

日本原子力研究開発機構機関リポジトリ
Japan Atomic Energy Agency Institutional Repository

Title	海洋への放射性物質の流出と汚染の実態
Author(s)	乙坂 重嘉, 小林 卓也
Citation	水環境学会誌, 36(3) ; p.95-98
Text Version	Publisher
URL	http://jolissrch-inter.tokai-sc.jaea.go.jp/search/servlet/search?5039705
Right	©公益社団法人日本水環境学会

海洋への放射性物質の流出と汚染の実態*

乙坂重嘉 小林卓也

1. はじめに

東京電力(株)福島第一原子力発電所(福島第一原発)の事故によって大気中に放出された放射性核種の多くは、東方へ輸送され海表面に沈着した。また、原子炉の冷却のために放水作業が行われたが、それらの一部は破損した施設から漏洩し、海洋へ流出した。事故から約2年が経過した現在、国や自治体等による海域モニタリングや、多くの研究機関による海洋調査の結果、事故起因の放射性物質の拡散状況が少しずつ浮き彫りになってきた。本稿では、とくに海水および海底堆積物中の事故由来の放射性核種について、分布の概況と今後の課題について解説する。

2. 海水中の放射性核種

2.1 モニタリング結果からみる海水の汚染の実態

東京電力(株)は、2011年4月1日から6日にかけて、福島第一原発2号機の取水口スクリーン付近のコンクリート亀裂部から、 ^{131}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の合計として 4.7×10^{15} Bq (^{137}Cs は 9.0×10^{14} Bq)の漏洩があったことを公表した。その後直ちに止水作業が施され、4月21日までに工事が完了した。図1に示すとおり、同社がモニタリングを開始した2011年3月21日以降、福島第一原発近傍(北放出口および南放出口)における海水中の ^{137}Cs 濃度は上昇を続け、4月7日に最大値 6.8×10^4 Bq \cdot L $^{-1}$ を示した後、4月下旬にかけて二桁、さらにその後の2ヶ月で一桁減少した¹⁾。この変化の傾向は、汚染水の漏洩および止水に関する同社の公表内容と整合している。なお、

2012年12月現在の両放水口における ^{137}Cs 濃度は、 $10^{-1} \sim 10^0$ Bq \cdot L $^{-1}$ にまで減少している¹⁾。

Tsumune et al.²⁾は、海水中の2つの放射性核種(^{131}I 、 ^{137}Cs)の濃度比の時間変化の傾向が2011年3月26日の前後で大きく異なっており、この違いが大気から海洋表面への沈着特性に関する両核種の違いを反映しているとして、海洋への直接放出が3月26日から開始され、それ以前の濃度増加は大気からの降下によるものであると結論づけている。

図2に、2012年4月下旬までの福島第一原発周辺海域における海水中の ^{137}Cs 濃度の変化を示す^{3, 4)}。福島

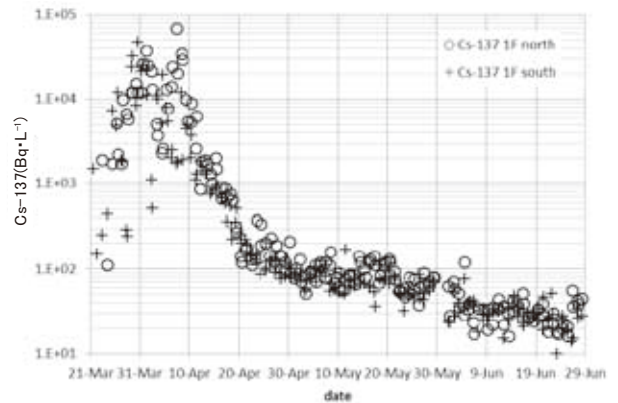


図1 福島第一原発近傍の北放出口(1F north)と南放出口(1F south)における海水 ^{137}Cs 濃度の変化(東京電力(株))。

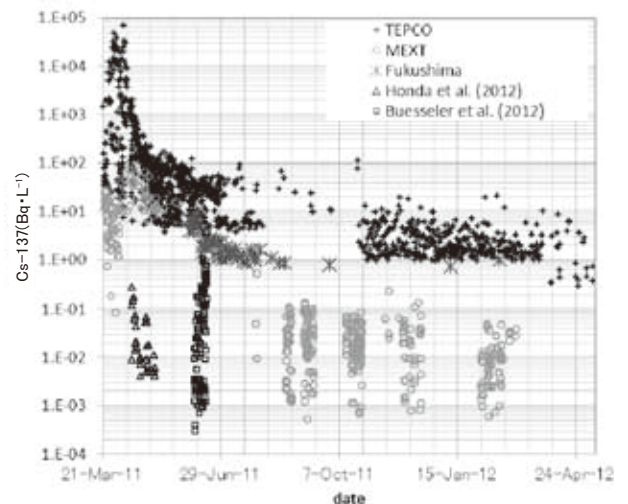


図2 福島第一原発事故以降の周辺海域における海水 ^{137}Cs 濃度の変化。採取海域は福島第一原発を起点として、+ : 東京電力(株)による周辺の沿岸、○ : 文部科学省による30 km圏外周辺を対象とした緊急モニタリング(2011年6月まで)および400 km海域までの高精度測定、* : 福島県による30 km圏外周辺、△ : Honda et al. (2012)による100~2,000 km、□ : Buesseler et al. (2012)による30~700 km。



Shigeyoshi Otsuka
平成10年 北海道大学大学院地球環境科学研究科修士
12年 特殊法人 日本原子力研究所研究員
23年 ㈱日本原子力研究開発機構 研究副主幹
博士(地球環境科学)



Takuya Kobayashi
平成7年 茨城大学大学院修士
7年 特殊法人 日本原子力研究所研究員
20年 ㈱日本原子力研究開発機構 研究副主幹
博士(工学)

* Discharge and Distribution of Radionuclides in the Marine Environment

第一原発周辺の沿岸では、強い沿岸流による水塊の輸送と拡散過程によって海水中の ^{137}Cs 濃度が減少しており、2012年4月には $10^{-1} \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ となった。施設から30 km圏外の周辺海域においても、事故直後は $10^{-1} \sim 10^2 \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ であった ^{137}Cs 濃度が、2012年2月には $10^{-1} \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ のオーダーにまで減少した。施設から100 km以遠の沖合海域においては、事故直後に $10^{-3} \sim 10^{-1} \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ であった ^{137}Cs 濃度が緩やかに減少し、2012年2月には $10^{-4} \sim 10^{-2} \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ となっている。事故以前の福島沖海域の海水中の ^{137}Cs 濃度は $(1.4 \sim 2.0) \times 10^{-3} \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ であった。福島第一原発周辺沿岸における2012年4月および30 km圏外周辺海域における2012年2月の海水中の ^{137}Cs 濃度は、事故前のそれと比べて二桁高く、100 km以遠の沖合海域における2012年2月の濃度は事故前の濃度から一桁高いことがわかる。

2.2 日本近海域での放射性物質の分布

日本近海域における ^{137}Cs 濃度の分布状況を、数値シミュレーション結果⁵⁾から概観する。原子力機構では、放射性物質の海洋中における分布を再現するモデルSEA-GEARNを開発してきた⁶⁾。このモデルでは、対象核種の放射性壊変による減衰に加えて、例えば海洋中懸濁物質との吸脱着や海底への堆積・再浮遊効果といった地球化学的過程を考慮することが可能である。本シミュレーションでは、SEA-GEARNに対象核種の海洋への放出条件（放出時間・放出場所・放出量）を入力し、さらに世界版緊急時環境線量情報予測システム（WSPEEDI）により計算された海表面への沈着量⁷⁾を入力することで、海洋への直接放出と大気からの降下の影響を考慮した。

図3に、事故後1ヶ月半までの日本近海域における表面海水中の ^{137}Cs 濃度の水平分布の計算結果を示す。大気の拡散解析により、福島第一原発から太平洋側への風が卓越していた期間は2011年3月12日から3月14日までと、3月16日から3月20日までであることがわかっている⁸⁾。シミュレーションによると、福島第一原発のごく近傍の海域への低濃度の放射性沈着が3月12日から始まり、3月13日には福島第一原発から北東方向に沈着し、3月14日には図3(a)に示す分布を形成した。3月15日と16日には福島第一原発から北東方向に $10^{-1} \text{ Bq}\cdot\text{L}^{-1}$ の沈着があり、当該海域の南部にも沈着が計算された（図3(b)の丸印）。沈着は時間の経過とともに南東方向へ移動し、3月18日には本州の南東方向に沈

着が計算された（図3(c)の丸印）。このように、日本近海の太平洋側には、広範囲に及ぶ大気沈着があったと推定される。海洋への直接放出が開始されてから約1ヶ月後である4月28日の分布（図3(d)）を見ると、表面海水中の ^{137}Cs は、汚染度の低い親潮系水や黒潮の流入によって混合希釈され、 ^{137}Cs 濃度の高い沿岸水は黒潮統流によって東に輸送された。黒潮統流の強い流れは核種を太平洋東方へ運ぶ効果があるが、黒潮統流から外れた核種は暫くその場に停滞する傾向を示している。

2.3 海洋に放出された放射性物質の総量

Kobayashi et al.⁹⁾は、福島第一原発事故により太平洋規模の海洋環境に放出された放射性物質の総量を推定した。この推定では、北太平洋の広範囲での海洋観測で得た海水中の放射性核種濃度^{3, 10)}から、施設から大気に放出された放射性核種量を逆推定した上で、大気-海洋拡散シミュレーションを実施している。結果として、大気から北太平洋全域への沈着と施設から海洋への直接放出を合計した核種供給量を、 ^{137}Cs が $1.1 \times 10^{16} \text{ Bq}$ 、 ^{131}I が $1.1 \times 10^{17} \text{ Bq}$ と見積もっている。

3. 海底堆積物中の放射性核種

3.1 モニタリング結果からみる海底堆積物の汚染の実態

文部科学省が2011年5月に福島第一原発の周辺海域で実施したモニタリング調査の結果、 ^{131}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{129}mTe 、 $^{110\text{m}}\text{Ag}$ 、 ^{95}Nb 、 ^{129}Sb といった事故由来と考えられる放射性核種が海底堆積物から検出された。短半減期の放射性核種は、事故後の早い段階で検出できないレベルまで濃度が減少した一方で、半減期の比較的長い放射性セシウム（ ^{134}Cs 、 ^{137}Cs ）は、事故から1年半以上が経過した現在においても、高い濃度レベルを維持している。

図4は、2011年5月から2012年8月までの間に文部科学省が宮城、茨城、福島各県の沖合で実施したモニタリング調査結果のうち、堆積物表層の ^{137}Cs 濃度の分布をまとめたものである¹¹⁾。2011年9月以降はより沖合海域での調査も行っているが、図4には当初より継続的に調査されている観測点についてのみ結果を示した。放射能濃度は乾燥試料1 kgあたりの放射能（ $\text{Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ ）として表し、試料採取日に壊変補正している。

堆積物中からは、石巻沖（北緯38.7度）から犬吠崎沖（北緯35.5度）までの範囲で事故由来とみられる核種が検出されており、 ^{137}Cs の濃度は $2 \sim 520 \text{ Bq}\cdot\text{kg}^{-1}$ であった。

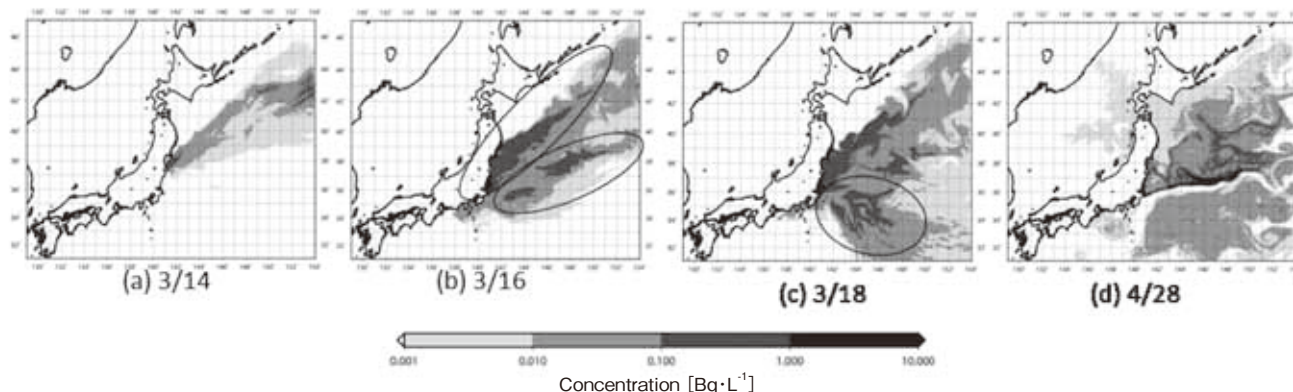


図3 シミュレーションによる日本近海域における表層海水中の ^{137}Cs 濃度分布

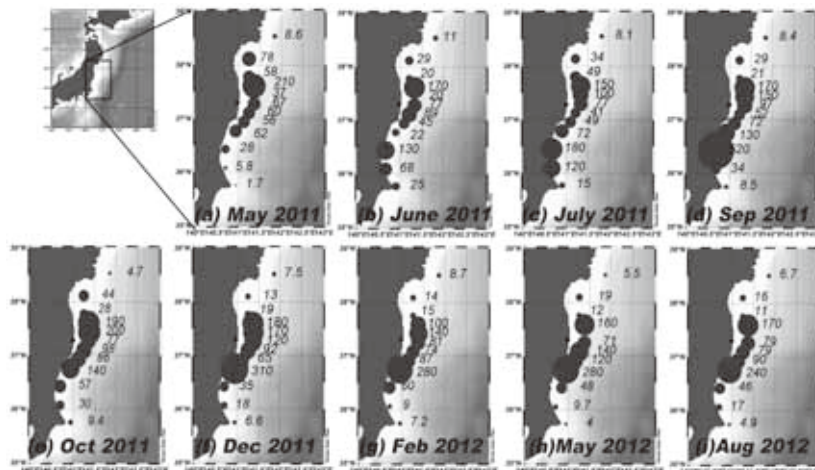


図4 文部科学省の海域モニタリングによる、堆積物表層0～3cmの¹³⁷Cs濃度分布 (Bq·kg⁻¹)

事故の前年である2010年の同海域における濃度が0.3～2 Bq·kg⁻¹であることを考慮すると¹²⁾、堆積物中の¹³⁷Cs濃度は、福島第一原発から100 km以上離れた海域でも、事故以前に比べて一桁から二桁増加したことがわかる。図2に示したとおり、事故直後から2012年8月までの間に、福島沖の海水中の¹³⁷Cs濃度は二桁から三桁減少した一方で、図4に示す堆積物中の¹³⁷Cs濃度は、そのレベルや全体の分布の特徴を1年以上にわたって維持していることがわかる。

3.2 海底堆積物中の放射性Csの存在形態

Csの海底堆積物への主な取り込み過程として、(i) 水中のCsイオンの粒子（とくに鉍物粒子）表面への静電的な吸着¹³⁾、(ii) 堆積物中の生物（有機物）への取り込み^{14, 15)}、(iii) 層状鉍物の開裂部分へのCsイオンの取り込み^{16, 17)}、の3つが考えられる。福島第一原発事故によって実際に影響を受けた堆積物について、上記(i)や(ii)の画分を段階的に抽出した実験によると、これらの画分に含まれる放射性Csの割合は比較的少なく、多くは堆積物（おそらくその中の鉍物成分）に、強く、かつほぼ不可逆的に強く結合していることがわかった（図5）¹⁸⁾。このような放射性Csの堆積物への吸着特性が、海水への溶解による濃度減少を遅らせる原因であると考えられる。

3.3 堆積物中の放射性Csの存在量

図6に、沿岸から沖合までの代表的な4つの観測点における堆積物中の¹³⁷Csの鉛直分布を示す。水深が1,000 mを超える沖合では、堆積物中の¹³⁷Csのほぼすべてが、海域モニタリングの基準層である堆積物表面から3 cm深までの層に存在していた。一方、水深75 m～158 mでは3割程度、50 m以浅では7割以上の¹³⁷Csが3 cm深より下部の堆積層に取り込まれていた。福島県や茨城県沿岸の浅海域の海底は、透水性の高い砂質堆積物が主要成分である¹⁹⁾。このような海域では、堆積物の間隙を通して放射性Csが堆積物内部へと運ばれ、沈着したと考えられる。

そこで、堆積物深部への放射性Cs分布を考慮して、宮城県、福島県、茨城県沖（北緯38.7度から35.5度）の42観測点について、堆積物1 m²あたりに存在する¹³⁷Cs量を求め、その結果と海底水深との関係を示したのが図7である。全体の分布の特徴は、以下のようにまとめることができる。

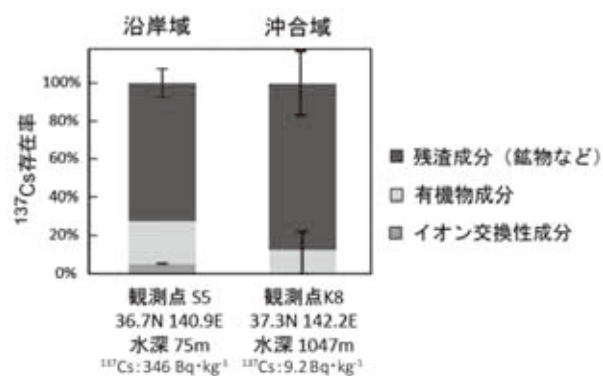


図5 沿岸域（水深75 m）と沖合海域（水深1,047 m）における堆積物中の¹³⁷Csの存在形態。有機物成分は10%過酸化水素、イオン交換性成分は1M酢酸アンモニウムによって抽出した。

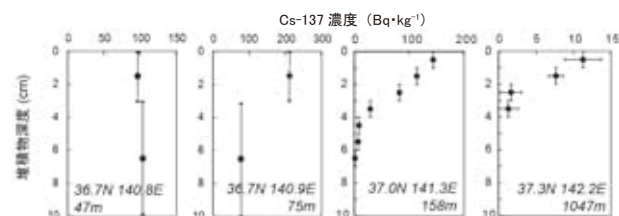


図6 沿岸域から沖合海域（水深47 mから1,047 m）までの4観測点における堆積物中¹³⁷Cs濃度の鉛直分布。

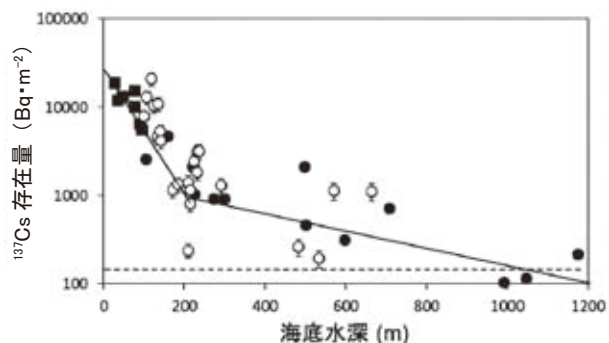


図7 宮城県、福島県、茨城県沖の44観測点における海底堆積物中の¹³⁷Cs存在量と海底水深との関係（2011年10月）。■はOtosaka and Kobayashi (2012)¹⁸⁾、●は著者らによる実測値、○は文部科学省による濃度データ¹¹⁾に基づく推定値。点線は事故前の値¹²⁾。

- (1) 堆積物中の¹³⁷Cs存在量は、海底水深とともに指数関数的に減少する。
- (2) 堆積物中¹³⁷Cs存在量の海底水深に対する変化率は、水深200m付近を境に異なる。
- (3) 沖合海域における水深-¹³⁷Cs存在量の関係を外挿すると、水深1,200m付近で事故前のレベルに達する。

¹³⁷Csの存在量が水深とともに減少することは想像に難くないが、その変化率が沿岸と沖合で異なることは、放射性Csの堆積物への沈着過程も、海域によって異なることを示唆している。

図7に示す¹³⁷Cs存在量の分布の特徴を、同海域における海底深度の分布に適用すると、2011年10月現在の堆積物中の¹³⁷Cs量は $(1 \sim 3) \times 10^{14}$ Bqで、そのうちの95%が水深200m以浅の沿岸に沈着していると見積もられた。事故によって海洋に放出された¹³⁷Csの総量を 1.1×10^{16} Bq(2.3節を参照)とすると、全放出量の1~3%が堆積物中に沈着したと推定される。

3.4 まとめと今後の課題

本章では、福島第一原発による海洋汚染の状況を、とくに放射性Csの分布を中心に述べた。事故から約2年が経過したが、事故が海洋に与えた影響の全容は十分に把握されているわけではなく、今後の海洋環境の予測も急がれている。

海水中の放射性Csのほとんどは大洋レベルで拡散し、その濃度は減少を続けている。時間的、空間的に連続した観測データを取得することが困難な海洋において、事故由来の放射性物質の分布状況を理解するために、数値シミュレーションの活用が有効である。ただし、その結果は、使用するモデルや選択したパラメーターに依存するため、複数のモデルを用いたアンサンブル平均やパラメーターの精緻化といった不確実性を低減させる研究を進めることが今後の課題である。

福島第一原発周辺の堆積物中には、事故後の早い段階で沈着した放射性Csが、当時とほぼ濃度同じレベルで存在している。今後は、海底付近での高懸濁層を通じた沿岸-外洋間の粒子の水平輸送¹⁸⁾や、海洋表層で粒子化した放射性Csの沈降輸送²⁰⁾が、海底での放射性核種の分布を決定すると考えられる。また、河川等を通じた陸域からの放射性Csの流入も継続しており、とくに沿岸での海底環境は継続的な監視が必要である。福島県沖およびその周辺海域では、複数の機関でセジメントトラップ実験(沈降粒子捕集実験)等の時系列観測が行われており、放射性核種の輸送量や時間スケールを把握するための有益な情報をもたらすことが期待される。

参考文献

- 1) 東京電力(2012) 福島第一原子力発電所周辺の放射性物質の核種分析結果, <http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/fl/smp/index-j.html> (2012年12月時点)。
- 2) Tsumune, D., Tsubono, T., Aoyama, M. and Hirose, K. (2012) Distribution of oceanic ¹³⁷Cs from the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant simulated numerically by a regional ocean model, *J. Environ. Radioact.*, **111**, 100-108.
- 3) Honda, M. C., Aono, T., Aoyama, M., Hamajima, Y.,

Kawakami, H., Kitamura, M., Masumoto, Y., Miyazawa, Y., Takigawa, M. and Saino, T. (2012) Dispersion of artificial caesium-134 and -137 in the western North Pacific one month after the Fukushima accident, *Geochem. J.*, **46**, e1-e9.

- 4) Buesseler, K. O., Aoyama, M. and Fukasawa, M. (2011) Impacts of the Fukushima Nuclear Power Plants on marine radioactivity, *Environ. Sci. Technol.*, **45**, 9931-9935.
- 5) Kawamura, H., Kobayashi, T., Furuno, A., In, T., Ishikawa, Y., Nakayama, T., Shima, S. and Awaji, T. (2011) Preliminary numerical experiments on oceanic dispersion of ¹³¹I and ¹³⁷Cs discharged into the ocean because of Fukushima Daiichi nuclear power plant disaster, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **48**, 1349-1356.
- 6) Kobayashi, T., Otosaka, S., Togawa, O. and Hayashi, K. (2007) Development of a Non-conservative Radionuclides Dispersion Model in the Ocean and its Application to Surface Cesium-137 Dispersion in the Irish Sea, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **44**, 238-247.
- 7) Chino, M., Nakayama, H., Nagai, H., Terada, H., Katata, G. and Yamazawa, H. (2011) Preliminary estimation of release amounts of ¹³¹I and ¹³⁷Cs accidentally discharged from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant into atmosphere, *J. Nucl. Sci. Technol.*, **48**, 1129-1134.
- 8) Terada, H., Katata, G., Chino, M. and Nagai, H. (2012) Atmospheric discharge and dispersion of radionuclides during the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. Part II: Verification of the source term and analysis of regional-scale atmospheric dispersion, *J. Environ. Radioact.*, **112**, 141-154.
- 9) Kobayashi, T., Nagai, H., Chino, M. and Kawamura, H. (2013) Source term estimation of atmospheric release due to the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident by atmospheric and oceanic dispersion simulations, *J. Nucl. Sci. Technol. (in press)*.
- 10) 気象研究所(2012) 海洋放射能の分析結果について, http://www.mri-jma.go.jp/Topics/hotyouhi/houtyouhi_sea.html (2012年12月時点)。
- 11) 文部科学省(2012) 放射線モニタリング情報, <http://radioactivity.mext.go.jp/ja/list/275/list-1.html> (2012年12月時点)。
- 12) 文部科学省(2012) 環境放射能データベース, <http://search.kankyo-hoshano.go.jp> (2012年12月時点)。
- 13) Lujanienė, G., Vilimaitė-Šilobritienė, B. and Jokšas, K. (2005) Accumulation of ¹³⁷Cs in bottom sediments of the Curonian Lagoon, *Nucleonika*, **50**, 23-29.
- 14) 笠松不二男(1999) 海産生物と放射能-特に海産魚中の¹³⁷Cs濃度に影響を与える要因について-, *Radioisotopes*, **48**, 266-282.
- 15) K. O. Buesseler, S. R. Jayne, N. S. Fisher, I. I. Rypina, H. B. Zofia Baumann, C. F. Breier, E. M. Douglass, J. George, A. M. Macdonald, H. Miyamoto, J. Nishikawa, S. M. Pike. and S. Yoshida (2012) Fukushima-derived radionuclides in the ocean and biota off Japan, *Proc. Natl. Acad. Sci.*, **109**, 5984-5988.
- 16) Comans, R. N. J., Haller, M. and DePreter, P. (1991) Sorption of cesium on illite: Non-equilibrium behavior and reversibility, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **55**, 433-440.
- 17) Poinssot, C., Baeyens, B. and Bradbury, M. H. (1999) Experimental and modeling studies of caesium sorption on illite, *Geochim. Cosmochim. Acta*, **63**, 3217-3227.
- 18) Otosaka, S. and Kobayashi, T. (2012) Sedimentation and remobilization of radiocesium in the coastal area of Ibaraki, 70 km south of the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant, *Environ. Mon. Assess.* doi:10.1007/s10661-012-2956-7.
- 19) 青柳和義, 五十嵐敏(1999) 福島県沿岸域の粒度組成について, 福島水試研報, **8**, 69-82.
- 20) Fowler, S. W., Buat-Menard, P., Yokovama, Y., Ballestra, S., Holm, E. and Nguyen, H. V. (1987) Rapid removal of Chernobyl fallout from Mediterranean surface waters by biological activity, *Nature*, **239**, 56-58.