる測点も多く存在した。平成23年(2011年)5月に採取した海底土からも顕著な ^{137}Cs 濃度変化は確認されず、過去の変動範囲内に含まれる結果となった。表層海水から福島第一原子力発電所事故由来の放射性セシウムが検出された佐賀海域(Fig. 4)についても、同海底土からは事故由来とみられる顕著な上昇は見られなかった。

太平洋側に位置する青森、茨城及び静岡海域の結果をFig. 12に示した。茨城及び静岡海域において、表層海水で見られたチェルノブイリ原子力発電所事故の影響とみられる ^{137}Cs 濃度ピーク(Fig. 5)が数年遅れて観測されているようにみえる(青森海域は2003年度から調査開始)が、以後漸減傾向を続けてきた。平成23年度(2011年度)の茨城海域での調査において、過去の変動範囲を超える ^{137}Cs 濃度が観測された。

福島第一原子力発電所に近い宮城及び福島海域の結果をFig. 13に示した。前述の茨城海域と同様に平成23年度(2011年度)の結果においては、過去の変動範囲を大きく逸脱し、宮城海域で過去5年程度の平均的な値のおよそ80倍、福島海域においてはおよそ200倍の値を観測するなど、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確認された。

海底土に含まれる ^{137}Cs 濃度は、海水に含まれる ^{137}Cs 濃度が全国ほぼ一定レベルにあるのに対し、海域ごとに異なっている。この濃度差は、海底土の性状により異なる傾向があり、泥質の場合に高く、砂質の場合に低くなる。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は泥や細砂混じりの泥の場合が多

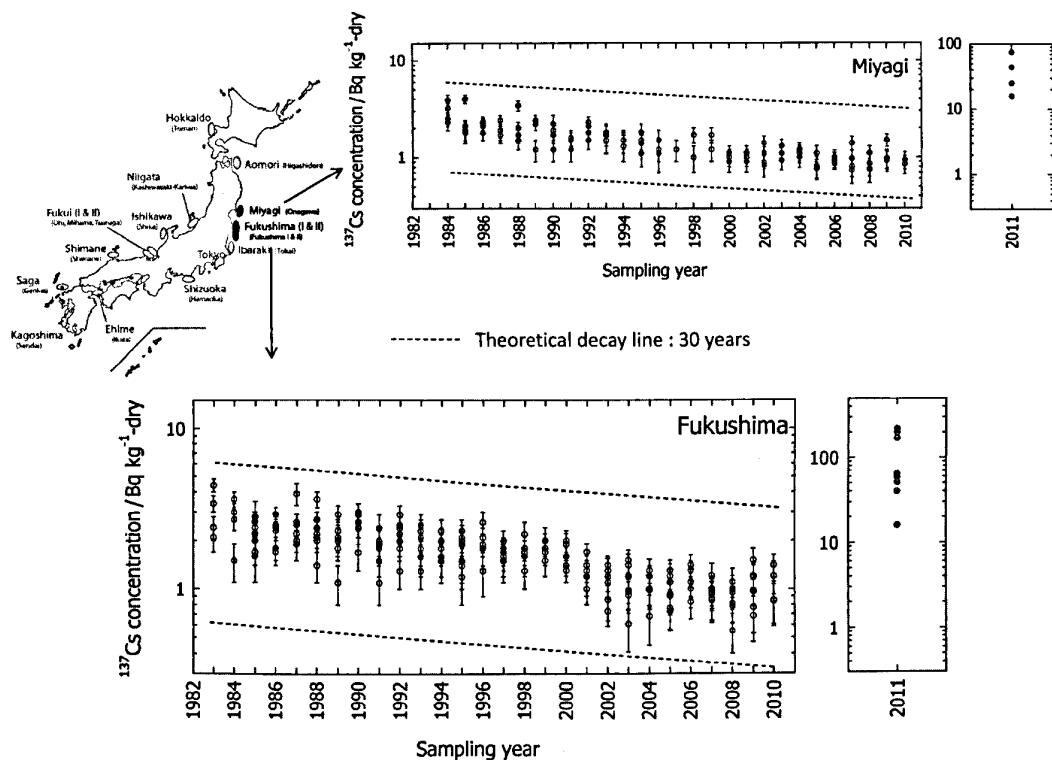


Fig. 13 Temporal changes of the ^{137}Cs concentrations in the bottom sediments off Miyagi and Fukushima Prefectures

The error bar shows one sigma of the counting statistics by gamma-ray spectrometry.

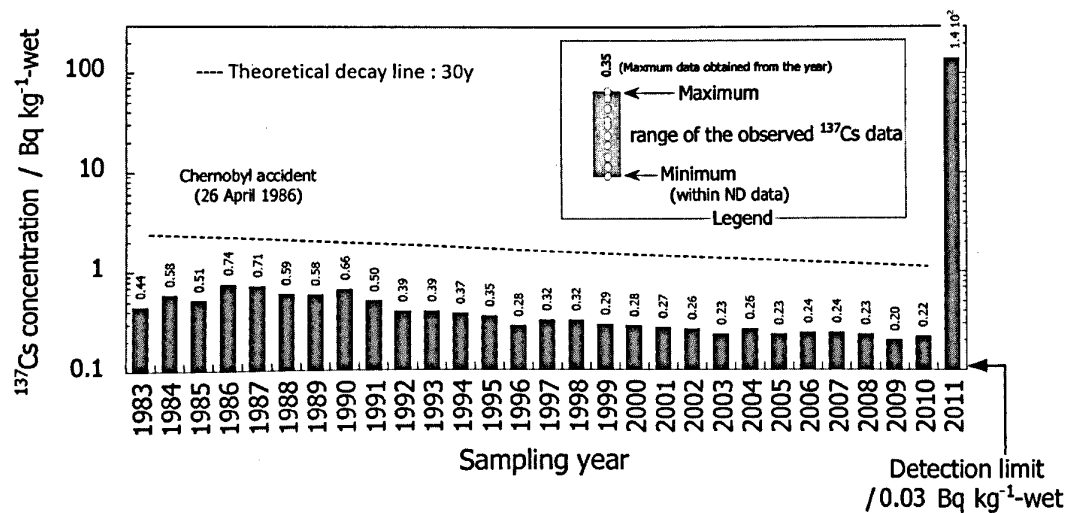


Fig. 14 Time course of the ^{137}Cs concentration in the edible parts of marine organisms

く、その他の海域は砂質あるいは泥混じりの細砂が多く得られることに対応して ^{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多く観測されており、水深が ^{137}Cs 濃度を把握するうえで一つのパラメーターになりうるかもしれない。また、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 ^{137}Cs 濃度の漸減傾向はどの海域でも ^{137}Cs の物理的半減期とほぼ等しい。海水から海底土に沈着・移行した ^{137}Cs は再浮遊や生物攪乱による下層への移行もあるかもしれないが、ほぼ物理的半減期に従って減衰すると見て差支えないと考えら

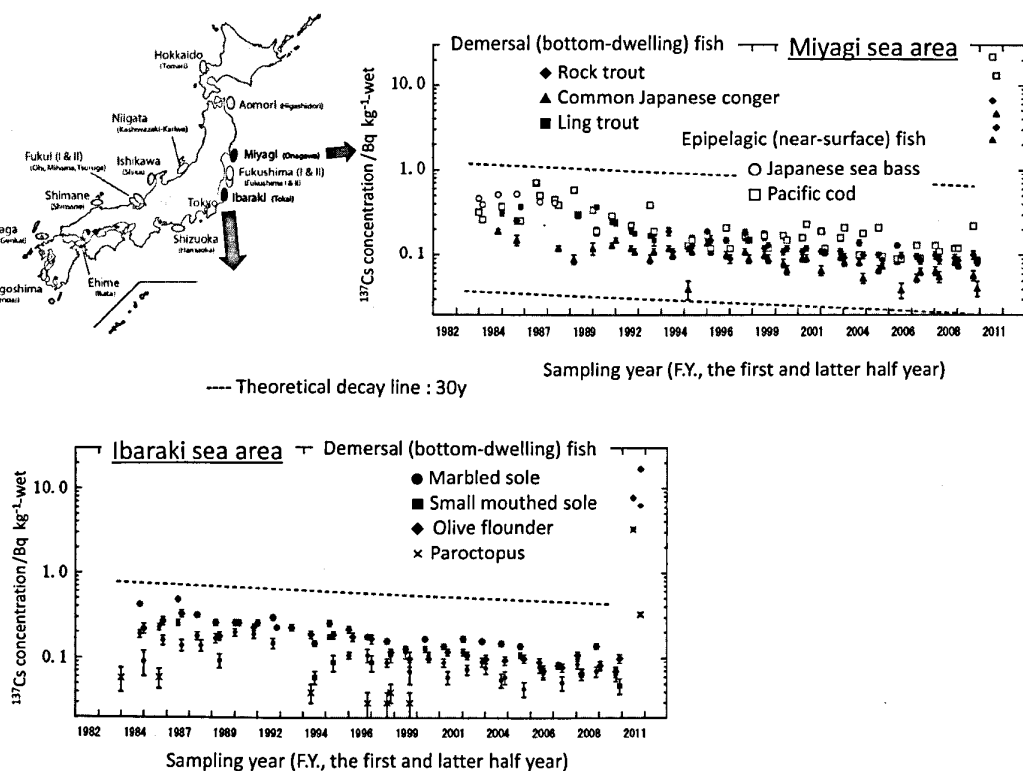


Fig. 16 Temporal changes of the ^{137}Cs concentrations in the marine organism samples off Miyagi and Ibaraki Prefectures

The error bar shows one sigma of the counting statistics by gamma-ray spectrometry.

きた。この結果では、海産生物の筋肉部位に含まれる ^{137}Cs 濃度は漸減傾向を示し、その減衰は ^{137}Cs の物理的半減期よりも多少短いことが確認できる。また、硬骨魚類よりも軟体類であるミズダコ (Paroctopus) の筋肉部位に含まれる ^{137}Cs 濃度は低い傾向にあった。海産生物の棲息域 (浮魚あるいは底魚) に着目すると、高い ^{137}Cs 濃度を示す順に、浮魚に分類されるスズキ (Japanese sea bass)、底魚のメバル (Black rockfish)、イシガレイ (Stone flounder)、マガレイ (Small mouthed sole) などがそれに続いている。 ^{137}Cs 濃度推移は、調査開始の昭和 58 年度 (1983 年度) の $0.1 \sim 0.5 \text{ Bq kg}^{-1}\text{-wet}$ レベルから漸減傾向が続き、福島第一原子力発電所事故前までの近年では $0.05 \sim 0.15 \text{ Bq kg}^{-1}\text{-wet}$ のレベルになっていた。この漸減傾向は海水や海底土と同様であり、福島第一原子力発電所事故直前においては、海水に含まれる ^{137}Cs 濃度 ($1.6 \sim 1.8 \text{ mBq L}^{-1}$ 程度) に比べ 100 倍程度のレベルにあった。このことは、海産生物の筋肉部位について濃縮係数を示した IAEA レポート²⁹⁾ の値と同じである。福島第一原子力発電所事故以降、海水や海底土と同様に海産生物においても高い ^{137}Cs 濃度が観測されてきた。本評価事業でも平成 23 年度 (2011 年度) の調査で $100 \text{ Bq kg}^{-1}\text{-wet}$ を超える ^{137}Cs をスズキ (Japanese sea bass) やマガレイ (Small mouthed sole) で認めた。福島海域以外

の海域で調査を行って来た海産生物に含まれる ^{137}Cs 濃度の経年変化を Fig. 16 ~ Fig. 18 (いずれも浮魚について白抜き、底魚について黒塗り、軟体類については×でプロット) に示したが、特定の魚種で ^{137}Cs 濃度が高いということとはなかった。また、減衰の傾向や海水と比較したときの比 (濃縮係数) も福島海域と同様であった。

福島第一原子力発電所事故前までの調査結果では、浮魚や底魚などの棲息域ではなく、食物連鎖の上位にいる魚食性のスズキ (Japanese sea bass) やヒラメ (Olive flounder) に比較的高い ^{137}Cs 濃度が観測されて来た。しかし、福島第一原子力発電所事故以降に海産生物を調査した結果では Buesseler による指摘³⁰⁾ にもあるように、底魚から高い放射性セシウム濃度が観測されており、これまでの調査結果とは異なる傾向が認められる。福島第一原子力発電所事故以降、水産庁による東日本を中心とした水産物の放射能調査が開始され、水産物の放射性セシウム汚染の状況が明らかになりつつある。福島第一原子力発電所事故では多量の放射性核種が局所的に極めて短時間に海洋環境に付加され、いまだに不均一状態にあると考えられ、魚介類試料においては放射性セシウム濃度も個体差が極めて大きいため、決まった解釈を得ることは難しい。一方、本評価事業は、主として過去の大気圏核爆発実験に由来し現在では海洋中で

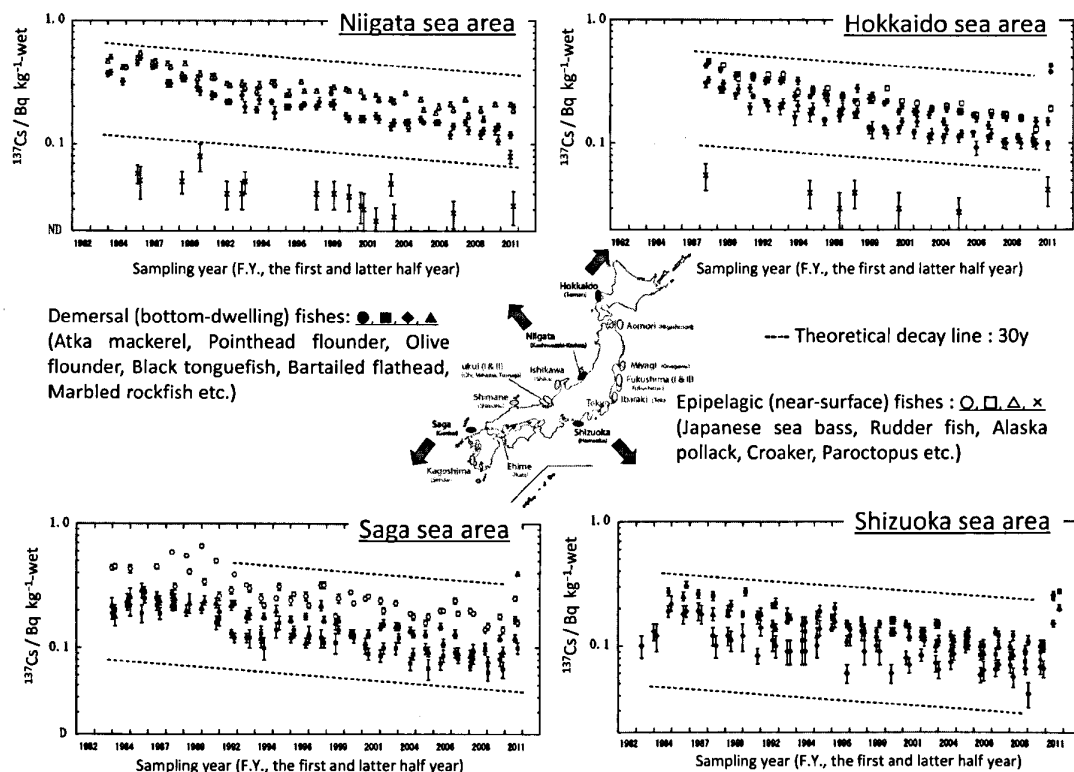


Fig. 17 Temporal changes of the ^{137}Cs concentrations in the marine organism samples off Hokkaido, Niigata, Saga and Shizuoka Prefectures

The error bar shows one sigma of the counting statistics by gamma-ray spectrometry.

均一化されていると考えられる ^{137}Cs 等を対象としてデータを提供してきた。これらのデータは、事故以前より長期にわたり網羅的に蓄積されており、現在の状況を比較対照するうえで非常に有用なものになり得よう。海産生物に含まれる放射性セシウムがどの程度の期間で元の水準に戻るか、ということは現在でも予測することが困難なテーマの一つである。チェルノブイリ事故のデータを基に推測することも試みられている³¹⁾が、その評価については今後の継続した調査結果を踏まえて判断することが何よりも必要であろう。

4 結 言

昭和 58 年度から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おいて、放射化学分析を駆使して得られた海水、海底土及び海産生物に含まれる ^{90}Sr (海水のみ) や ^{137}Cs の継続した調査結果の一部を取りまとめた。とりわけ、平成 23 年 3 月の東京電力福島第一原子力発電所事故では、海洋を含む一般環境に多量の人工放射性核種が付加され、近隣住民の避難や農産物、畜産物及び水産物への放射能汚染を引き起こすなど、多くの被害・損害を与えた。海洋環境へ付加された人工放射性核種のうち、放射性

セシウムによる汚染や風評被害はいまだ解決に至らない大きな社会問題となっている。本稿では、放射化学分析によって得られた海洋環境における継続的な ^{90}Sr と ^{137}Cs の調査結果の一部を取りまとめるとともに、チェルノブイリ原子力発電所事故や福島第一原子力発電所事故の前後を含め、 ^{90}Sr と ^{137}Cs 濃度の経年変化を示した。海水中の ^{90}Sr と ^{137}Cs 、海底土及び海産生物の筋肉部位に含まれる ^{137}Cs は、自身の物理学的半減期よりも若干速い割合の漸減傾向を示してきた。福島第一原子力発電所事故では多量の ^{90}Sr と ^{137}Cs を含む人工放射性核種を環境に放出したが、海洋環境における今後の推移については、過去に蓄積されたデータを参考として評価するとともに継続的な調査により追跡することが重要であろう。とりわけ、海産生物においては、今後、世代交代が進むにつれて、福島第一原子力発電所事故に起因する放射性物質の海産生物への移行挙動がどのようになるのかはいまだ不透明な部分が多々あるが、今後の調査結果を補完するうえでも本稿が分析化学の果たす役割の大きさと海洋環境放射能問題を理解するための一助になれば幸いである。

最後に、被災地の日も早い復興を心からお祈り申し上げます。

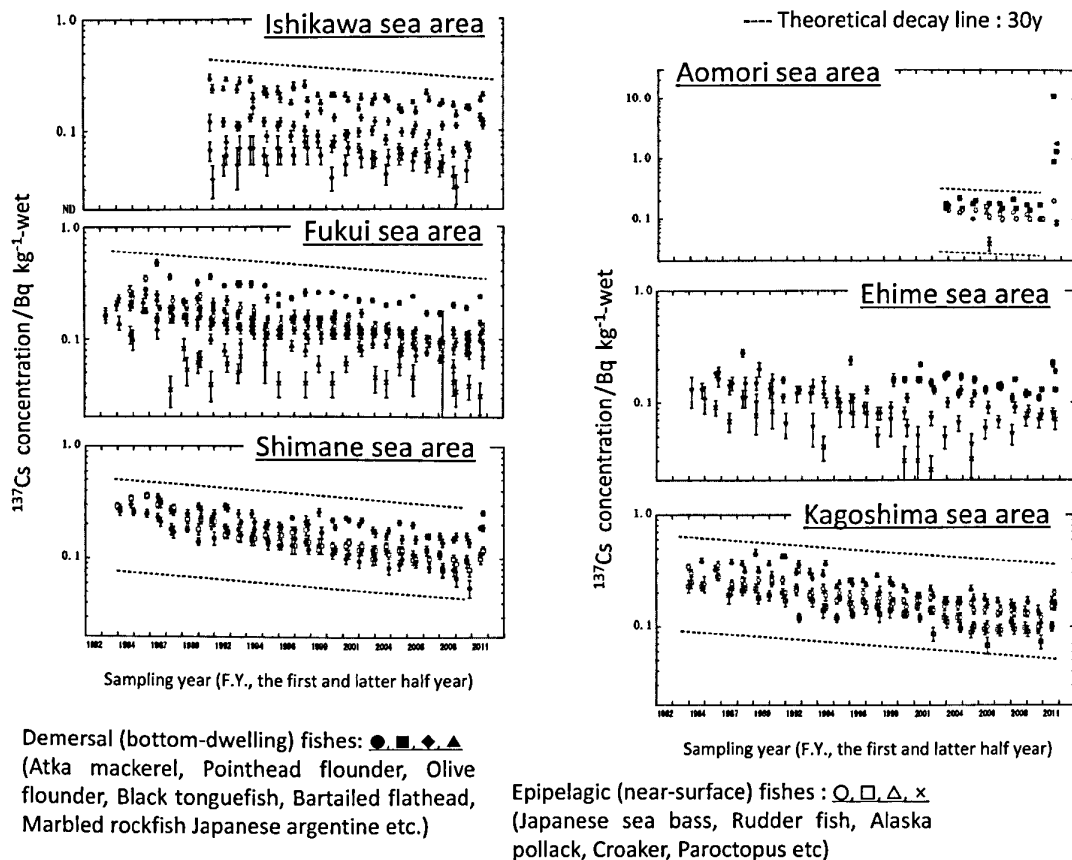


Fig. 18 Temporal changes of the ^{137}Cs concentrations in the marine organism samples off Aomori, Ishikawa, Fukui, Shimane, Ehime and Kagoshima Prefectures

The error bar shows one sigma of the counting statistics by gamma-ray spectrometry.

謝 辞

本稿に示したデータ等は文部科学省からの委託業務「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。本評価事業を継続するにあたり、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、海産生物試料の収集に際し、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いただいた。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財団法人日本分析センターの協力をいただいた。原稿取りまとめに際し、城戸勝利博士、宮本霧子博士にご助言をいただいた。合わせて感謝申し上げる。

文 献

- 1) UNSCEAR 2000 report: United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation, UNSCEAR 2000 Report to the General Assembly, with scientific annexes.
- 2) 原子力安全委員会: 環境放射線モニタリング指針,

平成 20 年 3 月.

- 3) 気象庁: 平成 23 年 (2011 年) 東北地方太平洋沖地震について (第 15 報), 平成 23 年 3 月 13 日発表.
- 4) 廣瀬勝己: ぶんせき (*Bunseki*), 2011, 446.
- 5) 平井昭司: ぶんせき (*Bunseki*), 2011, 315.
- 6) 高田和男, 鈴木 譲: 保健物理, 38, 128 (2003).
- 7) 文部科学省: 放射能測定法シリーズ (全 34 集), <<http://www.kankyo-hoshano.go.jp>>.
- 8) 及川真司: 海洋と生物, 200, 206 (2012).
- 9) 文部科学省: 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), <<http://www.kankyo-hoshano.go.jp>>.
- 10) 文部科学省: 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), <<http://www.kankyo-hoshano.go.jp>>.
- 11) 文部科学省: 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, (平成 4 年改訂), <<http://www.kankyo-hoshano.go.jp>>.
- 12) M. Inoue, H. Kofuji, S. Nagao, M. Yamamoto, Y. Hamajima, K. Yoshida, K. Fujimoto, T. Takada, Y. Isoda: *J. Environ. Radioact.*, 109, 45 (2012).
- 13) M. Inoue, H. Kofuji, Y. Hamajima, S. Nagao, K. Yoshida, M. Yamamoto: *J. Environ. Radioact.*, 111, 116 (2012).

- 14) N. Momoshima, S. Sugihara, R. Ichikawa, H. Yokoyama : *J. Environ. Radioact.*, **111**, 28 (2012).
- 15) D. Tsumune, T. Tsubono, M. Aoyama, K. Hirose : *J. Environ. Radioact.*, **111**, 100 (2012).
- 16) M. Aoyama, D. Tsumune, M. Uematsu, F. Kondo, Y. Hamajima : *Geochemical J.*, **46**, 321 (2012).
- 17) 及川真司, 渡部輝久, 日下部正志, 中原元和, 御園生淳 : *海洋と生物*, **194**, 262 (2011).
- 18) S. Oikawa, H. Takata, T. Watabe, J. Misonoo, M. Kusakabe : *Biogeosciences Discuss.*, **10**, 4851 (2013).
- 19) M. Nakano, P. P. Povinec : *J. Environ. Radioact.*, **111**, 109 (2012).
- 20) Y. Masumoto, Y. Miyazawa, D. Tsumune, T. Tsubono, T. Kobayashi, H. Kawamura, C. Estournel, P. Marsaleix, L. Lanerolle, A. Mehra, Z. D. Garraffo : *Elements*, **8**, 207 (2012).
- 21) M. Kusakabe, S. Oikawa, H. Takata, J. Misonoo : *Biogeosciences Discuss.*, **10**, 4819 (2013).
- 22) S. Otsuka, T. Kobayashi : *Environ. Monit. Assess.*, in press (2013). doi: 10.1007/s10661-012-2956-7.
- 23) 及川真司, S.-J. Song, 前山健司, 岸本武士, 戸村健児, 樋口英雄 : *分析化学 (Bunseki Kagaku)*, **52**, 551 (2003).
- 24) S. Oikawa, M. Yamamoto : *J. Environ. Radioact.*, **93**, 170 (2007).
- 25) 磯山直彦, 及川真司, 御園生淳, 中原元和, 中村良一, 鈴木奈緒子, 吉野美紀, 鈴木千吉, 佐藤 肇, 原 猛也 : *分析化学 (Bunseki Kagaku)*, **57**, 763 (2008).
- 26) 及川真司, 太田 博, 早野和彦, 野中信博 : *分析化学 (Bunseki Kagaku)*, **53**, 1515 (2004).
- 27) 笠松不二男 : *Radioisotopes*, **48**, 266 (1999).
- 28) 及川真司, 磯山直彦, 御園生淳, 稲富直彦, 鈴木千吉, 鈴木奈緒子, 中原元和, 中村良一, 渡部輝久, 森蘭繁光, 藤井誠二, 原 猛也 : *保健物理*, **44**, 198 (2009).
- 29) International Atomic Energy Agency : IAEA Technical Report Series No. 422, IAEA, Vienna (2004).
- 30) K. O. Buesseler : *Science*, **338**, 480 (2012).
- 31) 吉田勝彦 : *日本農学アカデミー会報*, **16**, 17 (2011).