一論文一

# 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<sup>134</sup>Csおよび<sup>137</sup>Cs濃度\*

帰山 秀樹<sup>1</sup>\*\*・安倍 大介<sup>1</sup>・重信 裕弥<sup>1</sup>・藤本 賢<sup>1</sup>・ 小埜 恒夫<sup>1</sup>・中田 薫<sup>2</sup>・森田 貴己<sup>2</sup>・渡邊 朝生<sup>1</sup>

#### 要 旨

東京電力福島第一原子力発電所(以下 Fukushima dai-ichi Nuclear Power Plant を略し FNPP と表記)事故に伴い海洋環境へ放出された放射性セシウムのうち、<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs の我が国周辺海域における拡散状況を把握するために、2011 年 4 月から 2012 年 11 月にか けて,福島県沖を中心とした西部北太平洋,日本海,瀬戸内海,東シナ海およびベーリン グ海における海水の<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度を測定した。FNPP の面する西部北太平洋にお いては FNPP 事故直後より高濃度の<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs が検出され,時間の経過とともに <sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度は低下する傾向を示した。しかしながらその水平・鉛直分布は不均 一であり,その分布形成の主たる成因は福島県沖を中心とした日本東方沖の西部北太平洋 における黒潮,親潮および中規模渦による複雑な水塊構造が考えられた。一方,日本海, 瀬戸内海,東シナ海およびベーリング海にて採取した海水からは FNPP 事故以前から存在 する<sup>137</sup>Cs の負荷は極めて微量であったと考えられる。

**キーワード:**東京電力福島第一原子力発電所,<sup>134</sup>Cs,<sup>137</sup>Cs,<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比,西部北 太平洋

\* 2014年2月3日受領;2014年3月10日受理 著作権:日本海洋学会,2014

1 独立行政法人水産総合研究センター中央水産研究所海洋・生態 系研究センター

- 〒236-8648 神奈川県横浜市金沢区福浦2-12-4
- 2 独立行政法人水産総合研究センター本部 〒 220−6115 神奈川県横浜市西区みなとみらい 2−3−3 クイーンズタワー B15 階
- \*\* 連絡著者:帰山 秀樹 TEL:045-788-7654 FAX:045-788-5001 e-mail:kaeriyama@affrc.go.jp

### 1. はじめに

2011年3月11日に発生したマグニチュード9.0の東 北地方太平洋沖地震ならびにそれに伴う津波により東京 電力福島第一原子力発電所(以下Fukushima dai-ichi Nuclear Power Plantを略しFNPPと表記)で運転中で あった3基の原子力プラントで燃料溶融を伴う事故が発 生し,大量の放射性物質が大気および海洋へ放出され た。海洋への放射性物質の放出は北半球全域に及んだ大 気経由のフォールアウトに加え、FNPP 敷地内からの直 接流出によるものであり,比較的長半減期である放射性 セシウムのうち,<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs の北太平洋への総放 出量は10-20 PBg と推定されている (例えば Kawamura et al., 2011; Kobayashi et al., 2013; Povinec et al., 2013a)。海洋に放出された放射性物質は最終的に海産 生物を摂取することにより人体の被ばく線量に影響を与 えることが危惧される。そのため、海洋における放射性 物質の拡散状況、海産生物への移行を把握することが重 要である (Yoshida and Kanda, 2012)。FNPP 事故直後 より海水,海底堆積物,水産物の放射性ヨウ素(<sup>131</sup>I), <sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs のモニタリングが開始され,<sup>131</sup>I は半 減期が8日と短いため、2011年5月以降検出されていな いが半減期が2.1年、30.7年と比較的長い<sup>134</sup>Csおよび <sup>137</sup>Cs は海水,海底堆積物,水産物のいずれにおいても継 続して検出されている。特に水産物については, FNPP 事故から3年が経過した現在でも福島県およびその周辺 の海域では水産物の出荷制限ならびに自主的な操業自粛 が行われており、水産業の復興に多大な影響を与えてい る。また、北太平洋の表層における<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs の広域拡散状況 (Aoyama et al., 2013a,b; Buesseler et al., 2012; Honda et al., 2012; Kaeriyama et al., 2013; Kameník *et al.* 2013), 福島県沖合を中心に東日本沖沿岸 域における海水の<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度の時系列変動 (Aoyama et al., 2012; Inoue et al., 2012a, b; Kofuji and Inoue, 2013; Oikawa et al., 2013), 福島県沖合の大陸棚 を中心に海底堆積物の<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Csの水平,鉛直 分布, 時系列変動 (安倍ら, 2012; Otosaka and Kobayashi, 2013; Kusakabe et al., 2013; Blair et al., 2013), 魚類をはじめとする各種海産生物における<sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Csの時系列変動(Buesseler 2012; Wada et al., 2013) などがデータの蓄積とともに公表されてきた。しかしな がら FNPP は北太平洋に面しているため、FNPP 事故 後の放射能モニタリング調査は福島県沖合を中心に西部 北太平洋を対象としたものが多く、日本海や東シナ海に おける FNPP 事故の影響を評価した知見は断片的であ る。例えば, Inoue et al. (2012b) は 2011 年 6 月 から 2012年2月にかけて、日本海およびオホーツク海の表 層海水について<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度を報告しており, FNPP 事故に起因する大気フォールアウト経由で極低濃 度の $^{134}$ Cs (< 0.1 ~ 1 mBq L<sup>-1</sup>) が認められた。Wu et al.(2012)は東シナ海、南シナ海および黄海において 2011年4月から6月にかけての<sup>137</sup>Cs 濃度を報告してお り、その平均値は 1.1 Bq m<sup>-3</sup>であった。彼らは東シナ 海における FNPP 事故の影響はチェルノブイリ事故に 比べ軽微であったと結論づけている。さらに、Kim et al. (2012) は 2011 年 3 月から 7 月にかけて採取された 韓国周辺海域における海水および海産生物の<sup>134</sup>Cs およ び<sup>137</sup>Cs 濃度を報告しており、いずれの試料からも FNPP 事故由来である<sup>134</sup>Cs は検出されていない。一方 で、FNPP 事故の海洋生態系への影響を把握する上で重 要な情報である FNPP からの放出量の逆推定、あるい は今後の拡散状況を推定するためのシミュレーションモ デルの精度向上に欠かすことのできない事故後半年程度 の雵測値は未だ限定的である (Masumoto et al., 2012)。

本研究では(独)水産総合研究センターの調査船を中 心に、事故直後の2011年4月から2012年11月にかけ て我が国周辺海域である西部北太平洋を中心に、既往知 見の限られる日本海、東シナ海に加え、FNPP事故後の <sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度について報告のない、瀬戸内海お よびベーリング海で採取した海水試料の<sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs 濃度を報告し、FNPP事故後のこれらの海域にお ける<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs の分布状況について議論する。

#### 2. 材料および方法

#### 2.1 試料採取

海水試料は2011年4月~2012年11月の期間に日本 周辺海域を対象に、北海道東方の親潮海域~房総半島南 部の太平洋沿岸、日本海、瀬戸内海、東シナ海ならびに オホーツク海において採取した(Fig.1)。試料の採取は (独)水産総合研究センター調査船(北光丸,若鷹丸,蒼 鷹丸,たか丸,みずほ丸,しらふじ丸,洋光丸),水産 庁調査船照洋丸および北海道教育庁実習船北鳳丸にて実 施した。試料はバケツによる表面海水あるいは、ポンプ 汲み上げによる表層海水を主に採取したが、一部の航海 ではCTD-RMSによる鉛直採水、バンドーン採水器に よる近底層の採水を実施した。採取した試料の多くはろ 過を行わず、20L容ポリテナーに直接収容し、濃塩酸 100 mL あるいは濃硝酸40 mL を添加し pH を約1.0 あ るいは約1.6 に調整した。ただし、福島県南部~千葉県



**Fig. 1.** Study area with sampling locations represented as open circles. Closed red circle in the inset indicates the position of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant.

沖の水深 100 m 以浅の地点で採取した試料は懸濁物質の 影響が懸念されたため、濃硝酸添加前に孔径 0.45 $\mu$ m の メンブレンフィルターでろ過を行った。なお、FNPP 事 故以降の西部北太平洋における海水の <sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs 濃度はろ過の有無により差が認められないことが報告さ れており (Honda *et al.*, 2012; Buesseller *et al.*, 2012), 本研究で得られた未ろ過海水の <sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs 濃度は 文献値と比較することができると考えられる。

#### 2.2<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 分析

海水試料は Aoyama *et al.* (2000), Aoyama and Hirose (2008) などを参考にリンモリブデン酸アンモニウム (以下 AMP) 共沈法によりセシウムを AMP に吸着し,

ゲルマニウム半導体検出器で AMP を測定することによ り<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度を決定した (Kaeriyama et al., 2013)。本手法による重量回収率は95%以上であった。 なお、本研究では化学収率は100%を仮定した。また、 ゲルマニウム半導体検出器による試料の測定時間は 7200秒~85000秒である。<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs の濃度計 算は文部科学省放射能測定法シリーズ7に従いコベル法 により計算し、試料採取日に減衰補正した。<sup>137</sup>Csの対 象ピークは 662 keV とし,<sup>134</sup>Cs の対象ピークは分岐比 の高い 605 keV および 796 keV とした。なお,<sup>134</sup>Cs 濃 度は2エネルギー領域の加重平均値として求めた。各対 象ピークの計数誤差の3倍(3σ)を検出限界とし対象 ピークの計数が3σ以下の試料は不検出とした。検出下 限値は 7200 秒の測定で約 5.0 mBq kg<sup>-1</sup>, 85000 秒の測定 で約1.4 mBq kg<sup>-1</sup>であった。85000 秒の測定による <sup>137</sup>Csの検出下限値はFNPP事故以前における日本周辺 海域の表面海水の<sup>137</sup>Cs 濃度 (1-2 mBq kg<sup>-1</sup>; 例えば及 川ら, 2013) と同程度であり, FNPP 事故の影響の有無 を検証できる濃度である。また、<sup>134</sup>Csのサム効果補正 は既知濃度の<sup>134</sup>Cs溶液を数段階に希釈し直接測定を行 うことで補正係数を求めた(検出器により1.05~1.32の 範囲)。なお、FNPP事故直後の2011年4月の試料は 2L容マリネリ容器に海水試料を充填し、ゲルマニウム 半導体検出器による7200秒の測定に供した。マリネリ 容器での測定における<sup>137</sup>Csの検出下限値は123-285 mBq kg<sup>-1</sup>の範囲であった。また、マリネリ容器での測 定結果については<sup>134</sup>Csのサム効果補正を行っておらず、 他の測定結果との比較は困難であり、参考値として示 す。

#### 3. 結果

#### 3.1 西部北太平洋

#### 3.1.1 北海道南東沖海域

2011年6月の表層海水の<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度は12

**Table. 1.** Activities of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in seawater samples collected off the coast of Hokkaido. The analytical error is based on 1  $\sigma$  of the counting statistics. When radioactivity was not detected, the detection limit (3  $\sigma$ ) was presented. Activities were decay corrected on the sampling date.

Station Latitude		la Langituda	Sampling	Depth	Concentrati	Concentration(mBq/kg)	
Station	Latitude	Longitude	date	(m)	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	
A4	42°15.0'N	145°07.5'E	2011/6/8	5	$15 \pm 3.0$	$14 \pm 3.9$	
A4	42°15.0'N	145°07.5'E	2011/7/16	5	$27 \pm 3.8$	$33~\pm~5.4$	
				150	< 7.1	< 9.7	
				300	< 7.7	< 9.3	
A4	42°15.0'N	145°07.5'E	2012/5/9	5	$2.7~\pm~0.52$	$4.2~\pm~0.66$	
				50	< 4.9	< 5.2	
				100	< 4.5	< 6.8	
				300	< 4.6	< 6.0	
				500	< 4.6	< 5.6	
A7	41°30.0'N	145°30.0'E	2011/6/9	5	< 9.2	$12 \pm 3.6$	
A9	41°00'.0N	145°45.0'E	2011/6/9	5	$20~\pm~3.7$	$16 \pm 4.2$	
S1	42°41.0'N	144°56.0'E	2011/9/7	5	$2.4~\pm~0.46$	$4.0~\pm~0.56$	
				100	< 1.3	$2.9~\pm~0.49$	
				200	$2.1~\pm~0.48$	$2.5~\pm~0.49$	
S2	$42^{\circ}11.0'N$	145°23.0'E	2011/9/7	5	$60~\pm~3.4$	$69 \pm 4.2$	
				100	$53 \pm 3.2$	$69~\pm~4.3$	
				200	$51 \pm 3.1$	$51 \pm 3.7$	
S3	42°01.3'N	145°02.6'E	2011/9/8	5	$34~\pm~2.6$	$42 \pm 3.4$	
				100	$15~\pm~1.9$	$18 \pm 2.4$	
				200	$15 \pm 2.0$	21 ± 2.6	



**Fig. 2.** (a) Sampling locations off the coast of Hokkaido. (b) Vertical profiles of <sup>137</sup>Cs obtained from three sampling stations in September 2011.

~ 20 mBq kg<sup>-1</sup>の範囲にあったが、A7 において <sup>134</sup>Cs が検出限界未満 (< 9.2 mBq kg<sup>-1</sup>) であった (Table 1)。 A4 における 2011 年7月の <sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs 濃度は表 層で 27±3.8 mBq kg<sup>-1</sup> および 33±5.4 mBq kg<sup>-1</sup> と6月 (15±3.0 mBq kg<sup>-1</sup> および 14±3.9 mBq kg<sup>-1</sup>) に比べ上 昇したが、2012 年5月には 4.2±0.66 mBq kg<sup>-1</sup> および 2.7±0.52 mBq kg<sup>-1</sup> に低下した。2011 年9月に採取し た3地点 (S1, S2 および S3) では 深度 200m までほぼ 一様な分布を示し、沖合の地点 (S2 および S3) で <sup>137</sup>Cs 濃度が 18-69 mBq kg<sup>-1</sup> と岸寄りの S1 の 2.5-4.0 mBq kg<sup>-1</sup>よりも高い値を示した (Fig. 2)。

#### 3.1.2 東北地方-房総半島沖海域の水平分布

東北地方沖から房総半島沖の海域では,2011年4月よ り調査を開始した。2011年4月の試料については上述 のAMP 共沈法を適用せず,2Lマリネリ容器での直接 測定を行ったため,<sup>137</sup>Csの検出下限値が123-285 mBq kg<sup>-1</sup>と他の分析値よりも高い。そのため多くの試料で <sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs は不検出であったが,3地点において <sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs が検出され,その濃度は<sup>137</sup>Cs で279443 mBq kg<sup>-1</sup>であった (Table 2)。2011 年5月に採取 した試料は7kgの試料を AMP 共沈法によりセシウム を吸着し測定することにより検出下限値を 9.0 mBg kg<sup>-1</sup> 以下の条件で測定した。その結果145°20'E以西の36° 20'N-38°00'N の海域において<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs を検出 した (Fig. 3 および Table 3)。FNPP 北側の 143°00'E 以西において<sup>137</sup>Cs 濃度が 200 mBg kg<sup>-1</sup> 以上の分布が 確認された。2011年10月~11月および2012年4月に 青森県~茨城県沖において採取した表層海水の<sup>134</sup>Cs お よび<sup>137</sup>Cs 濃度を Table 4 に示す。2011 年 10 月~11 月 の<sup>137</sup>Cs は 4.8-67 mBg kg<sup>-1</sup>の範囲にあり、 39°N 以北で 濃度が低い傾向にあった。2012年4月の福島県北部海 域における<sup>137</sup>Cs は 3.0-19 mBq kg<sup>-1</sup> であり沖合になる ほど低濃度であった。また、F250における 2011 年11 月および 2012 年 4 月の結果を比較すると 54 mBq kg<sup>-1</sup> から 3.0 mBq kg<sup>-1</sup> まで <sup>137</sup>Cs 濃度の低下が認められた。

#### 3.1.3 東北地方-房総半島沖海域の鉛直分布

2011 年 11 月に FNPP の北側 37°25'N および南側 37° 00'N に東西方向の測線を設け,最大深度 500 m までの

**Table. 2.** Activities of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in seawater samples collected from the western North Pacific in April 2011. The analytical error is based on 1  $\sigma$  of the counting statistics. When radioactivity was not detected, the detection limit (3  $\sigma$ ) was presented. Activities were decay corrected on the sampling date. The water sample collected in April 2011 was measured directly with a 2 L Marinelli beaker; the detection limit in this table is higher than those of other samples.

Station	Latituda	Longitudo	Sampling	Depth	Concentration	on(mBq/kg)
Station	Latitude	Longitude	date	(m)	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
A450	41°00.0'N	141°43.4'E	2011/4/15	5	< 87	< 144
A150	40°46.7'N	141°52.2'E	2011/4/15	5	< 84	< 153
A250	40°53.9'N	141°48.1'E	2011/4/15	5	< 99	< 156
B150	40°16.6'N	142°05.9'E	2011/4/16	5	< 96	< 165
B350	40°04.7'N	142°15.3'E	2011/4/16	5	< 84	< 156
C250	39°38.4'N	142°13.5'E	2011/4/17	5	< 96	< 165
C450	39°38.1'N	142°17.3'E	2011/4/17	5	< 84	< 156
D250	38°54.2'N	142°00.6'E	2011/4/18	5	< 126	< 207
D350	38°56.0'N	142°05.8'E	2011/4/18	5	< 93	< 123
D450	39°05.4'N	142°10.4'E	2011/4/18	5	< 114	< 174
E250	38°22.6'N	141°53.5'E	2011/4/19	5	< 102	< 165
E450	38°21.1'N	142°04.1'E	2011/4/19	5	< 114	< 192
F150	37°34.4'N	141°32.6'E	2011/4/21	5	< 93	< 132
				25	< 108	< 165
				50	< 87	< 150
F350	37°35.9'N	141°47.1'E	2011/4/21	5	< 89	< 252
				25	< 93	< 147
				50	< 93	< 102
F450	37°40.6'N	141°56.9'E	2011/4/21	5	< 93	< 147
				20	< 87	< 168
H150	36°29.1'N	140°57.6'E	2011/4/22	5	< 102	< 180
H250	36°28.6'N	140°56.2'E	2011/4/22	5	< 78	< 126
H350	36°27.2'N	140°58.9'E	2011/4/22	5	< 90	< 165
H350	36°27.2'N	140°58.9'E	2011/4/22	20	< 96	< 144
H350	36°27.2'N	140°58.9'E	2011/4/22	50	< 105	< 171
MY12	37°59.8'N	141°14.8'E	2011/4/24	5	$341~\pm~49$	$398~\pm~84$
MY13	37°59.8'N	141°29.7'E	2011/4/24	5	$178~\pm~37$	$279~\pm~66$
MY14	37°59.7'N	141°49.6'E	2011/4/24	5	< 123	< 168
MY15	38°00.0'N	142°09.7'E	2011/4/24	5	$160~\pm~30$	< 168
MY16	38°00.2'N	142°29.6'E	2011/4/24	5	< 93	< 189
MY17	37°59.3'N	142°50.1'E	2011/4/24	5	$130~\pm~34$	< 150
MY18	38°00.1'N	143°10.2'E	2011/4/24	5	< 153	< 222
S03	36°59.5'N	141°12.2'E	2011/4/23	5	$460~\pm~60$	$443~\pm~91$
S04	37°00.0'N	141°24.2'E	2011/4/23	5	< 204	< 285
S05	37°00.2'N	141°36.2'E	2011/4/23	5	< 87	< 156
S06	36°59.9'N	141°45.1'E	2011/4/23	5	< 108	< 189
S07	36°59.3'N	$142^{\circ}00.1'\mathrm{E}$	2011/4/23	5	< 96	< 132
S08	36°59.7'N	142°15.4'E	2011/4/23	5	< 99	< 204
S09	37°00.1'N	142°30.4'E	2011/4/23	5	< 87	< 171

Station	Latituda	Longitudo	Sampling	Depth	Concentrati	on(mBq/kg)
Station	Latitude	Longitude	date	(m)	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
HH01	35°39.9'N	142°59.8'E	2011/5/16	0	< 7.8	< 8.4
HH02	35°40.0'N	142°15.0'E	2011/5/17	0	< 6.7	< 6.9
HH03	35°40.0'N	141°30.0'E	2011/5/17	0	< 7.8	< 10
HH04	35°40.0'N	141°00.0'E	2011/5/17	0	< 9.3	< 11
HH05	36°00.0'N	143°00.0'E	2011/5/16	0	< 7.4	< 9.3
HH06	36°00.0'N	141°00.0'E	2011/5/18	0	< 7.4	< 9.0
HH07	36°00.0'N	141°45.0'E	2011/5/18	0	< 6.3	< 9.6
HH08	36°00.0'N	142°15.0'E	2011/5/18	0	< 7.4	< 9.0
HH09	36°20.0'N	143°00.0'E	2011/5/16	0	< 3.6	< 5.4
HH10	36°20.0'N	142°15.0'E	2011/5/19	0	$61~\pm~3.6$	$68~\pm~5.0$
HH11	36°20.0'N	141°30.0'E	2011/5/19	0	< 7.4	< 6.0
HH12	36°20.0'N	140°50.0'E	2011/5/19	0	$14 \pm 3.0$	$9~\pm~2.9$
HH13	36°40.0'N	141°00.1'E	2011/5/20	0	< 7.5	$15 \pm 3.9$
HH14	36°40.0'N	141°30.0'E	2011/5/20	0	$64 \pm 4.9$	$50~\pm~6.0$
HH15	36°39.9'N	142°14.9'E	2011/5/20	0	$620~\pm~15$	$735~\pm~22$
HH16	36°40.0'N	143°00.0'E	2011/5/20	0	$13 \pm 3.7$	$17 \pm 4.0$
HH17	36°40.0'N	143°30.0'E	2011/5/20	0	< 7.8	< 11
HH18	37°00.0'N	141°50.0'E	2011/5/21	0	$365~\pm~8.3$	$445~\pm~12$
HH19	37°00.0'N	142°14.9'E	2011/5/21	0	$278~\pm~9.8$	$319 \pm 14$
HH20	37°00.0'N	143°00.0'E	2011/5/21	0	$1596~\pm~23$	$1841~\pm~32$
HH21	37°00.0'N	143°44.9'E	2011/5/22	0	< 4.3	< 5.4
HH22	37°00.0'N	144°30.0'E	2011/5/22	0	< 7.4	< 9.0
HH23	36°59.8'N	145°20.3'E	2011/5/22	0	< 3.6	< 3.6
HH24	37°19.9'N	145°20.1'E	2011/5/23	0	$12 \pm 2.8$	$11 \pm 3.7$
HH25	37°20.0'N	144°30.0'E	2011/5/23	0	$19 \pm 3.4$	$19 \pm 4.4$
HH26	37°20.0'N	143°45.0'E	2011/5/23	0	$31 \pm 3.8$	$36~\pm~5.3$
HH27	37°19.8'N	143°00.0'E	2011/5/23	0	$125~\pm~6.9$	$136~\pm~9.1$
HH28	37°20.0'N	142°15.0'E	2011/5/24	0	$440~\pm~16$	$424~\pm~21$
HH29	37°20.0'N	142°00.0'E	2011/5/24	0	$275~\pm~9.9$	$265~\pm~13$
HH30	37°40.0'N	141°55.0'E	2011/5/24	0	$309~\pm~11$	$354~\pm~15$
HH31	37°40.0'N	142°15.0'E	2011/5/24	0	$391~\pm~12$	$422~\pm~16$
HH32	37'40.0'N	142°59.2'E	2011/5/24	0	$451~\pm~14$	$440~\pm~17$
HH33	37°40.0'N	143°45.0'E	2011/5/25	0	< 7.8	< 7.5
HH34	37°40.0'N	144°30.0'E	2011/5/25	0	$343 \pm 12$	$350~\pm~15$
HH35	38°00.0'N	144°30.0'E	2011/5/25	0	< 7.4	< 9.0
HH36	38°00.1'N	143°45.0'E	2011/5/25	0	$314~\pm~7.7$	$393~\pm~11$
HH37	38°00.0'N	143°00.0'E	2011/5/26	0	$441~\pm~12$	$493~\pm~17$
HH38	38°00.0'N	142°15.0'E	2011/5/26	0	$936~\pm~13$	$1120~\pm~19$
HH39	38°00.0'N	142°00.0'E	2011/5/26	0	$514 \pm 14$	$550~\pm~18$
HH40	37°59.9'N	141°39.8'E	2011/5/26	0	$178 \pm 8.7$	$192 \pm 11$

**Table. 3.** Activities of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in seawater samples collected from the western North Pacific in May 2011. The analytical error is based on 1  $\sigma$  of the counting statistics. When the radioactivity was not detected, the detection limit (3  $\sigma$ ) was presented. Activities were decay corrected on sampling date.



**Fig. 3.** Surface seawater sampling locations in May 2011. Closed and open circles indicate sampling locations. Colors of the closed and open circles indicate the concentrations of <sup>137</sup>Cs.



Fig. 5. Seawater sampling locations in September and October 2011 (closed circle), November 2011 (open diamond), February 2012 (open circle), May 2012 (cross), and July 2012 (open triangle).



Fig. 4. (a) Seawater sampling locations in November 2011. (b) and (c) Vertical distribution of <sup>137</sup>Cs at each sampling station. Open symbols with dashed lines indicate values under the detection limit ( $3\sigma$ ), which were then plotted.

鉛直採水を行った (Fig. 4 および Table 5)。FNPP の南 北で <sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs 濃度に明瞭な違いは認められな かった。また,いずれの地点においても深度 300m 以深 で <sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs は検出されず,表層で高濃度とな る傾向が伺えた。しかしながら深度 100 m にピークが 認められる地点 (T14, S14, S12 および S04)の存在, <sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs 濃度の高低に東西トレンドが認められ ないなど,その分布は複雑であった。一方,36°50'N 以 南の茨城県沖合を中心に房総半島の南側までの海域にお いて,2011 年 9 月から 2012 年 7 月にかけて試料を採取 した (Fig. 5 および Table 6)。なお,当該海域における

**Table. 4.** Activities of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in seawater samples collected from the western North Pacific during October 2011 and April 2012. The analytical error is based on  $1\sigma$  of the counting statistics. When the radioactivity was not detected, the detection limit  $(3\sigma)$  was presented. Activities were decay corrected on sampling date.

Station	Latituda	T on original o	Sampling	Depth	Concentrati	on(mBq/kg)
Station	Latitude	Longitude	date	(m)	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
A150	40°47.6'N	141°49.5'E	2011/10/12	5	< 4.4	< 5.1
A250	40°51.8'N	141°50.6'E	2011/10/12	5	< 3.0	< 4.1
A550	41°00.8'N	141°50.1'E	2011/10/13	5	< 3.2	< 4.8
B150	40°13.6'N	142°07.2'E	2011/10/10	5	< 4.0	$6.0~\pm~1.7$
B250	40°06.7'N	142°13.2'E	2011/10/10	5	< 2.7	< 4.3
B550	40°17.6'N	142°16.4'E	2011/10/17	5	$6.9 \pm 1.4$	$8.1~\pm~1.6$
C250	39°40.2'N	142°14.3'E	2011/10/8	5	$25 \pm 2.3$	$29~\pm~3.1$
C550	39°34.4'N	142°18.5'E	2011/10/8	5	< 3.5	< 3.8
D250	38°56.6'N	142°01.5'E	2011/10/26	5	< 3.7	$4.8~\pm~1.6$
D550	39°03.9'N	142°12.8'E	2011/10/19	5	< 3.4	< 4.1
E150	38°20.1'N	141°44.5'E	2011/10/27	5	$33 \pm 2.4$	$36 \pm 3.2$
E250	38°21.2'N	141°54.1'E	2011/10/27	5	$43~\pm~2.9$	$47~\pm~3.9$
E550	38°22.6'N	142°07.3'E	2011/10/29	5	$53~\pm~3.1$	$67~\pm~4.5$
F150	37°35.3'N	141°33.2'E	2011/10/31	5	$11 \pm 1.8$	$14 \pm 2.5$
F250	37°38.0'N	141°39.0'E	2011/10/31	5	$42 \pm 3.0$	$54 \pm 4.2$
G150	36°59.8'N	141°17.5'E	2011/11/3	5	$19 \pm 2.2$	$22 \pm 3.1$
G250	36°57.1'N	141°22.8'E	2011/11/3	5	$39~\pm~2.6$	$44~\pm~3.6$
G550	36°58.2'N	141°38.0'E	2011/11/8	5	$31~\pm~2.5$	$38~\pm~3.6$
F550	37°41.0'N	142°04.7'E	2011/11/14	5	$6.8 \pm 1.4$	$12 \pm 2.0$
H150	36°29.9'N	140°57.1'E	2011/11/16	5	$27 \pm 2.3$	$35 \pm 3.4$
H250	36°30.0'N	140°58.9'E	2011/11/16	5	$10~\pm~1.6$	$15 \pm 2.3$
H550	36°31.8'N	141°08.7'E	2011/11/17	5	$15 \pm 1.7$	$24 \pm 2.6$
F1	37°56.0'N	141°12.2'E	2012/4/21	5	$11~\pm~1.6$	$19~\pm~2.5$
F3	37°56.8'N	141°17.9'E	2012/4/21	5	$8.0~\pm~1.3$	$11~\pm~1.9$
F6	37°55.9'N	141°26.7E	2012/4/21	5	< 3.5	$5.4 \pm 1.5$
F250	37°38.0'N	141°39.0'E	2012/4/19	5	$1.6~\pm~0.36$	$3.3~\pm~0.48$

試料採取地点は水深が浅く,懸濁物質の量が多かったため、海水試料を孔径  $0.45 \mu m$  のメンブレンフィルターでろ過し懸濁物質を除去している。2011 年 9 月および 10 月に鹿島灘および九十九里浜沖の水深 10 m 程度の 4 地点で採取した海水試料からは 57-215 mBq kg<sup>-1</sup> の<sup>137</sup>Cs が検出され、同一地点における深度による違いは認められず、犬吠埼を境に北の 2 地点で 94-215 mBq kg<sup>-1</sup> と南の 2 地点の 57-80 mBq kg<sup>-1</sup> に比べ高濃度であった。なお、2011 年 11 月に鹿島灘の沖合では <sup>137</sup>Cs が 21 mBq kg<sup>-1</sup>であり、2011 年 9 月および 10 月の結果に比べ低濃度であった。2012 年 2 月に 35°57'N-36°23'N の範囲において採取した表面海水からは 6.0-8.8 mBq kg<sup>-1</sup>の

<sup>137</sup>Cs が検出された。2012 年 5 月には 36°30'N-36°50'N の水深約 100 m の 4 地点 (TK01-04),および那珂川河 口の岸沖方向に 3 地点 (TK06-08)において表面および 近底層より採水した。TK01-TK04 における<sup>137</sup>Cs は 21 -112 mBq kg<sup>-1</sup>の範囲にあり,近底層よりも表面海水で 高濃度の傾向にあったものの,南北における濃度の高低 に傾向は認められず,2011 年 11 月の表層海水の結果と 同程度か,もしくは濃度が高い傾向にあった。一方, TK06-08 においては,岸側の地点で<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度が高い傾向にあった。しかしながら,那珂川河口に おいて 2012 年 7 月に採取した試料では,岸沖方向の濃 度差が不明瞭であり,2012 年 5 月の結果に比べ低濃度

Station	Latituda	Longitudo	Sampling	Depth	Concentratio	on(mBq/kg)
Station	Latitude	Longitude	date	(m)	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
T14	37°25.0'N	145°00.0'E	2011/11/9	5	$18 \pm 1.6$	$30~\pm~2.8$
				50	$8.4 \pm 1.3$	$15 \pm 2.2$
				100	$40~\pm~2.3$	$64 \pm 4.0$
				300	< 2.6	$4 \pm 1.1$
				500	< 2.6	< 3.7
T12	37°25.0'N	144°00.0'E	2011/11/9	5	$43~\pm~2.4$	$69~\pm~4.3$
				50	$14 \pm 1.6$	$27~\pm~2.8$
				100	$20~\pm~1.7$	$27~\pm~2.9$
				300	< 3.0	< 3.4
				500	< 2.8	< 4.0
T10	37°25.0'N	143°00.0'E	2011/11/10	5	$20~\pm~1.7$	$28~\pm~2.8$
				50	$7.4~\pm~1.1$	$9.5~\pm~1.9$
				100	$2.6~\pm~0.8$	$4.1~\pm~1.3$
				300	< 3.3	< 3.8
				500	< 3.0	< 4.6
T07	37°25.0'N	142°00.0'E	2011/11/10	5	$39~\pm~2.3$	$48~\pm~3.6$
				50	$26~\pm~2.0$	$44~\pm~3.5$
				100	$29~\pm~2.0$	$45~\pm~3.5$
				300	< 2.8	< 3.8
T04	37°25.0'N	141°28.0'E	2011/11/10	5	$29~\pm~2.2$	$36 \pm 3.3$
				50	$8.4 \pm 1.3$	$8.5~\pm~1.8$
				100	$1.9~\pm~0.3$	$4.5~\pm~0.54$
S04	37°00.0'N	141°24.0'E	2011/11/11	5	$14 \pm 1.6$	$25~\pm~2.8$
				50	$3.0~\pm~0.5$	$3.4~\pm~0.61$
				100	$15 \pm 1.7$	$26 \pm 3.0$
S07	37°00.0'N	142°00.0'E	2011111/11	5	$36 \pm 2.2$	$58 \pm 4.0$
				50	$34 \pm 2.2$	$45 \pm 3.6$
				100	$23 \pm 1.9$	$40 \pm 3.5$
				300	< 2.7	< 4.6
S10	37°00.0'N	142°58.0'E	2011/11/11	5	$27 \pm 2.1$	$38 \pm 3.3$
				50	$23 \pm 1.8$	$41~\pm~3.4$
				100	$16 \pm 1.6$	$26 \pm 2.7$
				300	< 3.2	< 4.6
				500	< 3.1	< 4.2
S12	37°00.0'N	143°58.0'E	2011/11/12	5	$22 \pm 1.8$	$33 \pm 3.1$
				50	$9.3~\pm~1.3$	$16 \pm 2.1$
				100	$19 \pm 1.7$	$31 \pm 3.0$
				300	< 3.3	< 4.4
S14	37°00.0'N	145°00.0'E	2011/11/12	5	$6.2 \pm 1.1$	$10~\pm~1.9$
				50	$1.9~\pm~0.3$	$4.3~\pm~0.57$
				100	$10 \pm 1.4$	$15 \pm 2.5$
				300	< 2.6	< 4.1
				500	< 2.8	< 3.8

**Table. 5.** Activities of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in seawater samples collected from the western North Pacific in November 2011. The analytical error is based on  $1\sigma$  of the counting statistics. When the radioactivity was not detected, the detection limit ( $3\sigma$ ) was presented. Activities were decay corrected on sampling date.



**Fig. 6.** (a) Relationship between <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs activity ratio and sampling date. (b) Concentration of <sup>137</sup>Cs. The <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs activity ratio was calculated from decay-corrected data on March 11, 2011.

であった。さらに、2012 年7月の房総半島沖では10-37 mBq kg<sup>-1</sup>の<sup>137</sup>Cs が検出されたが、2011 年5月の近 傍点(HH04 および HH06)では<sup>137</sup>Cs が不検出(<11 mBq kg<sup>-1</sup>; Fig. 3 および Table 3) であった。

#### 3.2 日本海, 瀬戸内海, 東シナ海およびベーリング海

日本海,瀬戸内海および東シナ海で2011年に採取した試料の多くは,ガンマ線測定時間を7200秒としたため検出下限値が<sup>137</sup>Csで~5.0 mBq kg<sup>-1</sup>であり,<sup>134</sup>Cs,<sup>137</sup>Csともに不検出の試料が多数を占めた(Table 7,8 および9)。日本海において2012年6月から11月に採取

した試料では、2.0-2.4 mBq kg<sup>-1</sup>の<sup>137</sup>Cs を検出したも のの、<sup>134</sup>Cs は不検出 (< 1.1 mBq kg<sup>-1</sup>)であった (Table 7)。瀬戸内海では播磨灘および大阪湾にて 2011 年 11 月および 2012 年 1 月に表層海水を採取したところ、2.0 mBq kg<sup>-1</sup>以下の<sup>137</sup>Cs を検出したものの、<sup>134</sup>Cs は不検 出であった (Table 8)。東シナ海においても 2012 年 6 月以降に採取した表層海水で 1.4-2.4 mBq kg<sup>-1</sup>の<sup>137</sup>Cs を検出したものの、<sup>134</sup>Cs は不検出 (< 1.1 mBq kg<sup>-1</sup>)で あった (Table 9)。2012 年 7 月から 8 月に採取したベー リング海の表層海水からは 1.8-2.3 mBq kg<sup>-1</sup>の<sup>137</sup>Cs を 検出したものの、<sup>134</sup>Cs は検出されなかった (Table 10)。 **Table. 6.** Activities of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in seawater samples collected from the western North Pacific during September 2011 and July 2012. The analytical error is based on  $1\sigma$  of the counting statistics. When radioactivity was not detected, the detection limit  $(3\sigma)$  was presented. Activities were decay corrected on the sampling date. Water samples presented in this table were passed through a membrane filter (pore size  $0.45\mu$ m) before performing the ammonium phosphomolybdate (AMP) procedure, because the sampling location was shallower than that of other locations, and SS were rich in the samples.

Station	Latitudo	Longitudo	Sampling	Depth	Concentratio	on(mBq/kg)
Station	Latitude	Longitude	date	(m)	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
RP01	36°04.0'N	140°38.0'E	2011/9/15	3	$126~\pm~5.5$	$135~\pm~6.3$
				7	$186 \pm 6.7$	$215~\pm~8.0$
RP02	35°52.0'N	140°45.5'E	2011/9/15	3	$102 \pm 4.7$	$109 \pm 5.5$
				7	$88 \pm 4.4$	$94 \pm 5.2$
RP03	35°40.5'N	140°42.5'E	2011/9/16	3	$61 \pm 3.7$	$72 \pm 4.4$
				7	$50~\pm~3.5$	$68 \pm 4.4$
RP04	35°35.0'N	140°32.0'E	2011/9/16	3	$56~\pm~3.5$	$67~\pm~4.4$
				7	$54 \pm 3.4$	$64 \pm 4.1$
RP01	36°04'N	140°37.0'E	2011/10/1	3	$112 \pm 4.1$	$131~\pm~5.7$
				7	$100 \pm 3.9$	$134~\pm~5.6$
RP02	35°52'N	140°45.5'E	2011/10/1	3	$87~\pm~3.8$	$110 \pm 5.4$
				7	$82 \pm 3.7$	$110~\pm~5.5$
RP03	35°40.5'N	140°42.8'E	2011/9/30	3	$60~\pm~3.5$	$80~\pm~4.9$
				7	$59~\pm~3.4$	$65 \pm 4.4$
RP04	35°35.0'N	140°32.0'E	2011/9/30	3	$55 \pm 3.1$	$57~\pm~4.0$
				7	$53~\pm~3.0$	$62 \pm 4.0$
TK14	35°56.1'N	140°57.9'E	2011/11/30	0	$14 \pm 1.8$	$21 \pm 2.5$
TK05	36°23.0'N	140°46.0'E	2012/2/19	0	< 4.3	$8.8~\pm~1.7$
TK12	36°03.0'N	140°48.0'E	2012/2/18	0	$5.7 \pm 1.4$	$7.1~\pm~2.0$
TK13	35°57.0'N	140°52.0'E	2012/2/21	0	< 3.8	$6.0~\pm~1.9$
TK01	36°50.0'N	140°58.1'E	2012/5/21	0	$42 \pm 2.5$	$64 \pm 4.0$
				50	$45 \pm 2.7$	$71 \pm 4.3$
TK02	36°45.0'N	140°57.3'E	2012/5/24	0	$42 \pm 2.8$	$64 \pm 4.4$
				53	$33 \pm 2.4$	$48 \pm 3.8$
TK03	36°40.0'N	140°54.8'E	2012/5/19	0	$80 \pm 3.9$	$112 \pm 5.8$
				52	$48 \pm 3.1$	$62 \pm 4.4$
TK04	36°30'N	140°50.5'E	2012/5/18	0	$44 \pm 2.9$	$58 \pm 4.0$
				52	$14 \pm 1.8$	$21 \pm 2.8$
TK06	36°17.4'N	140°36.5'E	2012/5/20	0	$62 \pm 3.1$	$95 \pm 4.8$
				13	$29 \pm 2.3$	$40 \pm 3.3$
TK07	36°14.5'N	140°44.0'E	2012/5/20	0	$49 \pm 3.0$	$79 \pm 4.7$
<b>mxx</b> 00		1 (00 (0 ()))	0010 (5 /00	42	$12 \pm 1.8$	$21 \pm 2.8$
TK08	36°17.4'N	140°48.6'E	2012/5/20	0	$38 \pm 2.8$	$55 \pm 4.1$
<b>m</b>			0010 (= /0=	101	$18 \pm 2.0$	$17 \pm 2.6$
TK09	36°15.0'N	140'34.4'E	2012/7/25	0	$13 \pm 0.53$	$20 \pm 0.77$
<b>mxx1</b> 0		1 (0000 4)7	0010 (= /0=	7	$12 \pm 0.52$	$19 \pm 0.76$
TK10	36°15.0'N	140°39.6 E	2012/7/25	0	$4.1 \pm 0.39$	$6.8 \pm 0.52$
01711			0010 / 5 / 05	25	$9.2 \pm 0.44$	$15 \pm 0.63$
TKII	36°15.0'N	140 <sup>-</sup> 47.3 E	2012/7/25	0	$7.8 \pm 0.45$	$15 \pm 0.69$
			0010 /7 /05	75	$2.8 \pm 0.34$	$0.0 \pm 0.47$
1K15	35 45.7 N	140 51.0E	2012/7/25	U	$11 \pm 0.51$	$19 \pm 0.73$
TU1C			9019/7/9	24	$1.8 \pm 0.43$	$12 \pm 0.61$
1 1/10	35 40.5 N	140 56.9 E	2012/1/3	U 50	$22 \pm 0.03$	$37 \pm 0.97$
				53	$0.4 \pm 0.40$	$10 \pm 0.55$

#### 4. 考察

#### 4.1 <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比

FNPP 事故により環境へ放出された<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs の放射能比は放出当時(2011年3月から4月)で約1.0 と考えられている (小森ら, 2013)。また, 西部北太平 洋において FNPP 事故後に報告された既報の文献値に おいても, 放出当時に減衰補正した<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度を用いた<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比は約 1.0 と報告されて いる (例えば Buesseler et al., 2012; Kaeriyama et al., 2013; Honda et al., 2012)。本研究では 249 検体の海水 試料の分析を行い, 北海道南東沖から房総半島沖の西部 北太平洋にて採取した134 検体から2 核種 (<sup>134</sup>Cs およ び<sup>137</sup>Cs)を検出した。さらに、2011年3月11日に減衰 補正した両核種の計数誤差が15%未満であった試料95 検体について、<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比を求めた (Fig. 6)。 このようにして得られた<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比は, 試料 採取日および<sup>137</sup>Cs 濃度によらずほぼ一定の値を示して おり、全体平均は0.93±0.13 (n=95) であった。Kaeriyama *et al.* (2013) によると 175°30'E 以西の西部北太平 洋の表面海水における FNPP 事故直後に減衰補正した <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比は 2011 年7月, 11 月および 2012 年 7月の期間においてそれぞれ、0.96±0.10、0.90±0.07お よび 0.85±0.12 と時間の経過とともに低下することを 報告している。特に<sup>137</sup>Cs 濃度が 10 mBq kg<sup>-1</sup> 以下にお いて<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比が低い値であった(Kaeriyama et al., 2013の Fig. 4参照)。これは FNPP 事故の影響を 受けていない海水, すなわち<sup>134</sup>Cs が存在せず, 数 mBq kg<sup>-1</sup>の<sup>137</sup>Cs が存在する海水とFNPP事故により <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比が 1.0 の海水の混合効果を示してい ると考察している。本研究で得られた 2011 年 3 月 11 日 に減衰補正した<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比が時間とともに変 化しないことは, FNPP 事故の影響を受けていない海水 による混合効果が、外洋域に比べ小さいことを示してい ると考えられる。なお, Kaeriyama et al. (2013) で示唆 された,海水の混合に伴う<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度の低 下と<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比の関係は<sup>137</sup>Cs 濃度が10 mBg kg<sup>-1</sup>以下において顕著であったが、本研究で得られた

 $^{134}$ Cs/ $^{137}$ Cs 放射能比のうち, $^{137}$ Cs 濃度が10 mBq kg<sup>-1</sup> 以下における値は95 検体中2 検体と限定的であったた め, $^{134}$ Cs/ $^{137}$ Cs 放射能比の変動が外洋域に比ベ小さかっ たと考えられる。今後も福島県沖を中心にモニタリング を継続するとともに,移流,拡散に伴う FNPP 由来の  $^{134}$ Cs および $^{137}$ Cs の混合割合を正確に把握することが重 要であろう。そのためには供試料を増やすことや,測定 時間の延長,天然放射性核種 $^{40}$ K の除去等の化学分析, 極低バックグラウンドゲルマニウム半導体検出器による 測定など,0.1 mBq kg<sup>-1</sup>レベルでの $^{134}$ Cs の定量,およ び $^{134}$ Cs/ $^{137}$ Cs 放射能比の変動を監視する必要がある。

### 4.2 西部北太平洋における <sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs 濃度の時 系列変動

福島県沖を中心とした西部北太平洋では FNPP 事故 以前に比べ高濃度の<sup>137</sup>Cs および<sup>134</sup>Cs が確認された。 Fig. 7 に Fig. 3 で示した 2011 年 5 月の結果と, Buesseler et al. (2012) による 2011 年 6 月の西部北太平洋にお ける<sup>137</sup>Cs 濃度の水平分布を示す。 37°N 以北において は2011年5月から6月の1ヶ月間で<sup>137</sup>Cs濃度の水平 分布に明瞭な違いは認められない。一方, 37°N 以南の 多くの地点では2011年5月に100mBq kg<sup>-1</sup>以下で あったのに対し、2011年6月の36°N~37°N付近にお いて 500 mBq kg<sup>-1</sup>以上の濃度が観測されており,<sup>137</sup>Cs 濃度の上昇が認められた。その後, 2011年11月の時点 では10-40 mBq kg<sup>-1</sup>と濃度は低下している (Table 4)。Aoyama et al. (2012) は房総半島東端の茨城県波崎 市地先における表面海水の<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度につ いて,2011年4月25日から12月5日までの時系列変動 を報告している。波崎市地先における<sup>137</sup>Csは4月から 5月にかけて 50-100 Bg m<sup>-3</sup> であったのに対し, 6月以 降1000 Bg m<sup>-3</sup>以上と高濃度になり,7月中旬以降低下 している。Aoyama et al. (2012) は波崎市地先と FNPP 港湾内で<sup>137</sup>Cs 濃度のピーク出現日時に約2ヶ月の時間 差があることと、いわき市小名浜地先での<sup>137</sup>Cs 濃度時 系列変動より、5月下旬までいわき市沖に確認された高 気圧性暖水渦が、福島県いわき市小名浜から茨城県波崎 市沿岸の海域において,<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度の高い海 水の南下を妨げていたと述べている。Fig.7に示した 2011 年 5 月 お よ び 6 月 の 37°N 以南 で 認 め ら れ た<sup>137</sup>Cs

濃度の水平分布の違いも、Aoyama et al. (2012) で示唆 された2011年5月30日まで存在した暖水渦による <sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度の高い海水の南下が妨げられてい たことを反映していると考えられる。Fig. 8 に西部北太 平洋における表面海水および表層海水の<sup>137</sup>Cs 濃度の時 系列変動を、北部(38°N以北)、中部(37°N-38°N)お よび南部 (37°N 以南) に分け示す。いずれの海域におい ても時間の経過とともに<sup>137</sup>Cs 濃度は低下する傾向を示 し、南部に比べ北部および中部において<sup>137</sup>Cs 濃度の低 下傾向は顕著であった。FNPP 事故直後の 2011 年5月 に北部、中部で<sup>137</sup>Csが高濃度であったのは2011年3 月下旬~4月上旬の大気フォールアウトによる海面沈着 が FNPP の北東方向に顕著であった点 (Kawamura et al., 2011; Kobayashi et al., 2013; Rypina et al., 2013), ならびに先述の暖水渦の存在が影響したと考えられる。 なお,2011年5月に37°N以南よりも37°N以北,特に FNPP の北側で<sup>137</sup>Cs が高濃度であったことは Oikawa et al. (2013) でも報告されている。2011年6月以降の <sup>137</sup>Cs 濃度の低下が南部よりも北部,中部で明瞭であっ たのは、暖水渦の消失に伴い FNPP 近傍の<sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs 濃度の高い海水が主に南方向へ輸送され,<sup>134</sup>Cs お よび<sup>137</sup>Csの混合効果が高まったためと考えられる。更 に,北部,中部においては,<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度の低 い津軽暖流水の流入による混合効果が考えられる。しか しながら, Kofuji and Inoue (2013) によると、津軽暖 水の影響は季節により異なることが示唆される。すなわ ち、北部三陸沿岸ならびに下北半島において2011年4 月から5月の期間,大気経由により上昇した<sup>134</sup>Csおよ び<sup>137</sup>Cs 濃度が混合効果により低下した後, 2011 年7月 から8月にかけて再び上昇している (Kofuji and Inoue, 2013)。これは夏季に津軽暖水が青森県東方沖にて、高 気圧性渦を形成し、沖合の<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度の高 い海水を北部三陸沿岸ならびに下北半島へ輸送したため と考察している。

本研究で得られた Fig. 8 の西部北太平洋のデータ全体 における<sup>137</sup>Cs 濃度の変動と 2011 年 3 月 11 日からの日 数の関係をべき関数により以下の式で近似した。

 $y = 1.6 \times 10^4 x^{-1.1} (r^2 = 0.31; n = 88)$ 

ここで, xは2011年3月11日からの日数, yは<sup>137</sup>Cs 濃度(mBq kg<sup>-1</sup>)を示す。また,37°N以北のデータに

(1)



Fig. 7. Sampling locations and <sup>137</sup>Cs concentration in May (circle) and June (triangle) 2011. Circles are identical to those shown in Fig. 3. The data of June 2011 were obtained from Buesseler *et al.* (2012). Colors of the closed and open symbols indicate the concentrations of <sup>137</sup>Cs.

限定し同様の近似式を求めると以下の式が得られた。  $y = 3.6 \times 10^5 x^{-1.8}$  ( $r^2 = 0.52$ ; n = 54) (2)原子力規制委員会による放射線モニタリングの結果よ り,2013年5月16日~6月2日の海水の<sup>137</sup>Cs濃度は, 1.2~21 mBq L<sup>-1</sup>, 2013 年 8 月 11 日~26 日の調査で 1.6 -9.9 mBq L<sup>-1</sup>の範囲であった (http://radioactivity.nsr. go.jp/ja/contents/8000/7947/24/424\_2\_0807.pdf, http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/9000/8241/24 /440\_1010.pdf) 上記式(1)および(2)から推定される <sup>137</sup>Cs 濃度は、2013 年 5 月 24 日 で 8.3 mBq kg<sup>-1</sup> および 2.5 mBq kg<sup>-1</sup>, 2013 年 8 月 18 日で 7.5 mBq kg<sup>-1</sup> および 2.1 mBq kg<sup>-1</sup>であり、放射線モニタリングによる実測値 の範囲内にあった。さらに, FNPP 事故前の<sup>137</sup>Cs 濃度 レベルを 2.0 mBq kg-1 と仮定すると、当該海域全体で は式 (1)より FNPP 事故から8年で FNPP 事故以前の 濃度レベルまで低下すると試算される。今後、少なくと も10年スケールでの長期的なモニタリング調査が必要 であろう。



**Fig. 8.** Temporal variations of <sup>137</sup>Cs in the western North Pacific in the area north of 38°N (open circle), 37°N– 38°N (open square), south of 37°N (open triangle), and in other areas, including the Japan Sea, Seto Inland Sea, East China Sea, and Bering sea (cross).

# 4.3 西部北太平洋における <sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs 濃度の鉛 直分布

2011年11月の福島県沖における<sup>137</sup>Cs濃度の鉛直分 布では表層にピークを持つ分布と,表層および深度 100 m で<sup>137</sup>Cs が高濃度となり深度 300 m で低濃度ある いは不検出 (< 4.6 mBq kg<sup>-1</sup>) となる分布が散見された (Fig. 4 および Table 5)。また,福島県から千葉県沖の 水深100m以浅においては表層と近底層で同程度の <sup>137</sup>Cs 濃度が検出された (Table 6)。このような,福島 県沖を中心とする海域では FNPP 事故後,表層ではな く亜表層あるいは底層にピークを持つ<sup>137</sup>Cs 濃度の鉛直 分布がいくつか報告されている。及川ら(2013)は1983 年度より継続されている「海洋環境における放射能調査 及び総合評価事業」の2011年度までの結果をまとめて いる。本評価事業は全国の原子力発電所を対象とした, その前面海域における海水、海底土、海産生物の人工放 射性核種の長期モニタリング事業である。及川ら (2013)によると, FNPP 事故以前の茨城県沖における <sup>137</sup>Cs は表層,下層で同じ濃度レベルであったものが, FNPP 事故以降に実施された 2011 年度の調査では表層 (<10 mBq L<sup>-1</sup>) に比べ下層 (87~113 m) で高濃度 (10

-100 mBq L<sup>-1</sup>)となることを報告している。また, Buesseler *et al.* (2012) および Povinec *et al.* (2013b) は 2011年6月の福島県沖を中心とした<sup>137</sup>Cs濃度の鉛直分 布を報告しており、多くの地点で表層に<sup>137</sup>Cs濃度の ピークが認められるものの,いくつかの地点では深度 50 m 付近の亜表層に<sup>137</sup>Cs 濃度のピークを持つ鉛直分布 を報告している。更に Oikawa et al. (2013) は FNPP 事 故以降における文部科学省による海域モニタリングのう ち,海水の放射性核種濃度の結果をまとめており,2011 年5月から12月にかけて,深度200mまでの下層にお いて FNPP 由来の<sup>134</sup>Cs 濃度が上昇したと報告してい る。彼らは<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度の季節変動と、海水 の密度の指標となる σ-t の関係を精査し, 2011 年5 月か ら12月の期間,25.5-26.5σ-tの等密度面に沿って 10 mBq L<sup>-1</sup> 以上の高濃度な<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs を含む表 層の海水が下層へと輸送されたと考察している。海洋に おいて 99%以上が溶存態として存在する<sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Csの分布の成因は、その放出源と水塊構造により決 定されると考えられる。福島県沖を中心とする本州東方 沖の西部北太平洋は親潮,黒潮,中規模渦などの相互作 用により複雑な水塊構造を呈しており、このように複数 の水塊が混在し、混ざり合う海域においては、海洋へ放

is based on $1\sigma$ of the counting statistics. W	hen the	radioactivity	was not	detected,	the detection	n limit	$(3\sigma)$
was presented. Activities were decay correct	ed on s	ampling date.					

Table. 7. Activities of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in seawater samples collected from the Japan Sea. The analytical error

Station	Latituda	Longitudo	Sampling	Depth	Concentratio	<u>)п(шъq/кg)</u>
Station	Latitude	Longitude	date	(m)	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
JS01	41°00.0'N	138°00.0'E	2011/7/23	5	< 4.5	< 4.0
JS02	39°22.0'N	135°05.3'E	2011/7/24	5	< 2.9	< 5.0
JS03	40°06.5'N	137°06.9'E	2011/7/26	5	< 3.2	< 3.9
JS04	42°58.0'N	140°00.7'E	2011/7/28	5	< 3.8	< 4.1
JS05	36°06.5'N	131°06.4'E	2012/6/13	5	< 1.1	$2.4~\pm~0.44$
JS06	35°48.0'N	134°27.0'E	2012/7/10	5	< 0.92	$2.1~\pm~0.40$
JS07	36°20.0'N	134°40.0'E	2012/7/10	5	< 0.86	$2.3~\pm~0.39$
JS08	37°41.0'N	138°09.8'E	2012/11/19	5	< 0.95	$2.0~\pm~0.44$

**Table. 8.** Activities of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in seawater samples collected from the Seto Inland Sea. The analytical error is based on  $1\sigma$  of the counting statistics. When the radioactivity was not detected, the detection limit  $(3\sigma)$  was presented. Activities were decay corrected on sampling date.

Station	Latituda	Longitude	Sampling	Depth	Concentrati	on(mBq/kg)
Station	Latitude	Longitude	date	(m)	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
HN01	34°33.0'N	134°40.0'E	2011/10/9	5	< 1.4	$1.8 \pm 0.52$
			2012/1/16	5	< 1.3	$1.7~\pm~0.36$
HN02	34°31.0'N	134°30.0'E	2011/10/10	5	< 2.9	< 3.7
			2012/1/17	5	< 1.2	$1.3~\pm~0.43$
OB01	34°25.0'N	135°08.0'E	2011/10/8	5	< 1.2	< 1.6
			2012/1/15	5	< 1.3	$1.3~\pm~0.39$
OB02	34°32.0'N	135°07.5'E	2011/10/8	5	< 2.9	< 3.8
			2012/1/16	5	< 1.3	$1.4 \pm 0.39$

出された<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs の水平・鉛直分布も複雑で ある。今後, Oikawa *et al.* (2013) が示した海水の密度 などの情報と<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs の分布様式の関係を精 査し, FNPP 事故に起因する放射性セシウムの鉛直方向 への拡散状況について更なる整理が必要である。

# 4.4 日本海,瀬戸内海,東シナ海およびベーリング海への FNPP 事故の影響

日本海,瀬戸内海,東シナ海およびベーリング海にて 採取した海水試料から<sup>134</sup>Cs は検出されず,いずれの海 域においても~2.4 mBq kg<sup>-1</sup>の<sup>137</sup>Cs のみが検出された (Tables 7-10 および Fig. 8)。FNPP 事故以前における 日本周辺海域ならびに西部北太平洋の表層海水の<sup>137</sup>Cs 濃度は1~2 mBq kg<sup>-1</sup>程度であり(例えば Inoue *et al.*, 2012b;及川ら,2013),本研究結果と同程度である。そ のため本研究結果からは、これらの海域における FNPP 事故に起因する <sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs 濃度の上昇は認めら れなかったと考えられる。しかしながら、Inoue *et al.* (2012b)は <sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs の検出下限値が約0.1 mBq kg<sup>-1</sup>と極めて高感度な分析を行い、2011年6月の 日本海において 1.70-2.61 mBq L<sup>-1</sup>の <sup>137</sup>Cs および0.16-1.49 mBq L<sup>-1</sup>の <sup>134</sup>Cs を検出したと報告している。本研 究結果では 2012年6月、7月および11月に 2.0-2.4 mBq kg<sup>-1</sup>の <sup>137</sup>Cs を検出しており、Inoue *et al.* (2012b)によ る結果と同程度であった。また、及川ら(2013)による と、日本海に面した北海道、新潟県、石川県ならびに西 日本の佐賀県において放射性セシウム濃度(<sup>134+137</sup>Cs:  $\beta 線測定のため 2 核種合計値)の若干の上昇を確認した$ 

Station	Latitudo	Longitudo	Sampling	Depth	Concentratio	on(mBq/kg)
	Latitude	Longitude	date	(m)	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
ECS01	31°45.0'N	129°30.0'E	2011/10/15	5	< 3.0	< 3.6
ECS02	31°45.0'N	129°45.0'E	2011/10/16	5	< 3.5	< 4.7
ECS03	30°30.0'N	124°15.0'E	2011/10/18	5	< 1.1	$1.8~\pm~0.46$
ECS04	30°30.0'N	125°30.0'E	2011/10/18	5	< 2.8	< 3.7
ECS05	33°00.0'N	128°00.0'E	2011/10/19	5	< 3.2	< 4.3
ECS06	34°10.0'N	128°45.0'E	2011/10/20	5	< 3.4	< 4.7
ECS07	33°40.0'N	129°30.0'E	2011/10/20	5	< 3.4	< 4.5
ECS08	31°45.0'N	129°00.0'E	2012/6/25	5	< 0.91	$1.4~\pm~0.41$
ECS09	31°45.0'N	127°00.0'E	2012/6/24	5	< 1.1	$1.4~\pm~0.37$
ECS10	30°30.0'N	125°00.0'E	2012/7/19	5	< 1.0	$2.4~\pm~0.43$
ECS11	30°30.0'N	126°00.0'E	2012/7/20	5	< 0.88	$1.9~\pm~0.42$
ECS12	32°30.0'N	127°30.0'E	2012/7/21	5	< 0.98	$1.9~\pm~0.41$
ECS13	31°45.0'N	128°00.0'E	2012/10/13	5	< 0.89	$2.3~\pm~0.43$

**Table. 9.** Activities of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in seawater samples collected from the East China Sea. The analytical error is based on  $1\sigma$  of the counting statistics. When the radioactivity was not detected, the detection limit  $(3\sigma)$  was presented. Activities were decay corrected on sampling date.

**Table. 10.** Activities of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in seawater samples collected from the Bering Sea. The analytical error is based on  $1\sigma$  of the counting statistics. When the radioactivity was not detected, the detection limit  $(3\sigma)$  was presented. Activities were decay corrected on sampling date.

Station	Latituda	Latitude Longitude	Sampling	Depth	Concentration(mBq/kg)	
Station	Latitude	Longitude	date	(m)	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs
BS01	56°00.0'N	175°00.0'E	2012/7/25	5	< 1.0	$2.0~\pm~0.38$
BS02	54°00.0'N	175°00.0'E	2012/7/26	5	< 0.88	$2.1~\pm~0.38$
BS03	53°30.0'N	180°00.0'	2012/7/28	5	< 0.91	$2.0~\pm~0.42$
BS04	55°30.0'N	180°00.0'	2012/7/29	5	< 0.91	$1.8~\pm~0.37$
BS05	57°30.0'N	180°00.0'	2012/7/30	5	< 1.0	$1.9~\pm~0.43$
BS06	57°00.0'N	$175^{\circ}00.0'W$	2012/8/1	5	< 0.9	$2.3~\pm~0.42$
BS07	55°00.0'N	$175^{\circ}00.0'W$	2012/8/2	5	< 1.0	$2.0~\pm~0.41$
BS08	53°00.0'N	$175^{\circ}00.0'W$	2012/8/3	5	< 1.0	$1.8 \pm 0.42$

とされ、これらは FNPP 事故に伴う大気経由であった と考察している。一方で、日本海に面した福井県、西日 本の島根県、鹿児島県および愛媛県では FNPP 由来と 考えられる<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度の上昇は確認されな かったと述べている。さらに、FNPP から大気経由によ る<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs の海面沈着量を推定したモデルの 結果からも、その沈着量は西部北太平洋に圧倒的であ り、他の海域における沈着量は極めて微量であったこと が推定されている(Kobayashi *et al.*, 2013 の Fig. 5参 照)。以上のことより日本海、西日本の海域、東シナ海 およびベーリング海において、大気経由によると考えら れる FNPP 由来の  $^{134}$ Cs および  $^{137}$ Cs の降下は極微量で、 かつ局所的であったと考えられる。

#### 5. 結 論

2011 年 4 月から 2012 年 11 月の期間に福島県沖西部 北太平洋を中心に、日本海、瀬戸内海、東シナ海および ベーリング海における海水中の<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度 を測定した。西部北太平洋においては 2011 年 5 月以降, FNPP 事故前に比べ2桁以上の<sup>137</sup>Cs 濃度の上昇および <sup>134</sup>Csの検出が観測されたが、時間の経過とともにその 濃度は低下傾向を示した。また、いわき市沖に2011年 5月末まで存在した暖水渦により、FNPP 事故直後の極 めて<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度の高い海水の南下は制限さ れていたこと、水塊構造の複雑さに伴う<sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Csの複雑な鉛直分布構造などが示唆された。一方、 日本海、東シナ海、瀬戸内海およびベーリング海におい て<sup>134</sup>Cs は検出されず、顕著な<sup>137</sup>Cs 濃度の上昇も確認 されなかった。本研究で適用した測定手法ではこれらの 海域における FNPP 事故に伴う<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs 濃度 の上昇は確認されなかった。本研究を含め, FNPP 事故 以降に公表された西部北太平洋における<sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Csの時空間変動は、FNPP事故直後における直接漏 洩および大気経由の海面沈着による影響が支配的であっ たといえよう。FNPP 事故から3年あまりが経過した今 後,海洋における<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Csの時空間変動を解 明するためには、モニタリング調査の継続に加え、陸域 からの河川を経由した負荷や地下水を通じた負荷など, 直接漏洩に比べ低濃度ではあるが継続的な海洋への負荷 量を把握することが重要になってくると考えられる。そ のため、FNPP 事故が我が国周辺の海域へ及ぼした影響 を追跡する、あるいは今後の海洋における<sup>134</sup>Cs および <sup>137</sup>Cs 濃度レベルを把握するためには、河川およびその 流域からの<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs の移動量など陸域環境に おける<sup>134</sup>Cs および<sup>137</sup>Cs の挙動も視野に入れることが 重要である。

#### 謝 辞

本研究は水産庁委託事業「放射性物質影響解明事業」, ならびに復興交付金事業「海洋生態系の放射性物質挙動 調査」の助成を受けて実施された。(独)水産総合研究 センター調査船(北光丸,若鷹丸,蒼鷹丸,たか丸,み ずほ丸,しらふじ丸,洋光丸),水産庁調査船照洋丸お よび北海道教育庁実習船北鳳丸の船長はじめ乗組員なら びに乗船調査員には東日本大震災ならびに東京電力福島 第一原子力発電所事故直後からの調査であったにも関わ らず試料の採取にご理解,ご協力を頂いた。ここに深く 御礼を申し上げる。

#### References

- 安倍大介,帰山秀樹,重信裕弥,藤本賢,小埜恒夫,瀬藤聡,渡邊朝生, (2012):福島第一原子力発電所事故に伴う海洋底および海底境界層の 放射能分布,第23回海洋工学シンポジウム論文集,CD-ROM(OES23 -059).
- Aoyama, M., Hirose, K., Miyao, T. and Igarashi, Y. (2000) : Low level <sup>137</sup>Cs measurements in deep seawater samples. *Appl. Radiat. Isotopes*, 53, 159 -162.
- Aoyama, M. and Hirose, K. (2008): Radiometric determination of anthropogenic radionuclides in seawater. In: Povinec, P. P. (ed). Analysis of Environmental Radionuclides, Radioactivity in the Environment, Vol. 2. Elsevier, Amsterdam, London. 137–162.
- Aoyama, M., Tsumune, D., Uematsu, M., Kondo, F. and Hamajima, Y. (2012): Temporal variation of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs activities in surface water at stations along the coastline near the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident site, Japan. *Geochem. J.*, 46, 321–325.
- Aoyama, M., Tsumune, D. and Hamajima, Y. (2013a): Distribution of <sup>137</sup>Cs and <sup>134</sup>Cs in the North Pacific Ocean: impacts of the TEPCO Fukushima-Daiichi NPP accident. J. Radioanal. Nucl. Chem., 296, 535-539.
- Aoyama, M., Uematsu, M., Tsumune, D. and Hamajima, Y. (2013b): Surface pathway of radioactive plume of TEPCO Fukushima NPP1 released <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs. *Biogeosciences*, 10, 3067–3078.
- Blair, T., Ohnishi, S., Ura, T., Odano, N., Sasaki, S., Fujita, T., Watanabe, T., Nakata, K., Ono, T. and Ambe, D. (2013): Distribution of local <sup>137</sup>Cs anomalies on the seafloor near the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant. *Mar. Pollut. Bull.*, **74**, 344-350.
- Buesseler, K. O. (2012): Fishing for answers off Fukushima. Science, 338, 480–482.
- Buesseler, K. O., Jayne, S. R., Fisher, N. S., Rypina, I. I., Baumann, H., Baumann, Z., Breier, C. F., Douglass, E. M., George, J., Macdonald, A. M., Miyamoto, H., Nishikawa, J., Pike, S. M. and Yoshida, S. (2012): Fukushima-derived radionuclides in the ocean and biota off Japan. *P. Natl. Acad. Sci. USA*, **109**, 5984-5988.
- 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.
- Inoue, M., Kofuji, H., Hamajima, Y., Nagao, S., Yoshida, K. and Yamamoto, M. (2012a): <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs activities in coastal seawater along the Northern Sanriku and Tsugaru Strait, northeastern Japan, after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *J. Environ. Radioact.*, **111**, 116–119.
- Inoue, M., Kofuji, H., Nagao, S., Yamamoto, M., Hamajima, Y., Yoshida, K., Fujimoto, K., Takada, T. and Isoda, Y. (2012b): 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.
- Kaeriyama, H., Ambe, D., Shimizu, Y., Fujimoto, K., Ono, T., Yonezaki, S., Kato, Y., Matsunaga, H., Minami, H., Nakatsuka, S. and Watanabe, T. (2013): Direct observation of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in surface seawater in the western and central North Pacific after the Fukushima Dai-ichi nuclear power plant accident. *Biogeosciences*, **10**, 4287–4295.

- Kamenik, J., Dulaiova, H., Buesseler, K. O., Pike, S. M. and Št'astná, K. (2013): Cesium-134 and 137 activities in the central North Pacific Ocean after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. *Biogeosciences*, 10, 6045-6052.
- 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 <sup>131</sup>I and <sup>137</sup>Cs discharged into the ocean because of the Fukushima daiichi nuclear power plant disaster. *J. Nucl. Sci. Technol.*, 45, 1349–1356.
- Kim, C. K., Byun, J. I., Chae, J. S. Choi, H. Y., Choi, S. W., Kim, D. J., Kim, Y. J., Lee, D. M. Park, W. J., Yim, A. J., Yum, J. Y. (2012): Radiological impact in Korea following the Fukushima nuclear accident. *J. Environ. Radioact.*, **111**, 70–82.
- Kobayashi, T., Nagai, H., Chino, M. and Kawamura, H. (2013): Source term estimation of atmospheric release due to the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident by atmospheric and oceanic dispersion simulations, J. Nucl. Sci. Technol., 50, 255-264.
- Kofuji, H. and Inoue, M. (2013): Temporal variations in <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs concentrations in seawater along the Shimokita Peninsula and the northern Sanriku coast in northeastern Japan, one year after the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant accident. J. Environ. Radioact., 124, 239—245.
- 小森昌史,小豆川勝見,野川憲夫,松尾基之 (2013):<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs 放射能比 を指標とした福島第一原子力発電所事故に由来する放射性核種の放出 原子炉別汚染評価.分析化学, **62**,475-483.
- Kusakabe, M., Oikawa, S., Takata, H. and Misonoo, J. (2013): Spatiotemporal distributions of Fukushima-derived radionuclides in nearby marine surface sediments. *Biogeosciences*, 10, 5019–5030.
- Masumoto, Y., Miyazawa, Y., Tsumune, D., Tsubono, T., Kobayashi, T., Kawamura, H., Estournel, C., Marsaleix, P., Lanerolle, L., Mehra, A. and Garraffo, Z. D. (2012): Oceanic dispersion simulations of <sup>137</sup>Cs released from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. *Elements*, 8, 207–212.
- 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<sup>90</sup>Sr及び<sup>137</sup>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.
- Oikawa, S., Takata, H., Watabe, T., Misonoo, J. and Kusakabe, M. (2013): Distribution of the Fukushima-derived radionuclides in seawater in the Pacific off the coast of Miyagi, Fukushima, and Ibarki Prefectures, Japan. *Biogeosciences*, 10, 5031-5047.
- Otosaka, 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. *Environ. Monit. Assess.*, 185, 5419-5433.
- Povinec, P. P., Hirose, K. and Aoyama, M. (2013a): Fukushima Accident; Radioactivity impact on the environment, Elsevier, Amsterdam, 382 pp.
- Povinec, P. P., Aoyama, M., Biddulph, D., Breier, R., Busseler, K., Chang, C. C., Golser, R., Hou, X. L. Jes'kovsky, M., Jull, A. J. T., Kaizer, J., Naka-no, M., Nies, H., Palcsu, L., Papp, L., Pham, M. K. Steier, P. and Zhang, L. Y. (2013b): Cesium, iodine and tritium in NW Pacific waters a comparison of the Fukushima impact with global fallout. *Biogeosciences*, 10, 5481–5496.
- Rypina, I. I., Jayne, S. R., Yoshida, S., Macdonald, A. M., Douglass, E. and

Buesseler, K. (2013): Short-term dispersal of Fukushima-derived radionuclides off Japan: modeling efforts and model-data intercomparison. *Biogeosciences*, **10**, 4973-4990.

- Wada, T., Nemoto, Y., Shimamura, S., Fujita, T., Mizuno, T., Sohtome, T., Kamiyama, K., Morita, T. and Igarashi, S. (2013): Effects of the nuclear disaster on marine products in Fukushima. *J. Environ. Radioact.*, 124, 246–254.
- Wu, J. W., Zhou, K. B. and Dai, M. H. (2012): Impacts of the Fukushima nuclear accident on the China Seas: Evaluation based on anthropogenic radionuclide <sup>137</sup>Cs. *Chin. Sci. Bull.*, doi: 10.1007/s11434-012-5426-2.
- Yoshida, N. and Kanda, J. (2012): Tracking the Fukushima radionuclides. Science, 336, 1115–1116.

## <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in seawater around Japan after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident

## Hideki Kaeriyama<sup>1\*\*</sup>, Daisuke Ambe<sup>1</sup>, Yuya Shigenobu<sup>1</sup>, Ken Fujimoto<sup>1</sup>, Tsuneo Ono<sup>1</sup>, Kaoru Nakata<sup>2</sup>, Takami Morita<sup>2</sup> and Tomowo Watanabe<sup>1</sup>

#### Abstract

The horizontal and vertical distributions of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs in the surface seawater around Japan and in that of the western North Pacific, respectively, were examined. The seawater samples were collected between April 2011 and November 2012, and the concentrations of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs varied from < 0.9 to 1600 mBq kg<sup>-1</sup> and from <1.6 to 1800 mBq kg<sup>-1</sup>, respectively. <sup>134</sup>Cs was detected from only the samples obtained in the western North Pacific. In the other areas, particularly the Japan Sea, East China Sea, Seto Inland Sea, and Bering Sea, it was below the detection limits of 0.9–4.5 mBq kg<sup>-1</sup>. In the western North Pacific, the highest concentration of <sup>137</sup>Cs was observed in May 2011 and showed an exponential decrease with time. The average value of decay-corrected activity ratios <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs on March 11, 2011, was 0.93 ± 0.13, which is the signature of <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs originating from Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident. The horizontal and vertical distribution patterns of <sup>137</sup>Cs off the coast of Fukushima showed heterogenic and complex patterns and may be affected by the interaction of cold and warm water masses such as the Oyashio and Kuroshio currents and mesoscale eddies.

Key words : Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident, <sup>134</sup>Cs and <sup>137</sup>Cs, <sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs activity ratio, Western North Pacific

> (Corresponding author's e-mail address: kaeriyama@affrc.go.jp) (Received 3 February 2014; accepted 10 March 2014) (Copyright by the Oceanographic Society of Japan, 2014)

Research Center for Fisheries Oceanography and Marine Ecosystem, National Research Institute of Fisheries Sciences, Fisheries Research Agency, 2–12–4, Fukuura, Kanazawa, Yokohama, Kanagawa 236–8648, Japan

<sup>2</sup> Fisheries Research Agency, 2–3–3, Minato Mirai, Nishi-ku, Yokohama, Kanagawa 220–6115, Japan

<sup>\*\*</sup> Corresponding author : Hideki Kaeriyama TEL: +81457887654 FAX: +81457885001 e-mail: kaeriyama@affrc.go.jp

<sup>146</sup>