

Environment Research and Technology Development Fund

## 環境研究総合推進費 終了研究成果報告書

1RF-1902 沿岸堆積物に蓄積した放射性ヨウ素の溶出及び底生魚への移行過程の把握

平成元年度～令和2年度

Transfer to Demersal Fish of Radioiodine Accumulated in Coastal Sediment through the Dissolution to Seawater

<研究代表機関>

公益財団法人 環境科学技術研究所

○図表番号の付番方法について

「Ⅰ. 成果の概要」の図表番号は「0. 通し番号」としております。なお、「Ⅱ. 成果の詳細」にて使用した図表を転用する場合には、転用元と同じ番号を付番しております。

「Ⅱ. 成果の詳細」の図表番号は「サブテーマ番号. 通し番号」としております。なお、異なるサブテーマから図表を転用する場合は、転用元と同じ図表番号としております。

令和3年5月

## 目次

I. 成果の概要	1
1. はじめに（研究背景等）	
2. 研究開発目的	
3. 研究目標	
4. 研究開発内容	
5. 研究成果	
5-1. 成果の概要	
5-2. 環境政策等への貢献	
5-3. 研究目標の達成状況	
6. 研究成果の発表状況	
6-1. 査読付き論文	
6-2. 知的財産権	
6-3. その他発表件数	
7. 国際共同研究等の状況	
8. 研究者略歴	
II. 成果の詳細	
II-1 沿岸堆積物からのヨウ素 129 の溶出状況の把握	13
（公益財団法人 環境科学技術研究所）	
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
II-2 堆積物から底生魚へのヨウ素129 の移行過程の評価	19
（公益財団法人 環境科学技術研究所）	
要旨	
1. 研究開発目的	
2. 研究目標	
3. 研究開発内容	
4. 結果及び考察	
5. 研究目標の達成状況	
6. 引用文献	
III. 研究成果の発表状況の詳細	31
IV. 英文Abstract	32

## I. 成果の概要

課題名 1RF-1902 沿岸堆積物に蓄積した放射性ヨウ素の溶出及び底生魚への移行過程の把握

課題代表者名 佐藤 雄飛 (公益財団法人 環境科学技術研究所 研究員)

重点課題 主：【重点課題④】 災害・事故に伴う環境問題への対応に貢献する研究・技術開発

副：【重点課題⑭】 化学物質等の包括的なリスク評価・管理の推進に係る研究

行政要請研究テーマ (行政ニーズ) 非該当

研究実施期間 令和元年度～令和2年度

研究経費 (千円)

	契約額	実績額 (前事業年度繰越分支出額含む)
平成元年度	5,960	5,960
令和2年度	5,363	5,363
<b>合計額</b>	<b>11,323</b>	<b>11,323</b>

本研究のキーワード 使用済み核燃料再処理施設、六ヶ所村、放射性ヨウ素、ヨウ素129、沿岸堆積物、底生魚

研究体制

(サブテーマ1)

沿岸堆積物からのヨウ素129の溶出状況の把握 (公益財団法人 環境科学技術研究所)

(サブテーマ2)

堆積物から底生魚へのヨウ素129の移行過程の評価 (公益財団法人 環境科学技術研究所)

研究協力機関

研究協力機関はない

## 1. はじめに（研究背景等）

ヨウ素129は使用済み核燃料再処理施設（以下、再処理施設）から排出される主要な放射性核種の一つである。この核種は、単位量あたりの放射能は小さいものの、長寿命であり（半減期：1570万年）、加えて海藻や高等動物といった種々の生物への蓄積性を有することが知られている。したがって、再処理施設の運用にあたっては、近隣住民の安全・安心を担保するために同施設周辺の環境中におけるヨウ素129の動態を把握しておく必要がある。

青森県六ヶ所村には日本初の商業利用が計画された再処理施設が建設中である。同施設は、2006年から2008年にかけて実際の使用済み核燃料を用いた操業試験を実施しており、この間に大気及び海水へとヨウ素129を排出した。大気及び海水は速やかに拡散するため、現在の六ヶ所村周辺における大気及び海水中のヨウ素129濃度は試験前と概ね同水準である。一方で、村内の土壌や湖沼堆積物では現在もなお試験前より高水準のヨウ素129が観測されている。これは試験期間中においてヨウ素129を含む大気や海水が拡散する間に土壌及び堆積物へとヨウ素129が沈着し、それが現在まで残存していることを示している。

環境科学技術研究所では、2006年から現在まで六ヶ所村沿岸で採取された海水及び底生魚（カレイ及びヒラメ）中のヨウ素129を継続的に観測している。上述の試験期間中には、海水と底生魚において共に、試験以前よりも高水準のヨウ素129が観測された。試験以降に関しては、海水のヨウ素129は概ね試験以前の水準まで速やかに低下した一方で、底生魚中では試験前より高水準のヨウ素129が近年にかけて高頻度で観測されている。このような傾向が確認されている要因として、試験期間中に沿岸堆積物へと蓄積したヨウ素129が試験以降に底生魚へと移行していることが懸念される。しかしながら、ヨウ素129に関して堆積物からの溶出や堆積物から魚類への移行を具体的に明示した研究例が無いいため、堆積物から魚類へのヨウ素129の移行を断定し難い。

## 2. 研究開発目的

青森県六ヶ所村の沿岸海域において採取される底生魚（カレイ及びヒラメ）について、高水準のヨウ素129が間欠的に観測されている要因を解明するための一環として、①沿岸堆積物に蓄積したヨウ素129の海水への溶出及び②堆積物から底生魚へのヨウ素129の移行、の各々の経路の有無について定量的に評価し、沿岸堆積物に蓄積したヨウ素129が底生魚へ移行する可能性の有無について評価する。

## 3. 研究目標

全体目標	先行研究によって得られている現場観測データにサブテーマ1及び2の結果を合わせて、堆積物からのヨウ素129の溶出及び底生魚へのヨウ素129の移行過程の有無を確認する。加えて、各々の過程が確認された場合は、各々の過程に関する数値モデルを作成する。
サブテーマ1	沿岸堆積物からのヨウ素129の溶出状況の把握
サブテーマリーダー /所属機関	佐藤雄飛／公益財団法人 環境科学技術研究所
目標	六ヶ所沿岸堆積物を用いたヨウ素129の溶出実験を実施し、同堆積物からのヨウ素129の溶出の有無を確認する。この際、同溶出実験を各季節に実施し、水温や直上海水中の酸化還元電位といった環境条件の差に応じたヨウ素129の溶出状況の季節変化に関する情報を合わせて取得する。また、ヨウ素129の溶出が確認された場合、その際の溶出速度を評価する。
サブテーマ2	堆積物から底生魚へのヨウ素129の移行過程の評価
サブテーマリーダー	今井祥子／公益財団法人 環境科学技術研究所

/所属機関	
目標	ヨウ素129の蓄積した堆積物と共に底生魚の飼育実験を行い、堆積物から底生魚へのヨウ素129の移行の有無を確認する。この飼育実験は2種類（カレイ及びヒラメ）の底生魚について実施する。また、底生生物（ゴカイ等）を加えた/加えない実験系をそれぞれ設置し、底生魚へのヨウ素129の移行に対する食物連鎖の重要性について評価する。加えて、底生魚へのヨウ素129の移行が確認された場合、その際の移行速度を評価する。

#### 4. 研究開発内容

##### サブテーマ1：沿岸堆積物からのヨウ素129の溶出状況の把握

再処理施設に由来するヨウ素129の堆積物への顕著な蓄積が確認されている汽水湖の尾駮沼をモデル領域に設定し、同湖より採取した堆積物試料を用いて堆積物から海水へのヨウ素129の溶出実験を実施した（図0.1）。この溶出実験においては、堆積物採取直後の1～2日間にわたって培養を行い、その間における堆積物の直上海水中のヨウ素129濃度の経時変化を測定することにより、ヨウ素129の溶出の有無及び溶出速度を評価した。また、この際、季節による堆積物の性状の変化、及び採取地点の差、各々の影響を評価するために、試料採取の時期及び場所を変え、令和元年から2年にかけて、計4回の溶出実験を実施した。



図 0.1 堆積物試料の採取地点及び溶出実験の様子

溶出実験に加えて、堆積物に保持されているヨウ素129の化学形態、及び堆積物の間隙水中のヨウ素129濃度に関する調査を実施し、堆積物から海水へとヨウ素129が溶出する機構を解析するための調査を合わせて実施した。また、ヨウ素129の分析に際しては、日本原子力機構及びオタワ大学（カナダ）の各々の研究機関の協力のもと、加速器質量分析法（Accelerator Mass Spectrometry：AMS）により測定を行った。加えて、溶存態のヨウ素129に関しては、化学形態別（ヨウ化物イオン： $I^-$ 、ヨウ素酸イオン： $IO_3^-$ 、溶存態有機ヨウ素：DOI）に測定を実施した。加えて、ヨウ素動態の基盤的情報を取得するために、ヨウ素129の他に、安定ヨウ素（ヨウ素127）についてもボルタンメトリーを用いて分析を行った。

##### サブテーマ2：堆積物から底生魚へのヨウ素129の移行過程の評価

研究所及び水産業者より購入した種苗用のカレイ及びヒラメを用いて、尾駮沼で採取した堆積物の入った水槽内における飼育実験を実施した（図0.2）。この際、当初の予定では堆積物からの直接的な移行に加えて、堆積物～底生生物（ゴカイ）～底生魚、という経路の評価も想定し、堆積物とゴカイの両者が入った水槽内における飼育実験を計画していた。しかしながら、予備実験の際に本研究の対象魚種が飼育環境下においてゴカイをほとんど摂餌しないことが判明したため、今回はサブテーマ1との関連性

がより強い堆積物から溶出したヨウ素129の直接的な移行経路に集中した調査を実施することとした。

この飼育実験について、始めに堆積物と共に底生魚を飼育可能とするための条件検討を行い、海水の交換頻度や堆積物との直接的な接触を避けるためのメッシュの設置といった飼育条件を決定した。この予備試験の後、約2ヶ月間にわたる本試験を、カレイ及びヒラメの各々について実施した。この飼育期間中に隔日で試料の回収を行い、回収後は速やかに解剖して筋肉の部分でヨウ素129分析の供与試料とした。なお、筋肉をヨウ素129の評価対象としたのは人にとっての可食部となる主要な部位であることが理由である。最終的に、底生魚中のヨウ素129濃度または蓄積総量の経時変化から堆積物から底生魚へのヨウ素129の移行に関する評価を試みた。またヨウ素129の分析に関しては、サブテーマ1と同様にAMSを用いて実施した。また、ヨウ素127に関しては、誘導結合プラズマ質量分析計 (Inductively coupled plasma - mass spectrometer : ICP-MS) により分析を行った。

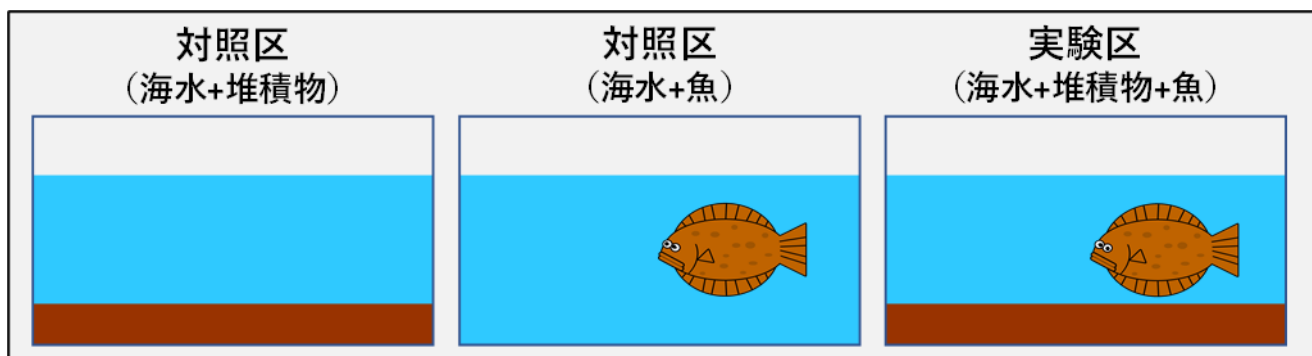


図 0.2 底生魚を用いた飼育実験の概要

## 5. 研究成果

### 5-1. 成果の概要

#### サブテーマ1

ヨウ素129の溶出速度の評価に先立ち、ヨウ素127を対象とした溶出実験を行い(図0.3左)、尾駁沼におけるヨウ素動態の基盤情報を取得した。具体的には、溶出するヨウ素の化学形態が主にヨウ化物イオン ( $I^-$ ) であること、ヨウ素の溶出速度が水温に依存すること、水中の酸素条件は同速度にあまり影響しないこと、堆積物からのヨウ素の溶出速度が ①堆積物表層における有機物の分解、②間隙水の拡散、及び ③堆積物へのヨウ素の吸着、の各々におけるヨウ素の移動フラックスの総和で決定していること、を明らかにした。この安定ヨウ素から得られた知見を基に決定した実験系を用いて、ヨウ素129に関する溶出実験を行った(図0.3右)。その結果、ヨウ素129では、安定ヨウ素とは異なり、堆積物から堆積

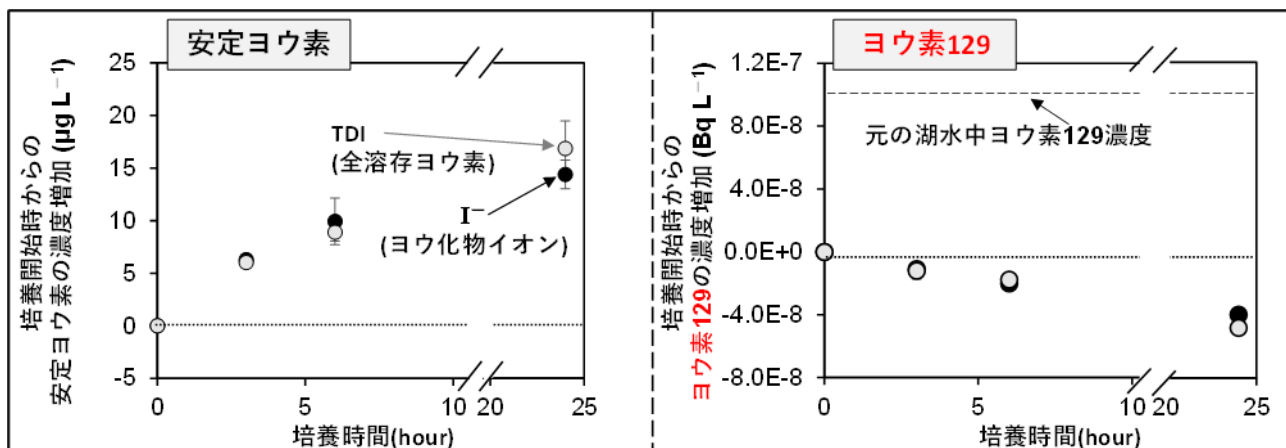


図0.3 培養実験時における堆積物直上水中の安定ヨウ素(左)及びヨウ素129(右)の各濃度の経時変化

物の直上水への溶出が観察されなかった。その一方で、堆積物の間隙水中におけるヨウ素129濃度の鉛直分布を調べたところ堆積物表層にかけての濃度勾配が確認されており（図0.4左）、これは安定ヨウ素と同様にヨウ素129に関して、間隙水からの拡散による直上水への供給経路が存在することを示唆するものである。これは堆積物中ヨウ素129の化学形態の一部が可溶性（図0.4右、残渣画分以外の部分）であったことにも整合的である。このように間隙水の拡散によるヨウ素129の供給経路の存在が示された一方で、溶出実験においては直上水へのヨウ素129の溶出が確認されなかった。これは、1)安定ヨウ素において主要な供給経路であった堆積物表層における有機物の分解がヨウ素129に関しては生じていないこと、及び2)間隙水の拡散によるヨウ素129の海水への供給速度は堆積物へのヨウ素129の吸着速度に比べて小さいこと、の2点を示唆するものである。

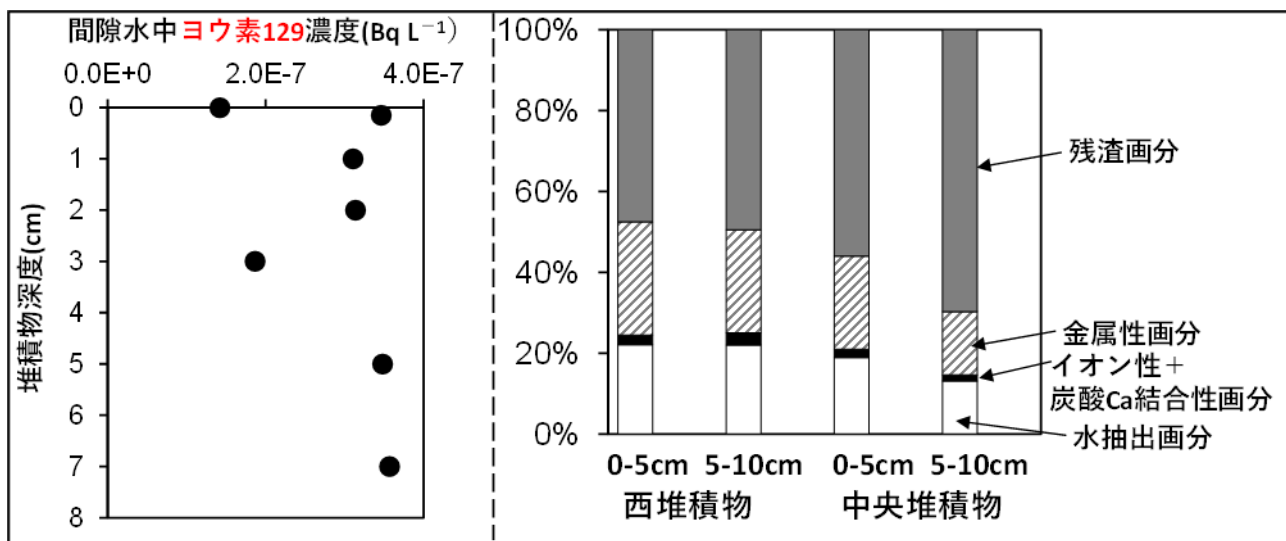


図0.4 尾駱沼堆積物における間隙水中のヨウ素129濃度（左）及び堆積物中ヨウ素129の化学組成（右）

堆積物表層における有機物の分解がヨウ素129の供給源とならなかった要因としては、再処理施設の試験操業終了に伴う尾駱沼湖水中のヨウ素129濃度の低下（1. はじめに、の項を参照）が考えられる。堆積物表層における有機物中のヨウ素129は植物プランクトンにより湖水中から取り込まれたものである。したがって、湖水中のヨウ素129濃度が低い現状において尾駱沼の堆積物表層に存在する有機物はヨウ素129濃度が低く、堆積物の直上水へのヨウ素129の主要な供給源にはなり得なかった。

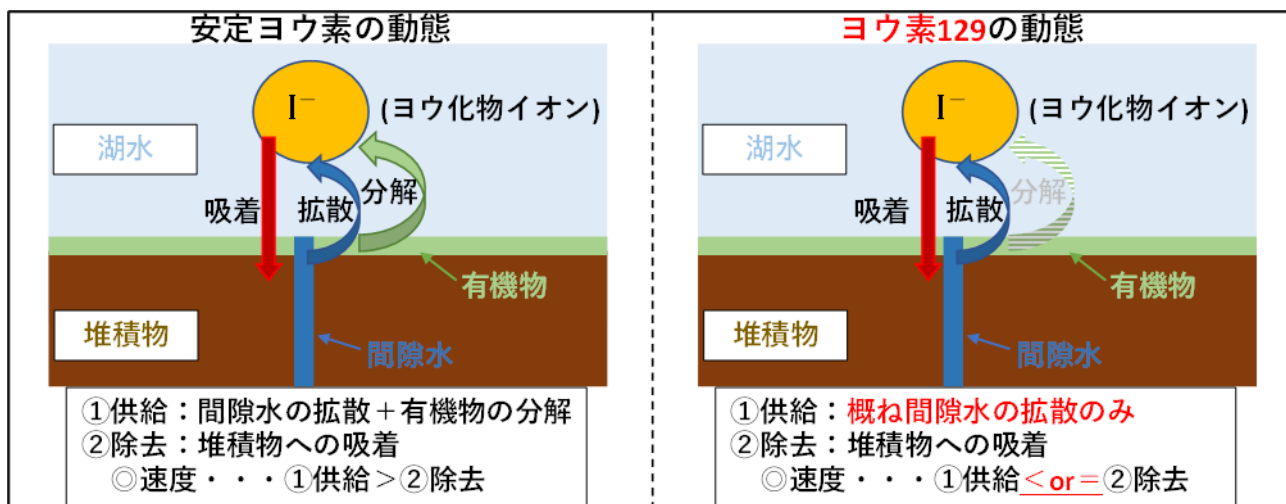


図0.5 尾駱沼堆積物の近傍における安定ヨウ素（左）及びヨウ素129の動態

サブテーマ1において明らかにされたヨウ素動態の要約を図0.5に示す。安定ヨウ素に関しては、堆積物表層における有機物と海水間のヨウ素動態が平衡状態に達していない結果、2つの供給源（間隙水及び有機物）からの供給速度が堆積物への吸着速度を上回るため、直上水への溶出が認められる。一方でヨウ素129に関しては、堆積物表層における有機物と海水間におけるヨウ素動態が平衡状態に達していることに加え、間隙水からの拡散も堆積物への吸着と拮抗（平衡状態）にあるため、結果として直上水への溶出が明確には認められない。このようなことから、現状の尾駸沼においては堆積物から直上水へのヨウ素129の溶出はほとんど無いと結論付けられる。一方で、本研究において溶出が認められなかった堆積物中のヨウ素129は、あくまで人為的に排出されてから約10年の時間を経た「古い」ヨウ素129である。今後、再処理施設の試験操業により「新しい」ヨウ素129が尾駸沼に付与される場合、図0.5左に示した安定ヨウ素と同様に、有機物の分解に起因した溶出経路の影響が増大することに伴って堆積物から直上水への溶出が顕著になる可能性があることを十分に留意しておく必要がある。

## サブテーマ2

堆積物から底生魚におけるヨウ素の取り込みとして、堆積物から海水中へ溶出したヨウ素を直接的に取り込む経路、堆積物に生息している底生動物へとヨウ素が取込まれ、その底生動物を底生魚が間接的に取り込む経路の2つを想定し、堆積物存在下における魚類の飼育実験を計画した。まずは、魚類の飼育実験を実施するにあたり、底生魚であるヒラメ及びマコガレイに投与するためのゴカイの飼育条件及び水槽への堆積物の添加方法について検討した。尾駸沼の堆積物を用いてゴカイを14日間飼育した結果、生存に影響を及ぼすような水質の変動は認められず、90%以上の生残率を維持していたことから、尾駸沼の堆積物を用いてゴカイの飼育が可能であることが明らかになった。また、堆積物の添加方法としては、バットに添加した堆積物を水槽へ収容する方法が適していると判断し、これらの予備検討結果から、ヒラメ及びマコガレイの飼育実験を実施した。

令和元年度において、堆積物存在下における63日間のヒラメ飼育実験を実施したが、実験区のヒラメ死亡率の増加が認められたため、堆積物採取時期の変更及び海水中硝酸濃度等を直ちに測定する等の改善を加え、令和2年度に56日間のヒラメ飼育追加実験を実施した。同様の方法で、56日間のマコガレイ飼育実験についても実施した。各魚種の飼育実験における筋肉中ヨウ素127濃度の結果を図2.23及び図2.25に示す。両魚種において飼育の進行に伴う筋肉中ヨウ素127濃度の増加は認められなかった。これは、海水中のヨウ素濃度が減少していたことによるものであると推測される。ヒラメ飼育追加実験の実験14日までの筋肉中ヨウ素127濃度において、個体間のばらつきが大きく、高い濃度を示す個体がいくつか確認されたが、これは、海水中ヨウ素濃度が一時的に増加したことによるものであると推測される。ヨウ素129の測定に関しては、AMSの委託分析の遅延や一部試料において測定精度が十分に得られなかったことにより、解析可能なデータセットが揃わなかったため、ヨウ素129の移行については定量的な評価ができなかったが、海水中ヨウ素127濃度の経時的な減少が確認されたこと（図2.24及び図2.26）、サブテーマ1において堆積物から海水中へのヨウ素129の溶出がほとんど認められなかったことから、サブテーマ2の魚類飼育実験においても、堆積物から魚類へヨウ素129が移行した可能性は低いと推定される。

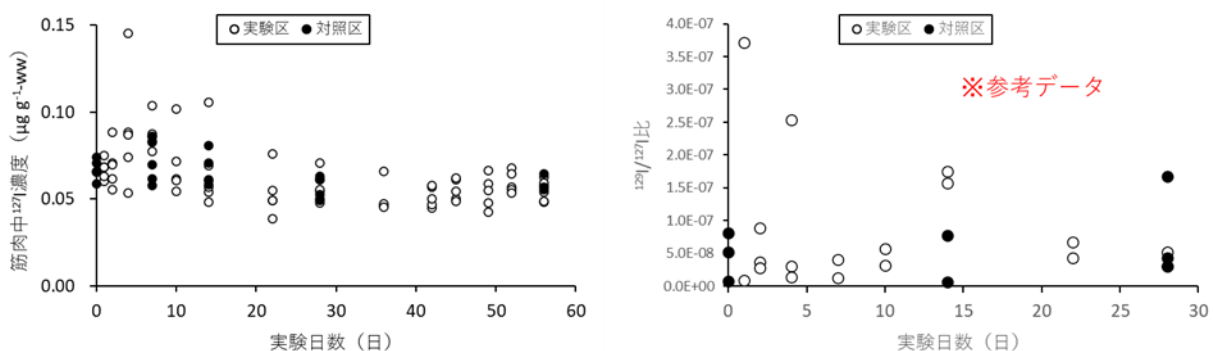


図 2.23 ヒラメ飼育追加実験における筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度(左図)及び筋肉中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比(右図:参考データ)



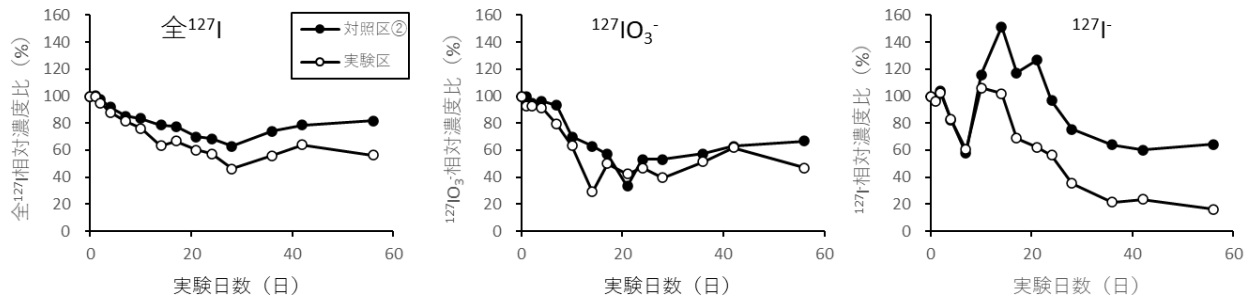


図 2.24 ヒラメ飼育追加実験における海水中形態別ヨウ素相対濃度比

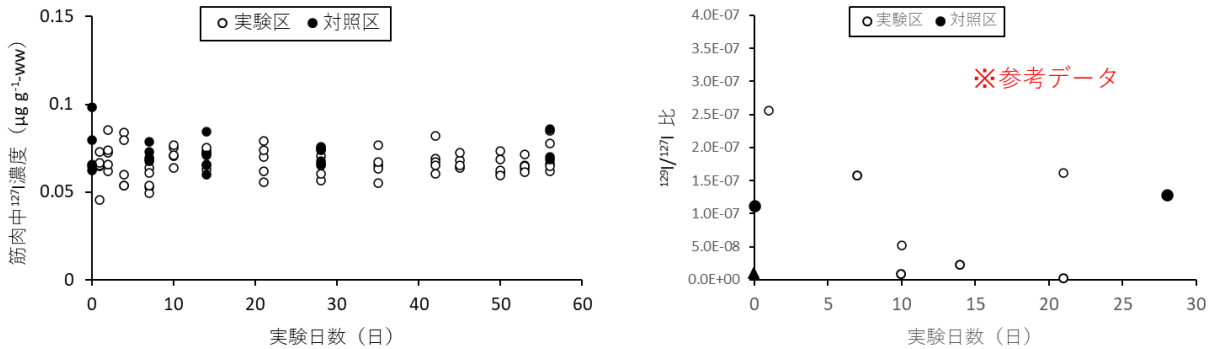


図 2.25 マコガレイ飼育実験における筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度(左図)及び筋肉中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比(右図:参考データ)

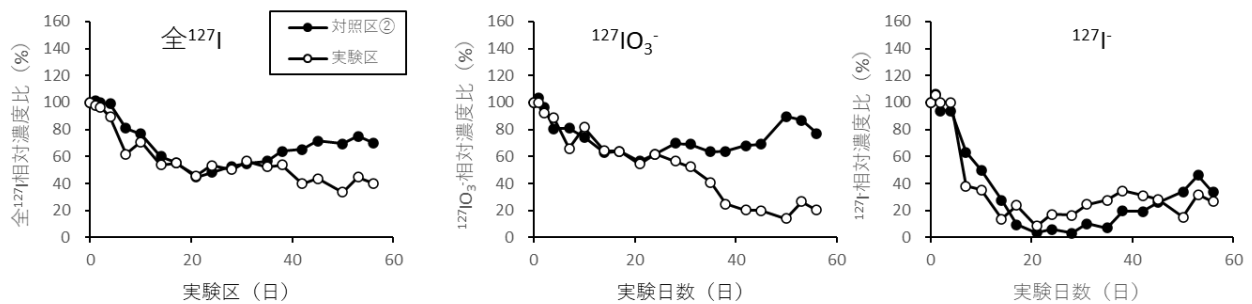


図 2.26 マコガレイ飼育実験における海水中形態別ヨウ素相対濃度比

また、飼育実験で得られた魚類、海水及び投与餌料中のヨウ素 $^{127}\text{I}$ 濃度を用いて、魚類中のヨウ素に対する海水及び餌料の各々の寄与を推定した(図2.28及び図2.29)。海水中ヨウ素 $^{127}\text{I}$ 濃度が初期値約 $50\ \mu\text{g L}^{-1}$ から実験期間中に約 $20\ \mu\text{g L}^{-1}$ まで経時的に減少、ヨウ素濃度約 $4\ \mu\text{g g}^{-1}$ の餌料を体重の2%程度を一定量投与という本実験条件下では、餌料からの取込寄与率が結果的に高くなった。

サブテーマの主な目的とは異なるが、ヒラメ飼育実験における一部の検体に関して、筋肉以外の部位におけるヨウ素 $^{127}\text{I}$ 濃度を測定し、ヒラメ体内におけるヨウ素の分布についてデータを取得した。その結果、体内のヨウ素分布は一様ではなく、エラ>内臓>筋肉の順で高いことが明らかになった。ヒトへの食物としての摂取を考慮する場合、筋肉が測定対象部位として用いられるが、生態系において捕食される際、筋肉以外の部位もあわせて捕食される。今回測定した部位のうち、筋肉が最も低い値を示していたことから、生態系へのリスクを考慮する場合、可能な限りに筋肉以外の部位についても測定を行い、データを蓄積していく必要があると示唆される。さらに、堆積物採取時に得られた尾駁沼の天然ゴカイに関してヨウ素 $^{127}\text{I}$ 濃度を測定した結果、 $285\ \mu\text{g g}^{-1}\text{-dry}$ と魚類の筋肉中濃度や市販品として購入した海水中で飼育されたゴカイ(約 $20\ \mu\text{g g}^{-1}\text{-dry}$ )よりも明確に高い値を示していた。堆積物による影響を最も受けるのはゴカイのような底生動物であり、今後底生動物への移行について詳細に検討する必要があると考えられる。

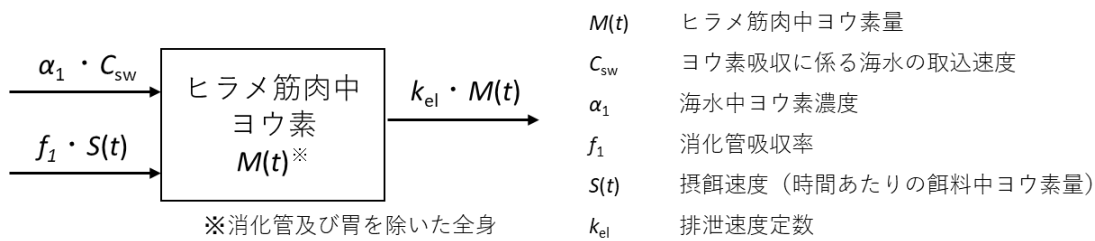


図 2.28 ヒラメ筋肉を1コンパートメントとしたヨウ素移行モデル（先行研究のモデルを改変）

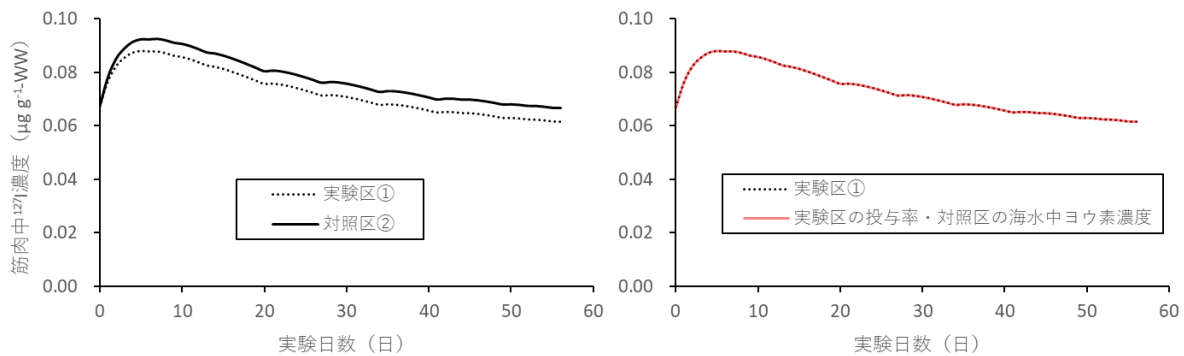


図 2.29 ヨウ素移行モデルによる筋肉中<sup>127</sup>I推定濃度

左図：各設定区における餌料投与率及び海水中ヨウ素濃度を入力して計算、対照区②の方が高投与率  
 右図：実験区①の餌料投与率を対照区②の入力データとして再計算した結果

サブテーマ1及び2の結果を合わせて、本研究では、ヨウ素129に関して①堆積物から海水へ溶出⇒②海水から底生魚への移行、という経路のヨウ素129フラックスがほとんど存在しないことが示唆された。その一方で、堆積物粒子の直接的な摂取や底生動物を介したヨウ素129の底生魚への移行の可能性に関しては本研究においては具体的に検証されなかった。当初は海水中から底生魚内に流入するヨウ素量が固形物の経口摂取によるものに比べて顕著に少ないと考えられたため、堆積物から溶出した後に海水の流入を通して底生魚内に移行するヨウ素129に着目したが、上述のように、この経路の寄与はほとんど確認されなかった。したがって、今後の研究においては底生動物等を介した食物連鎖によるヨウ素129の移行経路について調査を行う必要があると考えられる。

本研究は、①沿岸堆積物からのヨウ素129の溶出、及び②溶出したヨウ素129の底生魚への移行、の両経路についての有無を確認することが最優先の目的であった。その中で、現状の沿岸環境においては、経路①がほとんど無いことを確認し、それに伴い、経路②についても寄与が小さいことが結論付けられた。したがって、本研究の目的は概ね達成されたと考えられる。

## 5-2. 環境政策等への貢献

### <行政等が既に活用した成果>

本研究成果の一部は公益財団法人環境科学技術研究所が青森県の受託研究として実施している使用済み核燃料の再処理施設に由来するヨウ素129の環境動態に関する調査の計画立案及び調査結果の解析に利用された。なお、本研究成果を交えた調査結果の解析の一部については、現在、国際学術誌（Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry、論文題目：Spatial variation of radioiodine (<sup>129</sup>I) dissolution from sediment of a brackish lake beside a spent nuclear fuel reprocessing plant in Japan）において審査中である。

### <行政等が活用することが見込まれる成果>

本研究で得られた成果は、原子力施設周辺の沿岸域における放射性核種の環境動態を把握する上で重

要な知見である。したがって、国内外における原子力施設の定常運転時や過酷事故時における同施設の周辺環境への放射性核種による影響に関する事前及び事後評価への活用が期待される。加えて、本研究で得られた底生魚に関する知見は福島原発事故の影響海域で採取される水産物に対する根拠の無い風評被害の抑止に貢献すると考えられる。また、本研究における対象元素であるヨウ素に関しては、近年、気候変動との関連性が強く示唆されており、本研究で得られた知見が気候変動の仕組みを解析する上での基盤情報となる可能性がある。

### 5-3. 研究目標の達成状況

	研究目標	目標の達成状況	本文における記述
全体目標	<p>先行研究によって得られている現場観測データにサブテーマ1及び2の結果を合わせて、堆積物からのヨウ素129の溶出及び底生魚へのヨウ素129の移行過程の有無を確認する。</p>	<p>堆積物から海水への溶出を通じた移行は殆ど無いことを示した一方、食物連鎖を通じた移行の可能性についてはその重要性を示唆した。</p>	<p>P. 8</p> <p>サブテーマ1及び2の結果を合わせて、本研究では、ヨウ素129に関して①堆積物から海水へ溶出⇒②海水から底生魚への移行、という経路のヨウ素129フラックスがほとんど存在しないことが示唆された。その一方で、堆積物粒子の直接的な摂取や底生動物を介したヨウ素129の底生魚への移行の可能性に関しては本研究においては具体的に検証されなかった。当初は海水中から底生魚内に流入するヨウ素量が固形物の経口摂取によるものに比べて顕著に少ないと考えられたため、堆積物から溶出した後に海水の流入を通して底生魚内に移行するヨウ素129に着目したが、上述のように、この経路の寄与はほとんど確認されなかった。したがって、今後の研究においては底生動物等を介した食物連鎖によるヨウ素129の移行経路について調査を行う必要があると考えられる。</p> <p>本研究は、①沿岸堆積物からのヨウ素129の溶出、及び②溶出したヨウ素129の底生魚への移行、の両経路についての有無を確認することが最優先の目的であった。その中で、現状の沿岸環境においては、経路①がほとんど無いことを確認し、それに伴い、経路②についても寄与が小さいことが結論付けられた。したがって、本研究の目的は概ね達成されたと考えられる。</p>
	<p>加えて、各々の過程が確認された場合は、各々の過程に関する数値モデルを作成する。</p>	<p>堆積物からの溶出に関しては、溶出が認められなかったことから数値モデルが不要であると結論付けられた (p. 4の図 0.3)。食物連鎖からの移行に関しては、既報のモデルを改編した移行モデルを用いて、移行が起こりうる可能性を示唆した (p. 8の図2. 28及び図2. 29)。</p>	<p>p. 8</p> <p>サブテーマ1及び2の結果を合わせて、本研究では、ヨウ素129に関して①堆積物から海水へ溶出⇒②海水から底生魚への移行、という経路のヨウ素129フラックスがほとんど存在しないことが示唆された。</p> <p>p. 7</p> <p>飼育実験で得られた魚類、海水及び投与餌料中のヨウ素127濃度を用いて、魚類中のヨウ素に対する海水及び餌料の各々の寄与を推定した (図2. 28及び図2. 29)。海水中ヨウ素127濃度が初期値約50 <math>\mu\text{g L}^{-1}</math>から実験期間中に約20 <math>\mu\text{g L}^{-1}</math>まで経時的に減少、ヨウ素濃度約4 <math>\mu\text{g g}^{-1}</math>の餌料を体重の2%程度を一定量投与という本実験条件下では、餌料からの取込寄与率が結果的に高くなった。</p>

サブ テー マ1	六ヶ所沿岸堆積物を用いたヨウ素129の溶出実験を実施し、同堆積物からのヨウ素129の溶出の有無を確認する。	ヨウ素129の溶出がほとんど起こらないことを具体的に示した (p. 4の図0.3)。成果の一部は既に論文として公表されている (下記の成果論文1~4)。	5. 研究目標の達成状況 (P. 19) 当初の目標は十分に達成された。再処理施設の試験操業時に沿岸堆積物へと蓄積したヨウ素129に関して、現状においては海水中への再溶出はほとんど無いことを明確に示した。これは既に研究論文として公表されている <sup>6)</sup> 。さらに、本調査の成果により堆積物から海水へのヨウ素の溶出経路に関する詳細な知見が得られた <sup>5) 6)</sup> 。これは本研究で目標としていたヨウ素129の溶出状況の現状把握だけでなく、将来的な再処理施設の本格操業時におけるヨウ素129の動態予測にとって有用な知見となる。また、本研究で得られた知見は、その他の地域 (福島沿岸等) における人為起源の放射性核種の動態解析にとっても役立つことが期待される。
	この際、同溶出実験を各季節に実施し、水温や直上海水中の酸化還元電位といった環境条件の差に応じたヨウ素129の溶出状況の季節変化に関する情報を合わせて取得する。	記述なし。 理由：各実験条件においてヨウ素129の溶出が確認されなかったため (p. 17の図1.14及び図1.15)。	記述なし。 理由：ヨウ素129の溶出が確認されなかったため。各々の実験条件でヨウ素129が確認されなかったことは、p. 17の図1.14及び図1.15に示されている。
	また、ヨウ素129の溶出が確認された場合、その際の溶出速度を評価する。	記述なし。 理由：ヨウ素129の溶出が確認されなかったため。	記述なし。 理由：ヨウ素129の溶出が確認されなかったため。
サブ テー マ2	ヨウ素129の蓄積した堆積物と共に底生魚の飼育実験を行い、堆積物から底生魚へのヨウ素129の移行の有無を確認する。この飼育実験は2種類 (カレイ及びヒラメ) の底生魚について実施する。	堆積物から海水へのヨウ素溶出が起こりにくい状況下では、海水から底生魚への顕著なヨウ素移行が起こりにくいことを示した (p. 4の図0.3、p. 7の図2.23及び図2.25)。	5. 研究目標の達成状況 (P. 29) 生物試料における <sup>129</sup> Iの測定結果が十分ではなかったため、 <sup>129</sup> Iの定量的な移行評価はできないが、海水中形態別 <sup>127</sup> I、魚類筋肉中 <sup>127</sup> I及び餌料中 <sup>127</sup> I等に関して網羅的に測定していたこと、参考値扱いではあるが得られた <sup>129</sup> I/ <sup>127</sup> I比等から、 <sup>129</sup> Iの定性的な移行及び <sup>127</sup> Iの定量的な移行が確認された。
	また、底生生物 (ゴカイ等) を加えた/加えない実験系をそれぞれ設置し、底生魚へのヨウ素129の移行に対する食物連鎖の重要性について評価する。	底生動物ではないものの、食物連鎖を介した移行の重要性を示唆した (p. 8の図2.28及び図2.29)。	p. 7 飼育実験で得られた魚類、海水及び投与餌料中のヨウ素127濃度を用いて、魚類中のヨウ素に対する海水及び餌料の各々の寄与を推定した (図2.28及び図2.29)。海水中ヨウ素127濃度が初期値約50 µg L <sup>-1</sup> から実験期間中に約20 µg L <sup>-1</sup> まで経時的に減少、ヨウ素濃度約4 µg g <sup>-1</sup> の餌料を体重の2%程度を一定量投与という本実験条件下では、餌料からの取込寄与率が結果的に高くなった。
	加えて、底生魚へのヨウ素129の移行が確認された場合、その際の移行速度を評価する。	記述なし。 理由：ヨウ素129の分析が十分に行えなかったため。	p.6 AMSの委託分析の遅延や一部試料において測定精度が十分に得られなかったことにより、解析可能なデータセットが揃わなかったため、ヨウ素129の移行については定量的な評価ができなかった

	目標以外		<p>p. 30</p> <p>魚類における筋肉以外の部位のヨウ素濃度に関する報告は数少ないため、本調査で75検体分の体内分布を明らかにした結果は、魚類におけるヨウ素の基礎データとして有用な知見となり得る。</p>
--	------	--	---

## 6. 研究成果の発表状況

### 6-1. 査読付き論文

<件数>

4件

<主な査読付き論文>

- 1) Y. Satoh, S. Imai: Science of the Total Environment, volume 707, 10, 135920 (2020) (IF: 6.551). Evaluation of dissolution flux of iodine from brackish lake sediments under different temperature and oxygenic conditions.
- 2) Y. Satoh, S. Wada: Chemistry Letters, volume 50, 4, 560-562 (2021) (IF: 1.361). Characterization of organic biomolecules (monosaccharide, fatty acid, and amino acid) by losses on ignition under stepwise increases in temperature.
- 3) Y. Satoh, S. Imai: Journal of Environmental Radioactivity volume 233, 106608 (2021) (IF: 2.161). Evaluation of radioiodine ( $^{129}\text{I}$ ) dissolution from sediment of a brackish lake beside a spent nuclear fuel reprocessing plant in Japan.
- 4) Y. Satoh, S. Imai: Science of the Total Environment (in press) (IF: 6.551). Flux and pathway of iodine dissolution from brackish lake sediment in the northeast of Japan.

### 6-2. 知的財産権

特に記載すべき事項は無い。

### 6-3. その他発表件数

査読付き論文に準ずる成果発表	4件
その他誌上発表（査読なし）	0件
口頭発表（学会等）	0件
「国民との科学・技術対話」の実施	2件
マスコミ等への公表・報道等	0件
本研究に関連する受賞	0件

## 7. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

## 8. 研究者略歴

研究代表者

佐藤 雄飛

筑波大学生命環境科学研究科卒業、環境科学博士、現在、環境科学技術研究所 研究員  
研究分担者

今井 祥子

鹿児島大学大学院連合農学研究科修了、農学博士、現在、環境科学技術研究所 研究員

## II. 成果の詳細

### II-1 沿岸堆積物からのヨウ素 129 の溶出状況の把握

環境科学技術研究所

環境影響研究部 研究員 佐藤雄飛

環境影響研究部 研究員 今井祥子

#### 【要旨】

青森県六ヶ所村沿岸域の海底堆積物には2008年から2010年にかけて行われた使用済み核燃料再処理施設の試験操業時に排出された放射性ヨウ素(ヨウ素129)が現在もなお蓄積している。本調査では、この蓄積しているヨウ素129について、堆積物から直上水への溶出状況の把握を目的とした実験を行った。この際、再処理施設に隣接する汽水湖(尾駮沼)を対象領域とし、同湖より採取した柱状堆積物試料を用いたヨウ素溶出実験及び堆積物間隙水中のヨウ素129濃度の観測実験を実施した。ヨウ素溶出実験においては、湖の湖心及び西部(河川の影響が大きい)の堆積物を用いた実験を行い、各々の堆積物において直上水へのヨウ素129の溶出が認められないことを確認した。一方で、湖心より採取した堆積物中間隙水のヨウ素129濃度を測定した結果、堆積物の深部から表層にかけて鉛直的濃度勾配が確認され、これは間隙水から直上水中へヨウ素129が拡散していることを意味した。この両実験結果の不一致について、安定ヨウ素の測定結果を元にした解析から、ヨウ素溶出実験においては、間隙水からの拡散による供給速度に比べて直上水から堆積物への吸着速度が顕著に早いため、直上水中におけるヨウ素129濃度の増加が認められなかったことが示唆された。以上より、現状において六ヶ所沿岸域の堆積物に蓄積しているヨウ素129については海水中への溶出がほとんど無いと結論付けた。

#### 1. 研究開発目的

青森県六ヶ所村には日本で最初の商業利用が計画されている使用済み核燃料の再処理施設(以下、再処理施設)が建設されており、現在、同施設は本格操業へ向けての国による最終審査の段階にある。この審査に先立ち、再処理施設において2008年から2010年の間に実際の使用済み核燃料を用いた試験操業が実施され、それに伴ってヨウ素129を含む放射性核種が六ヶ所村周辺の大気及び海洋中へと排出されている(図1.6)。この時に排出されたヨウ素129の一部は六ヶ所村沿岸海域の堆積物へ移行し、近年まで同堆積物中に蓄積していることが報告されている(図1.7)<sup>1)2)</sup>。このヨウ素129は単位量あたりの放射能が非常に小さい放射性核種であるため、人や自然環境中における生物への被ばくの影響は非常に小さい。その一方で、同核種は長寿命(半減期:1570万年)であり、加えて比較的高い生物親和性を有することから、再処理施設の運用にあたって同施設周辺の住民に対する安全・安心を十全に担保するために堆積物に蓄積したヨウ素129の将来的な行方を把握しておく必要がある。

本研究では、現状において六ヶ所沿岸域の堆積物中に蓄積しているヨウ素129について海水中への溶出の有無を把握することを主要な目的とした。これは、上述のように、再処理施設から排出されたヨウ素129の将来的な行方を把握するためである。これに加えて、我々の先行研究において、同施設の試験操業以降に六ヶ所沿岸海域で採取された底生魚(カレイ及びヒラメ)から海水と比較して高い水準

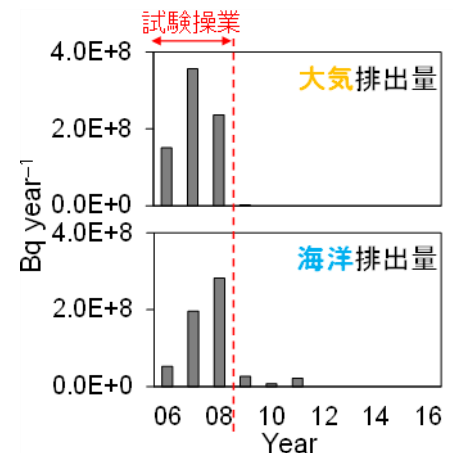


図1.6 再処理施設からのヨウ素129の年間排出量(日本原燃株式会社ホームページより引用)

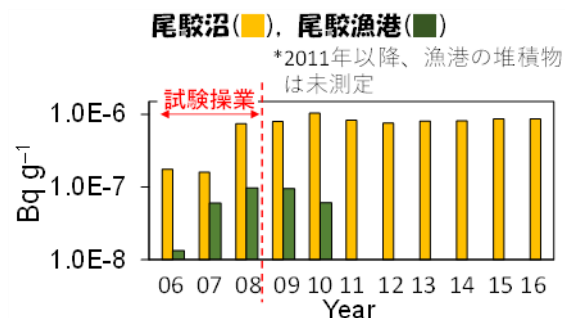


図1.7 再処理施設近傍の汽水湖(尾駮沼)及び漁港の堆積物中ヨウ素129濃度

のヨウ素129/安定ヨウ素比 ( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比) が度々観測されている<sup>3)</sup>。これは堆積物から溶出したヨウ素129が底生魚へと移行する可能性を示唆するものであり、実際に別種の放射性ヨウ素 (ヨウ素125) を用いた我々の先行研究において水中からヒラメへの放射性ヨウ素の移行が実験的に証明されている<sup>4)</sup>。このように六ヶ所沿岸堆積物に蓄積したヨウ素129が底生魚へと移行する可能性の評価に資するためにも、上記の目的が設定されている。サブテーマ2においては底生魚への移行までの経路を含めて目的として設定している一方で、本項のサブテーマ1においては堆積物から水中への溶出までを目的とした。

## 2. 研究目標

六ヶ所沿岸堆積物を用いたヨウ素129の溶出実験を実施し、同堆積物からのヨウ素129の溶出の有無を確認する。この際、同溶出実験を各季節に実施し、水温や直上海水中の酸化還元電位といった環境条件の差に応じたヨウ素129の溶出状況の季節変化に関する情報を合わせて取得する。また、ヨウ素129の溶出が確認された場合、その際の溶出速度を評価する。

## 3. 研究開発内容

### 3.1 対象領域

本調査においては、再処理施設及び太平洋に隣接した汽水湖である尾駱沼を対象領域として設定した (図1.8)。尾駱沼の内部には平均的に約50%の海水が流入しており、底生魚を含む海洋性魚類が生息していると同時に、上記図1.7で示すように、湖底堆積物中にヨウ素129が蓄積している。また、近隣は六ヶ所村村民の住環境となっていることに加えて、我々の研究所 (環境研) において物理化学的・生物学的特徴が詳細に調査されている。このような経緯を踏まえて尾駱沼を本調査の対象領域とした。



図1.8 調査の対象領域

### 3.2 柱状堆積物試料を用いたヨウ素溶出実験

尾駱沼の湖心部または西部より柱状堆積物採取器 (HR型、離合社) を用いて柱状堆積物試料を採取し、ヨウ素溶出実験を実施した (図1.9)。なお、尾駱沼の西部は河川の流入口に近く、陸域の影響を把握することを目的に採取地点として設定した。この溶出実験は、堆積物試料の採取時期及び場所、対象とするヨウ素の核種 (安定orヨウ素129)、並びに実験時における変動パラメータ (酸素、水温及び実験時間) を変えて、計4回実施した (表1.1)。実験の概要を以下に説明する。尾駱沼より採取した柱状堆積物試料を恒温水槽へと移し、そこで24~48時間の培養を行った。この際、隔時間で堆積物の直上水を回収し、

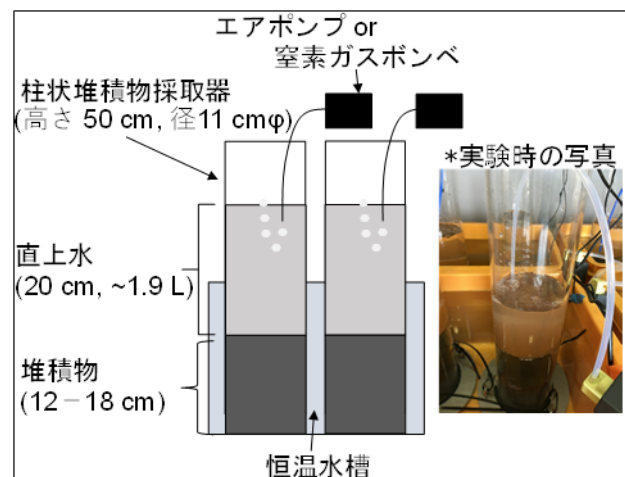


図1.9 ヨウ素溶出実験における実験系

表1.1 ヨウ素溶出実験における実験条件

実験日時/場所	測定対象	変動パラメータ
① 2019年6月/湖心部	安定ヨウ素	酸素、水温、培養時間 (0~48時間)
② 2019年7月/湖心部	ヨウ素129+安定ヨウ素	培養時間 (0~24時間)
③ 2020年7月/西部	ヨウ素129+安定ヨウ素	培養時間 (0~24時間)



④ 2020年10月/湖心部	安定ヨウ素	水温、培養時間 (0~48時間)
----------------	-------	------------------

後に、この直上水中の安定ヨウ素及びヨウ素129の濃度を測定した。これによって得られた各ヨウ素濃度または直上水中の全ヨウ素量の経時変化より、堆積物から海水へのヨウ素の溶出速度を評価した。また、ヨウ素濃度は海水及び河川水中における主要な化学形態である3種類 ( $I^-$ 、 $IO_3^-$ 、溶存態有機ヨウ素: DOI) について測定を行い、安定ヨウ素に関してはボルタンメトリー装置 (797 VA Computrace、Metrohm 社)、ヨウ素129に関しては加速器質量分析計 (Accelerator Mass Spectrometer : AMS、オタワ大学または日本原子力機構) をそれぞれ用いて測定を実施した。各々の実験系及び測定の詳細については Satoh et al. (2020b and 2021) <sup>5)6)</sup> をそれぞれ参照されたし。

### 3.3 間隙水中ヨウ素濃度の観測および堆積物中ヨウ素129の化学分画

本調査では、上記の溶出実験に加えて、柱状堆積物試料について表層から0~8cm深度までの各深度より堆積物間隙水を採取し、同水中のヨウ素129濃度を測定した。この測定結果より得られた間隙水から堆積物の直上水にかけてのヨウ素129の濃度勾配データとフィックの拡散則を用いることにより、間隙水から直上水へのヨウ素129の拡散速度が推定可能となる<sup>7)</sup>。間隙水の採取に用いた堆積物試料は、3.2項で述べた溶出実験時と同様の手法により2019年7月に採取した(上記表1の②と同時期)。採取した堆積物試料の側面に電動ドリルを用いて穴を空け、そこから土壌間隙水採取装置 (10 RHIZON-SMSMOM, Rhizosphere Research Products 社) を用いて間隙水を回収した。回収した間隙水中の安定ヨウ素及びヨウ素129の各濃度は、3.2項で述べた方法と同様に測定した。なお、試料の採取方法及び測定の詳細に関しては Satoh et al. (2021) <sup>6)</sup> を参照されたし。

また、堆積物中に保持されているヨウ素129の化学的特徴を把握するため、尾駁沼の湖心及び西で採取した各堆積物について逐次抽出法<sup>8)</sup> による堆積物中ヨウ素129の化学分画を実施した。この際、水抽出画分(純水による抽出)、[イオン性+炭酸カルシウム結合性]画分(酢酸アンモニウムによる抽出)、金属結合性画分(塩酸ヒドロキシルアミンによる抽出)及び残渣画分の4つに分画し、各々の画分についてヨウ素129の測定を行った。

## 4. 結果及び考察

### 4.1 安定ヨウ素の動態

堆積物-海水間のヨウ素動態に関する基盤的知見の取得を目的として、安定ヨウ素による動態解析を行った。始めに表1に示した実験①の結果を示す。この実験では、安定ヨウ素の溶出状況について水中の酸素条件、水温及び培養時間の影響を調査した。その結果、ヨウ素の溶出に対して酸素条件による差は不明瞭である一方、水温の影響は顕著であり、高温条件において溶出が明確に促進された(図1.10)。また、溶出速度は培養時間が長くなることに伴って減少する傾向が確認された。これは培養時間の長期化によって微生物活性等による堆積物への吸着反応が促進されることによるものと推測される。加えて、溶出するヨウ素の主要な化学形態は $I^-$ であり、これは従来の知見と一致するものであった<sup>9)</sup>。実験①で得られた結果を用いて、水温と堆積物から直上水へのヨウ素溶出フラックスの関係を解析した。この際、溶出フラックスに関しては、培養開始から3時間または6時間までの $I^-$ 濃度の

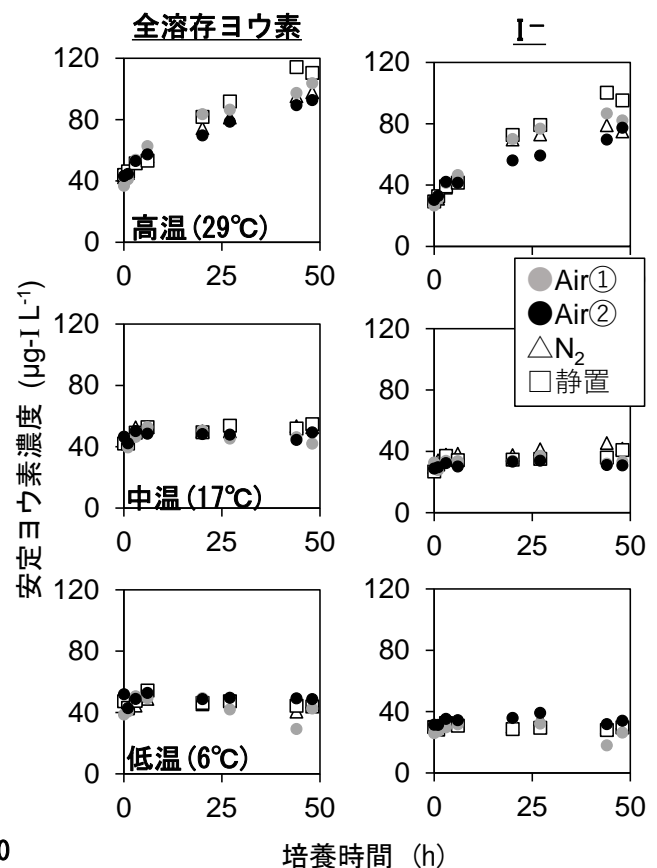


図1.10 培養時間 (h)  
\*凡例のAir及び $N_2$ は空気及び窒素を通気、静置は通気無しの各条件を表す。

経時変化の一次回帰式より算出した。水温と溶出フラックスは明確な比例関係にあった(図1.11)。また、より短時間の培養データから求めたフラックスの方が長時間のものより高い傾向にあった。これは、上述のように、堆積物への吸着反応に起因すると考えられる。これらの結果より、ヨウ素の溶出フラックスを評価する上で水温及び培養時間が重要な規定要因であることが示唆された。特に培養時間に関しては、尾駮沼の堆積物直上における水の滞留時間があまり長くない(<1時間)ことを勘案すると、より短時間の培養データから評価することが適切であると考えられた。

次に、季節間における堆積物の性状の変化が直上水へのヨウ素の溶出フラックスに与える影響を把握するため、実験①とは異なる季節に採取した柱状堆積物試料を用いた溶出実験を実施した(表1における実験④)。本実験で用いた堆積物は実験①と比べて炭素/窒素比(重量比)が顕著に高く(実験①:8.7、実験④:12.1)、これは実験④で用いた堆積物には尾駮沼の内部で生産された有機物(主にプランクトン起源)が少なかったことを示唆している。また、実験④においては実験①と同様に複数の温度条件を設定したが、この際、実験①の結果を勘案して、溶出が顕著である高温域を重点的な調査対象とした。実験④より推定された溶出フラックスを実験①の結果と併せて示す(図1.12)。

溶出フラックスの算出に際しては両実験共に同一条件で行ったものの、実験④の方が明確に低い傾向にあった。この要因を調査するために、直上水中の $I^-$ 及び $SO_4^{2-}$ の各濃度の関係を解析した。 $SO_4^{2-}$ は海水中に普遍的に存在するが、堆積物中の間隙水の拡散によって供給されるイオン種でもある。実験④では両イオン濃度間に相関性が確認された一方、実験①では認められなかった(図1.13)。このことは、実験④では $I^-$ 濃度の変動が主に高濃度の $I^-$ を含む堆積物中の間隙水の拡散によって制御されていた一方、実験①ではこの拡散以外の要因が強く作用したことを示唆する。ここで実験①における間隙水以外の制御要因としてプランクトン由来有機物の分解が考えられる。水圏環境において水中のヨウ素はプランクトンに取り込まれた後に沈降粒子として堆積物上へ供給される<sup>10) 11)</sup>。したがって、堆積物表層にプランクトン由来の有機物が豊富に存在する場合、その有機物の分解に伴って堆積物の直上水中へのヨウ素の溶出が増加する。実験①で用いられた堆積物は、上述の炭素/窒素比で示されたように、実験④の堆積物よりも多くのプランクトン由来の有機物を含んでいたことが示唆される。すなわち、実験④におけるヨウ素の溶出フラックスは主に間隙水の拡散のみに依存していた一方で、実験①ではこの間隙水に加えてプランクトン由来有機物の分解からもフラックスが供給されていたため、図1.12で示されたように、実験①におけるヨウ素の溶出フラックスが高かったと考えられる。

以上より、安定ヨウ素の動態について得られた知見を総括すると、堆積物から直上水へのヨウ素の溶出フラックスについて、(1)水温に強く依存する一方で水中の酸素条件にはあまり影響されないこと、

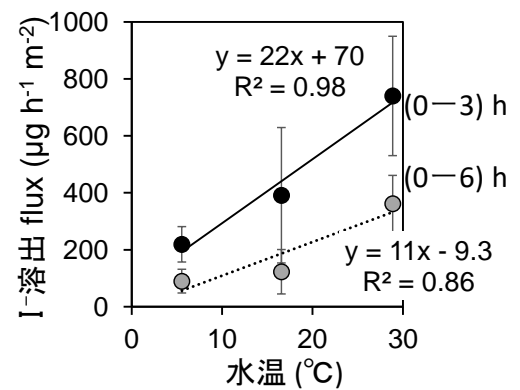


図1.11 水温とヨウ素の溶出フラックスの関係  
\*プロットされたデータは各通気条件のデータを合わせた平均値でバーはそれらの標準偏差(n = 4, 1σ)を表す。

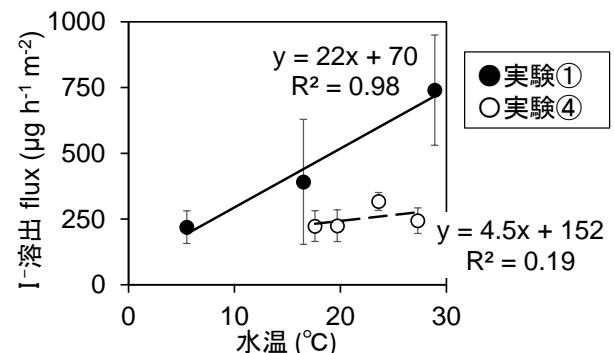


図1.12 実験①及び④における溶出フラックス

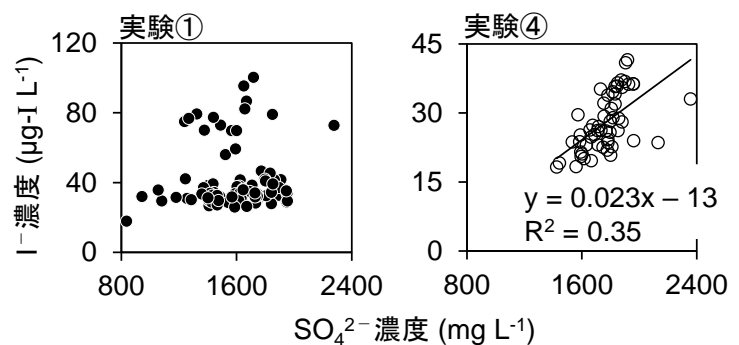
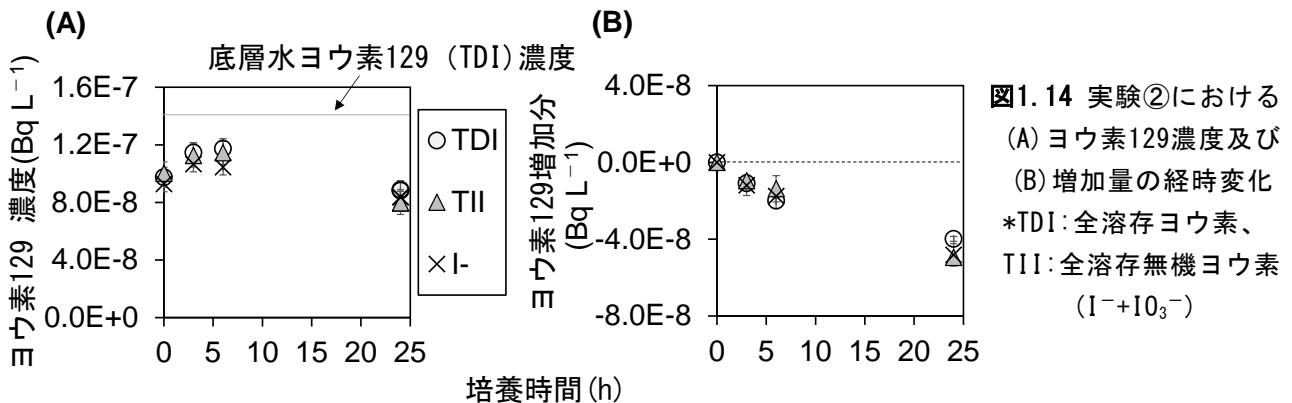


図1.13  $I^-$ 及び $SO_4^{2-}$ の各濃度の関係

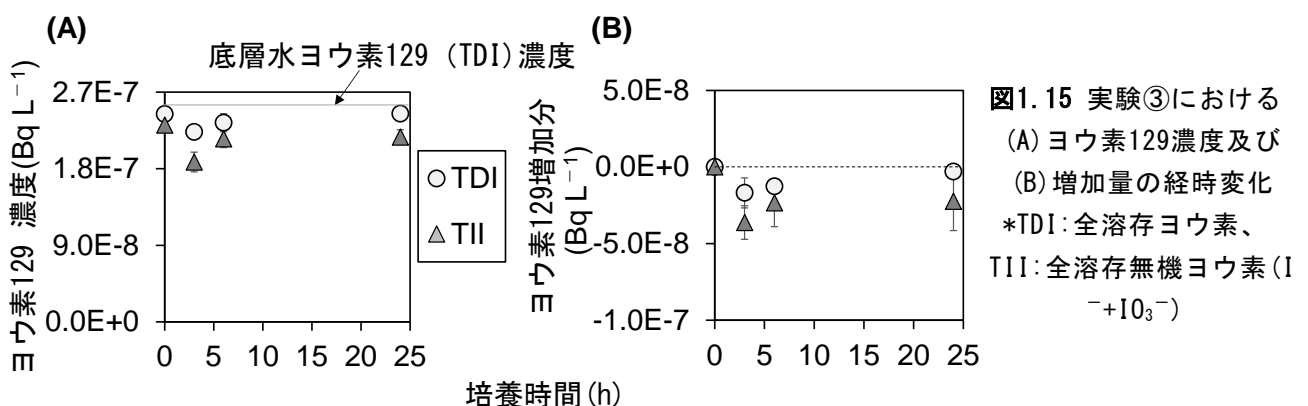
(2) 培養時間の増加に伴って減少すること、(3) 堆積物の性状(プランクトン由来有機物の含有量)に依存して増減すること、そして溶出する際のヨウ素の化学形態として $I^-$ が主体であることが明らかとなった。

#### 4.2 ヨウ素129の動態

柱状堆積物試料を用いたヨウ素溶出実験においては、経時的に試料を回収する際、実験系内における堆積物と直上水の量的な比率の変化を避けるため、試料回収ごとに予め採水しておいた現場環境中の底層水を補うという操作を行った。この際、安定ヨウ素のみを対象とした実験では、一度に回収する水量が全体の5%程度だったので、実験系内の直上水中のヨウ素濃度に対して補った底層水の影響はほとんど無く、直上水中のヨウ素濃度の経時変化から直接的に溶出フラックスを求めることが可能であった。一方でヨウ素129の評価を行う実験では、ヨウ素129の測定のために多量(全体量の約50%)の試水の回収が必要となるため、単純な濃度変化から溶出フラックスを求めることが出来ない。そこでヨウ素129に関しては、試料採取前後における堆積物直上水及び底層水の各々に含まれていたヨウ素129量から、試料採取前後におけるヨウ素129の増加量を算出した。ヨウ素129に関して溶出実験を行った表1における実験②の結果を図1.14に示す。図1.14(A)ではヨウ素129濃度の経時変化、図1.14(B)では上述したように、試料採取前後からのヨウ素129の増加分を経時的に累積した値が記載されている。本実験は尾駁沼の湖心部



より採取した堆積物を用いており、水温条件を採取時の現場環境と同一にした上、好気条件下で培養を行った。なお、これらの条件は4.1項で記載した安定ヨウ素の結果を元に設定したものである。また、図1.14における各化学形態の凡例は、ヨウ素129の化学形態別測定の違いを分かりやすくするための表記である。まず実験②において各化学形態の濃度は試料採取の時間によらず概ね同一であった(図1.14(A))。このことから、直上水中に存在したヨウ素129の大部分は $I^-$ であったと考えられる。加えて、直上水中のヨウ素129は培養の進行に伴って減少する傾向が観察された(図1.14(B))。これは堆積物から直上水へのヨウ素129の溶出がほとんど無かったことを意味する。また、実験②と同様の実験を尾駁沼の西で採取した堆積物についても実施した(表1における実験③)。こちらの実験ではヨウ素129の分析費用の関係上、2種類の化学形態についてのみ測定を行った。この実験の結果、実験②と同様に、直上水中のヨウ素



129が培養の進行に伴って減少する傾向が観察された(図1.15(B))。これら実験②及び③の結果から、現状において尾駁沼の堆積物に蓄積しているヨウ素129は直上水中へほとんど溶出しないことが示唆された。

尾駁沼の湖心部において堆積物の間隙水中のヨウ素129濃度を測定した結果を図1.16に示す。安定ヨウ素の測定結果より間隙水中のヨウ素の化学形態が主に無機態であったこと及びヨウ素129の分析費用に限りがあったことから、全溶存態無機ヨウ素(TII:  $I^- + IO_3^-$ )としてのみヨウ素129を測定した。間隙水中のヨウ素129濃度には堆積物上層において直上水にかけての明確な濃度勾配が確認された。このように間隙水中においてヨウ素129濃度が高くなる傾向が確認されたことは、堆積物中のヨウ素129に水溶性画分(イオン性や水抽出性の各画分)が含まれていたことに対して整合的である(図1.17)。堆積物間隙水中におけるヨウ素129の鉛直方向への濃度勾配を基に堆積物から直上水への拡散によるヨウ素129の移行フラックスを算出すると、 $1.1 \times 10^{-6} \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ となった。その一方で、実験②の溶出実験において推定されたヨウ素129の溶出フラックスは、 $-(0.56-1.7) \times 10^{-6} \text{ Bq m}^{-2} \text{ h}^{-1}$ であった。つまり間隙水の拡散は溶出実験で推定された負の溶出フラックス(堆積物への吸着フラックス)によって相殺される程度の大きさであった。したがって、間隙水の拡散による直上水へのヨウ素129の移行フラックスは存在するものの、堆積物への速やかな吸着によって、この拡散は直上水中のヨウ素129濃度にはほとんど影響していないことが示唆される。

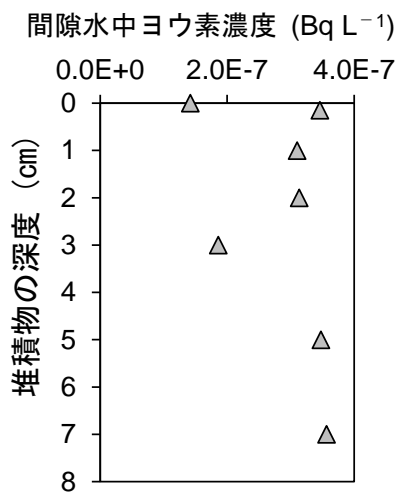


図1.16 堆積物間隙水中のヨウ素129濃度

以上より、現状の尾駁沼におけるヨウ素129の動態について得られた知見を総括すると、間隙水からの拡散による移行よりも堆積物への吸着が卓越するために溶出フラックスがほとんどないことが明らかとなった。ここで安定ヨウ素で得られた知見を振り返ると、安定ヨウ素では堆積物試料を用いたヨウ素の溶出実験においても直上水への溶出が十分に確認されており、これは堆積物への吸着よりも溶出のフラックスが卓越していたことを意味する。このようにヨウ素129と安定ヨウ素の各動態に差が生じた要因として、堆積物表層の有機物に含まれるヨウ素中の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比が低かったことが推測される。安定ヨウ素の結果より、堆積物から直上水へ溶出するヨウ素は間隙水及び堆積物表層の有機物に由来し、その中で後者の寄与の程度が溶出フラックスの大きさを強く制御していることが示唆されている。したがって、堆積物表層の有機物中にヨウ素129があまり含まれていなければ(すなわち、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比が小さければ)、本調査で観測されたヨウ素129の動態を説明可能である。ここで、堆積物表層の有機物は主に植物プランクトンに起因し、この植物プランクトンは水中から体内へヨウ素を取り込む。また、尾駁沼の水中のヨ

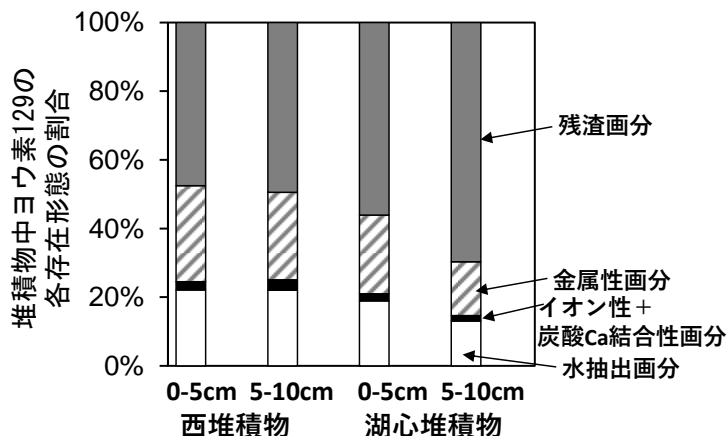


図1.17 堆積物中ヨウ素129の化学組成

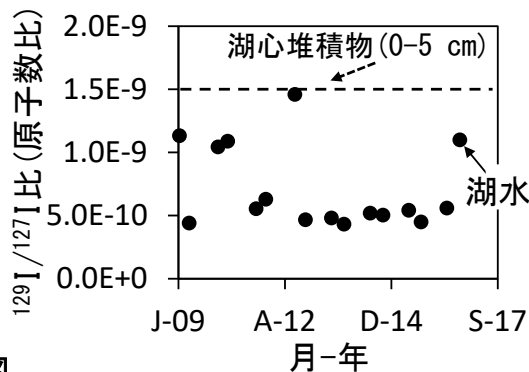


図1.18 尾駁沼の湖心部における堆積物中のヨウ素129と安定ヨウ素の原子数比  
\*各データは環境科学技術研究所の報告書より参照

ウ素は、再処理施設の試験操業以降（2009年～）、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比が堆積物に比べて顕著に低い状態が継続されている（図1.18）。このようなことから、現状の尾駸沼において堆積物からのヨウ素129の溶出が認められない理由として堆積物表層の有機物中におけるヨウ素129の含有率が低いためであるとする説は妥当であると考えられる。

本調査結果の総括として安定ヨウ素及びヨウ素129の各々の動態における模式図を図1.19に示す。安定ヨウ素に関しては、①有機物の分解及び②間隙水の拡散による溶出が③の吸着を凌ぐため、直上水への溶出フラックスが観察された。一方でヨウ素129に関しては、①の経路が小さいため③を上回ることが出来ず、溶出が観察されなかった。本研究の成果は、現状の尾駸沼堆積物に蓄積したヨウ素129の行方を把握する上で重要な知見である。また、安定ヨウ素の解析を合わせて得られたヨウ素動態全般に関する知見は、将来的な再処理施設の本格稼働時におけるヨウ素129の動態予測にとっても有用である。具体的には、本研究で得られた知見に基づくと、本格稼働に伴って尾駸沼の湖水中のヨウ素の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比が増加する際には堆積物表層の有機物中のヨウ素129含有率が増加し、堆積物から直上水へのヨウ素129の溶出フラックスが観察されることが予測される。また、この時のフラックスの定量的な予測に対しては安定ヨウ素で得られた成果の活用が期待される。なお、ヨウ素129に関する研究成果の詳細の一部については、Satoh and Imai (2021)<sup>6)</sup>を参照されたし。

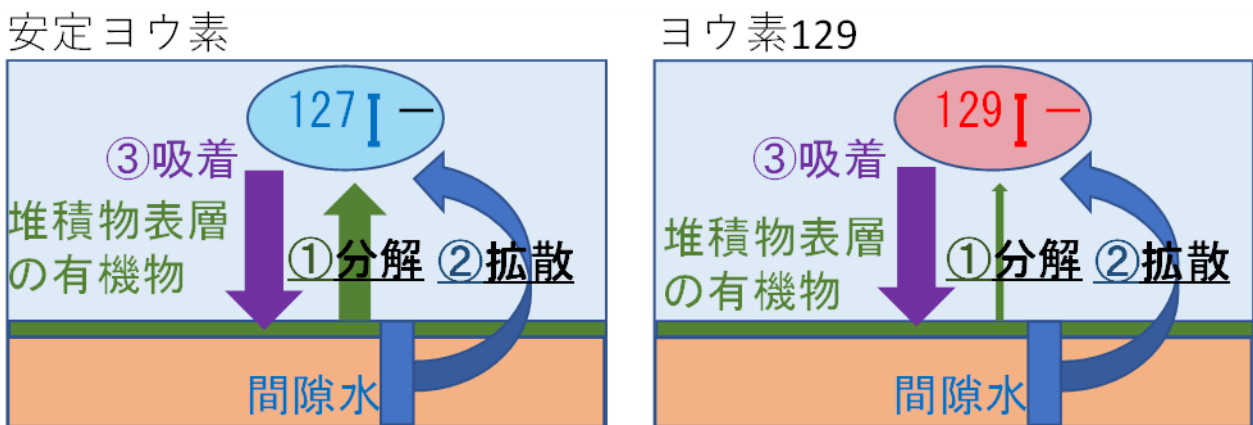


図1.19 尾駸沼の堆積物-直上水間における安定ヨウ素及びヨウ素129の各々の動態

## 5. 研究目標の達成状況

当初の目標は十分に達成された。再処理施設の試験操業時に沿岸堆積物へと蓄積したヨウ素129に関して、現状においては海水中への再溶出はほとんど無いことを明確に示した。これは既に研究論文として公表されている<sup>6)</sup>。さらに、本調査の成果により堆積物から海水へのヨウ素の溶出経路に関する詳細な知見が得られた<sup>5)6)</sup>。これは本研究で目標としていたヨウ素129の溶出状況の現状把握だけでなく、将来的な再処理施設の本格操業時におけるヨウ素129の動態予測にとっても有用な知見となる。また、本研究で得られた知見は、その他の地域（福島沿岸等）における人為起源の放射性核種の動態解析にとっても役立つことが期待される。

## 6. 引用文献

- 1) Ueda, S., Kakiuchi, H., Hisamatsu, S. 2018. Inventory of  $^{129}\text{I}$  in brackish lake sediments adjacent to a spent nuclear fuel reprocessing plant in Japan. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 318, 89-96.
- 2) Satoh, Y., Ueda, S., Kakiuchi, H., Ohtsuka, Y., Hisamatsu, S. 2020. Concentrations of iodine-129 in coastal surface sediments around spent nuclear fuel reprocessing plant at Rokkasho, Japan, during and after its test operation. *Journal of Radioanalytical and Nuclear*

*Chemistry*, 322, 2019-2014.

- 3) Satoh, Y., Kakiuchi, H., Ueda, S., Akata, N., Hisamatsu, S. 2019. Concentrations of iodine-129 in livestock, agricultural, and fishery products around spent nuclear fuel reprocessing plant in Rokkasho, Japan, during and after its test operation. *Environmental Monitoring and Assessment*, 191, 61.
- 4) Imai, S., Tani, T., Ishikawa, Y., Tako, Y., Takaku, Y., Himamatsu, S. 2020. Short-term metabolism of biologically incorporated  $^{125}\text{I}$  ingested by olive flounder (*Paralichthys olivaceus*). *Journal of Environmental Radioactivity*, 214-215, 106161.
- 5) Satoh, Y., Imai, S. 2020. Evaluation of dissolution flux of iodine from brackish lake sediments under different temperature and oxygenic conditions. *Science of the Total Environment*, 717, 135920.
- 6) Satoh, Y., Imai, S. 2021. Evaluation of radioiodine ( $^{129}\text{I}$ ) dissolution from sediment of a brackish lake beside a spent nuclear fuel reprocessing plant in Japan. *Journal of Environmental Radioactivity*, 233, 106608.
- 7) Hou X. L., Fong, C. L., Kucera, J., Andersson, K. G., Dahlgaard, H., Nielsen, S. P. 2003. Iodine-129 and Caesium-137 in Chernobyl contaminated soil and their chemical fractionation. *Science of the Total Environment*, 308, 97-109.
- 8) Ullman, W. K., Aller, R. C. 1980. Dissolved iodine flux from estuarine sediments and implications for the enrichment of iodine at the sediment water interface. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 44, 1177-1184.
- 9) Kennedy, H. A., Elderfield, H. 1987. Iodine diagenesis in pelagic deep-sea sediments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 51, 2489-2504.
- 10) Wong, G. T. F., Brewer, P. G. Spencer, D. W. 1976. The distribution of particulate iodine in the Atlantic Ocean. *Earth and Planetary Science Letters*, 32, 441-450.
- 11) de la Cuesta, J. L., Monley, S. L. 2009. Iodine assimilation by marine diatoms and other phytoplankton in nitrate-replete conditions. *Limnology and Oceanography*, 54, 1653-1664.

## II-2 堆積物から底生魚へのヨウ素129の移行過程の評価

環境科学技術研究所

環境影響研究部 研究員 今井祥子

環境影響研究部 研究員 佐藤雄飛

### [要旨]

使用済み核燃料再処理施設に隣接する汽水湖の尾駁)から採取した堆積物を用いて、堆積物存在下における底生魚(ヒラメ及びマコガレイ)の飼育実験を実施し、堆積物から底生魚へのヨウ素移行について検討することを目的とした。堆積物から海水中へ溶出したヨウ素を魚体内に直接的に取り込む経路、堆積物からヨウ素を取込んだ底生動物を摂餌することにより魚体内に間接的に取り込む経路を想定したが、実験に用いた底生魚が底生動物を摂餌しなかったため、前者の経路について検討する実験区を設定し、ヒラメ及びマコガレイの56日間に及ぶ飼育実験を各々実施した。堆積物存在下では、海水中へヨウ素が溶出してヨウ素濃度が増加すると想定していたが、実験期間中の海水中ヨウ素濃度を測定した結果、想定とは異なり海水中ヨウ素濃度が減少していた。底生動物を飼育するための予備検討において、堆積物へのヨウ素吸着が確認されていたが、魚類飼育実験においても同様の現象が確認された。海水中のヨウ素濃度が経時的に増加していなかったため、ヒラメ及びマコガレイ筋肉中のヨウ素濃度も経時的な増加を示さなかった。ヒラメ飼育実験における実験区では、実験期間14日までに海水中ヨウ素濃度の一時的に増加し、それに伴ってヒラメ筋肉中ヨウ素濃度が高い個体が認められたことから、海水中ヨウ素のヒラメ体内への移行も確認された。また、ヒラメの一部試料に関しては、部位別のヨウ素濃度を測定した結果、エラが最も高く、筋肉が最も低い濃度を示し、体内の部位によってヨウ素濃度が異なることが明らかになった。また、放射性ヨウ素125(以下、 $^{125}\text{I}$ と示す)をトレーサとして飼育実験を実施し、作成した既報の $^{125}\text{I}$ 短期移行モデルを用いて、本調査の筋肉中ヨウ素濃度を計算した結果、海水中のヨウ素濃度が減少、餌料からのヨウ素取込が一定量であった本調査の飼育条件下では、海水からよりも餌料中ヨウ素の取込寄与の方が結果的に高くなることが明らかになった。

### 1. 研究開発目的

六ヶ所村にある使用済み核燃料再処理施設(以下、再処理施設と示す)が稼働した場合、沖合3 km、水深44 mに設置された海洋放出口を経て、六ヶ所村沿岸海域へと放射性ヨウ素等の放射性核種が排出される<sup>1)</sup>。海洋排出された放射性核種は、海水中で速やかに拡散及び希釈されるが、海洋生物への影響評価、さらにはヒトにおける食物としての海産物摂取を考慮した場合、海洋生物への放射性核種の移行について把握しておく必要がある。

海産物における放射性核種の取込は、海水中に含まれる核種を直接取り込む経路と、餌生物に含まれる核種を間接的に取り込む経路に大別される。これまで報告されている海産物に対する放射性ヨウ素の移行に関しては、海水経由の取込に関するトレーサ実験が主である<sup>2)</sup><sup>3)</sup>。環境科学技術研究所においても、青森県の魚であるヒラメ(*Paralichthys olivaceus*)を用いて、海水経由の放射性ヨウ素 $^{125}\text{I}$ に関して検討する海水ばく露実験<sup>4)</sup>、餌料経由の $^{125}\text{I}$ 取込に関して検討する摂餌実験<sup>5)</sup><sup>6)</sup>の二つの短期移行実験を実施した。

六ヶ所村の再処理施設では、2006年から2008年の間、使用済み核燃料を用いた操業試験を实

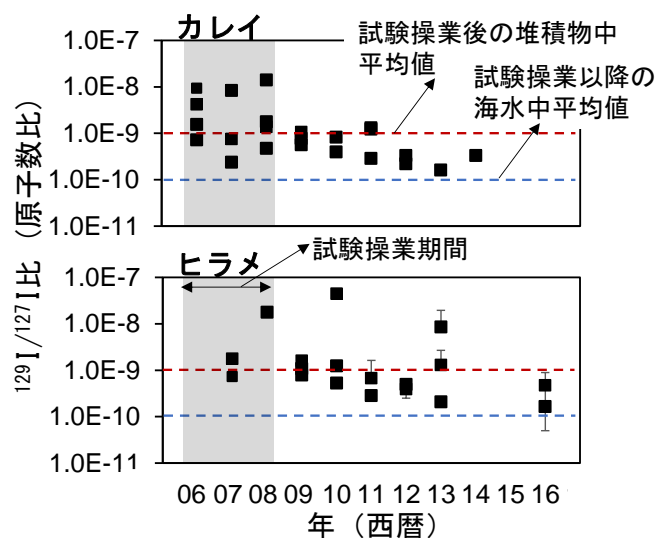


図 2.20 青森県太平洋沿岸域で採取されたカレイ及びヒラメの可食部(筋肉)中の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比

\*各データはSato et al. (2019 and 2020)及びUeda et al. (2018)より参照

施しており、この際に環境中へ放射性ヨウ素 $^{129}\text{I}$ （以下、 $^{129}\text{I}$ と示す）が排出された。この排出された $^{129}\text{I}$ は海水中で速やかに拡散し、現状では、海水中の水準は試験前と概ね同水準である一方、湖沼堆積物においては試験前より高めの水準を維持している。試験期間中から六ヶ所村沿岸で採取しているカレイ及びヒラメ等の底生魚においても、高水準を示す個体が観察されており（図2.20）、海水中の $^{129}\text{I}$ の水準が試験前と同程度であることを考慮すると、堆積物から底生魚への $^{129}\text{I}$ の移行がその要因の一つであると推測される。しかしながら、堆積物存在下における底生魚の飼育に関する報告はほとんどないのが現状である。そこで、本調査では、再処理施設及び太平洋に隣接する汽水湖である尾駁沼から堆積物を採取し、その堆積物存在下における底生魚の飼育実験を実施、底生魚へのヨウ素移行について検討することを目的とした。

## 2. 研究目標

ヨウ素 $^{129}\text{I}$ の蓄積した堆積物と共に底生魚の飼育実験を行い、堆積物から底生魚へのヨウ素 $^{129}\text{I}$ の移行の有無を確認する。この飼育実験は2種類（カレイ及びヒラメ）の底生魚について実施する。また、底生生物（ゴカイ等）を加えた/加えない実験系をそれぞれ設置し、底生魚へのヨウ素 $^{129}\text{I}$ の移行に対する食物連鎖の重要性について評価する。加えて、底生魚へのヨウ素 $^{129}\text{I}$ の移行が確認された場合、その際の移行速度を評価する。

## 3. 研究開発内容

### 3.1. 堆積物存在下における魚類飼育実験のための予備検討

#### 3.1.1. 堆積物を用いた底生動物飼育条件の検討

魚類に投与するゴカイ試料を作製するため、まずは堆積物を用いたゴカイの飼育条件の検討を行った。尾駁沼から堆積物を採取し、孔径 $2\text{ mm}$ のふるいにかけて貝殻や動物等を取り除いた。採取した堆積物の粒度分布を調べた結果、採取した尾駁沼の堆積物平均粒子径が $15.8 \pm 1.0\ \mu\text{m}$ と比較的細かいことが分かった。そのため、堆積物に異なる割合のガラスビーズ（粒径 $1\sim 2\text{ mm}$ ）を混合、堆積物のみの区（以下、堆積物 $100\%$ 区と示す）、堆積物及びガラスビーズを $3:1$ で混合した区（以下、堆積物 $75\%$ 区と示す）、堆積物及びガラスビーズを $1:1$ で混合した区（以下、堆積物 $50\%$ 区と示す）の3区を設け、堆積物の平均粒径を調整した各実験区を設置した。ゴカイの飼育には、側面にナイロン製メッシュの通気口が施されているポリエチレン製容器（ $W65 \times D65 \times H98\text{ mm}$ ）に高さ $50\text{ mm}$ 程度の各堆積物を添加し、平均体重 $0.24 \pm 0.05\text{ g-wet}$ （平均値 $\pm$ 標準偏差、 $n = 136$ ）のゴカイを1容器あたり5尾ずつ収容した。ポリエチレン製容器は、小型コンテナに収容し、むつ小川原港で採水した海水で満たし、エアレーション及び小型ポンプで海水が流動させた（図2.21）。各々の条件下で14日間ゴカイを無給餌で飼育し、生存率、溶存酸素（DO）及びpH等の水質に対する影響に関して検討した。

また、ゴカイを飼育している海水を経時的に採水し、海水中の溶存態有機炭素濃度（DOC）を全有機炭素計、海水中の安定ヨウ素 $^{127}\text{I}$ （以下、 $^{127}\text{I}$ と示す）濃度を誘導結合プラズマ質量分析計（ICP-MS）及び液体クロマトグラフを接続したICP-MSにて測定した。

さらに、回収したゴカイを凍結乾燥及び粉砕した後、 $25\%$ テトラメチルアンモニウムヒドロキシド（TMAH） $5\text{ mL}$ を添加して $80^\circ\text{C}$ で一晩加熱し、放冷後、超純水で希釈した上で遠心分離した上清中の全 $^{127}\text{I}$ 濃度をICP-MSにて測定した。

さらに、回収したゴカイを凍結乾燥及び粉砕した後、 $25\%$ テトラメチルアンモニウムヒドロキシド（TMAH） $5\text{ mL}$ を添加して $80^\circ\text{C}$ で一晩加熱し、放冷後、超純水で希釈した上で遠心分離した上清中の全 $^{127}\text{I}$ 濃度をICP-MSにて測定した。

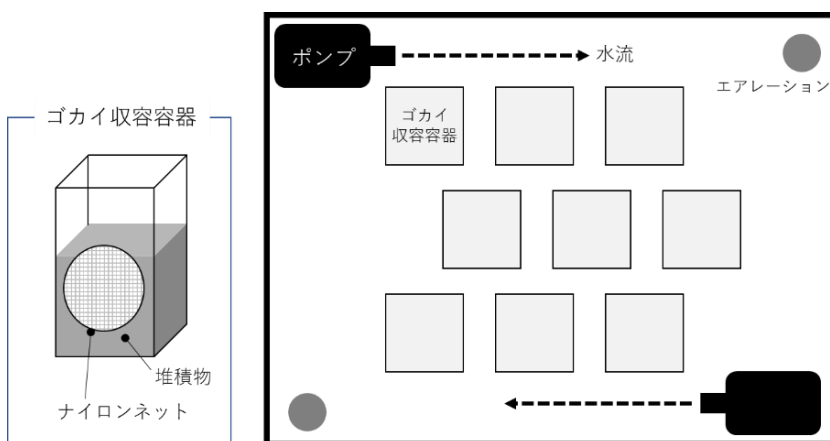


図 2.21 ゴカイ飼育における収容容器及び飼育状況



### 3.1.2.魚類飼育水槽への堆積物添加方法の検討

堆積物存在下における魚類の飼育を実施するため、魚類を飼育する水槽への堆積物の添加方法について検討した。まず、添加していない水槽中へ堆積物を添加した後、海水を緩やかに追加する方法（以下、直接添加法と示す）を試行した。魚類の長期飼育には、水温を維持するための水冷クーラー及び溶存酸素を維持するためのエアレーションが必須であるため、この二つを水槽に設置した状態で放置し、水槽内の変化について観察した。

また、446 × 327 mm及び324 × 234 mmサイズのバットに高さ40 mm程度まで堆積物を収容し、園芸用鉢底ネット及びプランクトンネットで覆った後、水槽内へ設置する方法（以下、バット添加法と示す）を試行した（図2.22）。直接添加法同様、水冷クーラー及びエアレーションを設置し、水槽内の変化について観察した。

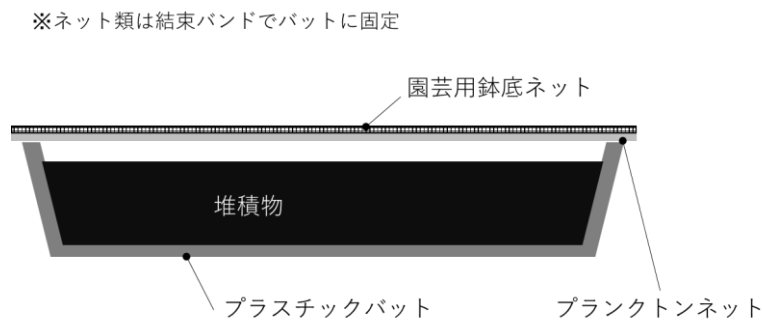


図 2.22 バット添加法による堆積物の収容方法

## 3.2.堆積物存在下における魚類飼育実験

### 3.2.1.堆積物存在下におけるヒラメ飼育実験（令和元年度）

予備検討結果により、水槽へ海水及び堆積物を添加した対照区①、ヒラメ及び海水を添加した対照区②、ヒラメ、海水及び堆積物を添加した実験区①、実験区①の条件にゴカイを投与する実験区②を設置し、63日間の飼育実験を実施した。光周期は12時間明条件及び12時間暗条件とした。休日を除き、市販の配合餌料（おとひめEP-2、日清丸紅飼料株式会社）を投与し、その投与量を記録した。排泄物等を回収及び排水する際に、水槽の20%に相当する海水量を交換した。実験期間中、DO及びpH等の水質を測定するとともに、経時的に海水を採水し、DOC及びヨウ素濃度を測定した。また、実験17、28、42、48及び67日後にヒラメを回収し、筋肉等に腑分けをした後、凍結乾燥、粉碎処理を施してヨウ素分析用試料とした。<sup>127</sup>Iを分析するための前処理としては、前述のゴカイ試料と同様、粉碎した乾燥試料を25%TMAHで80℃一晩加熱した後、超純水で希釈した上で遠心分離した上清をICP-MSにて測定した。<sup>129</sup>Iを分析するための前処理としては、粉碎した乾燥試料の燃焼処理等を実施し、AMS測定にて測定した。

### 3.2.2.堆積物存在下におけるヒラメ飼育追加実験（令和2年度）

ヒラメ飼育実験同様、追加実験においても対照区①、対照区②、実験区①及び実験区②を設け、56日間の飼育実験を実施した。光周期は、12時間明条件及び12時間暗条件とした。休日を除き、市販の配合餌料（おとひめEP-2、日清丸紅飼料株式会社）を投与し、その投与量を記録した。排泄物等を回収及び排水する際に、水槽の20%に相当する海水量を交換した。実験期間中、DO及びpH等の水質を測定するとともに、経時的に海水を採水し、DOC及び各<sup>127</sup>I濃度を測定した。さらに、海水中の硝酸イオン等の窒素濃度の測定を行った。令和元年度の実験と比較して、初期のサンプリング間隔を短くし、実験1、2、4、7、10、14、22、28、36、42、45、49、52及び56日後にヒラメを回収し、筋肉等に腑分けをした後、凍結乾燥、粉碎処理を施してヨウ素分析用試料とした。前処理方法は、令和元年度と同様に実施した。

### 3.2.3.堆積物存在下におけるマコガレイ飼育実験

ヒラメ飼育追加実験同様、マコガレイ (*Pseudopleuronectes yokohamae*) 飼育実験においても対照区①、

対照区②、実験区①及び実験区②を設け、56日間の飼育実験を実施した。光周期は12時間明条件及び12時間暗条件とした。休日を除き、市販の配合餌料（おとひめEP-2、日清丸紅飼料株式会社）を投与し、その投与量を記録した。排泄物等を回収及び排水する際に、水槽の20%に相当する海水量を交換した。実験期間中、DO及びpH等の水質を測定するとともに、経時的に海水を採水し、DOC及び各 $^{127}\text{I}$ 濃度を測定した。さらに、海水中の各種無機イオン（硝酸イオン、リン酸イオン等）の測定を行った。ヒラメ追加実験同様、サンプリング間隔を短くし、実験1、2、4、7、10、14、21、28、35、42、45、50、53及び56日後にマコガレイを回収し、筋肉等に腑分けをした後、凍結乾燥、粉碎処理を施してヨウ素分析用試料とした。全 $^{127}\text{I}$ 及び全 $^{129}\text{I}$ 測定のための前処理は、ヒラメ追加実験と同様に実施した。

#### 4. 結果及び考察

##### 4.1. 堆積物存在下における魚類飼育実験のための予備検討

###### 4.1.1. 堆積物を用いた底生動物飼育条件の検討

飼育期間中の水質は、水温が $16.3 \pm 0.2^\circ\text{C}$ 、DOが $7.80 \pm 0.11 \text{ mg L}^{-1}$ 、酸素飽和度が $99.7 \pm 0.95\%$ 、pHが $8.09 \pm 0.05$ であった。海水中DOCを測定した結果、実験期間とともに経時的な増加し、実験終了時の14日では、初期値に対して160%程度の濃度を示した。実験期間中の水質に関して、実験区間の差及び大きな変動は認められなかった。

実験7日及び14日後に容器からゴカイを回収し、生残数を計数するとともに、海水中で一晩泥吐きをさせた後、湿重量を測定した。実験7日時、全条件ともに死亡個体は認められず、生残率は100%であった。また、回収時のゴカイ体重は、 $0.26 \pm 0.06 \text{ g-wet}$ であった。一方、実験14日時、堆積物100%区では死亡個体が認められ、生残率が90%であったが、その他の2区では生残率が100%であった。また、回収時のゴカイ体重は、 $0.25 \pm 0.08 \text{ g-wet}$ であった。

実験期間中、生存に影響を及ぼすような水質の変動は認められず、どの実験区も90%以上の生残率を維持していたことから、実施した飼育条件下において、尾鰭沼の堆積物のみでゴカイを飼育することが可能であることが明らかになった。

また、海水中の安定ヨウ素濃度（全 $^{127}\text{I}$ 、 $^{127}\text{I}$ 及び $^{127}\text{IO}_3^-$ ）を測定した結果、全ての化学形態において経時的に減少し、実験開始時に対して実験終了までに全 $^{127}\text{I}$ 濃度は12~14%程度に、 $^{127}\text{I}$ 濃度は8~9%程度に、 $^{127}\text{IO}_3^-$ 濃度は0.1~2%程度の値となった。海水中的ヨウ素濃度が低下した要因に関して把握するため、堆積物のみの区（以下、堆積物追加区）、ガラスビーズのみの区（以下、ガラスビーズ区）を用いてゴカイを28日間飼育する追加実験を実施し、海水中ヨウ素濃度を測定した。飼育期間中の水質は、水温が $17.4 \pm 0.2^\circ\text{C}$ 、DOが $7.87 \pm 0.06 \text{ mg L}^{-1}$ 、酸素飽和度が $101.4 \pm 0.6\%$ 、pHが $8.14 \pm 0.05$ であった。海水中的全 $^{127}\text{I}$ 濃度は、実験開始時に対して実験28日では、堆積物追加区が28%に、ガラスビーズ区が89%の値を示し、堆積物を使用した区では海水中ヨウ素濃度が低下していることが明らかになった。海水中形態別ヨウ素濃度を測定した結果、堆積物追加区で最も濃度が低下したのは $^{127}\text{IO}_3^-$ であり、初期値に対して11%程度の値を示した。

さらに、ゴカイの $^{127}\text{I}$ 濃度は、実験開始時が $17.4 \pm 2.8 \mu\text{g g}^{-1}\text{-wet}$ 、実験終了時である14日後の実験区（堆積物100%区、堆積物75%区及び堆積物50%区）が $16.6 \sim 22.6 \mu\text{g g}^{-1}\text{-wet}$ の範囲であった。実験に使用した堆積物の $^{127}\text{I}$ 濃度は $61 \mu\text{g g}^{-1}\text{-dry}$ であった。

###### 4.1.2. 魚類飼育水槽への堆積物添加方法の検討

堆積物存在下における魚類の飼育を実施するため、飼育する水槽への堆積物の添加方法について検討した。直接添加法では、4日以上放置しても、堆積物の細かい粒子の舞い上がりは収まらなかった。この条件下で魚類を追加した場合、魚類の遊泳や潜り行動等により、さらに粒子の舞い上がりが生じると推測されるため、飼育することは困難であると判断した。

バット添加法では、プランクトンネットで覆っているため、堆積物の粒子の舞い上がりは生じなかった。この条件下であれば魚類の飼育は可能であるが、魚類が堆積物に触れるという事象は起こらないため、堆積物から海水中へ溶出したヨウ素のみを取込む経路のみを想定することができる。

## 4.2.堆積物存在下における魚類飼育実験

### 4.2.1.堆積物存在下におけるヒラメ飼育実験（令和元年度）

予備検討結果から、バット添加法による堆積物の添加方法を選択し、水槽内へヒラメを収容して63日間飼育した。実験に用いたヒラメの開始時体重は、 $30.5 \pm 4.9$  g-wetであった（ $n=100$ ）。実験区②のヒラメに対して、事前に尾駁沼の堆積物で7日間飼育したゴカイの投与を5日間実施したが、ゴカイを摂餌しないという結果になった。ヒラメは発育段階ごとに特定の餌生物に比較的強く依存する狭食性の魚種であるとされており<sup>7)</sup>、実際に先行研究において放射性ヨウ素である $^{125}\text{I}$ をトレーサとした餌由来の移行について検討した $^{125}\text{I}$ 摂餌実験<sup>5) 6)</sup>を実施した際、餌候補であったエゾアワビやヒメダカを実験前に事前投与し、摂餌行動を示すか確認を行った後に実験に供した。 $^{125}\text{I}$ は周囲からの汚染（コンタミネーション）が起こりにくい人為起源の短半減期放射性核種である一方、本実験のターゲットである $^{129}\text{I}$ 及び $^{127}\text{I}$ は実環境中（海水及び市販の配合餌料）にも存在するため、事前にゴカイの摂餌確認を実施できなかった。5日間ゴカイ投与を実施したが、摂餌に至らなかったため、実験区②をすべて、市販の配合餌料を投与する実験区①へと変更した。

すべての実験区において、実験16日まで死亡する個体は認められなかったが、17日以降徐々に死亡する個体が増加し、最終的に9割近くの個体が死亡する水槽が認められた。対照区②における各水質は、水温が $14.9 \pm 0.2^\circ\text{C}$ 、DOが $7.71 \pm 0.53$  mg L<sup>-1</sup>、酸素飽和度が $95.5 \pm 6.7\%$ 、pHが $7.85 \pm 0.13$ であるのに対し、実験区①における各水質は、水温が $15.3 \pm 0.3^\circ\text{C}$ 、DOが $7.68 \pm 0.43$  mg L<sup>-1</sup>、酸素飽和度が $95.7 \pm 5.4\%$ 、pHが $7.78 \pm 0.13$ であり、両者に大きな差は認められなかった。海水中DOCを測定した結果、実験14日時点で最大 $4.6$  mg L<sup>-1</sup>まで増加していた実験区が認められた。また、実測的データは無いものの、堆積物を添加した対照区①及び実験区①からは硫黄臭が感じられた。実験に用いた堆積物を採取したのは10月であったが、過去に尾駁沼の水質を測定した植田ら<sup>8)</sup>によれば、採取した湖心部では8月から9月頃にかけて嫌気的な状況になりうるということが報告されている。海水中の硝酸濃度等濃度をあわせて測定したが、生存に影響を及ぼすような濃度は認められなかった。死亡した要因については明らかになっていないことに加え、半数以上の死亡が認められた実験であったため、これらのデータを用いて評価を行うことは困難であると判断し、令和2年度に再度飼育実験を行うこととした。

### 4.2.2.堆積物存下におけるヒラメ飼育追加実験（令和2年度）

令和元年度のヒラメ飼育実験の結果を受けて、堆積物存在下におけるヒラメ飼育追加実験を実施した。前回からの改善としては、尾駁沼の底層水嫌気的状况になりやすい時期を避けて採取した堆積物を用い、実験開始前に2日以上水冷クーラー等で水槽を馴致、ヒラメ収容直前に9割以上の海水を新しく入れ替えた点である。硝酸濃度等の変化を早めに把握するため、採水した海水試料を直ちに測定することとした。

令和元年度のヒラメ飼育実験同様、バット添加法による堆積物の添加方法を選択し、水槽内へヒラメを収容して56日間飼育した。実験に用いたヒラメの開始時体重は、 $14.4 \pm 1.7$  g-wetであった（ $n=90$ ）。実験区②のヒラメに対して、事前に尾駁沼の堆積物で7日間飼育したゴカイの投与を5日間実施したが、前回の実験同様、ゴカイを摂餌しない結果となった。そのため、実験区②をすべて実験区①に変更し、実験を継続した。追加実験では、一部のヒラメが水槽外へ飛び出したことにより死亡したが、それ以外の死亡個体は認められなかった。実験期間中の対照区②における各水質は、水温が $15.1 \pm 0.2^\circ\text{C}$ 、DOが $7.89 \pm 0.09$  mg L<sup>-1</sup>、酸素飽和度が $98.6 \pm 1.0\%$ 、pHが $7.81 \pm 0.09$ であるのに対し、実験区①における各水質は、水温が $15.4 \pm 0.3^\circ\text{C}$ 、DOが $7.89 \pm 0.11$  mg L<sup>-1</sup>、酸素飽和度が $98.7 \pm 7.4\%$ 、pHが $7.87 \pm 0.12$ であり、両者に大きな差は認められなかった。海水中DOCを測定した結果、最大で $2.9$  mg L<sup>-1</sup>であり、前回よりも濃度増加は小さかった。硝酸濃度等に関しても、生存に影響を及ぼすような濃度は認められなかった。

経時的に海水を採水し、化学形態別に安定ヨウ素濃度を測定した結果を図2.23に示す。対照区②の実験開始時に対する各ヨウ素濃度は、実験期間中に、全 $^{127}\text{I}$ が63%、 $^{127}\text{IO}_3$ が33%まで減少を示したのに対し、 $^{127}\text{I}$ が151%まで増加及び58%まで減少を示した。また、実験区①の実験開始時に対する各ヨウ素濃度は、全 $^{127}\text{I}$ が46%まで減少、 $^{127}\text{IO}_3$ が29%まで減少を示したのに対し、 $^{127}\text{I}$ が106%まで増加及び16%まで減少を

示した。対照区②及び実験区①の異なる点は、水槽内への堆積物添加有無であり、この両者の差分のヨウ素は、堆積物への吸着分であると推測される。サブテーマ1では、好気条件下において水中から堆積物へのヨウ素吸着が起こることを明示したが、本研究においても同様に堆積物へのヨウ素吸着が起きた結果、対象区②に比べて実験区①における水中のヨウ素濃度が低下したと考えられる。

海水同様、経時的にヒラメを回収し、腑分けした後、筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度を測定した。その結果を図2.24に示す。実験開始時における筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度は、 $0.067 \pm 0.006 \mu\text{g g}^{-1}\text{-wet}$  ( $n=5$ )であった、実験区①における筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度は、 $0.039$ から $0.145 \mu\text{g g}^{-1}\text{-wet}$ の範囲であった。また、実験期間中における体重あたりの餌料投与量は、対照区②が $2.2 \pm 0.6\%$ 、実験区①が $1.8 \pm 0.5\%$ であった。また、実験28日間までの一部の試料に関して、測定した筋肉中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比の結果を図2.24に示す。AMSによる測定が十分ではなく、解析可能なデータセットが揃わなかったため、参考値としてのデータである。実験14日間までの実験区において、筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度が個体によってばらついており、高い濃度を示す個体がいくつか確認された。図2.23に示したように、海水中 $^{127}\text{I}$ 濃度が増加しており、それに伴って筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度が高い個体が認められたと推測される。また、参考値としての取り扱いではあるが、実験14日間までの実験区において、同様に筋肉中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比の高い個体が確認された。海水中 $^{129}\text{I}$ のデータがなく、筋肉中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比のデータも参考値ではあるが、ヒラメ体内への $^{129}\text{I}$ の移行が生じた可能性が考えられる。実験14日以降、海水中 $^{127}\text{I}$ 濃度が減少を示したことから、筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度は横ばいになり、個体間のばらつきも小さくなったと考えられる。

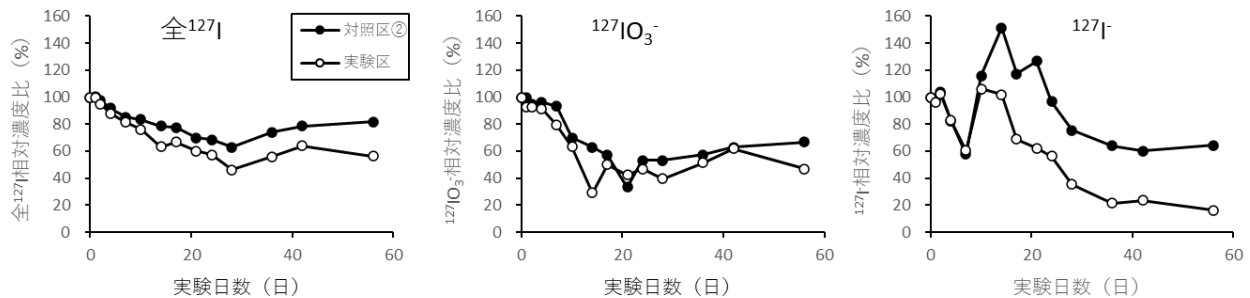


図 2.23 ヒラメ飼育追加実験における海水中形態別ヨウ素相対濃度比

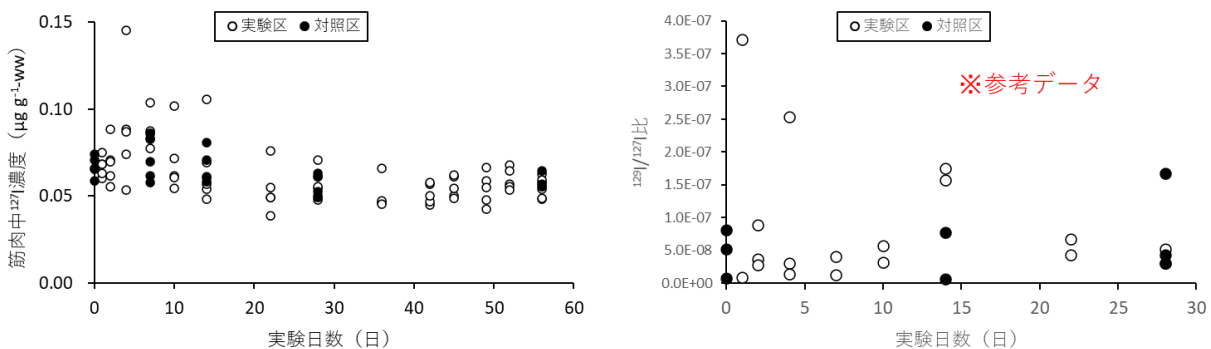


図 2.24 ヒラメ飼育追加実験における筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度(左図)及び筋肉中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比(右図:参考データ)

#### 4.2.3. 堆積物存在下におけるマコガレイ飼育実験

ヒラメ飼育追加実験同様、バット添加法による堆積物の添加を選択し、水槽内へマコガレイを収容して56日間飼育した。実験に用いたマコガレイの開始時体重は、 $12.5 \pm 1.7 \text{ g-wet}$ であった ( $n=90$ )。ヒラメ飼育追加実験同様、実験区②のマコガレイに対して、事前に尾駁沼の堆積物で7日間飼育したゴカイの投与を5日間実施したが、ヒラメ同様、ゴカイを摂餌しないという結果になった。ヒラメ飼育実験同様、実環境中にある程度の量が存在する $^{129}\text{I}$ 及び $^{127}\text{I}$ がターゲットであるために、事前の摂餌確認が行えなかったが、ヒラメと比較して、マコガレイはゴカイを摂餌する魚種であり、実際にメチル水銀をトレーサ

とした摂餌実験の先行研究における実績から、ゴカイを摂餌すると想定していた。しかし、結果的にゴカイを5日間摂餌しなかったため、ヒラメ飼育実験同様、実験区②をすべて実験区①に変更し、実験を継続した。本実験では、マコガレイが水槽外へ飛び出したことにより死亡した個体が観察されたが、それ以外の死亡個体は認められなかった。実験期間中の対照区②における各水質は、水温が $19.4 \pm 1.1^\circ\text{C}$ 、DOが $7.56 \pm 0.24 \text{ mg L}^{-1}$ 、酸素飽和度が $101.0 \pm 1.4\%$ 、pHが $8.09 \pm 0.10$ であるのに対し、実験区①における各水質は、水温が $19.5 \pm 1.1^\circ\text{C}$ 、DOが $7.56 \pm 0.21 \text{ mg L}^{-1}$ 、酸素飽和度が $101.4 \pm 1.0\%$ 、pHが $8.13 \pm 0.09$ であり、両者に大きな差は認められなかった。海水中DOCを測定した結果、最大で $2.2 \text{ mg L}^{-1}$ であり、生存に影響を及ぼすような濃度増加は認められなかった。硝酸濃度等に関しても、生存に影響を及ぼすような濃度は認められなかった。

経時的に海水を採水し、化学形態別の安定ヨウ素濃度を測定した結果を図2.25に示す。対照区②の実験開始時に対する各ヨウ素濃度は、全 $^{127}\text{I}$ が45%まで減少、 $^{127}\text{IO}_3^-$ が57%まで減少、 $^{127}\text{I}^-$ が3%まで減少したが、その後緩やかに増加を示した。一方、実験区①の実験開始時に対する各ヨウ素濃度は、全 $^{127}\text{I}$ が34%まで減少、 $^{127}\text{IO}_3^-$ が14%まで減少、 $^{127}\text{I}^-$ が8%まで減少した。対照区②よりも実験区①のヨウ素濃度の減少幅が大きい結果を示したが、ヒラメ飼育追加実験同様、この差分は水中から堆積物へ吸着した分のヨウ素であると推測される。また、ヒラメ飼育追加実験及びマコガレイ飼育実験の各ヨウ素濃度の増減傾向にわずかに違いが見られる。この要因として、魚種の違い、もしくは飼育水温（ヒラメ約 $15^\circ\text{C}$ 及びマコガレイ約 $20^\circ\text{C}$ ）の違い等の影響が考えられる。

海水同様、経時的にマコガレイを回収し、腑分けした後、筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度の測定を行った。その結果を図2.26に示す。実験開始時における筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度は、 $0.074 \pm 0.015 \text{ } \mu\text{g g}^{-1}\text{-wet}$  ( $n=5$ )であった、実験区①における筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度は、 $0.045$ から $0.085 \text{ } \mu\text{g g}^{-1}\text{-wet}$ の範囲であった。また、実験期間中における体重あたりの餌料投与量は、対照区②が $2.4 \pm 0.8\%$ 、実験区①が $1.8 \pm 0.5\%$ であった。また、実験28日間までの一部の試料に関して、測定した筋肉中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比の結果を図2.26に示す。ヒラメ試料同様、AMSによる測定が十分ではなく、解析可能なデータセットが揃わなかったため、参考値としてデータである。ヒラメ飼育追加実験では、実験14日間までの実験区において、筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度が高い濃度を示す個体がいづつか確認されたが、マコガレイ飼育実験ではそのような個体は認められなかった。ヒラメ飼育追加実験では海水中 $^{127}\text{I}$ 濃度の増加していたのに対し、マコガレイ飼育実験では同様の挙動を示さず、海水中 $^{127}\text{I}$ は経時的に減少していたことから、筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度が高い個体が認められなかったと考えられる。

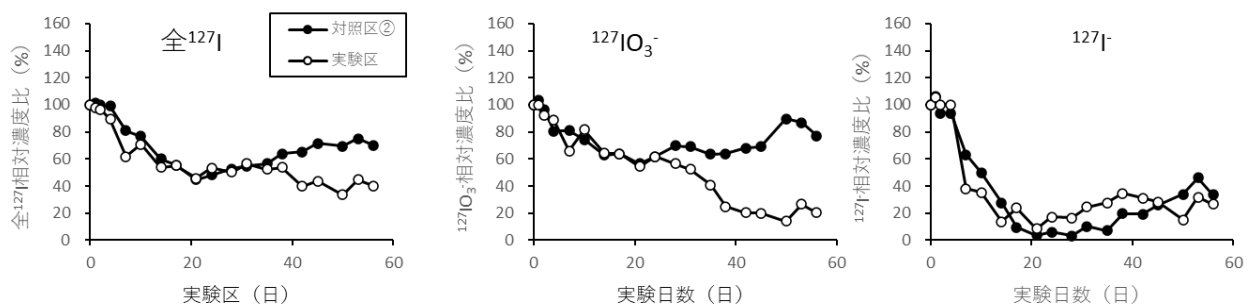


図 2.25 マコガレイ飼育実験における海水中形態別ヨウ素相対濃度比

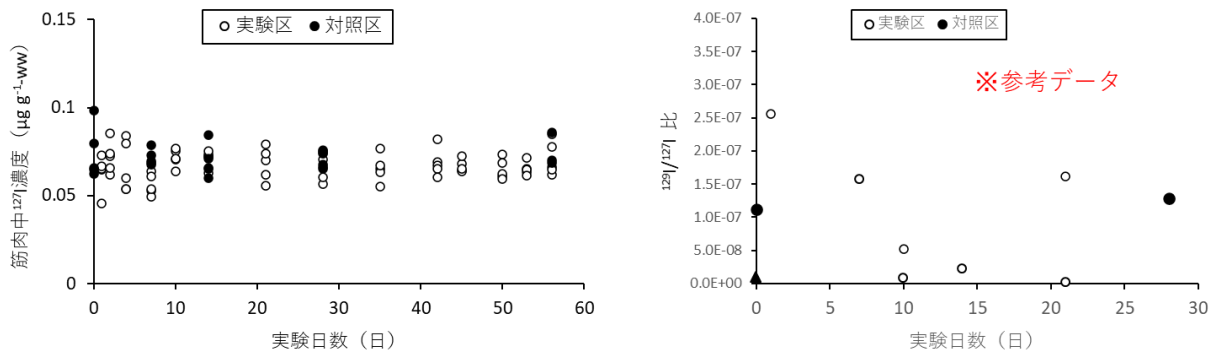


図 2.26 マコガレイ飼育実験における筋肉中 $^{127}\text{I}$ 濃度(左図)及び筋肉中 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比(右図:参考データ)

#### 4.2.4.ヒラメ飼育追加実験におけるヒラメ各部位における安定ヨウ素濃度

魚類中のヨウ素濃度測定は可食部である筋肉を用いて実施したが、一部の検体に関しては部位別に安定ヨウ素濃度測定を行った。その結果について図2.27に示す。実験開始の初期値、対照区②の7、14及び28日後、実験区①の1、2、4、7、10、14、22、28、36、42及び45日後に関して、心臓、胆嚢、肝臓、脾臓、消化管、腎臓、エラ、筋肉及び皮試料の $^{127}\text{I}$ 濃度を測定した。胆嚢に関しては $^{127}\text{I}$ 濃度が他の部位に比べて大きな変動が認められたが、これはヒラメ回収の2日前に餌料投与を行った群である。これらの群は、消化管内に未消化の餌料が含まれており、消化のために胆嚢中の胆汁が分泌されていたことにより、胆嚢中ヨウ素濃度が減少していたと考えられる。同様の現象は、 $^{125}\text{I}$ をトレーサとした摂餌実験<sup>4)5)6)</sup>でも確認されている。実験期間中、その他の部位中の $^{127}\text{I}$ 濃度には、対照区②及び実験区①ともに大きな変動が認められなかった。今回実施した飼育実験では、海水中安定ヨウ素濃度の顕著な増加は認められなかったため、ヒラメ各部位中の安定ヨウ素濃度も大きな変動を示さなかったと考えられる。また、対照区②及び実験区①のヨウ素体内分布は同様であり、測定した部位の中で最も高かったのはエラ、最も低かったのは筋肉という結果になった。

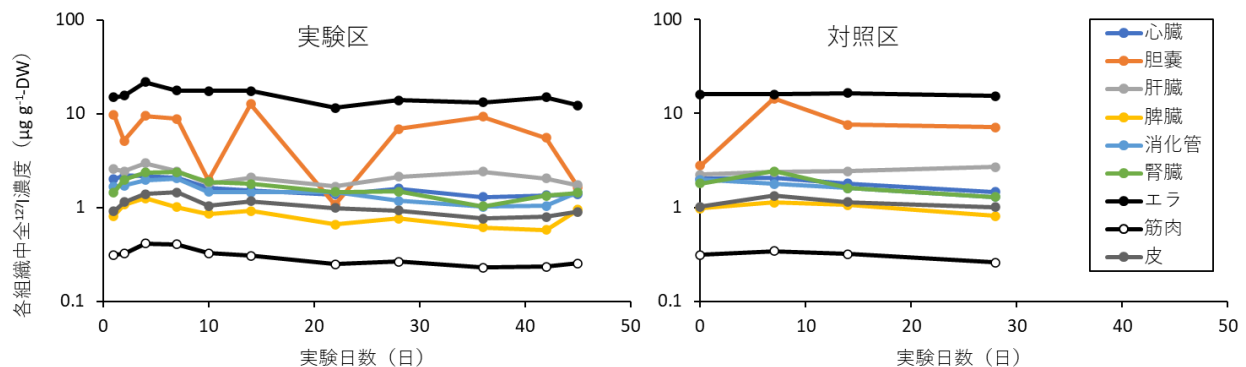


図 2.27 ヒラメ飼育追加実験における各組織中安定ヨウ素濃度

#### 4.2.5.ヒラメ飼育追加実験における餌料及び海水からのヨウ素濃度取込

$^{125}\text{I}$ をトレーサとして実施した摂餌実験<sup>5)6)</sup>及び海水ばく露実験<sup>4)</sup>では、ヒラメ全身を1コンパートメントとする $^{125}\text{I}$ 短期移行モデルを作成した。今回のヒラメ飼育追加実験で得られているのは筋肉のデータであるため、このモデルを基に筋肉を1コンパートメントとするモデルへ一部改良した。モデルの概要を図2.28に示す。ヒラメ飼育追加実験で使用した市販の配合餌料中の安定ヨウ素濃度 $4.3 \mu\text{g g}^{-1}\text{-DW}$ 及び餌料投与率から餌として取り込ませた安定ヨウ素量を算出し、計算値として入力した。また、測定した海水中安定ヨウ素濃度から、海水として取り込ませたヨウ素量を算出した。この際、水中に含まれているヨウ素の形態によって取込速度が異なり、 $\text{I}^-$ は $\text{IO}_3^-$ の10倍取り込まれる速度が高いことが報告されているため<sup>9)</sup>、その先行研究を参考にし、 $\text{IO}_3^-$ 濃度を10分の1にした濃度を $\text{I}^-$ 濃度に加算した値を海水中ヨウ素濃度として用いた。対照区②及び実験区①に関して、それぞれ56日間計算した結果、餌料投与率が実験区よ

りも高く、水中ヨウ素濃度の減少率がより緩やかであった対照区②の筋肉中ヨウ素濃度の方が高い結果を示した（図2. 29）。餌料及び海水どちらの取込がより寄与しているのを確認するため、実験区①の餌料投与率、対照区②の海水中濃度を入力して計算した結果、実験区①の結果とほぼ変わらない計算結果であった。海水中ヨウ素濃度がppbオーダー（ $\mu\text{g L}^{-1}$ 、10億分の1）であるのに対して餌料中ヨウ素濃度はppmオーダー（ $\mu\text{g g}^{-1}$ 、100万分の1）と高濃度であるため、この餌料の摂取が実験区①よりも対照区②において筋肉中ヨウ素濃度がより高くなった要因であると考えられる。

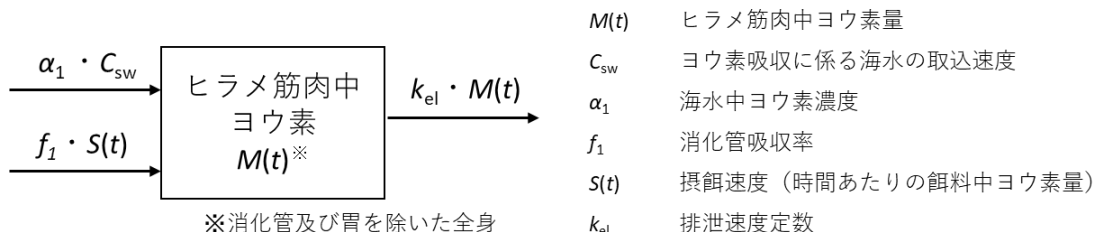


図 2. 28 ヒラメ筋肉を1コンパートメントとしたヨウ素移行モデル（ $^{125}\text{I}$ 移行モデル<sup>5) 6)</sup>）を改良

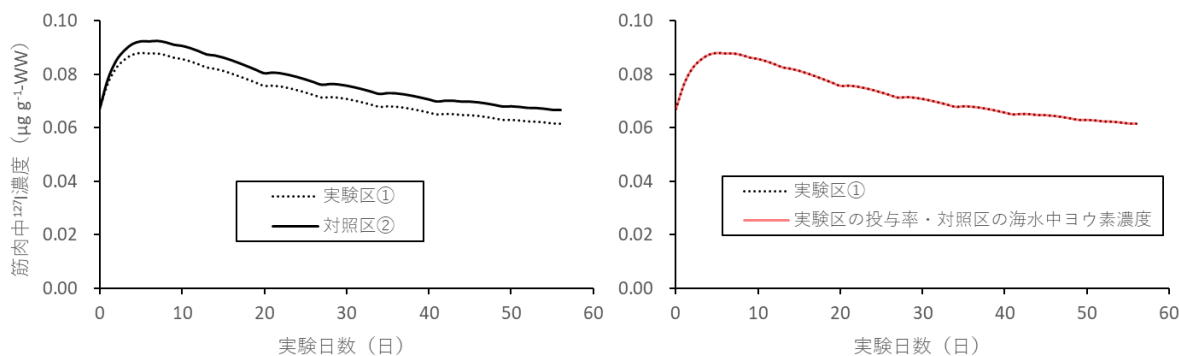


図 2. 29 ヨウ素移行モデルによる筋肉中 $^{127}\text{I}$ 推定濃度

左図：ヒラメ飼育追加実験の各設定区における餌料投与率及び海水中ヨウ素濃度を入力して計算

右図：左図の実験区①のデータ、ヒラメ飼育追加実験の実験区における投与率及び対照区の海水中ヨウ素濃度を入力して計算したデータの比較（ほぼ同じ推定値のため線が重なっている）

#### 4.2.6.ヒラメ及びマコガレイにおけるヨウ素取込

ヒラメは成長段階によって捕食する餌生物は変化することが知られているが、一般的に漁獲されるサイズでは、ほとんどが魚食専食である。それに対し、マコガレイの場合は、ゴカイ等の底生動物及び甲殻類等を捕食する。本調査において、尾駮沼で採泥した際、堆積物とともに尾駮沼の天然ゴカイが採集できたため、その安定ヨウ素濃度を測定した。ゴカイ養殖業者から入手し、本調査に用いたゴカイの初期値濃度が $17.4 \mu\text{g g}^{-1}\text{-wet}$ 程度であったのに対し、尾駮沼から採集したゴカイ中ヨウ素濃度は、 $54.0 \mu\text{g g}^{-1}\text{-wet}$ と高い値を示していた。本調査において、尾駮沼の堆積物を用いてゴカイを14日間飼育した際には、ヨウ素濃度がこのレベルまで達しなかったが、これよりも長い期間尾駮沼の堆積物にさらされた場合には同レベルになると推測される。ヒラメ及びマコガレイが生息する環境中の海水中ヨウ素濃度及び餌料の投与率が同レベルである場合、ヒラメが捕食する魚類の筋肉中ヨウ素濃度よりも、マコガレイが捕食する底生動物中ヨウ素濃度の方が高いため、マコガレイ中のヨウ素濃度の方が高い結果を示すと推測される。放射性核種を含めて様々な物質による魚類への移行を調査するモニタリングを実施する際、対象魚類中の濃度を測定するだけでなく、生息海域の水中濃度も測定するとともに、対象魚類が捕食する餌生物中の濃度もあわせて測定することが重要であると考えられる。また、本調査では、堆積物に各魚類が直接接触した場合については検討していないが、両魚種ともに砂泥地などに潜る魚類であるため、今

後検討する必要があると考えられる。

## 5. 研究目標の達成状況

生物試料における<sup>129</sup>Iの測定結果が十分ではなかったため、<sup>129</sup>Iの定量的な移行評価はできないが、海水中形態別<sup>127</sup>I、魚類筋肉中<sup>127</sup>I及び餌料中<sup>127</sup>I等に関して網羅的に測定していたこと、参考値扱いではあるが得られた<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I比等から、<sup>129</sup>Iの定性的な移行及び<sup>127</sup>Iの定量的な移行が確認された。また、これらのデータ及び既報の<sup>125</sup>I移行モデルを用いて計算した結果、海水中ヨウ素濃度が経時的に減少、餌料からのヨウ素は一定量取り込みという本調査の飼育条件下では、餌に含まれるヨウ素からの取込寄与率が結果的に高くなるということが明らかになった。また、魚類における筋肉以外の部位のヨウ素濃度に関する報告は数少ないため、本調査で75検体分の体内分布を明らかにした結果は、魚類におけるヨウ素の基礎データとして有用な知見となり得る。

## 6. 引用文献

- 1) 日本原燃株式会社, 1985. 再処理事業指定申請書.
- 2) 放射性医学総合研究所, 1974. 海洋放射能調査研究報告書-放射性核種 of 海産生物への移行に関する研究ならびに水産食品消費の実態調査- (NIRS-R-3)
- 3) 宮崎 他, 2000. クローンヒラメを用いたRI濃縮実験の試み. *Radioisotopes*, 49, 20-25.
- 4) 環境科学技術研究所, 2019. 令和元年度青森県産物放射性物質移行調査報告書.
- 5) 環境科学技術研究所, 2018. 平成30年度青森県産物放射性物質移行調査報告書.
- 6) Imai et al., 2020. Short-term metabolism of biologically incorporated <sup>125</sup>I ingested by olive flounder (*Paralichthys olivaceus*). *Journal of Environmental Radioactivity*, 214-215, 106161.
- 7) 山田 他, 1998. 東北太平洋沿岸域におけるヒラメの摂餌生態. *日本水産学会誌*, 64, 2, 249-258.
- 8) 植田 他, 2005. 青森県汽水湖尾駁沼におけるベントスの種構成およびその歴史の変遷. *陸水学雑誌*, 66, 197-206.
- 9) Hirano et al., 1983. Chemical forms of radioactive iodine in seawater and its effects upon marine organisms. *Radioisotopes*, 32, 319-322.



### Ⅲ. 研究成果の発表状況の詳細

#### (1) 誌上発表

##### <査読付き論文>

###### 【サブテーマ1】

- 1) Y. Satoh, S. Imai: Science of the Total Environment, volume 707, 10, 135920 (2020) (IF: 6.551). Evaluation of dissolution flux of iodine from brackish lake sediments under different temperature and oxygenic conditions.
- 2) Y. Satoh, S. Wada: Chemistry Letters, volume 50, 4, 560-562 (2021) (IF: 1.361). Characterization of organic biomolecules (monosaccharide, fatty acid, and amino acid) by losses on ignition under stepwise increases in temperature.
- 3) Y. Satoh, S. Imai: Journal of Environmental Radioactivity, volume 233, 106608 (2021) (IF: 2.161). Evaluation of radioiodine ( $^{129}\text{I}$ ) dissolution from sediment of a brackish lake beside a spent nuclear fuel reprocessing plant in Japan.
- 4) Y. Satoh, S. Imai: Science of the Total Environment (in press) (IF: 6.551). Flux and pathway of iodine dissolution from brackish lake sediment in the northeast of Japan.

###### 【サブテーマ2】

特に記載すべき事項はない。

##### <査読付論文に準ずる成果発表>

特に記載すべき事項はない。

##### <その他誌上発表（査読なし）>

特に記載すべき事項はない。

#### (2) 口頭発表（学会等）

特に記載すべき事項はない。

#### (3) 「国民との科学・技術対話」の実施

##### 【サブテーマ1】

第1回 環境研地域交流セミナー

発表者：佐藤雄飛

演題： 使用済み核燃料再処理施設に隣接する汽水湖（尾駈沼）における湖底堆積物からのヨウ素溶出速度の評価

##### 【サブテーマ2】

第1回 環境研地域交流セミナー

発表者：今井祥子

演題：  $^{125}\text{I}$ 含有餌料を用いた摂餌実験におけるヒラメへの $^{125}\text{I}$ の移行

#### (4) マスコミ等への公表・報道等>

特に記載すべき事項はない。

#### (5) 本研究費の研究成果による受賞

特に記載すべき事項はない。

## IV. 英文Abstract

**Transfer to Demersal Fish of Radioiodine Accumulated in Coastal Sediment through the Dissolution to Seawater**

Principal Investigator: Yuhi Satoh

Institution: Institute for Environmental Sciences (IES) Department of

Radioecology, 1-7 Rokkasho, Aomori 039-3212, JAPAN

Tel: 81-175-71-1426 / Fax: 81-175-71-1492

E-mail: satoh.yuhi@ies.or.jp

[Abstract]

Key Words: Spent nuclear fuel reprocessing plant, Rokkasho, Radioiodine, Iodine-129, Coastal sediments, Demersal fish

Iodine-129 is a radionuclide produced by steady operation of nuclear fuel reprocessing plants. Although its radioactivity is low, it accumulates in terrestrial and aquatic environments due to its long half-life ( $1.57 \times 10^7$  years). Therefore, we need to understand the fate of iodine-129 released into the environment to promote safe use of reprocessing plants. The present study investigated transfer of iodine-129 accumulated in coastal sediments in Rokkasho (a reprocessing plant site) to demersal fishes. Two types of data, dissolution of iodine-129 from the sediment to the overlying water, and uptake of iodine-129 by demersal fishes (marbled sole and olive flounder) from seawater, were collected. Dissolution flux of iodine-129 from sediment to overlying water was examined using sediment samples collected from brackish Lake Obuchi located beside the reprocessing plant and the Pacific Ocean. Flux was evaluated by incubating a sediment core sample with its overlying water. Dissolution of iodine-129 from the sediment was found to be negligible. The reason why dissolution flux of iodine-129 was scarcely observed is postulated to be a fast uptake rate of iodine from seawater by the sediment. In the uptake experiment of iodine-129 from seawater to demersal fishes, two kinds of fish were fed in aquaria containing sediment collected from Lake Obuchi that contained iodine-129 released from the reprocessing plant. Concentrations of stable iodine (iodine-127) and iodine-129 in the fishes did not increase significantly. This result corresponds with that of the initial experiment showing that iodine-129 accumulated in the sediment of Lake Obuchi scarcely dissolved in seawater. Iodine-129 accumulated in sediments in coastal areas of Rokkasho scarcely transfers to demersal fishes through dissolution to seawater, although it is noted that transfer of iodine-129 from the sediment through consumption of benthic organisms merits future studies.