

科学研究費助成事業 研究成果報告書

令和元年6月15日現在

機関番号：12614

研究種目：基盤研究(B) (一般)

研究期間：2016～2018

課題番号：16H04960

研究課題名(和文) 底生微細藻類への海底質の放射性セシウムの移行過程

研究課題名(英文) Elucidation of the migration mechanism of radiocesium from sediment to benthic microalgae

研究代表者

荒川 久幸 (Arakawa, Hisayuki)

東京海洋大学・学術研究院・教授

研究者番号：40242325

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,200,000円

研究成果の概要(和文)：底質から微細藻類を経由して生態系へ移行する放射性Csについて定量的に検討した。第1に、底生微細藻類の放射性セシウム濃度は、海水、間隙水、底質と比べて非常に高かった。微細藻類の放射性Csの主な移行経路として、海水や間隙水は考えられなかった。微細藻類は底質から積極的に取り込んでいるものと考えられた。第2に微細藻類の種類が季節的に変化しても底生微細藻類の放射性Cs濃度が安定して高いことから、微細藻類の種類の違いによる取り込みの相違は小さいと考えられた。また松川浦において放射性セシウムの面的な分布の把握に成功した。第3には小型の甲殻類について放射性Csの取り込み量推定に成功した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

福島第一原発事故で汚染された環境や生物の中で現在もっとも放射性Cs濃度の高いものは、底質である。その濃度の低下に粒子に付着する微細藻類がどのくらい貢献するのか、また微細藻類へ移行した放射性Csは生態系へどのような影響を及ぼすのか検討した。底生微細藻類の放射性Cs濃度は他のものと比べて高く、底質からの移行があると考えられた。一方、海域における絶対量が小さいため、生態系への移行は限定的だと考えられた。これらの知見は、今後の福島沖の放射性Cs汚染の推移を理解するうえで重要である。

研究成果の概要(英文)：It was examined quantitatively the radioactive Cs transferred from seabed sediments to ecosystems via benthic microalgae. First, the radioactive Cs concentration of benthic microalgae was very high compared to seawater, pore water and sediments. As the main transfer pathway of radioactive Cs of benthic microalgae, it was considered not from seawater and pore water but from sediment. Second, even if the species of microalgae changes seasonally, the concentration of radioactive Cs in benthic microalgae is stable and high, so the difference in uptake due to the species of microalgae was considered small. It was also succeeded in understanding the surface distribution of radioactive cesium in Matsukawaura. Third, we succeeded in estimating the amount of radioactive Cs uptake for small crustaceans.

研究分野：沿岸環境学

キーワード：放射性セシウム 微細藻類 移行 底質 生態系

様式 C-19、F-19-1、Z-19、CK-19 (共通)

1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所から多量の放射性物質が放出され、沿岸域の海水、底質および多種の生物を汚染した。(e.g. Tsumune et al., 2012; Yasunari et al., 2011; Buesseler, 2012; Wada et al., 2013) その結果、未だに沿岸での漁業は、試験操業の状態が続いている。時間経過とともに環境中や生物中の放射性 Cs 濃度は大きく低下した。しかしながら、今後の海域環境保全の観点や水産物の安全性の確保のために、海洋生物のモニタリングは不可欠である。いままでの調査結果から、比較的高い濃度を示しているものは、いくつかの底生の魚類や無脊椎動物のほかに、底質およびそれに付着する微細藻類である (e.g. Arakawa et al. 2015)。2012 年における底質の放射性 Cs 濃度は数千 Bq/kg-DW (Otosaka et al., 2013) を示していたが、微細な粒子の沖への移動・拡散とともに濃度の低下が示されている。一方、沿岸の比較的大きな粒径の粒子は濃度が高いことから (Matsumoto et al., 2018)、今後の濃度変化では粒子の移動・拡散による低下ではなく、物理的崩壊によって低減されると推察される。

砂浜粒子に付着する底生微細藻類の放射性 Cs 濃度は約 400 Bq/kg-WW であり、非常に高い。海水の濃度が 0.01 Bq/L 以下に低下していることを考えると、底生微細藻類への移行係数が著しく高い値を示しており、海水以外からの移行が考えられる。すなわち、微細藻類への移行は底質の間隙水からのものなのか、粒子に付着した Cs の移行によるものなのかのどちらかと考えられる。放射性 ^{137}Cs は半減期が約 30 年と長いことから、今後の沿岸砂浜の環境を考えるうえで、底生微細藻類がどこから Cs を取り込むのかを明らかにすることは非常に重要である。また福島沿岸生物の炭素・窒素 (CN) 安定同位体比の結果によると (未公開)、魚類や無脊椎動物の多くは微細藻類を食物起源にしており、高濃度の放射性 Cs の微細藻類は食物網全体への移行の影響が大きいといえる。

2. 研究の目的

本研究では、第 1 に底生微細藻類への Cs の主要な移行経路を明らかにすることを目的として、間隙水がそれとも底質の粒子 (もしくは岩礁) の濃度分布を調べ、その移行について検討した。第 2 に微細藻類への移行量を検討し底質の環境学的半減期への影響を検討した。第 3 に微細藻類起源の放射性 Cs の、沿岸生態系の底生生物への拡散過程およびその生物における濃度の今後の推移を検討した。

3. 研究の方法

3-1. 試料採取

2016 年 12 月から 2017 年 12 月まで 3 か月に一度、福島県の沿岸海域の小名浜 (緯度 36.9378° N、経度 140.9137° E、水深約 3 m) および松川浦 (緯度 37.8044° N、経度 140.9742° E、水深約 1 m) の 2 地点において (Fig. 1) 底層海水、間隙水、底質、底生微細藻類の採取を行った。底層海水はバンドーン採水器を用いて、20 L 採取した。間隙水と底質はスクーバ潜水によって一面を切り取ったコンテナ (28×40×14 cm) で海底の表層約 3 cm を崩さないように切り取った後、船上まで引き上げて上澄み海水を除去して、トスロン容器に約 60 L 保管した。底生微細藻類は海底に設置した 2 器のポリエチレン製のネット (1×1 m、目合 1.5 cm) に付着させて採取した。最初にネットを設置したのは 2016 年 9 月で、以降 3 か月ごとにネットを交換した。回収したネットは船上で現場の海水とともに遮光容器に保管した。

3-2. 試料の処理および放射性セシウム濃度測定

採取した各試料は放射性セシウム濃度を測定するために研究室で処理した。海水は孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターでろ過して懸濁物を取り除いた後に、放射性セシウムをリンモリブデン酸アンモニウムに吸着させ、テフロン容器に充填した (Aoyama and Hirose, 2008)。間隙水は底質を定性ろ紙 (No. 5C) でろ過して、分離した。分離した間隙水は海水の場合と同様に処理した。間隙水を取り除いた底質は 105 °C で 5 時間乾燥させた後、U-8 容器に充填した。また、乾燥させた底質のうち、50 g を 10%過酸化水素 300 mL を添加して 6 時間攪拌し、静置した後に有機物を除去した。有機物を除去した底質は 105 °C で 5 時間乾燥させた後、U-8 容器に充填した。底生微細藻類については、ネットをろ過海水中で細胞を破壊しないように軟性のスポンジでかきとり、ろ過海水ごと集めて一晩静置した後、上澄みろ過海水を除去した。なお、使用したろ過海水は孔径 0.45 μm のメンブレンフィルターで懸濁物を取り除いた各採取地の底層海水である。回収した底生微細藻類は 60 °C で 72 時間乾燥させた後、U-8 容器に充填した (これを藻類ネット試料とする)。

各試料は Ge 半導体検出器で放射性セシウム濃度を測定した。測定時間は海水および間隙水で 80000 秒に、底質および藻類ネット試料で 7200 秒に設定した。 ^{134}Cs および ^{137}Cs の検出限界濃度はそれぞれ、底層海水で $7.2\text{--}13.0 \times 10^{-4}$ Bq/L、 $4.1\text{--}4.9 \times 10^{-4}$ Bq/L、間隙水で $8.5\text{--}20.0 \times 10^{-4}$ Bq/L、 $4.4\text{--}9.3 \times 10^{-4}$ Bq/L 底質で $1.7\text{--}6.7$ Bq/kg-DW、 $1.6\text{--}5.1$ Bq/kg-DW、藻類ネット試料で $1.4\text{--}12.3$ Bq/kg-DW、 $1.2\text{--}11.1$ Bq/kg-DW であった。放射性セシウム濃度測定後の藻類ネット試料は、2 g 程度をろつぽに入れ、550 °C で 5 時間強熱し、式(1)から藻類ネット試料中の有機物量を求めた。

$$L = \frac{W_a - W_b}{W_a - W_c} \times 100 \quad (1)$$

ここで、 L ：有機物量（%）、 W_a ：強熱前の試料の総重量（g）、 W_b ：強熱後の試料の総重量、 W_c ：ろつばの重量（g）である。

3-3．底生微細藻類の放射性セシウム濃度の算出

藻類ネット試料には、底生微細藻類のみでなく、微量ながら海水および底質が含まれる。底生微細藻類と海水および底質を完全に分離するのは困難であるため、本研究では底生微細藻類のみの放射性セシウム濃度を計算によって求めた。

$$C_{\text{algae}} = \frac{C_{\text{algaenet}} \times W_{\text{algaenet}} - C_{\text{inorganic}} \times W_{\text{inorganic}} - C_{\text{water}} \times V_{\text{water}}}{W_{\text{algaenet}} \times L} \quad (2)$$

ここで、 C_{algae} ：底生微細藻類の放射性セシウム濃度（Bq/kg-DW）、 C_{algaenet} ：藻類ネット試料の放射性セシウム濃度（Bq/kg-DW）、 W_{algaenet} ：藻類ネット試料の測定重量（kg）、 $C_{\text{inorganic}}$ ：底質無機物の放射性セシウム濃度（Bq/kg-DW）、 $W_{\text{inorganic}}$ ：藻類ネット試料中の無機物の測定重量（kg）、 C_{water} ：底層海水の放射性セシウム濃度（Bq/L）、 V_{water} ：藻類ネット試料乾燥前のろ過海水の体積（L）である。

また、藻類ネット試料中の無機物の測定重量 $W_{\text{inorganic}}$ は式(3)によって与えられる。

$$W_{\text{inorganic}} = W_{\text{algaenet}} \times \left(1 - \frac{L}{100}\right) \quad (3)$$

3-4．底生微細藻類の出現種

試料は、次の6つの標本(底砂・底土)である。小名浜において、2016年12月13日、2017年6月13日、および9月12日、松川浦において、2016年12月12日、2017年6月12日および9月11日に採取した。

珪藻細胞の観察は、定法(鈴木・南雲 2015)に従って、以下の方法で行った。(1) 生細胞の観察：採集された試料をそのまま光学顕微鏡で検鏡し、群体の有無、葉緑体の形や配置等を観察した。(2) 処理細胞の観察：珪藻細胞を処理し、光学顕微鏡および走査電子顕微鏡で検鏡し、被殻の外形や微細構造を観察した。(3) 種組成とその出現頻度の算出：作製した永久プレパラートを用いて光学顕微鏡で300殻以上同定・計数して算出した。ここで、被殻とは珪藻細胞から原形質部分を取り除いた珪酸質の殻(細胞壁)をいう。

3-5．海底(砂浜)の放射性Cs濃度の分布を面的に把握することを目的として、海底面ガンマ線測定器(現有)を使用して、放射性Cs濃度の分布を調査した。

観測は2016年9月28日と11月21日に、福島県相馬市松川浦において行った。観測線は湾内の湾筋に沿って東西方向に1本(Line 1)、南北方向に3本(北からLine 2, 3, および4)の計4本設定した。観測には、S-RAMを使用した。S-RAMは小型船舶によって約1Ktで各観測線に沿って海底を曳航され、海底の ^{137}Cs カウント数を調べた。

3-6．微細藻類に移行した放射性Csの生態系への移行

四倉沖での各種の生物採取(キシエビ、ウリタエビジャコ)を行い、それらの生物および微細藻類の放射性Cs濃度から各種生物への移行とその影響を検討した。また両種について、 ^{137}Cs 不検出の人工海水および餌を使用して飼育実験を行った。飼育開始40日から123日まで約20日毎に十数匹ずつ、乾燥後に粉碎して、 ^{137}Cs 濃度を測定した。現場と室内飼育のキシエビの ^{137}Cs 濃度測定値に、それぞれ指数関数モデルを当てはめ、崩壊定数を推定し、生態学的半減期および生物学的半減期を求めた。また、得られた各崩壊定数を利用してキシエビの餌の ^{137}Cs 濃度を算出した。

4．研究成果

4-1．底層海水、間隙水、底質、底生微細藻類の ^{137}Cs 濃度の経時変化

^{137}Cs は底層海水、間隙水、底質および底生微細藻類の全ての試料から検出された。松川浦においては2017年3月と同年12月で、小名浜においては全期間で底層海水の ^{134}Cs を検出できなかった。両放射性セシウムを検出できた試料における $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 比を福島第一原子力発電所事故日に崩壊補正したところ、平均値は0.95(範囲0.66–1.04)であった。福島第一原子力発電所事故直後の $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ 放出比は0.99であるから(Buesseler et al., 2011)、本研究で検出した放射性セシウムは福島第一原子力発電所由来であると考えられる。

底生微細藻類の放射性セシウム濃度は底層海水または底質の放射性セシウム濃度が検出限界未満だと計算できないので、ここからは全試料から検出できた¹³⁷Csのみを取り扱う。底層海水、間隙水、底質および底生微細藻類の¹³⁷Cs濃度の平均値は小名浜でそれぞれ

$5.8 \times 10^{-3} \pm 1.7 \times 10^{-3}$ Bq/L、 $6.0 \times 10^{-2} \pm 3.5 \times 10^{-2}$ Bq/L、 36.5 ± 7.1 Bq/kg-DW、 799.8 ± 510.9 Bq/kg-DWであり、松川浦でそれぞれ $16.0 \times 10^{-3} \pm 9.0 \times 10^{-3}$ Bq/L、 $11.3 \times 10^{-2} \pm 6.3 \times 10^{-2}$ Bq/L、 100.9 ± 25.4 Bq/kg-DW、 2664 ± 453.3 Bq/kg-DWであった。底生微細藻類の¹³⁷Cs濃度における変動が特に大きく、有意な減少傾向を示したのは、小名浜の底質のみであった ($P < 0.05$)。しかしながら、同採取月においては、底層海水、間隙水、底質および底生微細藻類のそれぞれの¹³⁷Cs濃度は小名浜よりも松川浦で有意に高かった ($P < 0.05$)。

小名浜と松川浦のそれぞれにおいて、全期間で底層海水、間隙水、底質、底生微細藻類の順に¹³⁷Cs濃度が高かった。¹³⁷Cs濃度に関して、小名浜と松川浦の順に平均で、間隙水は底層海水より11.5 (範囲6.7–28.6) 倍、7.6 (範囲5.0–10.5) 倍高く、底質は間隙水より737.4 (範囲328.5–1099.1) 倍、1024.5 (範囲619.0–1368.2) 倍高かった。

底層海水、間隙水、底質に対する底生微細藻類の¹³⁷Cs濃度の見かけの濃縮係数の平均値はそれぞれ、小名浜で 1.4×10^5 (範囲0.4– 2.7×10^5)、 1.8×10^4 (範囲0.3– 3.6×10^4)、22.5 (範囲6.7–35.8)であり、松川浦で 2.1×10^5 (範囲1.2– 3.3×10^5)、 2.7×10^4 (範囲1.5– 3.6×10^4)、27.3 (範囲21.3–38.4)であった。

4-2. 底生微細藻類の¹³⁷Cs量とChl. a量の関係

ネットに付着した藻類の単位面積当たりのChl. a量に経時的な変化が見られた。全期間の平均値は、小名浜で 256.4 ± 115.8 $\mu\text{g}/\text{m}^2$ であり、松川浦で 300.0 ± 65.1 $\mu\text{g}/\text{m}^2$ であった。平均値は松川浦のほうが高かったが、変動は小名浜のほうが大きかった。しかしながら、両地点での単位面積当たりのChl. a量に有意な差は認められなかった ($P = 0.19$)。単位面積当たりのネットに付着した藻類の¹³⁷Cs量とChl. a量の関係を検定したところ、両者に有意な相関は認められなかった ($P = 0.13$)。このことは、底生微細藻類の現存量の増加が必ずしも¹³⁷Cs量の増大につながるわけではないことを示唆する。

各試料から以下のような出現を確認することができた。

小名浜において、2016年12月13日に10属9種、3未同定群、2017年6月13日に13属11種、4未同定群、2017年9月12日に14属12種、4未同定群であった。

松川浦において、2016年12月12日：6属3種、4未同定群が確認されたが、2017年6月12日および2017年9月11日に珪藻は確認されなかった。

小名浜では*Parlibellus rhombiformis*が2016年12月13日の試料で優占、*Amphora marina*が2017年6月13日と9月12日の試料で優占、*Paralia sulcata*が2017年6月13日の試料で優占した。一方、松川浦では、*Berkeleya rutilans*と*Navicula gregaria*が2016年12月12日の試料で優占したが、2017年6月12日と2017年9月11日の試料からは珪藻細胞が観察されなかった。両試料に共通した種は、出現頻度は低いが、*Cylindrotheca closterium*のみであった。これらの結果を以下のように考察した。

小名浜の底砂の珪藻相には季節的な変化が確認された。冬季には*Parlibellus rhombiformis*が繁茂し、その後衰退、春季～夏季には*Amphora marina*が増殖・繁茂した。*Parlibellus*属種が冬季(特に11～12月)に急増、海底を埋め尽くし、短期間に衰退する現象は、他の海域の底砂においても確認されている(Suzuki et al. 2016)。衰退する要因の1つとして、海産節足動物のワレカラ類の摂食が考えられる。

小名浜と松川浦では、その出現種が異なっていた。特に小名浜で確認された多くが、砂上生育性(epipsammic)として知られている種類であった。この差異は両地の底砂・底土の粒子構成が異なっていたことが要因の1つと考えられる。

各観測点、各調査時期の優占した微細藻類について培養を試みたが、放射性セシウム濃度を測れるほどの量には成長することができなかった。このため、各種における取り込み量の把握はできなかった。

4-3. 松川浦の放射性Csの水平分布

松川浦の底質の¹³⁷Cs濃度の平均値は、Line 1で220 (± 59) Bq/kg、Line 2で199 (± 128) Bq/kg、Line 3で319 (± 41) Bq/kg、Line 4で353 (± 144) Bq/kgとなった。西側奥部のLine 1は150 Bq/kgから250 Bq/kgの範囲でほぼ一様に分布していた。松川浦の入り口に位置するLine 2の¹³⁷Cs濃度は、約100 Bq/kg以下と低い濃度で推移しており、Line 1よりも¹³⁷Cs濃度はわずかに低くなった。また、東側中央のLine 3は300 Bq/kgから430 Bq/kgであり、南側ほど緩やかに濃度が上昇した。東側奥部のLine 4は、高濃度の¹³⁷Csがほぼ全域で検出され(400 Bq/kgから640 Bq/kg)、Line 3よりも濃度が高い部分が多く見られた。すなわち、松川浦の底質の¹³⁷Cs濃度は浦の入り口に比べて奥部が高くなる傾向を示した。また、Line 2とLine 4では局所的な濃度の上昇が確認された。

4-4. 低次生物の生態学的半減期

キシエビの¹³⁷Cs濃度はいわき市四倉沖で27.5 Bq/kg-WWから2.1 Bq/kg-WWであり、江名で9.1 Bq/kg-WWから検出限界未満であり、両海域ともに経時的に減少していた($p < 0.05$)。

このとき、生態学的半減期はそれぞれ 105.2 日と 75.1 日であった。また、室内飼育したキシエビより推定した生物学的半減期は 28.3 日であった。このことは、現場に生息するキシエビは外部より ^{137}Cs を取り込んでいることを示唆している。

コンパートメントモデルから算出したキシエビの餌の ^{137}Cs 濃度は、各採取日のキシエビの ^{137}Cs 濃度よりも 3 倍から 6 倍程度高濃度であった。キシエビが摂取すると考えられる底質中に含まれる有機物と多毛類のそれぞれの ^{137}Cs 濃度と比較したところ、底質有機物の ^{137}Cs 濃度はキシエビの餌に近い値を示した。さらに、いわき市四倉沖において両者は同様の減少傾向が見られた。すなわち、キシエビの ^{137}Cs 濃度は、底質有機物の影響を強く受けることが推察された。

4-5. 結論

本研究では、第 1 に底生微細藻類への Cs の主要な移行経路を明らかにすることを目的として、間隙水がそれとも底質の粒子（もしくは岩礁）の濃度分布を調べ、その移行について検討した。第 2 に微細藻類への移行量から、砂浜の放射性 Cs の環境学的半減期について、また第 3 に微細藻類起源の放射性 Cs の、沿岸生態系の底生生物への拡散過程およびその生物における濃度の今後の推移を考察した。

第 1 および第 3 は概ね計画通り遂行し目的を達成した。第 2 では、微細藻類の培養が順調に進まず、種類ごとの取り込みの把握ができなかった。しかしながら、第 1 の結果をもとに、微細藻類がもつ砂浜の濃度低下への影響を把握した。

第 1 に底生微細藻類の放射性セシウム濃度は、海水、間隙水、底質の濃度と比べて非常に高かった。底質の濃度が比較的高いことから、底質から積極的に取り込んでいるものと考えられた。

第 2 に微細藻類の種類別の取り込み量を把握することを目的としたが、目的の珪藻が十分な量に繁茂しなかった。しかしながら、種類が季節的に変化しても底生微細藻類の濃度が高いことから、放射性セシウム濃度への種類の違いの影響は小さいと考えられた。さらに松川浦において放射性セシウムの面的な分布把握に成功した。

第 3 には小型の甲殻類について放射性 Cs の取り込み量推定に成功した。今後の底質の放射性セシウムの濃度は、主に物理的な崩壊によって低下すると考えられた。また生態系への取り込みは限定的であると考えられた。

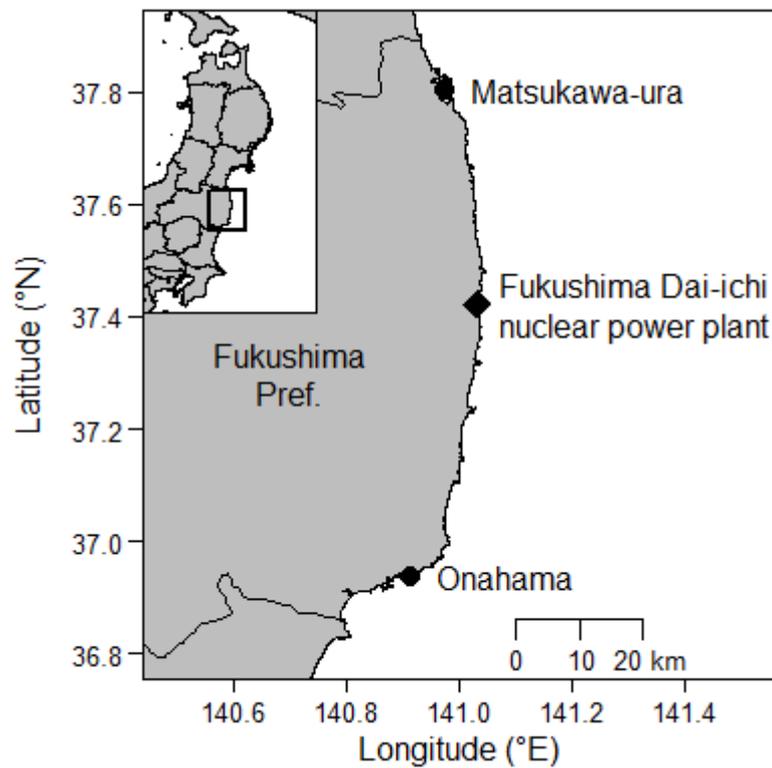


Fig. 1 調査地点

引用文献

- Aoyama, M., Hirose, K., 2008. Radiometric determination of anthropogenic radionuclides in seawater. *Radioactivity in the environment*, 11, 137–162.
- Buesseler, K., Aoyama, M., Fukasawa, M., 2011. Impacts of the Fukushima nuclear power plants on marine radioactivity. *Environmental science and technology*, 45, 9931–9935.
- Suzuki, H., Miyauchi, M., Akita, S., Nagumo, T. & Tanaka, J. (2016) A new marine tube-dwelling diatom *Parlibellus latirostris* (Bacillariophyceae) from Japan, *The Journal of Japanese Botany* **91** (Supplement): 355-363.
- 鈴木秀和・南雲保 (2015) 珪藻類の採集と光学顕微鏡観察. 植物分類学研究マニュアル 18. 分類 (日本植物分類学会誌) 15: 75-81.

5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 1)

- 1) A. Matsumoto, H. Myose, H. Arakawa, K. Higuchi, N. Hirakawa, Y. Morioka, T. Mizuno, (2018) The effects of sediment transport on temporal variation in radiocesium concentrations in very shallow water off the southern coast of Fukushima, Japan. *J. Environ. Radioactiv.*, 184-185, 6-13.

〔学会発表〕(計 2)

発表者、発表表題、学会名、発表年

- 1) 樋口謙, 荒川久幸, 成田美穂, 山本涼花, 松本陽, 福島県沿岸のキシエビ *Metapenaeopsis dalei* における ^{137}Cs 濃度の減少過程, 日仏海洋学会, 2017.
- 2) K.Higuchi, H.Arakawa, H.Suzuki, M.Satoh, T.Fujita, K.Narita, A.Matsumoto, Elucidation of the migration mechanism of radiocesium from sediment to benthic microalgae, 17th SFJO symposium, 2017.

〔図書〕(計 0)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0)

〔その他〕

ホームページ等

6 . 研究組織

(1)研究分担者

研究分担者氏名：鈴木秀和

ローマ字氏名：Suzuki Hidekazu

所属研究機関名：東京海洋大学

部局名：学術研究院

職名：教授

研究者番号 (8桁)：90432062

(2)研究協力者

研究協力者氏名：奥村 裕

ローマ字氏名：Okumura Yutaka

研究協力者氏名：池田 吉用

ローマ字氏名：Ikeda Yoshichika