

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

実施期間：2019～2020年度

重点課題：[主]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]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



研究代表者：佐藤 雄飛（環境科学技術研究所 研究員）

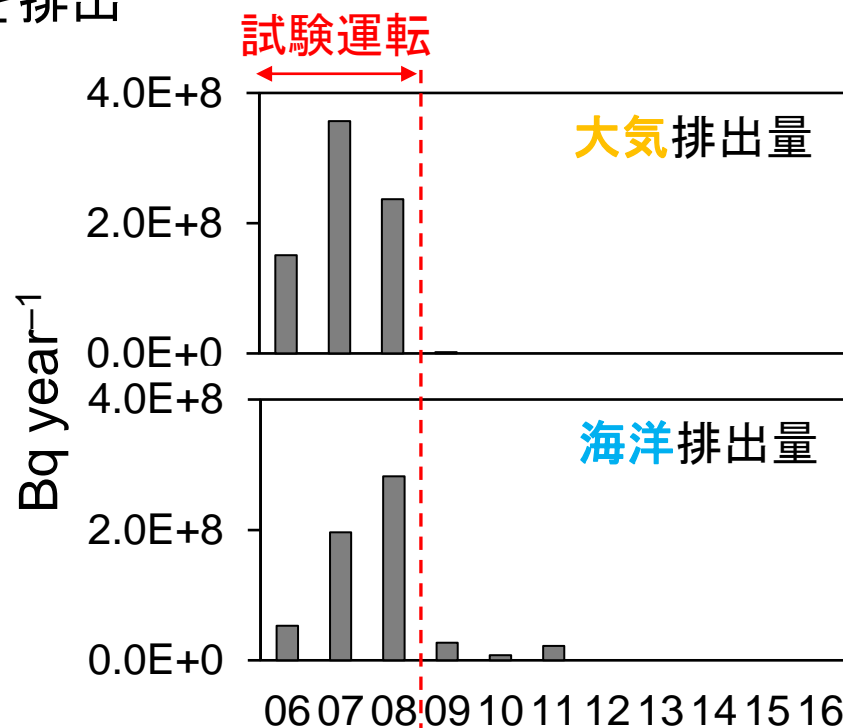
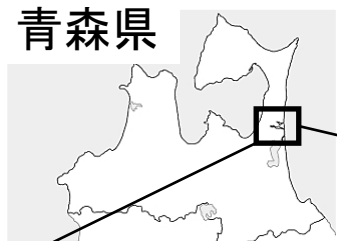
研究分担者：今井 祥子（環境科学技術研究所 研究員）

1. はじめに：使用済み核燃料再処理施設@六ヶ所村

○青森県六ヶ所村の使用済み核燃料再処理施設

- ・ 日本原燃株式会社により建設が進められている日本で最初の商業利用が計画された再処理施設
- ・ 最終的に年間800tの燃料の処理能力を備える予定
(仏・ラアーク再処理工場は、2000年以降、年間1000～1600tの燃料を処理)
- ・ 2006～2008年に燃料425tを用いた試験運転を実施し、それに伴い大気及び沿岸海水中へ ^{129}I を含む放射性核種を排出

青森県



再処理施設からの ^{129}I の年間排出量

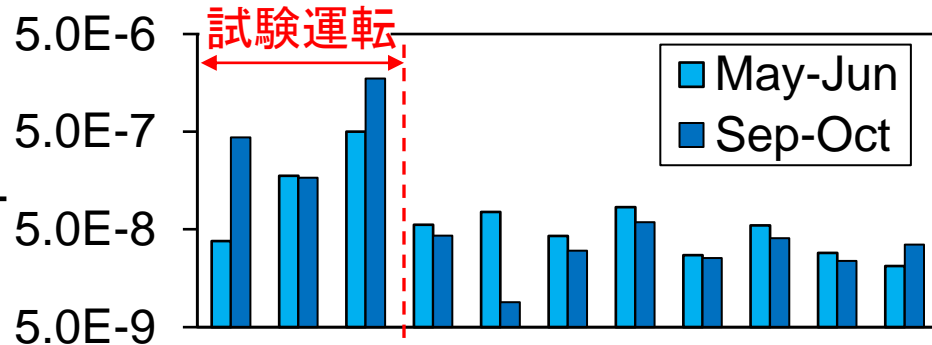
1. はじめに: 海水及び堆積物中のヨウ素129 (^{129}I)



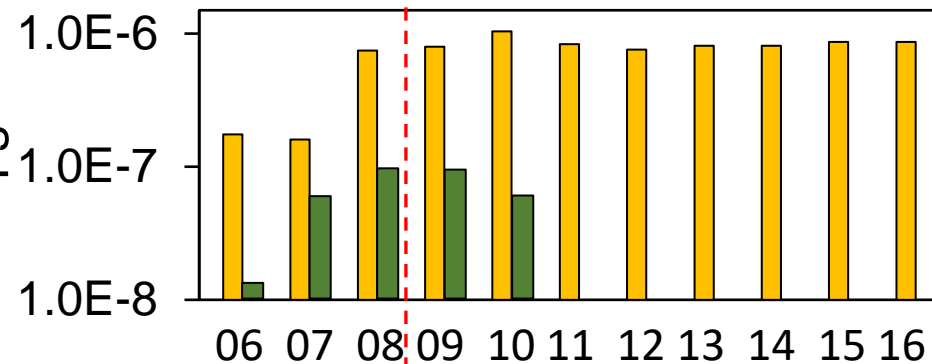
海水中の ^{129}I

- ・ 試験運転 (06~08) 中に有意な濃度増加
- ・ 試験終了と共に速やかに濃度減少

海水 @ 尾駮漁港



堆積物 @ 尾駮沼 (■) + 漁港 (■)



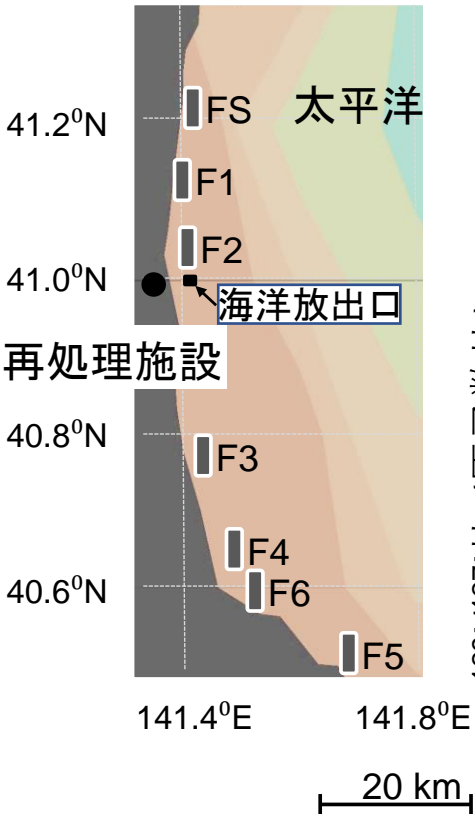
堆積物中の ^{129}I

- ・ 試験運転 (06~08) 中に有意な濃度増加
- ・ 試験終了後も濃度が下がらず、比較的高い水準を維持

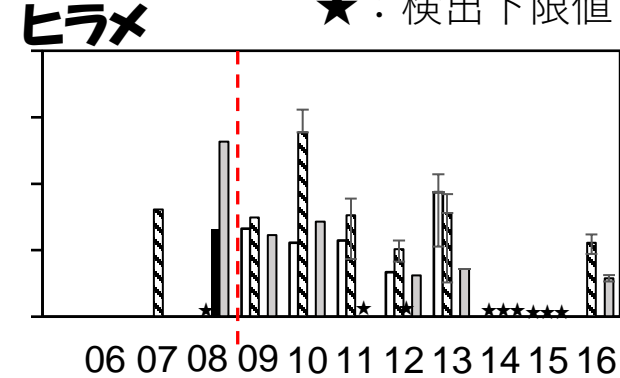
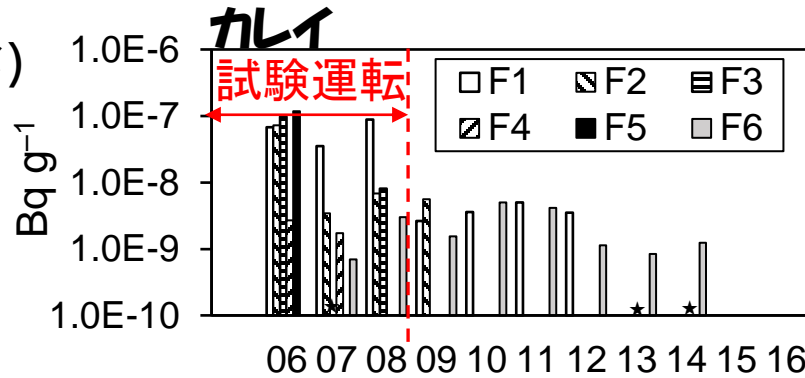
六ヶ所村近傍において
堆積物は再処理施設由来
 ^{129}I のリザーバー

1. はじめに：底生魚中の¹²⁹I

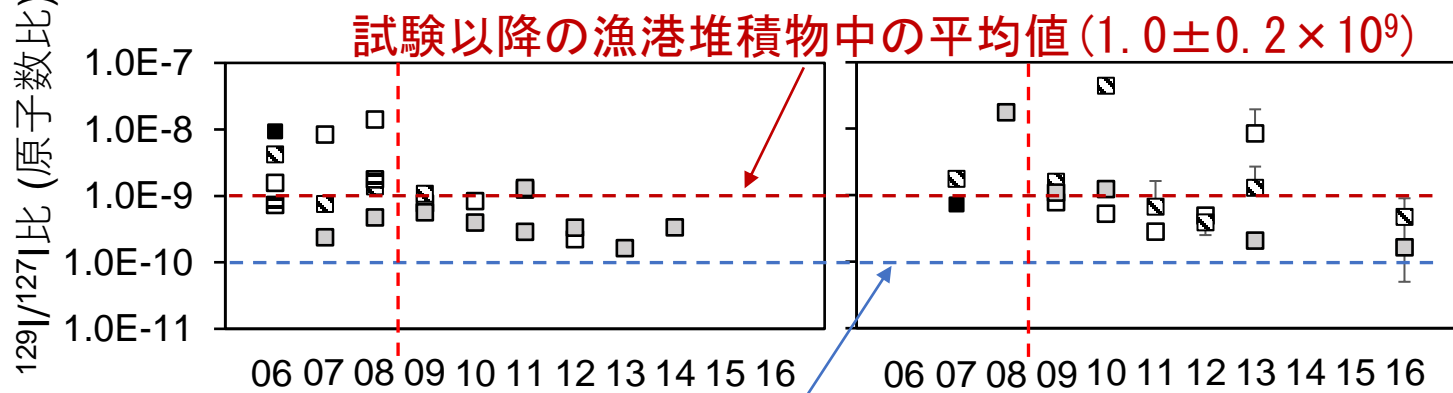
底生魚(カレイ、ヒラメ)の採取地点



¹²⁹I濃度(筋肉中)



¹²⁹I/¹²⁷I比(筋肉中)



試験以降の漁港海水中の平均値 ($1.3 \pm 0.6 \times 10^{10}$)

*出典: 環境科学技術研究所 報告書

操業試験以降、底生魚中の¹²⁹I/¹²⁷I比は海水よりも高い水準
 ⇒底生魚が堆積物中の¹²⁹Iを取り込んでいる可能性を示唆

現状、堆積物から底生魚への¹²⁹Iの移行を直接的に示した研究は無い

2. 研究開発目的

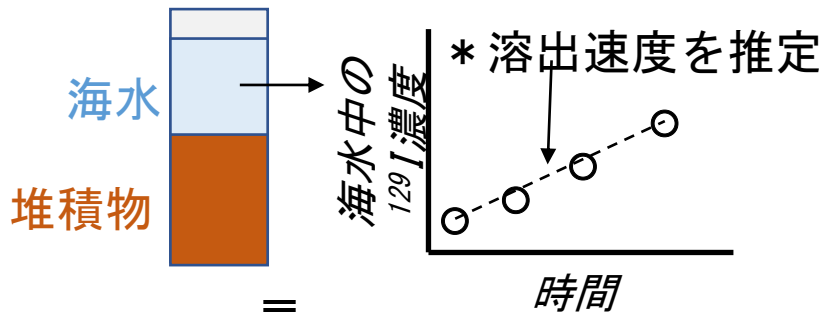
青森県六ヶ所村沿岸海域において採取されている底生魚（カレイ及びヒラメ）について、高水準の ^{129}I が間欠的に観測されている要因を解明するための一環として、①堆積物から海水への ^{129}I の溶出、及び②堆積物から底生魚への ^{129}I の移行、の各過程の有無を定量的に評価する。

3. 研究開発目標

- (1) ①堆積物からの ^{129}I の溶出、及び②底生魚への ^{129}I の移行の各過程の有無を確認
- (2) 各々の過程が確認された場合、それらに関する数値モデルを作成

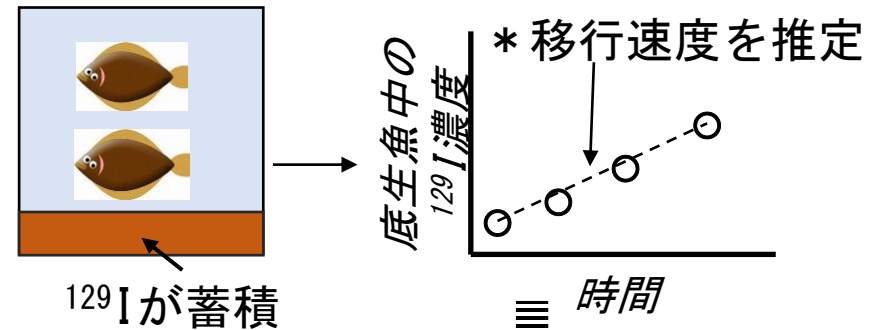
[サブテーマ1] 沿岸堆積物からの ^{129}I の溶出状況の把握

沿岸堆積物を用いた溶出実験



[サブテーマ2] 堆積物から底生魚への ^{129}I の移行過程の把握

堆積物と底生魚を用いた飼育実験



堆積物から海水への ^{129}I 溶出速度

堆積物から底生魚への ^{129}I 移行速度

沿岸堆積物 ^{129}I データ (先行研究)

堆積物

底生魚

底生魚 ^{129}I データ (先行研究)

○先行研究データと合わせて実験結果の妥当性を検証

4. 研究開発内容: サブテーマ 1: 沿岸堆積物からの¹²⁹Iの溶出状況の把握

◎尾駮沼を対象領域として堆積物からの¹²⁹Iの溶出速度を評価



尾駮沼

- ・ 再処理施設に隣接
- ・ 河川水（二又川）と海水が内部で混合する汽水湖
→ 湖心では平均約5割が海水
- ・ 最深深度4.5m（湖心）、平均2m
- ・ 堆積物中に¹²⁹Iが蓄積

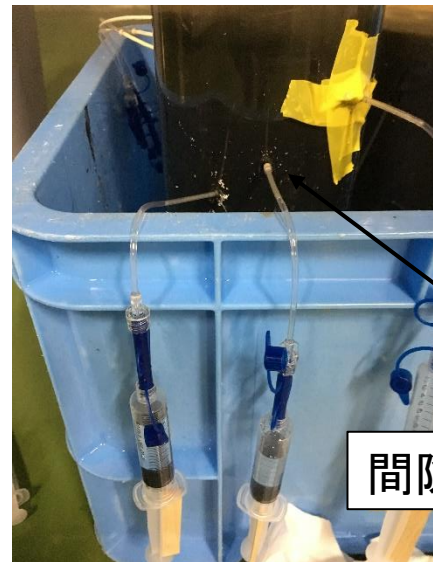
◎ 3種類の実験を実施

A. 柱状堆積物試料の培養

直上水中の濃度変化を測定



B. 堆積物間隙水の観測



C. 堆積物ヨウ素の化学分画

- ① 水溶性画分
- ② イオン性 + 炭酸カルシウム画分
- ③ 金属結合画分
- ④ 残渣

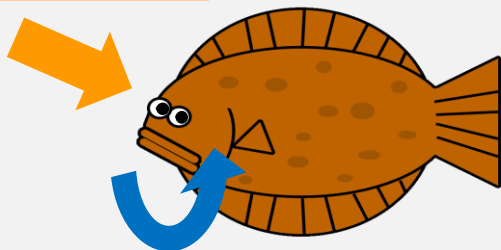
間隙水-直上水間の濃度勾配を測定

4. 研究開発内容: サブテーマ2: 堆積物から底生魚への¹²⁹Iの移行過程の評価

¹²⁹Iを含む堆積物を用いた底生魚の飼育実験

- ¹²⁹Iを含む堆積物存在下における底生魚への¹²⁹I移行に関して検討

餌からの取り込み



海水からの取り込み

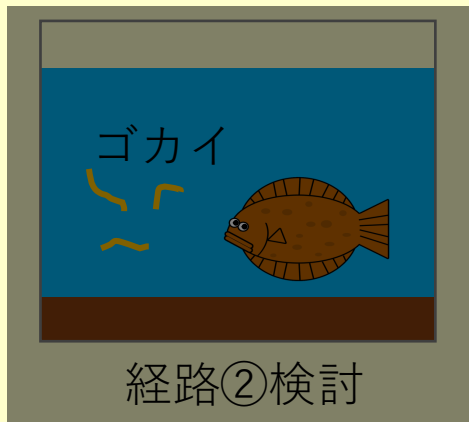
魚類における放射性核種の取込経路

本実験で想定される移行経路

- ① 堆積物から海水中へ¹²⁹Iが溶出
→ 海水中¹²⁹Iを魚類が取り込む
- ② 堆積物中¹²⁹Iを底生動物が取り込む
→ ¹²⁹Iを取込んだ底生動物を魚類が摂餌することにより¹²⁹Iが移行する



経路①検討

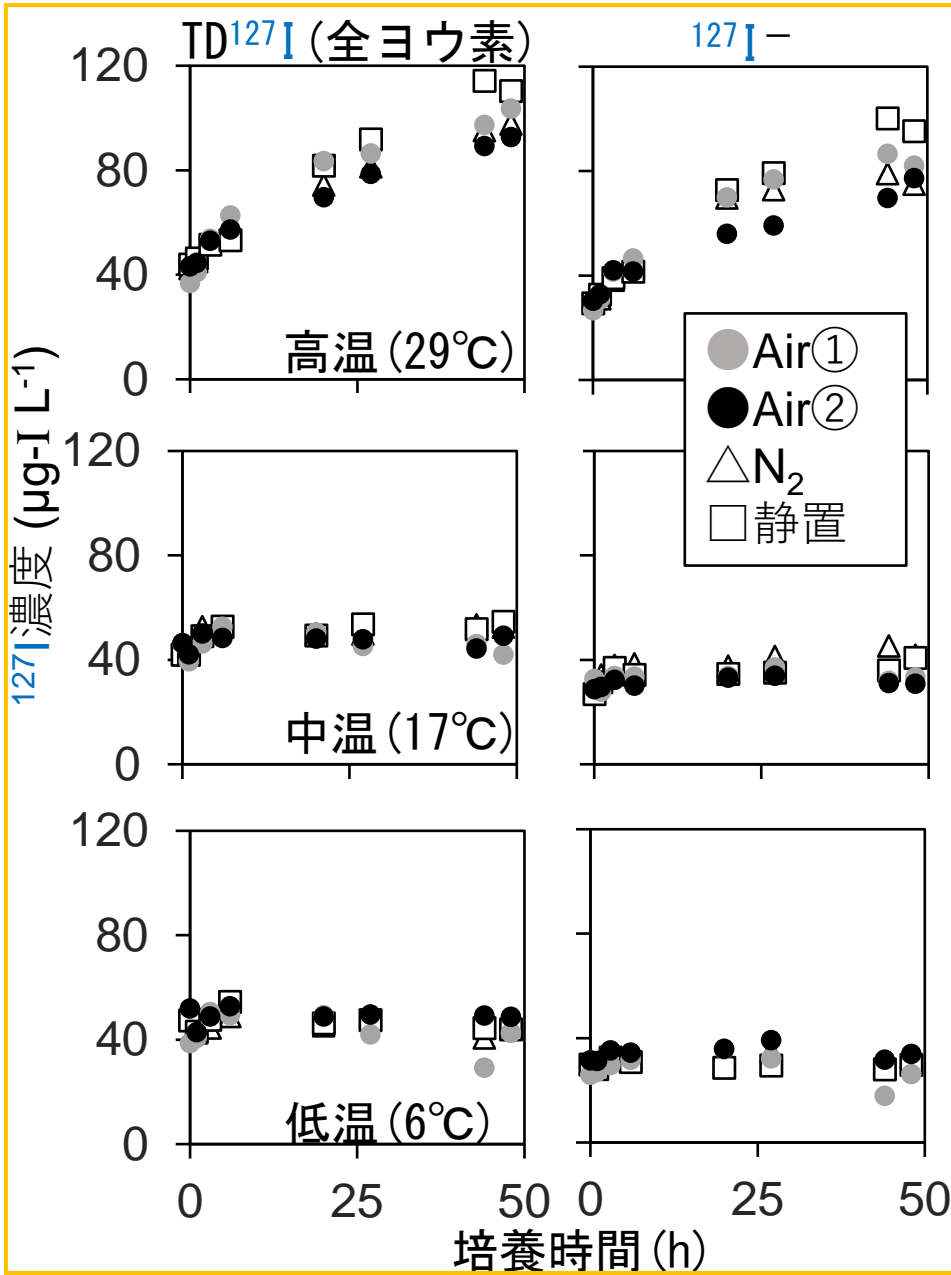


経路②検討

- 魚体内におけるヨウ素濃度を測定
- 魚（カレイ・ヒラメ）へのヨウ素移行について検討
- * 予備実験において対象魚種がゴカイの摂餌を積極的に行わなかったため重要性がより高いと考えられた経路①に集中した調査を実施

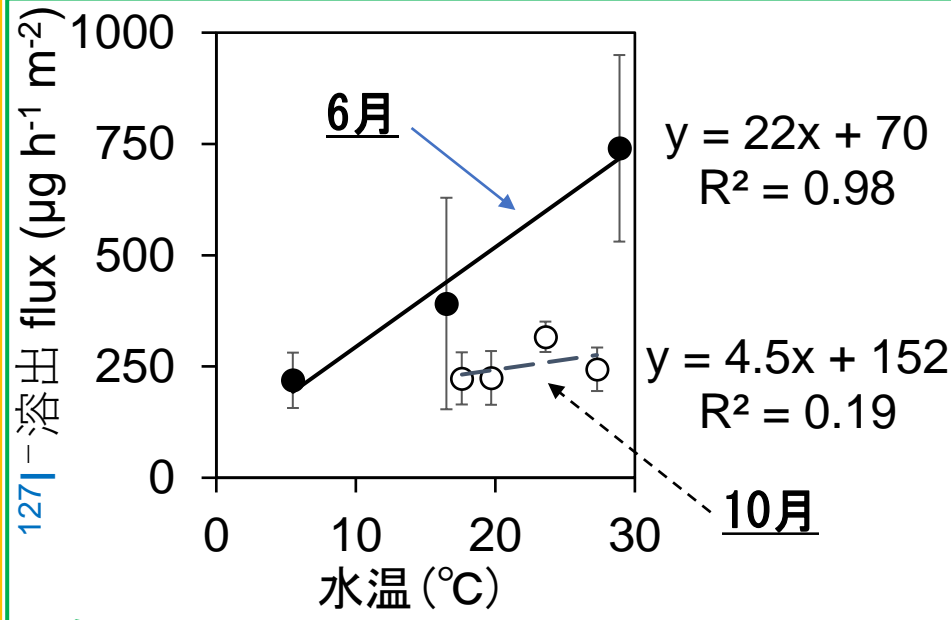
5. 成果の概要: サブテーマ 1: 沿岸堆積物からの¹²⁹Iの溶出状況の把握

◎実験結果: ¹²⁷I (安定ヨウ素) . . . ヨウ素動態の基盤情報を取得



- 溶出速度は水温に依存
- 溶出する化学形態は主にI⁻
- 酸素条件の影響は小さい
- 培養後半に堆積物への吸着が卓越

季節変化の影響(堆積物の性状変化)

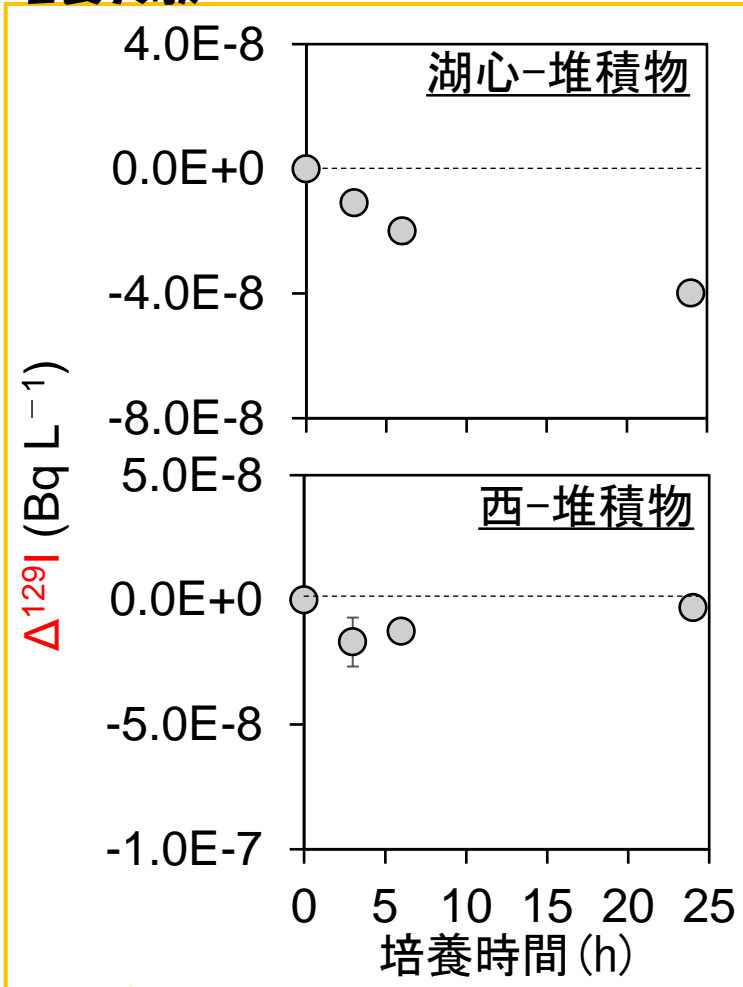


- 季節によらず、溶出速度は温度に依存
- 秋(10月)の溶出速度は小さい
⇒ 堆積物表層における植物プランクトン有機物が少ないことが影響

5. 成果の概要: サブテーマ 1: 沿岸堆積物からの¹²⁹Iの溶出状況の把握

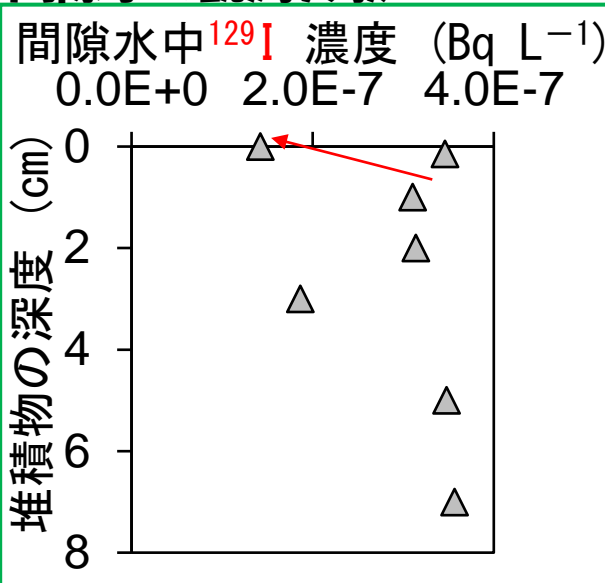
◎実験結果: ¹²⁹I

培養実験



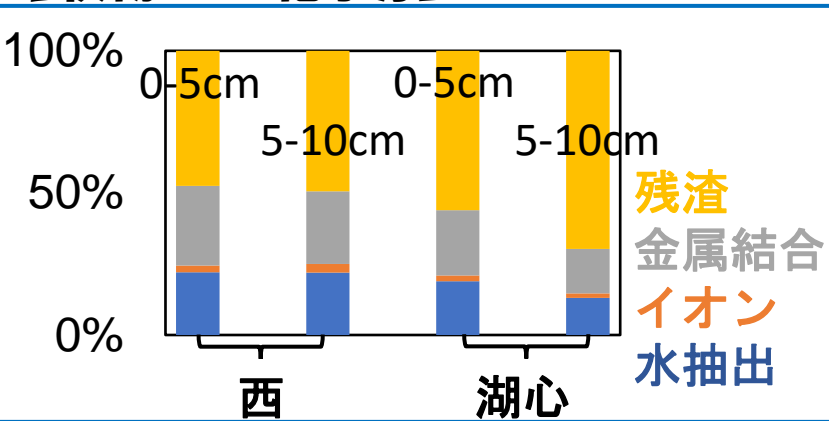
●堆積物の培養実験において湖心及び西の各堆積物からの¹²⁹Iの溶出は認められない

間隙水の観測実験



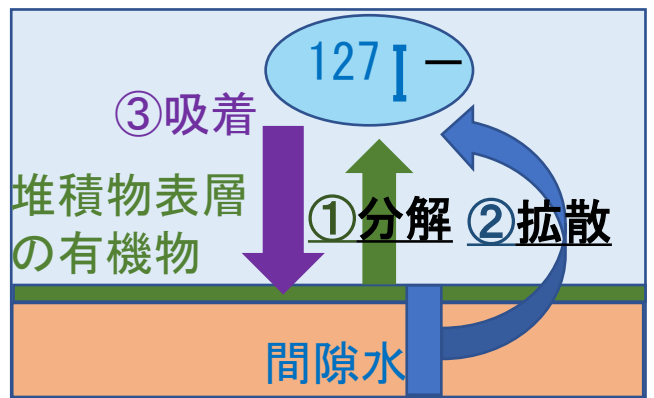
●間隙水-直上海水間には¹²⁹Iの濃度勾配を確認
⇒間隙水~直上海水への¹²⁹Iの拡散フラックスが存在することを示唆

堆積物¹²⁹Iの化学分画

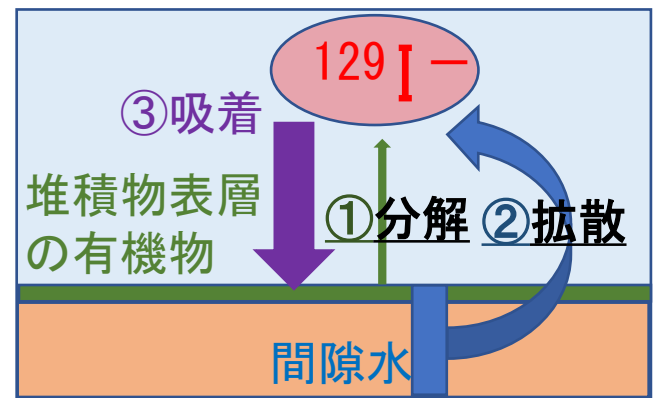


●堆積物¹²⁹Iの化学形態に西と中央で顕著な差は認められない

5. 成果の概要: サブテーマ 1: 沿岸堆積物からの¹²⁹Iの溶出状況の把握



¹²⁷I: ①+②>③
 ⇒培養実験において**正**の速度



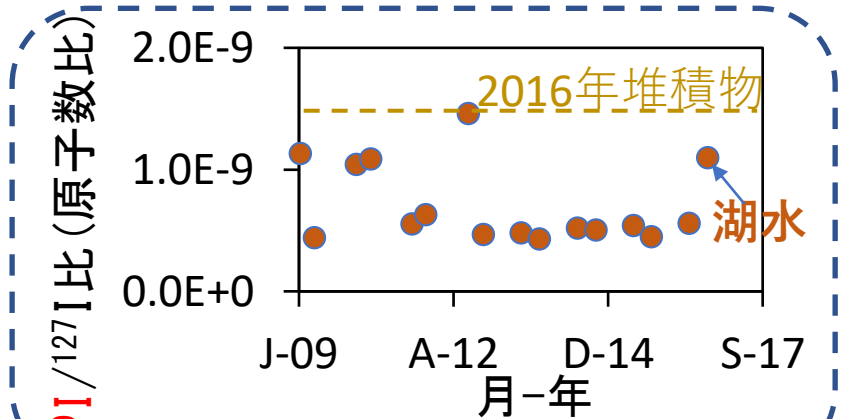
¹²⁹I: ①+②<③
 ⇒培養実験において**負**の速度

⇒培養実験において**負**の速度
 現状、堆積物表層の有機物中¹²⁹Iが
 少ないため、**溶出はほとんど無い**

サブテーマ1における総括

- ・ 試験運転により排出された後に10年程度経過した現状では、沿岸堆積物に蓄積した¹²⁹Iはほとんど溶出しない
- ・ 本格操業により水中の¹²⁹Iの水準が増加する際には、堆積物表層の有機物中¹²⁹I濃度の増加に伴って堆積物からの溶出が起こると考えられる

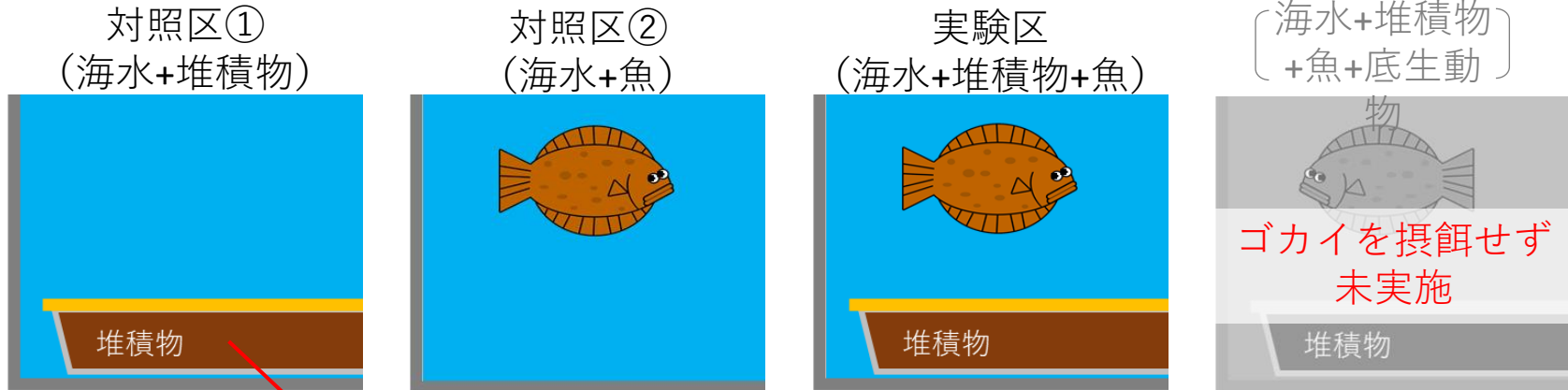
有意物中ヨウ素の起源となる
 湖水中ヨウ素に¹²⁹Iが少ないため



*出典: 環境科学技術研究所 報告書

5. 成果の概要: サブテーマ2: 堆積物から底生魚への¹²⁹Iの移行過程の評価

● 実験系の検討



尾駁沼より採取 (サブテーマ1と同じ堆積物、¹²⁹Iを含む)

- 直接添加では堆積物の細かい粒子が沈降せず、飼育が困難であると判断
- バットに添加する方法では粒子の舞い上がりがなく飼育が可能
⇒海水へ溶出するヨウ素を取込む経路のみを評価可能

【各実験区における水質一覧】

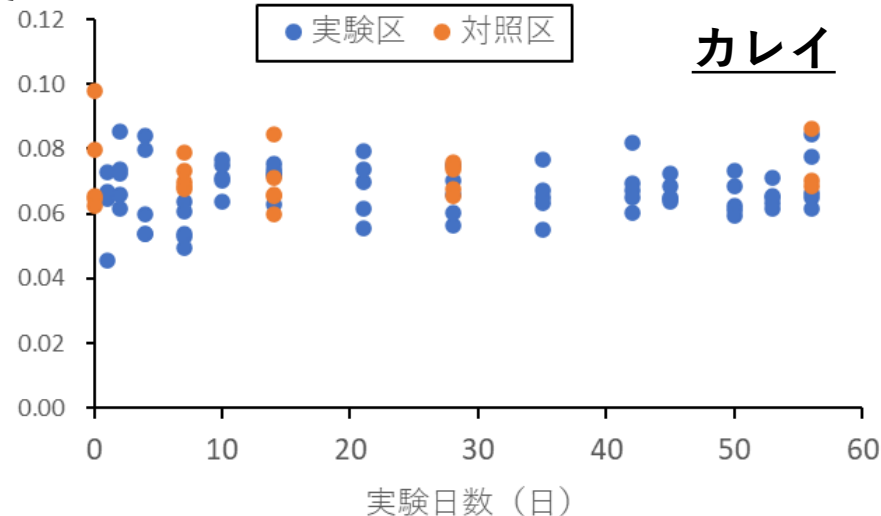
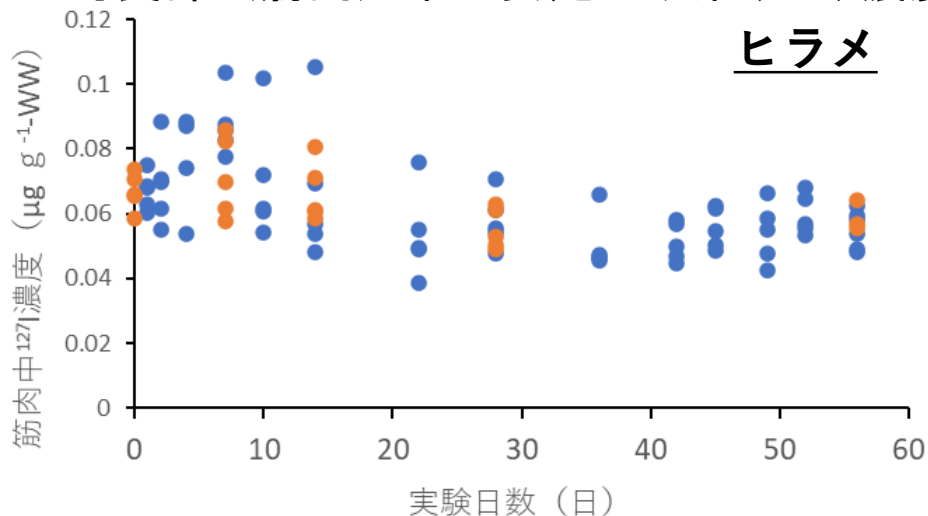
	対照区①	対照区②	実験区
水温 (°C)	15.5 ± 0.2	15.6 ± 0.2	15.3 ± 0.3
DO (mg/L)	8.2 ± 0.1	7.7 ± 0.5	7.7 ± 0.4
pH	8.1 ± 0.1	7.9 ± 0.1	7.8 ± 0.1
TOC (mg/L)	1.6 ± 0.9	2.2 ± 0.8	2.5 ± 0.9
その他の水質 (窒素等)	問題なし	問題なし	問題なし

* 対照区・実験区の間には大きな差は無い

⇒堆積物の存在下でも健全な飼育環境が維持された

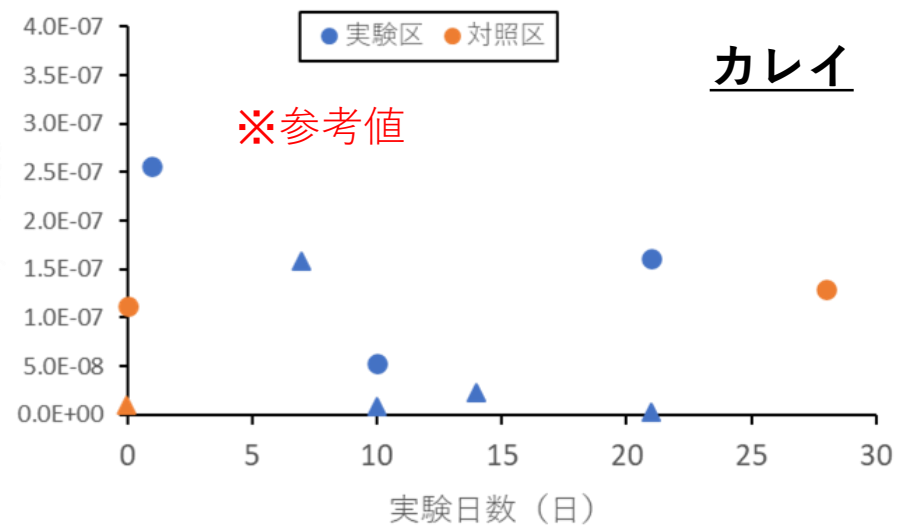
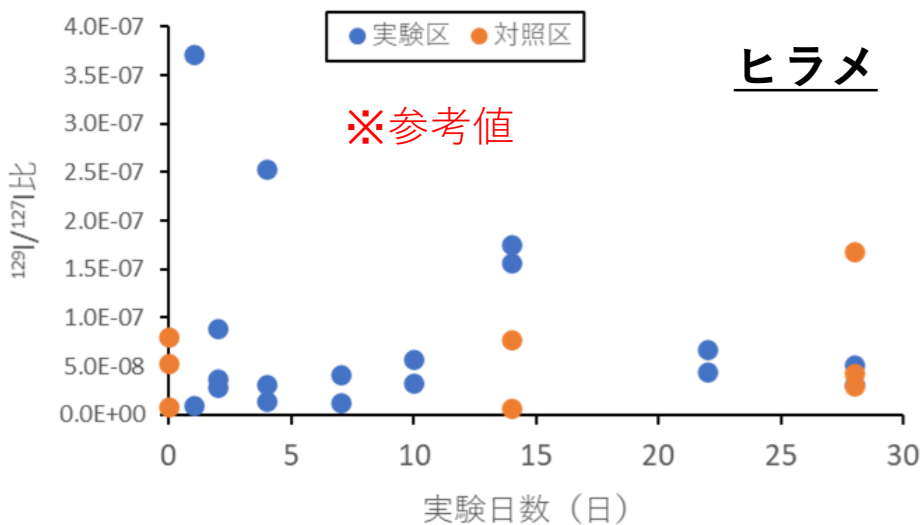
5. 成果の概要: サブテーマ2: 堆積物から底生魚への¹²⁹Iの移行過程の評価

● 可食部（筋肉）中の安定ヨウ素 (¹²⁷I) 濃度の変化



⇒ 実験区・対象区間で明確な有意差は認められない

● 可食部中の¹²⁹I/¹²⁷I比

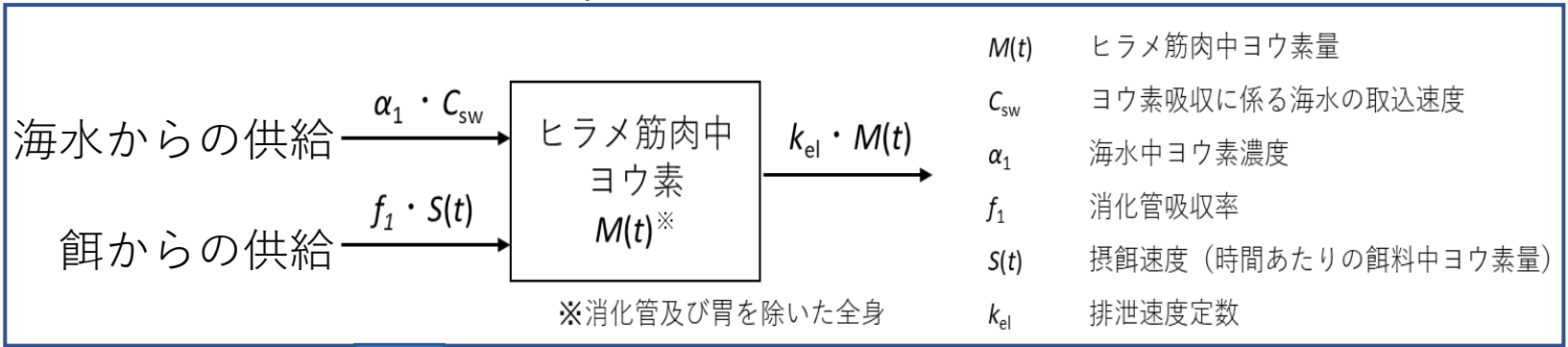


⇒ ¹²⁹Iデータに関して装置の不具合等により十分なデータ数・測定精度が得られなかった

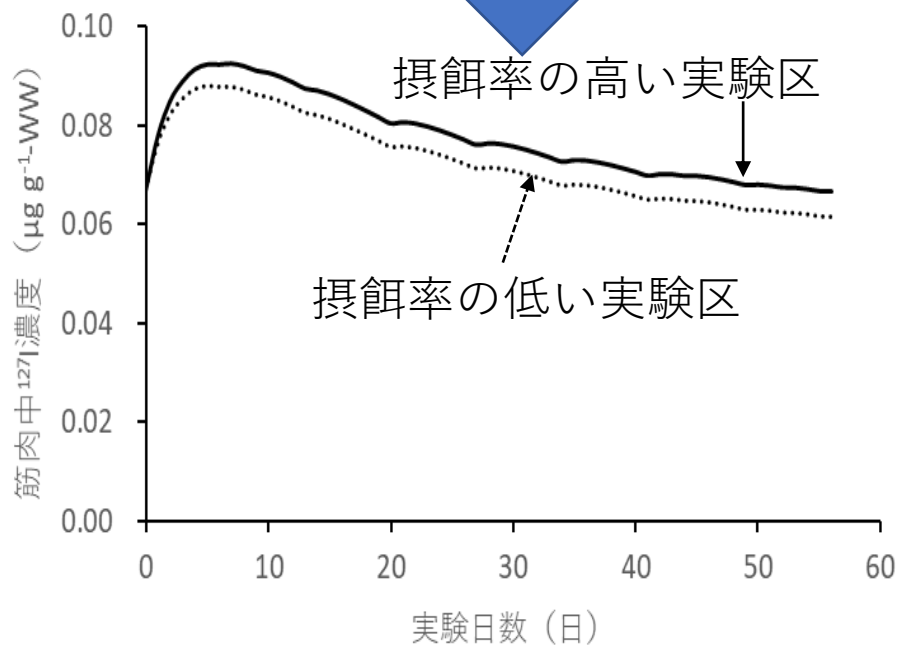
5. 成果の概要: サブテーマ2: 堆積物から底生魚への¹²⁹Iの移行過程の評価

●可食部（筋肉）中の安定ヨウ素 (¹²⁷I) 濃度に対する餌の寄与の推定

ヨウ素移行モデル (Imai et al., 2020を改編、本研究の実測データの一部を入力)

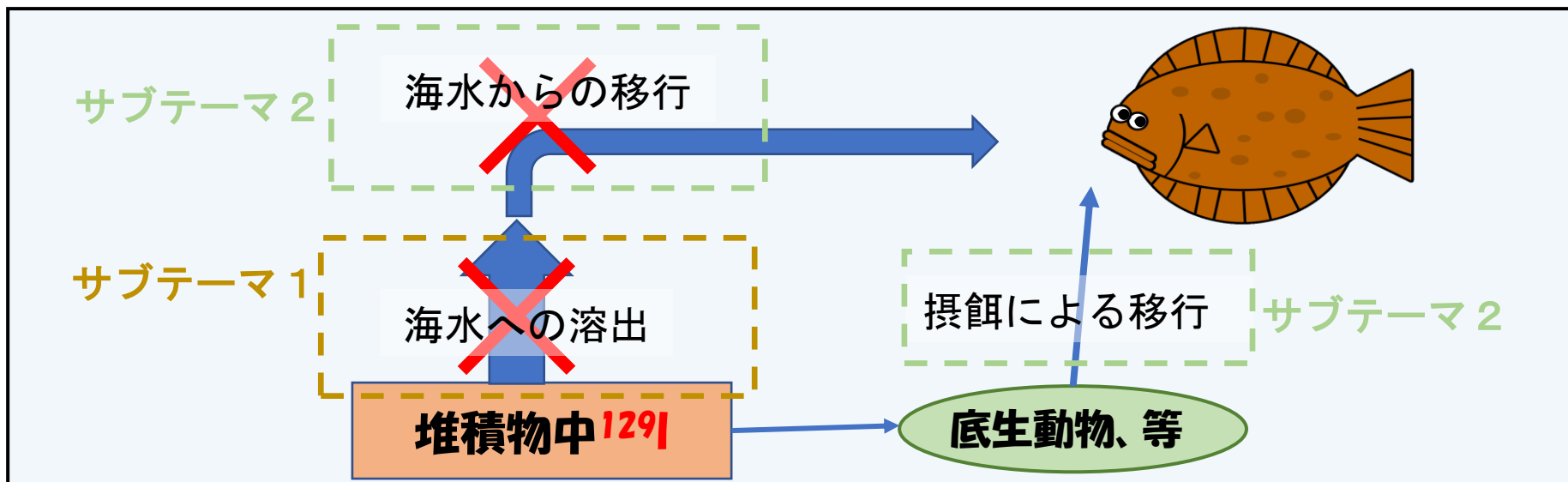


計算結果



- ・ 僅かながら摂餌率の高い実験区においてヨウ素濃度が高くなる傾向が認められた
- ⇒ 海水に溶出したヨウ素に加えて、摂餌を通して餌からもヨウ素が供給される可能性を示唆

5. 成果の概要:サブテーマ 1 及び 2 のまとめ



●六ヶ所村沿岸域における堆積物⇒底生魚への¹²⁹Iの移行について

- (1) [堆積物から海水への溶出～海水から底生魚への移行]という経路の寄与はほとんど無い
⇒堆積物からの¹²⁹Iの溶出が認められなかったこと（サブテーマ1の成果）に加え、堆積物と海水を用いた飼育実験において対照区と比較して底生魚中のヨウ素濃度に有意な増加が認められなかった（サブテーマ2）
- (2) [堆積物から底生動物への移行～底生動物から底生魚への移行]は寄与している可能性がある
⇒モデル計算により、摂餌によって底生魚中のヨウ素濃度が増加する可能性を示唆した（サブテーマ2）

*今後、種々の底生動物等について堆積物からの¹²⁹Iの移行に関する調査が必要

5. 成果の概要：環境政策等への貢献

- ・ 海洋沿岸域に隣接した原子力施設の建設や利用に伴う環境アセスメントへの応用
⇒放射性核種の予定排出量から予測される堆積物や魚中の放射性核種濃度の増加量に関する事前推定
- ・ 原子力施設周辺海域や福島沿岸域に関わる住民の安心醸成に資する情報を提供
⇒環境中における放射性核種の将来的な挙動や被ばく量に関する情報を提供することで、根拠の無い風評被害を抑止

6. 研究成果の発表状況

●査読付き論文（2021年7月まで、5報）

- 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}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, volume 789, 147942 (2021) (IF: 6.551). Flux and pathway of iodine dissolution from brackish lake sediment in the northeast of Japan.
- 5) Y. Satoh, S. Imai, S. Ueda: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, volume 329, 1477-1489 (2021) (IF: 1.371). Spatial variation of radioiodine (^{129}I) dissolution from sediment of a brackish lake beside a spent nuclear fuel reprocessing plant in Japan.

●「国民との科学・技術対話」の実施（2021年5月まで、2件）

第1回 環境研地域交流セミナー

①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らのヨウ素溶出速度の評価

②発表者：今井祥子

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