## 3. 放射性核種の分析

## (1) 分析対象放射性核種

分析対象放射性核種は、次の観点に基づいて表 I-3(1)に示すとおり人工放射性核種と自然放射性核種を選定した。

[人工放射性核種]

- ・原子力施設の排水、放射性降下物等に含まれる放射性物質中に占める比率が高く、 かつ、物理的半減期が比較的長い核種であること
- ・海産生物あるいは海底土に蓄積される性質が強い核種であること

[自然放射性核種]

・海産生物や海底土から検出される例が比較的多い核種であること

表 I-3(1)	分析対象放射性核種

				海産	生物	海區	主	海	水
	放射性核種	<u>Í</u>	半減期*1	発電所 海域	核燃 海域	発電所 海域	核燃 海域	発電所 海域	核燃 海域
	トリチウム*2	<sup>3</sup> Н	12.33 年		_				0
	マンガン‐54	<sup>54</sup> Mn	312.1 日	0	0	0	0		0
	コバルト - 60	<sup>60</sup> Co	5.271 年	0	$\bigcirc$	0	0		0
人	ストロンチウム - 90	<sup>90</sup> Sr	28.74年		0		0	0	0
工放	ルテニウム - 106	<sup>106</sup> Ru	373.6 日	0	0	0	0		0
約 性 核	セシウム - 134	<sup>134</sup> Cs	2.065 年	0	0	0	0	0	0
種	セシウム - 137	<sup>137</sup> Cs	30.04 年	0	0	0	0	0	0
	セリウム - 144	<sup>144</sup> Ce	284.9 日	0	0	0	0		0
	プルトニウム -239+240 * <sup>3</sup>	<sup>239+240</sup> Pu			0		0		0
	その他の γ線放出核種 <sup>4</sup>			0	0	0	0		0
	ベリリウム - 7	<sup>7</sup> Be	53.29 日	0	0	0	0		—
自然	カリウム - 40	<sup>40</sup> K	12.77 億年	0	0	0	0		—
放 射 性	タリウム - 208 <sup>*5</sup>	<sup>208</sup> T1	3.053分	0	0	0	0		—
i核 種	ビスマス - 214*6	<sup>214</sup> Bi	19.9分	0	$\bigcirc$	0	0		
	アクチニウム - 228*5	<sup>228</sup> Ac	6.15 時間	0	$\bigcirc$	0	0		—

\*1 半減期は「アイソトープ手帳 11版」(社)日本アイソトープ協会編集発行(2011年)より引用した。

\*2 トリチウム(<sup>3</sup>H)は、宇宙線によって生じるほか、核実験や原子力発電所等の運転でも生じる。

\*3 プルトニウム-239の半減期は2.411万年、プルトニウム-240の半減期は6564年である。

\*4 半減期約1年以下の核種で、クロム-51 (<sup>51</sup>Cr)、コバルト-58 (<sup>58</sup>Co)、鉄-59 (<sup>59</sup>Fe)、亜鉛-65 (<sup>65</sup>Zn)、 ジルコニウム-95 (<sup>95</sup>Zr)、ニオブ-95 (<sup>95</sup>Nb)、ルテニウム-103 (<sup>103</sup>Ru)、アンチモン-125 (<sup>125</sup>Sb) な どがある。

\*5 トリウム - 232 (<sup>232</sup>Th、半減期:140.5 億年)を親核種とするトリウム系列に属する子孫核種である。

\*6 ウラン - 238 (<sup>238</sup>U、半減期:44.68 億年)を親核種とするウラン系列に属する子孫核種である。

#### (2) 海産生物、海底土及び海水試料の前処理及び分析法

海産生物、海底土及び海水に含まれる放射性核種の分析は、全て文部科学省放射能測定 法シリーズ<sup>\*1</sup>に基づいて行った(実施機関:財団法人 日本分析センター)。

海産生物試料は、凍結して送付されてきた試料を半解凍して表面の水分をふき取った後、 各個体について全長及び体重を測定し、平均全長及び平均体重を算出した。筋肉(肉部)、内 臓等に分割し、分析供試部位である肉部を105℃で乾燥後、450℃で24時間灰化した。灰化し た試料を 0.35mm のふるいに通し、混入した小骨等を取り除き、ふるい下をよく混合して分 析試料とした。但し、カタクチイワシは、魚体が極めて小さく、全体を食すことから魚体全体 を分析に供した。

海底土試料は、凍結して送付された試料を解凍後よく混合して、ブフナーロートでろ過 して分析試料とした。また、分析試料から一部分取し、105℃で乾燥し含水率を求めた。

海水試料は、採取直後に海水 20L 当たり 40m1 の 6M 塩酸を添加したものを分析試料とした。但し、核燃海域で調査対象核種としている<sup>3</sup>H 用海水試料には 6M 塩酸を添加せず、採取した海水をそのまま分析試料とした。

海産生物及び海底土試料のうち、発電所海域のものは、ガンマ線放出核種をガンマ線ス ペクトロメトリーにより定量した。核燃海域のものは、<sup>90</sup>Sr、<sup>239+240</sup>Pu\*<sup>2</sup>及びガンマ線放出 核種をそれぞれベータ線計測、アルファ線スペクトロメトリー及びガンマ線スペクトロメ トリーにより定量した。なお、海底土は、求めた含水率に基づき、乾燥重量当たりの放射 性核種濃度を算出した。

海水試料のうち、発電所海域のものについては、化学分離した後、<sup>90</sup>Sr 及び<sup>137</sup>Cs をベー タ線計測により、また一部試料については<sup>134</sup>Cs 及び<sup>137</sup>Cs をガンマ線スペクトロメトリー により定量した。核燃海域の海水の分析試料については、電解濃縮した後、<sup>3</sup>H を液体シン チレーション計測により、また、化学分離した後<sup>90</sup>Sr、<sup>239+240</sup>Pu 及びガンマ線放出核種をそ れぞれベータ線計測、アルファ線スペクトロメトリー及びガンマ線スペクトロメトリーに より定量した。

- ・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: 文部科学省(平成4年、3訂)
- ・トリチウム分析法: 文部科学省(平成14年、2訂)
- ・プルトニウム分析法:文部科学省(平成2年、1訂)
- ·環境試料採取法:文部科学省(昭和58年)

<sup>\*1</sup> 文部科学省放射能測定法シリーズ

<sup>・</sup>放射性ストロンチウム分析法:文部科学省(平成15年、4訂)

<sup>・</sup>放射性セシウム分析法:文部科学省(昭和51年、1訂)

<sup>\*2</sup> プルトニウム-239 (<sup>239</sup>Pu) とプルトニウム-240 (<sup>240</sup>Pu) は放出するアルファ線のエネルギーがほぼ等 しく、通常のアルファ線スペクトロメトリーでは区別して定量できないので、両核種の合計量として 定量する方法がとられている。このためプルトニウム-239+240 (<sup>239+240</sup>Pu) と表す。

## (3) 検出下限値

環境試料の放射性核種分析において、放射能が有意に検出できなくなる濃度を検出下限 値という。本事業では、正味の計数値が計数誤差の3倍を超えた場合に放射性核種が検出さ れたと判定し、計数誤差の3倍に等しい時の放射性核種濃度を検出下限値としている。しか しながら、検出下限値は測定環境、分析供試量、検出器の計数効率等が変わるため試料毎に 異なり、一つの値として示すことが困難である。そこで、検出下限値の目安として、各試料 の検出下限値の平均から求めた検出目標レベルを一連の分析方法とともに表 I-3(2)~(3) に示す。 海産生物、海底土及び海水試料(発電所海域)の分析方法及び検出目標レベル 表 I-3(2)

	÷	単位	Bq/kg 生鮮物	Bq/kg 乾燥土		mBq/L		
	137.0	S	I	Ι	I	Ι	0.5	
	006	JC.	 * 2	I	0.4	I	I	
イバン		$^{144}$ Ce	0.2	8	I	I	I	非した
目標レく	ũ	$^{137}Cs$	0.04	0.9	I	0.4	I	記ていて
検出	女出核種*	$^{134}$ Cs	0.05	2	I	2	I	くまれす
	ンマ線方	<sup>106</sup> Ru	0.4	20	I	I	I	オートナ
	Ŕ	60Co	0.04	1	I	I	I	のなほう
<sup>54</sup> Mn 0.04 2	I	I	I	コンドのよ				
	放射線計測	(計測時間)	ガンマ線 スペクトロメトリー (70,000 秒)	カ゛ンマ線 スペクトロメトリー (70, 000 秒)	<ul> <li><sup>×<sup>−</sup>→線計測</sup></li> <li>(3,600~</li> <li>7,200秒)</li> </ul>	カ゛ンマ線 スペクトロメトリー (70, 000 秒)	<ul> <li><sup>、一外</sup>線計測</li> <li>(5,400~</li> <li>10,800秒)</li> </ul>	スカキが詰まが生
方 法	町 177 デ	司汽车	灰 化	ろ 過 (含水率測定)	化学分離	化学分離	化学分離	計学技術の
分 析	い +に /井 <u>寺</u> 月.	<b>グ</b> 111. 米 政 里	<b>灰約 80g</b>	U-8 容器 約 5cm 高* <sup>3</sup>	50 L	50 L	50 L	44444444444444444444444444444444444444
	い 	<b>が</b> 饥 修 連 名	が <sup>ンマ線</sup> 放出核種	ガンマ線 放出核種	$^{1}\mathrm{S}_{06}$	<sup>134</sup> Cs, <sup>137</sup> Cs	<sup>137</sup> CS	~ 海 寺 王 茶 建 ユ
	試料名		海産生物 試料	海底土 討約		海水試料	1	シンギ・1~

\*2:分析対象外放射性核種について「一」で示した。 \*3:測定に使用する円筒容器(U-8、内径 5cm、容量 100mL)に高さ 5cm になるように湿土試料を詰める。

表 I-3(3)	海産生物及	とび海底土試料	钭(核燃海	■ 一、一、一、一、一、一、一、一、一、一、一、一、一、一、一、一、一、一、一、	及び検	出目標1	イジー							
		分析	方 法						検出目	「とく	イ			
試料名	くたちな	、 日 <del>1</del> 号 冊 つけ //	ᄪᆂᄱ	放射線計測		$\dot{\mathcal{M}}$	ンマ線方	<b>女</b> 出核種	**1			239+240 <b>D</b>	311	北泊
	ガツ 修理石	<i>汀</i> 忉	司汽油	(計測時間)	$^{54}$ Mn	00 <sup>09</sup>	<sup>106</sup> Ru	$^{134}Cs$	$^{137}Cs$	$^{144}$ Ce	JC	n.J	Ţ	山中
	$^{ m JS_{06}}$	灰約 30g	灰化後、 化学分離	<ul> <li>、一外線計測</li> <li>(3,600~</li> <li>7.200秒)</li> </ul>		I	I	I	I	I	0.008	I	I	
海産生物 試料	<sup>239+240</sup> Pu	灰約 20g	灰化後、 化学分離	アルファ線 スペックトロメトリー (160,000 秒)	Ι	I	I	I	I		I	0. 0007	I	Bq/kg 生鮮物
	ガンマ線 放出核種	灰約 80g	夙 化	カブンマ線 スペ クトロメトリー (70,000 秒)	0.04	0.04	0.3	0.04	0. 03	0.2	I	I	I	
	$^{1}\mathrm{S}^{06}$	乾燥土 約 150g 相当	化学分離 (含水率測定)	<ul> <li>&lt;<sup>→</sup>→線計測</li> <li>(3,600 秒)</li> </ul>	-		l		I	I	0.4	l	l	
海底土 試料	<sup>239+240</sup> Pu	乾燥土 約 50g 相当	化学分離 (含水率測定)	アルファ線 スペ クトロメトリー (80,000 秒)	Ι	l	I	I	I	I	I	0. 03	I	Bq/kg 乾燥土
	ガンマ線 放出核種	U-8 容器 約 5cm 高*3	ろ 過 (令水率測定)	カ、ンマ線 スペックトロメトリー	2	0.9	8	2	0.7	5	-	I		

表 I-3(3)	海産生物	及び海底土記	<b>(料 (核燃</b> 剂	毎域)の分析方約	去及び椅	き出目標	レベン	(続き)						
		分析	方 法						検出目	標レぐ、	イ			
試料名	イン+rc +* 4年 ク	1/ +に /井 =予 亘	버포 미선 부분	放射線計測		λ	ンマ線方	<b>섯出核</b> 種			90 <del>0</del>	239+240n	311	北王
	ガザ修連る	び竹沢政重	副が届	(計測時間)	$^{54}$ Mn	00 <sup>09</sup>	<sup>106</sup> Ru	$^{134}Cs$	$^{137}Cs$	$^{144}$ Ce	JC 2	ndara	H,	単位
				液体シンチレーション										
	Hc	0.6 L	電解濃縮	計測	I	I					I	I	0.1	Bq/L
				(30,000秒)										
				、「ーク線計測										
	$^{90}\mathrm{Sr}$	50 L	化学分離	$(3, 600 \sim$				I			0.4	I		
赤 수 = 수 - 男人				7,200秒)										
每个现在				アルファ線										
	$^{239+240}Pu$	100 L	化学分離	スヘ。クトロメトリー								0.007		mBq/L
				(160,000 秒)										
	中、シーン公司			が、ンマ線										
		50 L	化学分離	スヘ。クトロメトリー	1	0.9	8	2	0.7	2		Ι	I	
	<u> </u>			(70,000秒)										
*1:ガン~	▽線放出核種は、	分析対象放射性	核種のうち半	減期が数十日以下の	ものを除	いた人工フ	<b>썴射性</b> 核利	重について	「記載した	0.				

\*1:ガンマ線放出核種は、分析対象放射性核種のうち半減期が数十日以下のものを除いた人工放射性核種 \*2:分析対象外放射性核種について「-」で示した。 \*3:測定に使用する円筒容器(U-8、内径 5cm、容量 100mL)に高さ 5cm になるように湿土試料を詰める。

#### 4. 分析結果

#### 4.1 海産生物試料の分析結果

(1)発電所海域において4月上旬から10月上旬及び10月上旬から1月下旬の年2回収集 した海産生物試料の魚類、イカ・タコ類及びエビ類(計90試料)の放射性核種濃度範囲 を表 I-4(1)に示す。

検出された人工放射性核種は<sup>110m</sup>Ag、<sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs であり、これらの濃度は過去5年間の測定値の範囲を上回った。

<sup>110m</sup>Ag は、青森海域、宮城海域、福島第一海域、福島第二海域、茨城海域で収集した 試料のうち、魚類8試料、イカ・タコ類4試料から検出された。また、<sup>134</sup>Cs は、魚類で 55 試料、イカ・タコ類で6試料、エビ類で2試料検出された。これらの試料の前処理時 に取分けておいた生試料(重量約 2kg)を再測定したところ、全て検出下限値以下とな ったが、西日本でも値は小さいが降下物中に<sup>134</sup>Cs が検出されていることを勘案し、<sup>134</sup>Cs を含む値を正の値として報告することとした。<sup>137</sup>Cs は、特に魚類で高い値を示し、福島 第二海域で収集したスズキ及びマコガレイが 140Bq/kg 生鮮物であった。

これまで検出されなかった<sup>110m</sup>Ag、<sup>134</sup>Cs が検出されていることなどから、<sup>110m</sup>Ag、<sup>134</sup>Cs、 <sup>137</sup>Cs の放射性核種濃度の上昇は、福島第一原子力発電所事故に起因すると考えられる。 各海域の海産生物試料の放射性核種濃度を資料 1-1(1)~(15)に示す。

年度	試料名	試料数	<sup>110m</sup> Ag	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
	魚類	77	ND $\sim$ 0.62	ND $\sim$ 110	$0.092 \sim 140$
平成 23 年度	イカ・タコ類	10	ND $\sim$ 1.8	ND $\sim$ 8.7	$0.031 \sim 9.4$
	エビ類	3	ND	ND $\sim$ 0.10	$0.079 \sim 0.13$
	魚類	375	ND	ND	$0.034 \sim 0.24$
平成 18~ 22 年度	イカ・タコ類	60	ND	ND	ND $\sim$ 0.045
	エビ類	15	ND	ND	$0.031 \sim 0.071$

表 I-4(1) 発電所海域海産生物試料の放射性核種濃度範囲

(単位: Bq/kg 生鮮物)

ND は検出下限値以下を示す。

(2)核燃海域において4月下旬から10月中旬及び10月上旬から12月下旬の年2回収集し た海産生物試料の魚類及びイカ・タコ類(計 30 試料)の放射性核種濃度範囲を表 I-4 (2)に示す。

検出された人工放射性核種は<sup>90</sup>Sr、<sup>110m</sup>Ag、<sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs及び<sup>239+240</sup>Puであり、<sup>90</sup>Srは過去5年間の測定値の範囲内であったものの、<sup>110m</sup>Ag、<sup>134</sup>Cs及び<sup>137</sup>Csは過去5年間の測定 値の範囲を上回った。イカ・タコ類の<sup>239+240</sup>Puで1試料(スルメイカ)、過去5年間の測 定値の範囲を上回る試料があった。スルメイカは、過去5年間で調査した20試料のうち6試料で<sup>239+240</sup>Puが検出されている。今回検出された濃度は、過去に検出された濃度 (平成4年度0.0014Bq/kg生鮮物)も考慮すると自然変動の範囲と考えられる。以上を 考慮すると、<sup>239+240</sup>Puの濃度は過去5年間の測定値と同程度と言える。

<sup>110m</sup>Ag は、魚類で2 試料(カタクチイワシ、マダラ)、イカ・タコ類で4 試料検出された。また、<sup>134</sup>Cs は全ての試料で検出され、<sup>137</sup>Cs は魚類5 試料を除いた25 試料で過去5年間の測定値の範囲を上回っていた。

これまで検出されなかった<sup>110m</sup>Ag、<sup>134</sup>Cs が検出されていることなどから、<sup>110m</sup>Ag、<sup>134</sup>Cs、 <sup>137</sup>Cs の放射性核種濃度の上昇は、福島第一原子力発電所事故に起因すると考えられる。 各海産生物試料の放射性核種濃度を資料 1-2(1)~(8)に示す。

表 I-4(2) 核燃海域海産生物試料の放射性核種濃度範囲

(単位: Bq/kg 生鮮物)

年度	試料名	試料数	<sup>90</sup> Sr	<sup>110m</sup> Ag	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>239+240</sup> Pu
亚代 02 年度	魚類	24	ND ~ 0.0098	ND ~ 0.23	0.069 ~ 10	0.12 ~ 11	ND ∼ 0.00053
平成 23 年度	イカ・タコ類	6	ND	$0.080 \sim 0.44$	$0.042 \sim 0.24$	$0.064 \sim 0.32$	ND $\sim$ 0.00058
平成 18~	魚類	110	ND ~ 0.010	ND	ND	ND ~ 0.18	ND ~ 0.0010
22 年度	イカ・タコ類	30	ND	ND	ND	ND ~ 0.041	ND ~ 0.00051

ND は検出下限値以下を示す。

### 4.2 海底土試料の分析結果

(1)発電所海域の 60 測点において 4 月下旬から 6 月上旬に採取した海底土試料(計 60 試料)の放射性核種濃度範囲を表 I-4(3)に示す。

検出された人工放射性核種は<sup>134</sup>Cs及び<sup>137</sup>Csであり、これらの濃度は過去5年間の測 定値の範囲を上回った。

表 I-4 (3) 発電所海域海底土試料の放射性核種濃度範囲

(単位: Bq/kg 乾燥土)

年度	試料数	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
平成 23 年度	60	ND $\sim$ 200	ND $\sim$ 220
平成 18~22 年度	300	ND	ND $\sim$ 7.7

NDは検出下限値以下を示す。

<sup>134</sup>Cs は、宮城、福島第一、福島第二、茨城、新潟海域の 5 海域で検出された。<sup>137</sup>Cs が明らかに過去 5 年間の測定値の範囲を上回っていた海域は、宮城、福島第一、福島第 二、茨城、新潟海域の 5 海域であった。宮城海域等東日本の 4 海域については、福島第 一原子力発電所事故により直接海洋へ漏洩したもの及び大気経由で運ばれた <sup>134</sup>Cs の影 響と考えられる。

一方、新潟海域については、Inoue らの報告\*では北陸沖を含む日本海側の表層海水から<sup>134</sup>Cs が検出されており、大気からの沈着が一つの要因として考えられる。また、阿賀 野川上流の阿賀水系の河川及び秋元湖等の湖で漁獲された魚から放射性セシウムが検 出されているとの報告(福島県ホームページ等参照)を考慮すると、阿賀水系の流域に 降った降下物が河川に入り、新潟海域にまで到達した可能性も考えられ、大気経由や河 川経由等の複合要因が考えられる。

これまで検出されなかった<sup>134</sup>Cs が検出されていることなどから、<sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs の放射 性核種濃度の上昇は、福島第一原子力発電所事故に起因すると考えられる。

各海域の海底土試料の放射性核種濃度を資料 2-1(1)~(15)に示す。

(2)核燃海域の22測点において5月中旬から下旬に採取した海底土試料(計22試料)の 放射性核種濃度範囲を表 I-4(4)に示す。

検出された人工放射性核種は<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Cs 及び<sup>239+240</sup>Pu であり、これらの濃度は過去5年 間の測定値の範囲内であった。

各測点の海底土試料の放射性核種濃度を資料 2-2(1)~(6)に示す。

表 I-4(4) 核燃海域海底土試料の放射性核種濃度範囲

(単位:Bq/kg 乾燥土)

年度	試料数	<sup>90</sup> Sr	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>239+240</sup> Pu
平成 23 年度	22	ND $\sim$ 0.51	ND	ND $\sim$ 4.6	$0.37 \sim 4.1$
平成 18~22 年度	104	ND $\sim$ 0.78	ND	ND $\sim$ 5.2	$0.39 \sim 5.1$

NDは検出下限値以下を示す。

#### 4.3 海水試料の分析結果

(1)発電所海域の 60 測点において 4 月下旬から 6 月上旬に採取した表層水と下層水各 60 試料(計 120 試料)の放射性核種濃度範囲を表 I-4 (5) に示す。

<sup>\*</sup> Inoue et al.,2012. Lateral variation of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs concentrations in surface seawater in and around the Japan Sea after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. J. Environ. Radioact. 109, 45-51.

検出された人工放射性核種は<sup>90</sup>Sr、<sup>134</sup>Cs 及び<sup>137</sup>Cs であった。

各海域の測点1の表層水についてはGe半導体検出器によるガンマ線計測を行っており、 青森、宮城、福島第一、福島第一、茨城および静岡海域の6海域で<sup>134</sup>Csが検出された。そ の他の測点及び下層水については放射化学分析による分離精製を行い、ベータ線計測によ り放射性セシウムを定量したが、<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの分離測定ができないため、<sup>137</sup>Csの計数効 率で測定した値\*\*を便宜上「放射性セシウム(<sup>134</sup>Cs+<sup>137</sup>Cs)」としている。表層水に含まれ る放射性セシウムは、宮城、福島第一、第二海域及び茨城海域の測点1で従来の<sup>137</sup>Csの値 より一桁~二桁高め、北海道、青森、静岡、新潟海域、茨城海域の測点2~測点4、石川 海域の測点1、測点3で高め、下層水に含まれる放射性セシウムは福島第一、第二海域及 び茨城海域の測点1で一桁~二桁高め、北海道、宮城海域、静岡海域の測点1、2、新潟 海域の測点1,2,4、石川海域の測点1、福井海域の測点1及び愛媛海域の測点1~3 において高めで、同一海域における過去5年間の測定値を上回った。

<sup>90</sup>Sr は、福島第一、福島第二、茨城海域の表層水、福島第一、茨城海域の下層水で同一 海域における過去5年間の測定値を上回るものがあった。なお、<sup>90</sup>Sr の表層水では9試料、 <sup>90</sup>Sr の下層水では14試料、過去5年間の測定値の範囲を下回る試料があったが、自然変動 の範囲内と考えられる。

これまで検出されなかった<sup>134</sup>Cs が検出されていることなどから、<sup>90</sup>Sr、<sup>134</sup>Cs 及び<sup>137</sup>Cs の放射性核種濃度の上昇は、福島第一原子力発電所事故に起因すると考えられる。

各海域の海水試料の放射性核種濃度を資料 3-1(1)~(15)に示す。

表 I-4(5) 発電所海域海水試料の放射性核種濃度範囲

(単位:mBq/L)

年度	試料名	試料数	<sup>90</sup> Sr	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
亚代的左南	表層水	60 (15)	$0.84 \sim 24$	ND $\sim$ 520	$1.4 \sim 1400$
平成 23 年度	下層水	60 (15)	$0.24 \sim 3.6$	_	$0.47 \sim 360$
平成 18~	表層水	300 (75)	$0.85 \sim 1.8$	ND	1.1 $\sim$ 2.4
22 年度	下層水	300 (75)	$0.33 \sim 2.0$	_	$0.49 \sim 2.3$

()内は、<sup>134</sup>Csの試料数を示す。--は調査対象外を示す。

(2)核燃海域の22測点において5月中旬から下旬及び10月上旬から中旬の年2回採取した表層水と下層水各44試料(計88試料)の放射性核種濃度範囲を表 I-4(6)に示す。

<sup>\*\*</sup>ベータ線計測用試料の一部で Ge 半導体検出器による検討を行い、<sup>134</sup>Cs と<sup>137</sup>Cs の計数効率の比を<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs≒0.8 と見積もっている。

検出された人工放射性核種は<sup>3</sup>H、<sup>90</sup>Sr、<sup>134</sup>Cs、<sup>137</sup>Cs及び<sup>239+240</sup>Puであり、<sup>3</sup>H、<sup>90</sup>Srの下層 水及び<sup>239+240</sup>Puは過去5年間の測定値の範囲内であったものの、<sup>90</sup>Srの表層水、<sup>134</sup>Cs及 び<sup>137</sup>Csは過去5年間の測定値の範囲を上回った。なお、<sup>3</sup>Hはアクティブ試験開始前の 平成13~17年度の<sup>3</sup>H濃度範囲であった。

<sup>90</sup>Sr、<sup>134</sup>Cs 及び<sup>137</sup>Cs の表層水で最も高い値を示したのは 5 月に採取した測点 22 であり、<sup>134</sup>Cs 及び<sup>137</sup>Cs の下層水で最も高い値を示したのは 10 月に採取した測点 19 であった。

これまで検出されなかった<sup>134</sup>Cs が検出されていることなどから、<sup>90</sup>Sr、<sup>134</sup>Cs 及び<sup>137</sup>Cs の放射性核種濃度の上昇は、福島第一原子力発電所事故に起因すると考えられる。

各測点の海水試料の放射性核種濃度を資料 3-2(1)~(22)に示す。

表 I-4(6) 核燃海域海水試料の放射性核種濃度範囲

(単位	:	mBq/L,	但し	$^{3}\mathrm{H}$	は	Bq/L	.)
-----	---	--------	----	------------------	---	------	----

年度	試料名	試料数	<sup>3</sup> Н	<sup>90</sup> Sr	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>239+240</sup> Pu
亚出 99 年度	表層水	44	ND ~ 0.15	0.78~ 13	ND $\sim$ 360	$2.2 \sim 370$	ND ~ 0.0095
千成 23 平皮	下層水	44	ND ~ 0.15	ND $\sim$ 1.3	ND $\sim$ 5.4	ND $\sim$ 7.8	$0.0024 \sim 0.03$
平成 18~	表層水	208	ND ~ 1.3	0.73 $\sim$ 1.6	ND	0.81 $\sim$ 2.4	ND ~ 0.013
22 年度	下層水	208	ND ~ 0.27	ND $\sim$ 1.7	ND	ND $\sim$ 2.1	ND $\sim$ 0.029

参考 アクティブ試験開始前の<sup>3</sup>H濃度

年度	試料名	試料数	<sup>3</sup> H
平成 13~	表層水	160	ND $\sim$ 0.24
17 年度	下層水	160	ND $\sim$ 0.21

NDは検出下限値以下を示す。

#### 5. まとめ

平成 23 年度に原子力発電所等周辺海域及び核燃料サイクル施設沖合海域の主要な漁場 において実施した海洋放射能調査は、平成 23 年 3 月 11 日に発生した東日本大震災に起因 した東京電力株式会社福島第一原子力発電所事故後に行われたものである。海産生物、海 底土および海水の一部試料から当該事故に起因する特異的な放射性核種や近年に見られな い放射能濃度が検出・確認されるなど、平成 58 年度から実施してきた本事業において初め ての事例が多々あった。

海産生物試料においては、人工放射性核種に属する<sup>110m</sup>Ag、<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs が検出された。このうち、<sup>110m</sup>Ag は青森、宮城、福島第一、福島第二および茨城海域で収集した計 12 試料並びに核燃海域で収集した計 5 試料から検出された。また、<sup>134</sup>Cs はすべての海域の試料から検出された。さらに、<sup>137</sup>Cs については福島第一および福島第二海域で採取した試料 に関し、基準値(放射性セシウム;一般食品 100Bq/kg)を超えたものがあった。青森、宮 城、福島第一、福島第二、茨城、静岡および核燃海域の試料においては、本事業でデータ を採取して以来の過去最高値を記録したが、その他の海域の試料については平常時に近い 値であった。なお、核燃海域の試料に含まれる<sup>90</sup>Sr と<sup>239+240</sup>Pu は平常時の値であった。

海底土試料においては、<sup>134</sup>Cs が宮城、福島第一、福島第二、茨城および新潟海域の試料 から検出されたが、核燃海域を含めたその他の海域の試料からは検出されなかった。また、 <sup>137</sup>Cs については、宮城、福島第一、福島第二、茨城および新潟海域の試料から本事業でデ ータを採取して以来の過去最高値を記録したが、その他の海域の試料については平常時に 近い値であった。なお、核燃海域の試料に含まれる<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Cs および<sup>239+240</sup>Pu は平常時の 値であった。

海水試料のうち、発電所海域(測点1の表層を除く)の結果は、化学分離精製の後に<sup>137</sup>Cs 定量のためのベータ線計測を行ったため、<sup>134</sup>Cs が混入している場合に区別がつかないこと から、ガンマ線計測による各海域測点1の結果を踏まえ、便宜上「放射性セシウム (<sup>134</sup>Cs+<sup>137</sup>Cs)とした。ガンマ線計測の結果、<sup>134</sup>Cs が青森、宮城、福島第一、福島第二、 茨城、静岡および核燃海域の表層海水試料から検出された(最大:福島第二、520mBq/L)。 一方、<sup>137</sup>Cs はすべての海域の表層海水試料から検出され、<sup>134</sup>Cs が検出された青森、宮城、 福島第一、福島第二、茨城、静岡および核燃海域で高い値を記録した(最大:福島第二、 510mBq/L)。なお、その他の海域において、放射性セシウム(<sup>134</sup>Cs+<sup>137</sup>Cs)の値は平常時の <sup>137</sup>Cs 濃度に近い値であった(つまり、<sup>134</sup>Cs は含まれていないと考えられる)。

#### 海洋環境試料中の放射性核種濃度レベルの経年変化

#### 6.1 原子力発電所等周辺海域における経年変化

昭和 58 年度から平成 23 年度までの原子力発電所等周辺海域(計 15 海域)の主要な漁場 における海産生物試料、海底土試料及び海水試料中の<sup>137</sup>Cs 等の放射性核種濃度の経年変化 を図 I-6(1)~(13)、図 I-6(14)~(27)及び図 I-6(28)~(57)に示した。

海産生物試料においては、各海域で継続的に採取することのできた魚種について、<sup>137</sup>Cs の濃度の経年変化を示した。なお、昭和 61 年度には、魚種によってはチェルノブイリ原子 力発電所事故に起因すると思われる<sup>137</sup>Cs 濃度の一時的な上昇が見られたが、昭和 63 年度 までに事故以前である昭和 60 年度の濃度と同程度になった。これ以降は魚種間で分析値に ばらつきはあるものの、平成 22 年度まで<sup>137</sup>Cs 濃度には緩やかな漸減傾向が認められる。

平成 23 年 3 月に東京電力(株)福島第一原子力発電所事故により多量の人工放射性核 種が環境中に付加されたが、平成 23 年度に実施した本調査においてもその形跡を確認でき た。とりわけ福島海域を中心とする太平洋側の海域で顕著な上昇が見られ、また青森、宮 城、福島第一、福島第二、茨城および静岡海域の試料において、本事業でデータを採取し て以来の過去最高値を記録した。なお、その他海域の試料については平常時に近い値であ った。

海底土試料においては、計 15 海域で採取した海底土に含まれる<sup>137</sup>Csの濃度の経年変化 を示した。海底土に含まれる<sup>137</sup>Csの濃度は、昭和 58 年度から平成 22 年度の調査結果につ いて、採取した場所(採取測点)の底質(砂質、泥質あるいはシルト質など)によってばらつき が認められる。底質が主に砂質の場合は極端に濃度が低くなるか、検出されないため、は っきりした経年変化が認められない傾向があった。一方、底質が泥質及びシルト質の場合、 <sup>137</sup>Cs 濃度には緩やかな漸減傾向が認められる。しかしながら、平成 23 年度の調査におい ては、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故による多量の<sup>137</sup>Cs をはじめとする人工放 射性核種の付加を受けて、過去の傾向とは一変している。宮城、福島、茨城および新潟海 域において近年観測される平均的な濃度を明らかに超える<sup>137</sup>Cs 濃度を観測した。とりわけ、 福島海域では 200Bq/kg を超える値を観測した。そのほかの海域では、近年観測されている 通り、緩やかな漸減傾向が認められた。

海水試料においては、計 15 海域で採取した表層水及び下層水に含まれる <sup>90</sup>Sr 及び <sup>137</sup>Cs 等の濃度の経年変化を示した。表層水及び下層水に含まれる <sup>90</sup>Sr の濃度は、本調査を開始 した昭和 58 年度以降平成 22 年度まで、緩やかな漸減傾向を示していた。一方、<sup>137</sup>Cs 等濃 度については、昭和 61 年 6 月~7 月に採取した試料において、チェルノブイリ原子力発電 所事故に起因する放射性降下物の影響と思われる一時的な濃度上昇が見られるが、昭和 62 年度には概ね事故以前の昭和 60 年度と同程度になり、それ以降、緩やかな漸減傾向が認め られ、平成22年度までに実施した調査結果もこの傾向を支持するものであった。

しかしながら、平成 23 年度の調査においては、東京電力(株)福島第一原子力発電所 事故による多量の<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Csなどの人工放射性核種の付加を受けて、表層水および下層水 について過去の傾向とは一変している。

表層水において、福島海域において<sup>90</sup>Srの明らかな濃度上昇が見られた。また青森、宮 城、福島、茨城および静岡海域において顕著な<sup>137</sup>Cs等濃度の上昇が認められた。なお、そ の他海域の試料については平常時に近い値であった。

下層水においては、<sup>90</sup>Sr について顕著な濃度変化は観測されず、近年の緩やかな漸減傾 向継続が認められた。一方、宮城、福島、茨城および静岡海域において<sup>137</sup>Cs 等濃度の明ら かな上昇を観測した。

なお、近年にない<sup>137</sup>Cs 濃度の上昇を観測した試料からは、<sup>134</sup>Cs も顕著に検出されており、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故由来であることを強く示唆する結果となっている。

#### 6.2 核燃料サイクル施設沖合海域における経年変化

平成3年度から平成22年度までの核燃料サイクル施設沖合海域の主要な漁場における 海産生物試料、海底土試料及び海水試料中の<sup>3</sup>H(海水のみ)、<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Cs及び<sup>239+240</sup>Pu等の 放射性核種濃度の経年変化を図 I-6(58)~(60)、図 I-6(61)~(63)及び図 I-6(64)~(71)に 示した。なお、平成19年度から調査海域を拡張したので、海産生物試料は10試料増え年間 間 30 試料に、海底土試料は6試料増え年間22試料に、海水試料は24試料増え年間88 試 料となっている。

海産生物試料においては、<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Cs及び<sup>239+240</sup>Puの濃度の経年変化を示した。

<sup>90</sup>Sr の濃度は、生試料で 30kg 程の供試量を用いても容易に検出・測定できないほど低く、 過去の最大値を超えるものはなかった。

<sup>137</sup>Cs は海産生物試料において継続的に検出されている代表的な放射性核種であって、その濃度は、平成3年度の調査開始以降平成22年度まで、ほぼ同じ濃度レベルあるいは漸減傾向で推移していたが、平成23年度においては、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故に起因し、前期および後期採取分のすべての海産生物試料から<sup>137</sup>Cs が検出された。

<sup>239+240</sup>Pu については、魚体全体を試料として供するコウナゴ(イカナゴの稚仔魚)及び カタクチイワシ等を除き、過去の最大値を超えるものはなかった。

海底土試料においては、<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Cs 及び<sup>239+240</sup>Pu の濃度の経年変化を示した。これらの 放射性核種濃度は、発電所海域の場合と同様に、採取した場所の底質によってその濃度が 変化する傾向が認められた。底質が砂質の場合には、これら放射性核種濃度は比較的低く なり、また泥質あるいはシルト質などの場合には比較的高くなる傾向がある。この傾向は、 特に<sup>90</sup>Sr で顕著であって、砂質の場合はそのほとんどで検出されなかった。なお、平成 23 年度はいずれの結果も過去の最大値を超えるものはなかった。

海水試料においては、<sup>3</sup>H、<sup>90</sup>Sr、<sup>137</sup>Cs及び<sup>239+240</sup>Puの濃度の経年変化を示した。

<sup>3</sup>H 濃度については、平成20年度採取の表層水の一部で最大1.3Bq/L の濃度が観測され たが、平成23年度採取の試料においては、アクティブ試験開始前(平成13年度~平成17 年度)の測定値の範囲内で、かつ平成21年度および平成22年度と同程度の濃度範囲であっ た。下層水においては平成3年度以降の緩やかな漸減傾向の継続が認められた。

<sup>90</sup>Sr については、測点 22 で前期に採取した海水から近年にない濃度の <sup>90</sup>Sr が観測された(13mBq/L)ことを除くと、表層水及び下層水のいずれでも平成 3 年度以降の緩やかな漸減傾向が認められた。

<sup>137</sup>Cs については、平成 22 年度まで表層水及び下層水のいずれでも平成 3 年度以降の緩 やかな漸減傾向が認められたが、平成 23 年度の調査では顕著な濃度上昇が認められた。と りわけ、前期に測点 22 で採取した表層水では、370mBq/Lの高い<sup>137</sup>Cs 濃度を観測した。下 層水においても<sup>137</sup>Cs 濃度の上昇を認め、多くの測点で近年にない濃度を観測した。

<sup>239+240</sup>Pu については、表層水及び下層水のいずれでも平成3年度以降継続して得られている濃度の変動傾向が持続しており、平常時と同じ値であった。

なお、近年にない<sup>137</sup>Cs 濃度の上昇を観測した試料からは、<sup>134</sup>Cs も顕著に検出されてお り、東京電力(株)福島第一原子力発電所事故由来であることを強く示唆する結果となっ ている。

# 原子力発電所等周辺海域における 放射性核種濃度の経年変化













図 I-6(4) 海産生物試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(福島第一海域・福島第二海域)







図 I-6 (6) 海産生物試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(静岡海域)







図 I-6 (8) 海産生物試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(石川海域)



図 I-6 (9) 海産生物試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(福井第一海域・福井第二海域)



図 I-6 (10) 海産生物試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(島根海域)



図 I-6 (11) 海産生物試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(愛媛海域)



図 I-6 (12) 海産生物試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(佐賀海域)



図 I-6 (13) 海産生物試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(鹿児島海域)



昭和60年度以降、新潟、福井第一および福井第二海域において採取点を変更した。





図 I-6 (15) 海底土試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(北海道海域)



図 I-6 (16) 海底土試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(青森海域)



図 I-6 (17) 海底土試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(宮城海域)



図 I-6 (18) 海底土試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(福島第一海域・福島第二海域)







図 I-6 (21) 海底土試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(新潟海域)











図 I-6 (25) 海底土試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(愛媛海域)





図 I-6 (27) 海底土試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(鹿児島海域)



図 I-6 (28) 海水試料の<sup>90</sup>Sr 濃度経年変化(全海域・表層水)



図 I-6 (29) 海水試料の<sup>90</sup>Sr 濃度経年変化(全海域・下層水)



図 I-6 (30) 海水試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(全海域・表層水)



図 I-6 (31) 海水試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(全海域・下層水)



図 I-6 (32) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(北海道海域・表層水)



図 I-6 (33) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(北海道海域・下層水)



図 I-6 (34) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(青森海域・表層水)



図 I-6 (35) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(青森海域・下層水)



図 I-6 (36) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(宮城海域・表層水)



図 I-6 (37) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(宮城海域・下層水)







図 I-6 (39) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化 (福島第一海域・福島第二海域・下層水)







図 I-6 (41) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(茨城海域・下層水)



図 I-6 (42) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(静岡海域・表層水)



図 I-6 (43) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(静岡海域・下層水)











図 I-6 (46) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(石川海域・表層水)



図 I-6 (47) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(石川海域・下層水)



図 I-6 (48) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化 (福井第一海域・福井第二海域・表層水)



図 I-6 (49) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化 (福井第一海域・福井第二海域・下層水)



図 I-6 (50) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(島根海域・表層水)



図 I-6 (51) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(島根海域・下層水)



図 I-6 (52) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(愛媛海域・表層水)



図 I-6 (53) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(愛媛海域・下層水)



図 I-6 (54) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(佐賀海域・表層水)



図 I-6 (55) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(佐賀海域・下層水)



図 I-6 (56) 海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(鹿児島海域・表層水)



図 I-6 (57)

海水試料の<sup>90</sup>Sr および<sup>137</sup>Cs 濃度の経年変化(鹿児島海域・下層水)

# 核燃料サイクル施設沖合海域における 放射性核種濃度の経年変化





図 I-6 (59) 海産生物試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(核燃海域)















図 I-6(66) 海水試料の<sup>90</sup>Sr 濃度経年変化(核燃海域・表層水)



図 I-6(67) 海水試料の<sup>90</sup>Sr 濃度経年変化(核燃海域・下層水)



図 I-6 (68) 海水試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(核燃海域・表層水)



図 I-6 (69) 海水試料の<sup>137</sup>Cs 濃度経年変化(核燃海域・下層水)





