

[R3-4]

# 農作物のセシウム量の低減と土壌改良および遊漁対象となる溪流魚のセシウム・ストロンチウム濃度のモニタリングとそれらの移行メカニズム解明-農・水産業の永続的発展に向けて

## Reduction of Radio Cesium Contamination to Agricultural Products, Soil Improvement and Monitoring of Cesium and Strontium Contamination of Mountain Stream Fish and the Migration Pathway into the Forested Mountain Stream Ecosystem of Difficult -to-Return Zone for Sustainable Agriculture and Fisheries

中里亮治<sup>#A)</sup>, 小松崎将一<sup>B)</sup>, 苅部甚一<sup>C)</sup>, 佐藤志彦<sup>D)</sup>

Ryoji Nakazato<sup>#A)</sup>, Masakazu Komatsuzaki<sup>B)</sup>, Zin'ichi Karube<sup>C)</sup>, Toshihiko Satho<sup>D)</sup>

<sup>A)</sup> Water Environmental Field Station, Global and Local Environment Co-creation Institute (GLEC), Ibaraki University

<sup>B)</sup> Center for International Field Agriculture Research and Education, Ibaraki University

<sup>C)</sup> Department of Biotechnology and Chemistry, Faculty of Engineering, Kindai University

<sup>D)</sup> Collaborative Laboratories for Advanced Decommissioning Science, Fukushima Research Institute, Sector of Fukushima Research and Development, Japan Atomic Energy Agency

### Abstract

The nuclear accident at the Fukushima Dai-ichi Nuclear Power Plant (FDNPP) occurred as a consequence of the massive earthquake and associated tsunami that struck the Tohoku and northern Kanto regions of Japan on March 11, 2011. The released radioactive nuclides were deposited over a wide area of the Tohoku and Kanto regions. Ibaraki prefecture where located south to Fukushima prefecture, also was covered the radioactive nuclides. After the accident, serious contaminations of radio actives were observed of drinking water, vegetables, and milks and so on. Fortunately, these serious contaminations were quickly reduced because radioactive iodine was main contamination due to short time of half-life period. Radio cesium contamination that shows relatively longer half-life period, was observed several agricultural products after this accident in Ibaraki prefecture, however, there are still serious contamination in the coastal area of Fukushima prefecture. The present paper indicates that the contamination of fresh water fishes did not reduce during recent 7 years. On the other hand, Transfer Factor of soybean was significantly correlated with the depth of the vertical distribution of both radiocesium and exchangeable cesium.

**Keyword:** radioactive cesium, radioactive strontium, soybean, mountain stream fish, monitoring

## 1. はじめに

### 1.1 研究の背景

H23 年から R2 年までの連携重点研究 (H23-5) では、福島原発事故による放射性セシウムが、様々な農作物や水産物におよぼす影響を詳細に調べ、今後長く続くと予想されるその影響を軽減する方法を探る事を目的として研究を実施してきた。具体的にはセシウムを低減化するための土壌改良法を開発する一環として、ダイズを材料として、耕うん方法、カバークロップの種類、施肥の有無などの条件を変えて栽培し、ダイズ子実への放射性セシウム濃度や土壌からの移行係数が最も低くなるような最適な栽培方法を検証する実験を 2011 年~2020 年まで行った。また、研究期間の後半では、水産生物として帰還困難区域内の森林小河川に生息する溪流魚に注目し、それらの放射性セシウムやストロンチウム濃度のモニタリングと溪流魚への移行メカニズム解明を目的とした野外調査を実施した。これらの研究は、継続することに重要な意義があり、令和 3 年度~5 年度

#ryoji.nakazato.cwes@vc.ibaraki.ac.jp

の研究期間においてもこれまでと同様の研究を実施する。そして、農水産物への原発事故の影響を少しでも早く軽減し、福島県における農・水産業の永続的発展に資するのが最終的な目的である。

本連携重点研究グループで実施する研究内容は大きく次の 3 つの小テーマに分けられている。

小テーマ 1：帰還困難区域における溪流魚の放射性セシウムの移行メカニズムと魚体内のセシウム低減化に関する研究 (担当：中里亮治、佐藤志彦)

小テーマ 2：請戸川上流域における福島第一原子力発電所事故に由来する放射性ストロンチウムの分布 (担当：苅部甚一)

小テーマ 3：実栽培環境土壌におけるセシウム移行挙動の解明 (担当：小松崎将一)

### 1.2 研究の目的

1.2.1 帰還困難区域における溪流魚の放射性セシウムの移行メカニズムと魚体内のセシウム低減化に関する研究

2011 年 3 月の福島第一原子力発電所事故により、

## [R3-4]

環境中へ多量の放射性物質が放出された。事故から 11 年が経過した 2022 年 4 月時点においても、避難指示区域内およびその近傍の河川に生息するほぼすべての内水面魚種について採捕・出荷の制限・自粛がなされている。溪流魚釣りの復活は地元の漁業組合関係者、地域行政関係者や住民の方々も強く熱望している。しかし、帰還困難区域において遊漁対象となる溪流魚については、生息地環境を含めたそれらの放射性セシウム濃度の現状が十分調べられておらず、魚への放射性セシウムの移行経路や異なる空間線量環境下における魚への放射性セシウム蓄積速度の差異など、溪流生態系内での放射性セシウム移行メカニズムは未解明であった。さらに、今後の放射性セシウムの推移や収束時期の予測、魚体内の放射性セシウム低減化方法の開発など多くの課題が手つかずのままであった。被災地での遊漁活動や生産活動を復興・復活させるためには上記のことを十分に理解・考慮・把握をしながら、適切な方策を立案することが重要と思われる。研究グループ構成員の中里と荻部は、2015 年～2020 年度に、避難指示区域内の空間線量率の異なる複数の森林小河川を研究フィールドとして主に以下に述べる①と②についての研究を実施してきた。

①魚を含めた生物群集と生息環境中の放射性セシウム濃度の現状を把握するための、遊漁対象魚種のヤマメとイワナ、大型無脊椎動物および河川環境試料の放射性セシウム濃度のモニタリング。②異なる空間線量環境下における魚への放射性セシウム蓄積速度の差異の有無を明らかにするための、放射性セシウムを含まない養殖イワナ・ヤマメを異なる空間線量をもつ小河川に放流する「標識放流実験」の実施と定期的な再捕獲による放射性セシウムの取り込み速度の推定。

これらの研究によって、帰還困難区域の森林河川に生息する溪流魚や環境試料の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の各種モニタリングデータから、震災後 10 年が経過した時点で、空間線量率や、環境試料の川砂については  $^{137}\text{Cs}$  濃度が低下傾向にあったが、溪流魚の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は収束することはなく非常に高いレベルで推移していることが明らかになった。また、養殖ヤマメとイワナの放流実験から、溪流魚の  $^{137}\text{Cs}$  蓄積速度は個体毎に大差があることが分かった。

そこで、本研究の実施期間（令和 3 年度～5 年度）において、溪流魚の  $^{137}\text{Cs}$  の推移を把握しその収束時期を推測するために、今後も地道な野外調査から溪流魚の  $^{137}\text{Cs}$  モニタリングを継続する。また魚の  $^{137}\text{Cs}$  蓄積速度に個体差が生じる理由を明らかにするために、個体毎の  $^{137}\text{Cs}$  蓄積速度や季節変化能の跡が可能となるような個体識別放流実験を実施する。さらに不溶性セシウム粒子（CsMP）にも着目して、これらの CsMP の山土や川砂中での存在状況の把握や、CsMP が魚の餌となる水生昆虫や魚の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の個体差におよぼす影響についても検討する。

今年度の報告書では、2015 年度から 2021 年度までの 7 年間の帰還困難区域内の森林小河川内の環境や溪流魚の  $^{137}\text{Cs}$  濃度のモニタリング結果を報告し、

溪流魚  $^{137}\text{Cs}$  濃度の推移と今後の収束時期について考察した。また、2020 年度に開発した 3 インチの NaI(Tl)シンチレーション検出器を利用した活魚状態での  $^{137}\text{Cs}$  濃度測定システムと PIT タグによる個体識別標識を用いた溪流魚の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の個体別追跡調査の結果についても報告する。さらに、水生昆虫の消化管内における CsMP の存在確認を目的としたイメージングプレート（IP）による極微量放射能分布の測定結果についても速報値として報告する。

### 1.2.2 請戸川上流域における福島第一原子力発電所事故に由来する放射性ストロンチウムの分布

2011 年 3 月の福島第一原子力発電所（原発）事故によって放射性セシウム（Cs）などとともに放射性ストロンチウム（Sr）が大気中に放出され、原発から北西地域の地表に放射性 Sr が多く沈着した。しかし、この地域の河川やそこに生息する生物の放射性 Sr 汚染実態の解明はほとんど行われていない。その原因は主に放射性セシウム（Cs）に比べて放出量が少ないことによる社会関心の低さと放射性 Sr 分析法の難しさにある。そこで、私どもは簡略化・迅速化された新しい放射性 Sr 分析法を用い、2015 年から、放射性 Sr 沈着量が多い地域を流れる福島県浪江町の請戸川流域において、土壌、河川水および魚類の放射性 Sr 濃度から原発事故に由来する放射性 Sr の分布状況について明らかにすることを目的とした調査を継続してきた。その結果、福島第一原子力発電所事故に由来する放射性 Sr が請戸川流域の一部地域の土壌、河川水、イワナの骨に多く残っていること可能性が明らかになった。2021 年度はイワナ以外の魚種を対象とした分析を行い、請戸川河川生態系における放射性 Sr 汚染の実態について検討を行った。

### 1.2.3 実栽培環境土壌におけるセシウム移行挙動の解明

原子力発電所の事故後、いくつかの研究では生態系での放射性セシウム移動と推移のモデルを確立した。しかし、これらモデルの多くは森林・海洋・大気生態系に基づいており、農業生態系に適したモデルは開発されていない。この研究では、海外への農産物の出荷自粛が続いている茨城県において、大学農場における長期的な放射性セシウムモニタリングデータに基づいて、農業生態系での放射性セシウム動態モデルを構築する。これは、農業生態系における放射性セシウムの挙動の予測の役立ち、また、放射生態学の発展に貢献することができる。本研究の成果は、日本の原発事故後の農産物の安全の管理と科学的理解に貢献するだけでなく、世界中の原子力安全と食品安全にも貢献することを目指す。

研究グループ構成員の小松崎は、茨城大学農学部附属国際フィールド農学センターにおいて福島第一原子力発電所事故以降の 9 年間にわたる放射性物質の長期モニタリングを行い、半減期が 30.1 年である  $^{137}\text{Cs}$  の作物吸収が、耕うんなどの営農作業を通じて、事故以降急速に減少していることを明らかにしている。これらに基づく放射生態系モデルの開発と

## [R3-4]

評価は、原子力の利用をより安全し、人々の安全と健康を保証することにもつながり非常に有用な研究となる。

今年度はこれまでの研究を継続し、茨城大学 FSC のダイズ圃場(3 つの耕うん、カバークロップ処理)において、土壌中、カバークロップ中、ダイズ中の放射性セシウムを 2011 年～2021 年まで測定し、①耕うんの方法②カバークロップの種類から、放射性セシウム濃度、土壌からの放射性セシウムの移行量を調査した。また、それらの経年変化についても調査した。

## 2. 研究の概要

### 2.1 帰還困難区域における溪流魚ヤマメ・イワナの放射性セシウムの移行メカニズムに関する研究

#### 2.1.1 帰還困難区域内の森林小河川内の環境や溪流魚の $^{137}\text{Cs}$ 濃度の推移 —2015 年度から 2021 年度までの 7 年間の $^{137}\text{Cs}$ 濃度のモニタリング結果から—

浪江町の帰還困難区域内にある山地溪流の空間線量率の異なる 3 河川 (Site B, C, D) において定期的に空間線量率の測定と試料採取を行った。なお、Site B, C, D はいずれも請戸川の支流である。

河川環境試料として河川近傍の山土 (表層約 50 mm)、河床堆積物 (川砂)、および河川水を採取した。魚はミミズやブドウ虫を餌とした釣りによって採捕し、冷蔵あるいは冷凍して研究室に持ち帰った。測定の前処理として、魚類試料についてはホールボディーの  $^{137}\text{Cs}$  分析後に可食部のみを U8 容器に充填した。河川水は、カートリッジ型フィルタ装置によってろ過・濃縮を行った。処理後の河川環境試料および魚類は、Ge 半導体検出器 (CANBERRA 社製) を用いて  $^{137}\text{Cs}$  濃度を測定した。これらの調査は Site B と C では 2015 年 3 月から、Site D では 2016 年 3 月から現在までモニタリングを継続中である。

#### 空間線量率の推移

Figure 1 に Site B、Site C および Site D の合計 3 つの Site における 2016 年から 2022 年 3 月までの空間線量率の推移を示した。2021 年 3 月の値は Site D で  $1.6 \mu\text{SV/h}$  と最も高く、Site C と Site B でそれぞれ  $1.2 \mu\text{SV/h}$  と  $0.5 \mu\text{SV/h}$  となり、Site B が最も低かった。これらの空間線量率の値は線量率の測定を開始した 2016 年と 2017 年と比較してこれらの値は明瞭に低下していた。例えば、2017 年 3 月の Site B と C ではそれぞれ  $1.6 \mu\text{SV/h}$  および  $3.2 \mu\text{SV/h}$ 、2016 年 4 月の Site D では  $4.2 \mu\text{Sv/h}$  であった (Figure.1)。

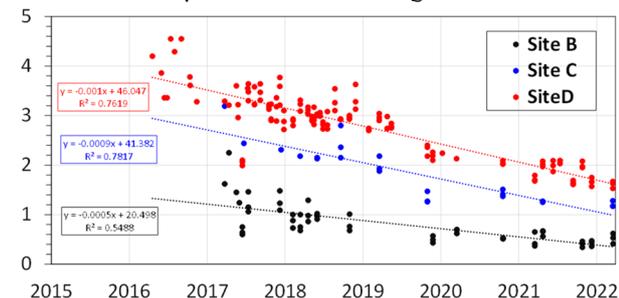


Figure 1. Changes of the air dose rates in Site B, C and D during 2015 – 2021. A vertical axis and a cross axis express air dose rates ( $\mu\text{SV/h}$ ) and investigation years, respectively.

#### 環境試料における $^{137}\text{Cs}$ 濃度の推移

Figure 2 に図 2 に Site B、Site C および Site D における 2016 年から 2022 年 3 月までの環境試料の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の推移を示した。いずれの試料の場合でも、調査日によって値のばらつきが大きかった。山土と川砂については、2020 年度までは減少傾向にあったが、2022 年 3 月の測定値は 2021 年 3 月のデータと比較して、全体的に値が高くなった。河川水の溶存態の  $^{137}\text{Cs}$  濃度についても、減少傾向にあることが見てとれた。

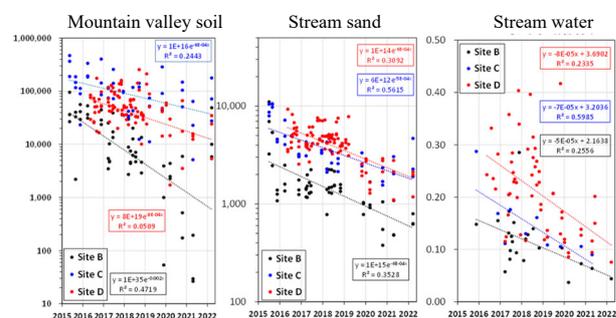


Figure 2. Changes of the concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  of environmental samples in Site B, C and D during 2015 – 2021. Vertical axes and cross axes express concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  (Bq/kg) and investigation years, respectively.

#### 天然ヤマメとイワナにおける $^{137}\text{Cs}$ 濃度の推移

Figure 3 と 4 に Site B、Site C および Site D の合計 3 つの Site において 2016 年から 2022 年 3 月までに採捕した天然ヤマメとイワナの  $^{137}\text{Cs}$  濃度の推移を示した。2021 年度に採捕した天然ヤマメの  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、Site D の平均値が  $3,622 \text{ Bq/kg}$  ( $n=37$ ) で Site B が  $1,104 \text{ Bq/kg}$  ( $n=27$ ) であった。ちなみに 2021 年度において Site C ではヤマメは採捕されなかった。天然イワナの  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、Site D の平均値が  $2,790 \text{ Bq/kg}$  ( $n=12$ )、Site C のそれが  $1,114 \text{ Bq/kg}$  ( $n=21$ )、Site B が  $895 \text{ Bq/kg}$  ( $n=15$ ) であった。なお、2021 年 9 月 15 日に Site D で採捕したヤマメとイワナについてはまだ分析が終了していないためこれらのデータには含まれていない。

以上のことから、空間線量率の高い採捕区域の溪流で採捕した個体の  $^{137}\text{Cs}$  濃度が高いことが分かった。参考までに、2020 年度に採捕した天然ヤマメの  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、Site D の平均値が  $3,223 \text{ Bq/kg}$  ( $n=16$ )、Site C のそれが  $1,741 \text{ Bq/kg}$  ( $n=3$ )、Site B が  $1,239 \text{ Bq/kg}$  ( $n=19$ ) であった。また、イワナの  $^{137}\text{Cs}$  濃度は、Site D の平均値が  $1,893 \text{ Bq/kg}$  ( $n=11$ )、Site C のそれが  $1,812 \text{ Bq/kg}$  ( $n=11$ )、Site B が  $839 \text{ Bq/kg}$  ( $n=16$ ) であった。さらに 2015 年からの  $^{137}\text{Cs}$  濃度の推移をみても二種ともに明瞭な減少傾向は見られなかった (Figures 3,4)。

[R3-4]

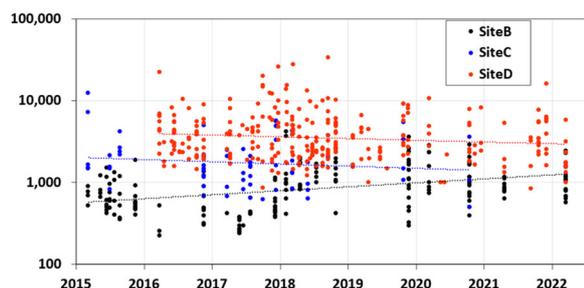


Figure 3. Changes of the concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  of masu salmon (Yamame) captured in Site B, C and D during 2015 – 2020. A vertical axis and a cross axis express concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  (Bq/kg) and investigation years, respectively.

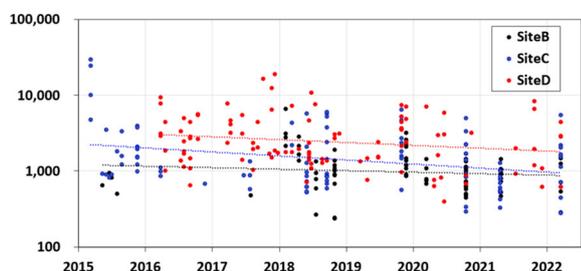


Figure 4. Changes of the concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  of white spotted char (Iwana) captured in Site B, C and D during 2015 – 2020. A vertical axis and a cross axis express concentrations of  $^{137}\text{Cs}$  (Bq/kg) and investigation years, respectively.

### 2.1.2 NaI (TI) シンチレーション検出器を用いた活魚測定による帰還困難区域の山地溪流に生息するヤマメ・イワナの $^{137}\text{Cs}$ 濃度の個体別追跡調査

2020 年度に開発した 3 インチの NaI(Tl)シンチレーション検出器を利用した活魚状態での  $^{137}\text{Cs}$  濃度測定システムと PIT タグによる個体識別標識を用いて、採捕→ $^{137}\text{Cs}$  測定→再放流→採捕→ $^{137}\text{Cs}$  測定→再放流を繰り返し行うことで、同一個体の魚についての  $^{137}\text{Cs}$  濃度の蓄積速度やその変動理由を明らかにするための個体別追跡調査をした。また魚をカゴに入れて調査河川の現場で長期間飼育するインサイト実験や、採捕した魚の胃内容物調査から天然ヤマメ・イワナと現場に放流した養殖ヤマメの餌生物組成やその重量の季節変化を調べた。これらの個体別追跡調査やインサイト実験を実施した河川は前述の 3 つの Site の中で空間線量率の最も高い Site D の河川である。

## 方法

### ・個体別追跡調査

天然のヤマメ・イワナおよび後述する 2021 年 6 月以降に放流した養殖ヤマメを対象とした個体別追跡調査（予備調査の期間を含む）は 2020 年 10 月から

2022 年 3 月の間に 9 回実施した。これらの魚はブドウ虫やミミズを餌とした釣りにより採捕した。

放流に用いた養殖ヤマメ (60g と 100g の 2 サイズ) は、放流前に PIT タグによって事前に個体標識をした。60g サイズの養殖ヤマメは Site D にある 2 箇所の淵（プール 6, 7）にそれぞれ 35 尾および 33 尾ずつ放流した。また 100g サイズのヤマメはプール 1 とプール 6 に各 3 尾放流した。これらの放流日は 2021 年 6 月 12 日である。

天然魚の場合には、1 回目の調査日に捕獲された個体については、採捕直後に麻酔処理をした後、すべての個体に PIT タグ標識をした。また 2 回目以降は PIT タグリーダーで標識の有無を確認した後、PIT タグのない個体について標識をした。

採捕した魚は、採捕直後に麻酔をしてストマックポンプを用いて胃の内容物を採取した後、河川水を満たしたバケツの中で曝気しながら生かしたまま採捕現場から自動車で 30 分程度の距離にある浪江町の研究拠点に持ち帰った。そして後述する方法で、速やかに  $^{137}\text{Cs}$  濃度の活魚測定をした。測定後の魚は、少なくとも 1 時間以上の回復時間を設けて、麻酔および酸欠状態から十分に回復した状態で、測定当日あるいは翌日に捕獲地点への再放流を行った。再放流地点は、調査区間を概ね 5 分割した最寄りの地点とした。

採取した胃内容物試料は最終濃度が 5% になるように中性ホルマリンで固定して茨城県潮来市にある茨城大学地球・地域環境共創機構水圏環境フィールドステーションの実験室に持ち帰った。後日、倍率が  $\times 10 \sim 70$  の実体顕微鏡下で目あるいは科レベルまで分別し、分類群毎に計数および湿重量を測定した。

### ・インサイト実験

釣りによる同一個体の再捕獲・再放流・ $^{137}\text{Cs}$  濃度の繰り返し測定が順調に実施できない場合を想定して、確実に同一個体の再捕獲と再測定が可能と考えられるインサイト実験を実施した。これは、金属カゴの中に魚を閉じ込め、その個体について一定間隔で繰り返し  $^{137}\text{Cs}$  濃度の測定をするものである。このインサイト実験に用いたカゴは、小動物捕獲用の金属製のカゴ (W290×H290×D650 mm) を基本の枠組みとして使用し、このカゴの周囲に脱走防止の亀甲金網 (メッシュ 20×16 mm) を内張りして作成した。このカゴの中に、100g サイズの養殖ヤマメを 1 カゴあたり 1 個体ずつ入れ、前述のプール 1 と 6 にそれぞれ 5 基ずつ沈めた。なお、この実験は 2021 年 6 月 12 日にスタートしたが、1 回目の回収日である 2021 年 7 月 15 日に現場に行ったところ、回収日以前に降った大雨の影響で川の水量が増し、プール 1 に設置した 5 基のカゴのうち 2 基が川岸に打ち上げられていた。またプール 6 においては 3 基のカゴが川岸ないしは川岸近くの浅瀬に打ち上げられてしまった。そこで一時的にインサイト実験を中断し、2021 年 9 月 15 日から実験を再スタートさせた。インサイト実験の再開にあたっては、100g サイズの養殖ヤマメを 1 カゴあたり 1 尾ずつ入れたカゴをプール 1 とプール

## [R3-4]

6にそれぞれ5基および2基設置した。これらのヤマメについては、個体別追跡調査の日に合わせて回収し、釣獲調査と同様の方法で胃内容物調査および活魚測定をした。測定終了後も生存していた個体については、再び現場の同じカゴに戻した。

## ・活魚測定

NaI 検出器および遮蔽体には FUI Japan 社製の「Integral Radiation detector3+鉛 50 mm 遮蔽セット」を使用した。NaI 検出器と遮蔽体を含めた総重量は約 325 kg、NaI 検出器の結晶サイズ 3×3 インチ、鉛の遮蔽厚 50 mm である。魚体に対する検出効率は 6.4%に設定した。浪江町内にある研究拠点に当該検出器を 2 台設置し、井戸水を入れた 2L マリネリ容器内にスポンジで魚を固定し、エアポンプで曝気しながら活魚状態で  $^{137}\text{Cs}$  濃度を測定した。測定時間は統計誤差 (RSD) が 5%を下回るよう決定し、その最大測定時間は魚の死亡リスクの高まる 15 分までとした。これらの条件で決まる  $^{137}\text{Cs}$  総量の検出限界値は 27 Bq である。そのため  $^{137}\text{Cs}$  総量が 27 Bq に満たない個体は測定不能と判断した。

## 主な結果

## ・活魚測定の生存率と再捕獲率について

採捕された魚について、合計 115 回の活魚測定をした。活魚測定が直接の原因と考えられる死亡例は 6 例のみであり、活魚測定の生存率は約 95%と極めて高かった。

2021 年 6 月に放流した養殖ヤマメの場合、PIT タグによる標識後に放流し、再び捕獲された個体の割合 (再捕獲率) は、2022 年 3 月までに行った 5 回の調査で計 39 尾/74 尾=53%となった、そのうち活魚測定後の再放流に成功したのは 32 尾であった。この 32 尾の中で 11 尾 (34%) がもう一度再捕獲 (再々捕獲) された。

一方、天然ヤマメの場合では、2020 年 10 月から 2021 年 12 月に捕獲され、再放流に成功した天然ヤマメは 26 尾であった。また 2022 年 3 月までに 4 尾が再捕獲されたため、天然ヤマメの再捕獲率は 15%となった。天然イワナは 2020 年 10 月から 2021 年 12 月までに 9 尾が再放流に成功し、2022 年 3 月までに 3 尾が再捕獲されたため、天然イワナの再捕獲率は 33%と計算された。天然魚における再捕獲は、河川において 2 回捕獲する必要があるため、養殖放流魚における再々捕獲と同等の捕獲回数となる。このことから、一度捕獲された魚がもう一度捕獲される割合は、養殖放流ヤマメの 34%に対し、天然ヤマメは 15%と低かった。このように、再捕獲の効率は養殖放流ヤマメの方が高かったが、これは実験をスタートした時点での養殖ヤマメの放流場所が 2 地点にそれぞれまとめて 30 尾以上放流したことが影響していると考えられた。本河川で過去に行われた同様の放流実験では、ヤマメの場合には放流した地点と同じ場所で捕獲される傾向にあったが<sup>[1]</sup>、本研究でも放流魚の 38 回/44 回=86%が同地点で再捕獲された。一方で天然魚の場合は、本河川の調査区間の様々

な地点で捕獲されているため、完全に同じ地点に再放流することは難しく、多少の人為的な移動が生じてしまったことが、再捕獲率に影響しているかもしれない。また、天然ヤマメのほとんどは 2021 年 9 月以降に 1 回目の捕獲をしたため、放流魚よりも実際の調査期間は短かった。天然イワナの再捕獲率は 33%と、天然ヤマメよりも高かった。

・養殖放流魚と天然魚における  $^{137}\text{Cs}$  濃度の上昇速度および  $^{137}\text{Cs}$  総量の増加速度の比較

放流から 175 日経過時点での養殖ヤマメの  $^{137}\text{Cs}$  濃度および  $^{137}\text{Cs}$  総量は平均でそれぞれ 3,029 Bq/kg および 40 Bq となった。ただしこれは 12 月に捕獲した 9 尾のみの値である。計 4 回の調査によって捕獲された 34 例の放流魚について、これらの個体の見かけ上の一日あたりの  $^{137}\text{Cs}$  濃度の上昇速度と  $^{137}\text{Cs}$  量の増加速度は、それぞれ平均 20 Bq/kg/day と 1.8 Bq/day と計算された。2018 年に樽井・中里ら<sup>[1]</sup>によって実施された本研究と同じ調査地でヤマメの養殖魚を放流した調査では、養殖放流魚の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の上昇速度と  $^{137}\text{Cs}$  総量の増加速度はそれぞれ 19.9 Bq/kg/day および 1.0 Bq/day と推定されており、活魚測定を活用した本研究の結果は樽井・中里ら<sup>[1]</sup>とほぼ同様の結果となった。1 例のみ確認された 2019 年 5 月 16 日に放流した養殖イワナについては、放流時の体重が 35.6g で、2020 年 10 月 19 日までの 522 日間で 75.3 g に増加していた。 $^{137}\text{Cs}$  濃度と  $^{137}\text{Cs}$  量は 3,355 Bq/kg、236 Bq で、 $^{137}\text{Cs}$  蓄積速度と  $^{137}\text{Cs}$  総量の増加分はそれぞれ 6.2 Bq/kg/day および 0.45 Bq/day と推定された。天然魚については、再捕獲例がヤマメで 3 例、イワナで 1 例と少数であったが、 $^{137}\text{Cs}$  濃度の上昇速度と  $^{137}\text{Cs}$  量の増加速度はそれぞれ平均 7.6 Bq/kg/day と 0.6 Bq/day と計算された。

これらの結果から、少なくとも放流後約 6 か月 (175 日) の期間において、養殖放流魚における  $^{137}\text{Cs}$  濃度の上昇速度と  $^{137}\text{Cs}$  総量の増加速度が天然魚のそれらと比較して速いことが示された。ただし、放流魚の場合には、放流後約 6 ヶ月間で放流前の体重から約 25%減少していたことから、見かけ上の  $^{137}\text{Cs}$  濃度の上昇速度を天然魚のそれと比較する場合には注意が必要である。その理由は、例えば 60 g サイズの魚が放流後の 175 日間で体重が 15g 減少し、その一方で放流の前後で魚体内の  $^{137}\text{Cs}$  総量に変化が無かった場合には、放流後の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は放流前の濃度の約 1.3 倍となるためである。つまり  $^{137}\text{Cs}$  濃度の上昇率だけを見ていると、誤ったデータ解釈につながる恐れがある。今回のケースでは  $^{137}\text{Cs}$  総量も増加しているため、放流魚と天然魚の  $^{137}\text{Cs}$  取り込み量を比較することは問題が無いと思われる。さらに、これらの値を比較する際に考慮すべき点として調査時期が挙げられる。今回は天然魚の主な調査期間が 10 月～12 月、また放流魚の場合は 6 月～12 月であった。つまり放流魚の調査期間が天然魚のそれと比較して水温の高い時期であり、これは魚の摂食活性と関係する  $^{137}\text{Cs}$  濃度の取り込み速度に影響するとことが推測された。つまり本研究において、放流魚におけ

## [R3-4]

る  $^{137}\text{Cs}$  濃度の上昇速度と  $^{137}\text{Cs}$  総量の増加速度が天然魚のそれらと比較して速かった理由は、この調査時期の影響があったかもしれない。

#### ・インサイト実験期間中のヤマメの体重変化と $^{137}\text{Cs}$ 濃度について

インサイト実験の養殖ヤマメはカゴ中で 175 日間生存した個体も 3 尾いたが、体重は 10 個体の平均で 1 日あたり 0.34% 減少した。放流魚の体重減少率は 0.14% であり、インサイト魚の体重減少率が放流魚よりも高かった。本研究では NaI 検出器を用いた活魚測定での検出限界値を  $^{137}\text{Cs}$  総量で 27 Bq に設定したが、これは  $^{137}\text{Cs}$  濃度に換算すると 60g の個体の場合には約 450 Bq/kg、100g の場合では約 270 Bq/kg となる。本インサイト実験において、これらの値を超えた個体は皆無であった。 $^{137}\text{Cs}$  の取り込み量が最も多いと推測された個体（カゴの中に 175 日間生存していた 3 尾）について  $^{137}\text{Cs}$  濃度を導出すると、その濃度はそれぞれ 92 Bq/kg、49 Bq/kg および 68 Bq/kg となった。しかし検出限界値よりも相当に低い値であったことから、これらのデータは参考程度にとどめるべきである。後述するようにインサイト実験のヤマメの胃内容物の大部分がカクツツトビケラ科の巣であり、体内の  $^{137}\text{Cs}$  量もほとんど増加しなかったことから、餌不足の環境下にあったものと判断された。結果的にインサイト実験の個体は高線量地域の河川水で、ほとんど餌を食べずに飼育されたことになる。インサイト実験の結果として、カゴの中の魚の  $^{137}\text{Cs}$  量がほとんど増加しなかった事実は、魚への  $^{137}\text{Cs}$  の移行経路として、河川水由来のものは極めて微量であり、その大部分が餌から取り込まれたものであることを示唆するものである。

#### ・溪流魚の胃内容物組成・重量と季節変化

ストマックポンプで採取された魚の胃の内容物はそれぞれ天然ヤマメが 15 目 59 科、天然イワナが 10 目 21 科、養殖放流ヤマメが 12 目 48 科、およびインサイト実験のヤマメが 4 目 8 科であった。天然魚のヤマメとイワナのみに見られたグループは、チョウ幼虫・バッタ目・ワラジムシ・ヤスデ等の陸生動物である。一方天然ヤマメのみに見られたグループが、コウチュウ目幼虫（水生）・コウチュウ目（陸生）・アミメカゲロウ目幼虫（水生）・トビケラ目成虫・カメムシ目・トビケラ目の卵塊である。インサイト実験のヤマメからカクツツトビケラ科の巣が多く確認された。

重量ベースで算出した胃内容物組成は季節によって変化していた。インサイト実験の養殖ヤマメを除いた他の 3 カテゴリー魚種に共通する傾向として、7 月から 10 月にはコウチュウ目やチョウ目の幼虫など陸生昆虫の割合が高く、4 月と 12 月はトビケラ目やカゲロウ目の幼虫など水生昆虫の割合が上昇していた。また、天然のヤマメとイワナは養殖放流ヤマメに比べてチョウ目の幼虫のような陸生昆虫を摂食している割合が高かった。佐藤ら<sup>[2]</sup>は、ヤマメと同じ溪流魚であるアマゴの場合、陸生昆虫の供給期間が、

アマゴの体サイズの個体差に影響することを報告している。本研究では、それぞれの餌アイテムとなる生物種の  $^{137}\text{Cs}$  濃度は測定しなかったが、今後は胃内容物の情報として、前述した内容物の総重量や胃内容物組成のほかに、それぞれの餌となる生物の  $^{137}\text{Cs}$  濃度と胃内容物中の重量測定を行い、胃内容物に占める各餌の  $^{137}\text{Cs}$  総量やそれらの季節変化などを追跡することで、溪流魚の  $^{137}\text{Cs}$  の取り込みに寄与する可能性のある生物群を明らかにしておく必要がある。

#### 2.1.3 水生昆虫の消化管内の CsMP について

不溶性セシウム粒子（CsMP）とは水に溶けにくい  $1\mu\text{m}\sim 1\text{mm}$  程度の大きさのガラス質でセシウムを相対的に多く含む粒子のことである。福島第一原子力発電所事故では、事故初期の限られた時期に CsMP が放出したケースが確認された。この CsMP の放出は、福島事故固有の現象であると考えられている<sup>[3]</sup>。CsMP 粒子は約 1~3 Bq 程度の非常に高い  $^{137}\text{Cs}$  量含有しているので<sup>[4]</sup>、仮に CsMP1 粒のみが水生昆虫に取り込まれたとしても、濃度としては極めて高い値を示すことになる。

これまで、CsMP が水生昆虫やそれを餌とするヤマメやイワナなどの溪流魚の  $^{137}\text{Cs}$  蓄積速度や  $^{137}\text{Cs}$  濃度の個体差におよぼす影響について不明であった。そこで本年度は、研究の第一段階として、水生昆虫の消化管内での CsMP の有無を確認することを目的として IP による極微量放射能分布の測定を試みた。

#### ・IP を用いた CsMP の測定方法

今回の測定に用いた試料は、2022 年 3 月に Site D の河川で採取したカゲロウ目ヒラタカゲロウ科ヒラタカゲロウ属の幼虫 4 個体である。これらの試料は測定直前まで  $-20^{\circ}\text{C}$  で冷凍保存した。

イメージングプレートと読出装置にはそれぞれ BAS MS 2025(Fujifilm) および Amersham Typhoon (GE healthcare) を用いた。曝射時間は 120 時間、曝射環境は冷蔵庫  $10^{\circ}\text{C}$  無遮蔽、読出分解能は  $100\mu\text{m}$  とした。

#### ・結果

ヒラタカゲロウ属の幼虫 4 個体の測定の結果、BG を超える優位なピクセルは見られなかった。CsMP が存在する場合、今回の照射時間は、経験的に十分すぎるくらいの時間であること、またカセットに残った汚れを拾っていることから IP 自体は正常に機能していたことが確認できている。さらに、 $^{137}\text{Cs}$  および  $^{134}\text{Cs}$  から放出されるベータ線の飛程を考慮し、分解能はもっとも高く  $100\mu\text{m}$  としていることから、弱い CsMP があったとしても何らかの信号が検出されるものと推定される。

これらのことから、今回の試料においては、不溶性 Cs 粒子は含まれていないと考えられた。今後は測定試料数を増やすことや、様々な水生昆虫種を測定する予定である。

## [R3-4]

## 2.2 請戸川上流域における福島第一原子力発電所事故に由来する放射性ストロンチウムの分布

今年度は 2017 年に福島県浪江町を流れる請戸川流域の各地 (D) の小河川で採取した魚類 (ヤマメ) 試料について放射性 Sr 分析を行った。魚類の骨は、魚体から取り出したのちに乾燥および灰化 (450°C、24 時間以上) を行い、その灰化物の酸分解液について DGAResin (Eichrom) によるイットリウム (Y) の分離を行った<sup>[6]</sup>。得られた溶離液から水酸化鉄の沈殿により Y-90 を分離し、低バックグラウンド 2π ガスフローカウンター (LBC-4211B、日立アロカメディカル) を用いてそのベータ線を計測した。同時に、各試料における安定 Sr および Y 濃度を ICP 発光分光分析装置 (Agilent 5110 ICP-OES、Agilent) により求め、最終的に放射性 Sr (<sup>90</sup>Sr) の濃度を算出した。地点 D で捕獲した 2 個体の <sup>90</sup>Sr 濃度はそれぞれ、37.3±4.0、45.0±6.1Bq/kg であった。それぞれの個体の体長と体重はそれぞれ 182 mm、75.9 g および 165 mm、61.3 g であった。ヤマメと同時期、同地点で捕獲したイワナ (174±8 mm、74.8±14.9 g、n=4) の <sup>90</sup>Sr は 57.2±10.9 Bq/kg となった。この結果から、D 地点の小河川に同所的に生息しているヤマメには、イワナと同程度の原発事故由来の <sup>90</sup>Sr が骨に蓄積している可能性がある事が明らかとなった。

## 2.3 実栽培環境土壌におけるセシウム移行挙動の解明

試験は茨城大学農学部フィールドサイエンス教育センター内の有機ダイズ試験圃場で行った。試験区は 3 つの耕うん方法 (ロータリー耕・プラウ耕・不耕起)、3 種のカバークロップ、(ヘアリーベッチ・ライムギ・雑草)、施肥の有 (20 kg/ha・0 kg/ha) を 4 反復 (72 プロット) で設定した。また、2020 年以降は、バイオ炭の有無 (8 t/ha・0 t/ha) に変更した。土壌は 30 cm のコアサンプラーを用いて 4 層に分けて採取し、カバークロップは 0.25 m<sup>2</sup> のコドラートを用いてプロットごとに収穫。ダイズはプロットごとに 1 畝 1m 以内に存在する株を刈り取り後茎と葉に分け、その後放射能分析を行った。と計算された。

まず、土壌中の放射性セシウムの分布は、2011 年においては、3 種類の耕うん体系で放射性セシウム分布は表層に集中していたが、2012 年からは、ロータリー耕とプラウ耕での <sup>137</sup>Cs の土中分布は均一化した。これに対し、不耕起条件であると事故後 7 年を経ても表層に集中したままとなっていた。放射性セシウムのダイズへの移行係数は、土壌中の放射性セシウム分布と関係があることが認められた。これは、耕うんなどの営農活動が放射性セシウムを土中に埋没させることで、ダイズへの移行を抑制したものと考えられる。

ダイズ子実の <sup>137</sup>Cs 含有率は 2011 年以降安全基準を大幅に下回っていたが、2011 年に比べて 2021 年には <sup>137</sup>Cs 含有率が大きく減少していることが認められた。ダイズ子実の <sup>137</sup>Cs 濃度は年ごとに指数関数的に減少し、プラウ耕とロータリー耕では、不耕

起に比べてダイズ子実の <sup>137</sup>Cs 含有量は著しく低下した。また、ダイズ子実のセシウム吸収量は、同一の汚染レベルにおいて土壌中のセシウムの分布状況および交換性セシウムと交換性カリウムの比率に大きく影響を受けることを明らかとした<sup>[5]</sup>。

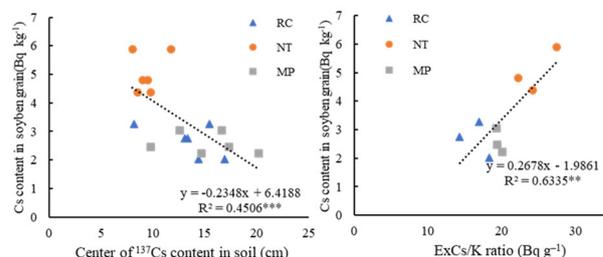


Fig.1. Relationships between (A) center of vertical <sup>137</sup>Cs activity concentration in soil and <sup>137</sup>Cs activity concentration in soybean grains, and (B) ExCs/K in soil and <sup>137</sup>Cs activity concentration in soybean grains. Asterisks (\*\*, P < 0.01; \*\*\*, P < 0.001) indicate significant determination coefficients (R<sup>2</sup>). (Data from Li et al. Science of the Total Environment, In press)

## 3. 考察

## 3.1 帰還困難区域における溪流魚の放射性セシウムの移行メカニズム

2015 年～2021 年の 7 年間にわたる帰還困難区域の森林河川 (請戸川支流) に生息する溪流魚や環境試料の <sup>137</sup>Cs 濃度の各種モニタリングと個体別追跡調査から以下の結論と今後の課題が示された。

3.1.1 帰還困難区域の森林小河川に生息する溪流魚の <sup>137</sup>Cs の収束時期や今後の推移について

FDNPP 事故から約 11 年が経過した時点でも溪流魚の <sup>137</sup>Cs 濃度は収束することはなく非常に高いレベルで平衡状態に達していると考えられ、地域住民の方々にとっては大変厳しいことに、今後数十年はこのレベルの状態が続くものと推測された。

## 3.1.2 溪流魚の放射性セシウムの移行メカニズム

個体識別をした天然魚と養殖魚を対象とした捕獲・<sup>137</sup>Cs の活魚測定・再放流の繰り返しによる個体別追跡調査およびインサイト実験の結果から、帰還困難区域の中でも高線量地区の小河川に生息するヤマメ・イワナへのセシウム移行メカニズムがある程度推測できた。ヤマメ・イワナへの <sup>137</sup>Cs の移行は、主として河川水からではなく餌生物から移行すること、また魚の胃内容物の調査によって、魚の摂餌活動を通じて魚体内に <sup>137</sup>Cs が取り込まれる源となる水生・陸生の動物が季節によって変化していること、さらに魚の種類や個体サイズによっても餌の取り込み量などが異なる可能性があることが明らかとなった。このことから帰還困難区域に生息する溪流魚への <sup>137</sup>Cs の移行には複雑なメカニズムが存在するこ

## [R3-4]

とが示唆された。

### 3.1.3 帰還困難区域の森林小河川に生息する溪流魚に関する今後の研究について

帰還困難区域の森林小河川の空間線量率や環境試料の放射性セシウム濃度が低下傾向にあるにも関わらず、ヤマメやイワナの<sup>137</sup>Cs濃度が低下しないこと、また魚の個体間で<sup>137</sup>Cs濃度に大きな差が見られる理由は依然として不明のままであったが、これは複雑な移行メカニズムの存在が一因であると推測される。今後の展望として、本事業で実施した個体別追跡調査を継続し、イワナとヤマメの餌生物となる陸生・水生昆虫類の<sup>137</sup>Csの季節変化、並びにそれらの餌となる林床や河床に供給される落葉、河川中の付着藻類・糸状藻類等の一次生産者の<sup>137</sup>Cs濃度の季節変化も追跡していくことで、この複雑な移行メカニズムを解明していきたい。

### 3.3 イワナ以外の魚類における骨の放射性ストロンチウムについて

今年度は初めてイワナ以外の魚種であるヤマメについて放射性Sr分析を行った。その結果、同所的に生息しているイワナとヤマメは同じような<sup>90</sup>Sr濃度を示す結果となった。両種は分布、行動パターン、餌資源など異なる点があると考えられるが、放射性Sr濃度が同レベルであったことは、この河川に生息する魚類群集全体に、私どもが数年間にわたってモニタリングしてきたイワナの<sup>90</sup>Sr濃度の経年変化が当てはまる可能性を示唆している。今後、この小河川におけるヤマメおよび他の種についてもさらに分析を進め、魚類群集全体として原発事故由来の放射性Srによる汚染状況がいかほどなのかについて明らかにする必要がある。

### 3.4 実栽培環境土壌におけるセシウム移行挙動の解明ニズム

原発事故により東北および関東は広く放射性物質の降下（フォールアウト）を受けたが、農地では土壌の持つ放射性セシウムの吸着・固定能力が発揮され、農作物への移行量はごく少なく、事故初年目からほとんどの農作物の放射能汚染は問題にならなかった。とくに農地では施肥や堆肥投入など土づくりを通じて土壌の放射性セシウムの吸着能力が高くなることで作物への移行を阻止していることが認められた。今までの研究成果では、土壌の粘土鉱物の含有量、カリウム量などの土壌の粒度や化学的成分などの差異が放射性セシウムの作物移行に影響があることが報告されていたが、今回の成果では、ダイズ子実のセシウム吸収量は、同一の汚染レベルにおいて土壌中のセシウムの分布状況および交換性セシウムと交換性カリウムの比率に大きく影響を受けることを明らかとした。これにより、耕うんなどの農家が通常行っている農作業が放射性セシウムの作物移

行を抑制することの科学的根拠が明らかになった。

#### 参考文献

- [1] 樽井美香・中里亮治・鈴木貴大・川上拓磨・Park Soeun・櫛井優志・苅部甚一・鈴木仁根・加藤健一・竹高慎祐・桑原祐史(2018), 帰還困難区域に生息する溪流魚の放射性セシウムのモニタリングと標識放流実験による溪流魚の<sup>137</sup>Cs蓄積速度の推定, 第17回世界湖沼会議(いばらき霞ヶ浦2018)講演要旨集, pp.603-605.
- [2] Sato, T., Ueda, R., and Takimoto, G. (2021): The effects of resource subsidy duration in a detritus-based stream ecosystem: A mesocosm experiment, *Journal of Animal Ecology*, 90(5), 1142-1151.
- [3] <https://fukushima.jaea.go.jp/QA/q612.html>
- [4] Adachi, K., Kajino, M., Zaizen, Y. and Igarashi, Y. (2013), Emission of spherical cesium-bearing particles from an early stage of the Fukushima nuclear accident, *Scientific Reports*, 3, 2554.
- [5] Li, Peiran, Yingting Gong, Wenyi Lu, Nobuo Sakagami, Zhaowen Mo and Masakazu Komatsuzaki. "Radiocesium distribution caused by tillage inversion affects the soil-to-crop transfer factor and translocation in agroecosystems." *Science of the Total Environment* (in press).
- [6] H. Tazoe, et al. (2016): "Determination of strontium-90 from direct separation of yttrium-90 by solid phase extraction using DGA Resin for seawater monitoring", *Talanta* 152, 219-227.