

# 北日本沿岸海域のコンブ類を用いた 海水中の放射性ヨウ素-129 濃度指標に関する研究

所属 国立研究開発法人海洋研究開発機構 氏名 池上 隆仁

## ショートアブストラクト【要旨】

北日本沿岸のコンブ類の  $^{129}\text{I}$  の経年変化を調べた。コンブ類の  $^{129}\text{I}$  濃度は、六ヶ所村再処理施設の試験運転による  $^{129}\text{I}$  放出量最大時及び東電福島第一原発事故直後においても、食品の規制値  $100\text{ Bq/kg}$  を大きく下回った。しかし、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は、海水中の  $^{129}\text{I}$  濃度の微増を鋭敏に反映し、コンブ類が沿岸の  $^{129}\text{I}$  濃度を簡便かつ定量的にモニタリングするための優れた指標となることが分かった。

## アブストラクト【本文】

### 1. はじめに

海洋におけるヨウ素の同位体は、主に安定同位体  $^{127}\text{I}$  と放射性同位体  $^{129}\text{I}$  (半減期 約 1570 万年) の 2 種類がある。 $^{131}\text{I}$  (半減期 8.02 日) も大気核実験や原子力事故によって環境中に放出されているが、短寿命核種であるため、平常時であれば環境中には存在しない。 $^{127}\text{I}$  は天然由来で  $^{129}\text{I}$  に比べて大量に存在し、人為的な変動は無いに等しい。環境中の  $^{129}\text{I}$  には以下の 4 つの起源がある。(1) 地球大気中に進入した宇宙線と大気中の  $^{129}\text{Xe}$  との反応、(2) 大気核実験による飛散、(3) 使用済核燃料再処理施設からの放出、(4) 原子力関連施設の事故による放出である。(1) は天然由来で、(2) ~ (4) は人為起源である。

2007 年時点の日本近海の海水中の  $^{129}\text{I}$  のうち、2.4~3%が天然由来、6.8%~14%が核実験由来、87~90%が再処理施設からの放出に由来する<sup>1)</sup>。2004 年時点での世界の再処理施設からの  $^{129}\text{I}$  総放出量は約 5,400 kg と推定されているが<sup>2)</sup>、その中でも欧州の再処理施設からの  $^{129}\text{I}$  放出量は約 90%を占める<sup>3)</sup>。日本原燃株式会社が所有する青森県六ヶ所村の再処理施設では、2006 年 4 月から 2008 年 10 月までの期間に実際の使用済み核燃料を用いた運転試験を実施した。この期間中、 $^{129}\text{I}$  は気体廃棄物として 0.11 kg、液体廃棄物として 0.077 kg

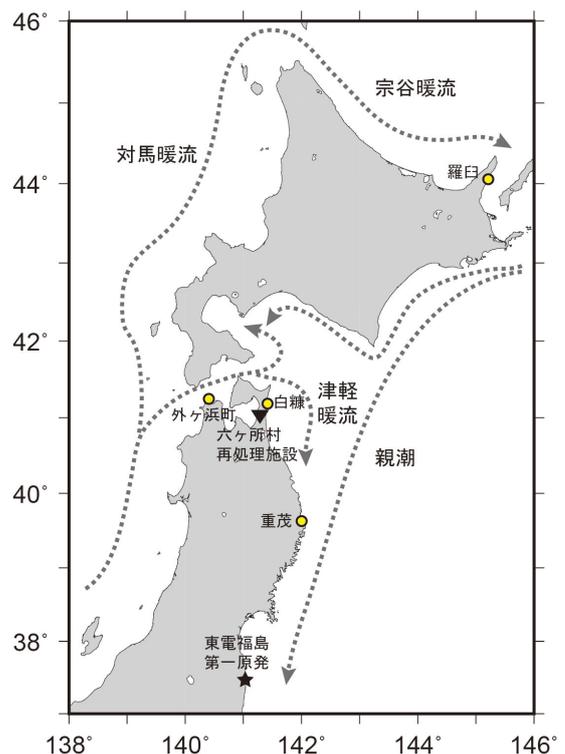


図 1 コンブ類試料の採取点

黄色の○が試料採取点、▼が六ヶ所村再処理施設、★が東電福島第一原発を示す。矢印は主な海流を表す。

が放出された<sup>4)</sup>。これらの量は、欧州の再処理施設から放出された<sup>129</sup>Iの0.004%であった。2011年3月の東京電力福島第一原子力発電所事故（以下、東電福島第一原発事故と記載する）では、0.7 kgの<sup>129</sup>Iが気体として、0.37~1 kgが液体として放出された<sup>5)</sup>。

海藻にはヨウ素が豊富に含まれている。コンブ類は、日本人の食生活に欠かせない食用海藻であり、主に北海道と本州北東部沿岸の親潮（図1）の冷たい海水に生育する<sup>6)</sup>。例えばコンブ類の一種であるマコンブは、自然界で最もヨウ素を蓄積する生物の一つであり、海水中のヨウ素（約60 ng/g）を細胞内に3万倍に濃縮し、蓄積する<sup>7)</sup>。このため、大西洋と北極海で、海藻の<sup>129</sup>I濃度の時系列変化と人為的な<sup>129</sup>I排出との関係がモニタリングされてきた<sup>8),9)</sup>。しかし日本では、海藻の<sup>129</sup>I濃度の時系列変化は、六ヶ所村再処理施設の沿岸海域からのみ報告されており<sup>10)</sup>、日本沿岸の広域調査は本研究が初めてである。

本研究では、2007~2019年の北日本沿岸のコンブ類の<sup>129</sup>I濃度を調査した。調査期間中、日本近海の<sup>129</sup>I収支に影響を与えたと思われるイベントは、2006~2008年に六ヶ所村再処理施設で行われた実際の使用済み核燃料を使った試験運転と、2011年の東電福島第一原発事故の2つである。本研究の目的は、(1) 2007~2019年に北日本の沿岸海域で採取したコンブ類の<sup>129</sup>I濃度の時空間変動を明らかにすること、(2) 六ヶ所村の再処理施設と東電福島第一原発事故によって排出された<sup>129</sup>Iがコンブ類に与えた影響を評価すること、(3) コンブ類の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比と海水の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比の関係、およびコンブ類の生物指標としての有用性を評価することである。

## 2. 試料と方法

コンブ類（*Saccharina* 属）試料は、2007年8月から2019年10月まで毎年、コンブ類の最大成長期である夏から初秋（7~10月）にかけて、北日本沿岸の4地点で採取した（図1）。試料は、湿重量ベースで各5 kg程度を船上から鉤を用いて、水深約5 mから採取した。重茂（岩手県）、白糠（青森県）、外ヶ浜町（青森県）の3地点で採取されたマコンブ（*Saccharina japonica*）と羅臼（北海道）で採取されたオニコンブ（*Saccharina japonica* var. *diabolica*）を用いた。2011年は、2011年3月11日に発生した東日本大震災に伴う津波災害のため、重茂での試料の採取はなかった。

試料中の<sup>129</sup>Iの濃度は低いため、ヨウ素を化学的に分離・精製した後、試料中の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比を加速器質量分析装置（Tandem™ AMS）で測定した。試料からのヨウ素の抽出は、燃焼法と溶媒抽出法<sup>11)</sup>を用いて行った。各コンブ試料の<sup>127</sup>I量は、高速液体クロマトグラフィー（HPLC）または誘導結合プラズマ質量分析計（ICP-MS）により測定した。

コンブ類と海水の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比を比較するため、公益財団法人海洋生物環境研究所が科学技術庁（1991~2001年）、文部科学省（2001~2013年）、原子力規制庁（2013年~現在）の委託により実施した海洋放射能モニタリングデータのうち、2006~2019年の岩手県と青森県沖の表層海水の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比<sup>12)</sup>を用いた（申請者が文献12でデータ公表済み）。

## 3. 結果と考察

### 3-1. コンブ類の<sup>129</sup>I濃度と人為的な<sup>129</sup>I排出との関係

コンブ類に含まれる<sup>129</sup>I濃度は、六ヶ所村再処理施設の試験運転期間中<sup>129</sup>Iの放出量が最も高かった2007~2008年の期間に3.6~42 mBq/kg-乾燥物であり、それ以外の期間（2009

～2019年)の濃度範囲(0.27～2.9 mBq/kg-乾燥物)に比較して高い値が観測された(図2a)。しかし、2008年8月に観測された最大値である42 mBq/kg-乾燥物は、一般食品の摂取量の規制値である100 Bq/kgを大きく下回っており、六ヶ所村再処理施設から放出された<sup>129</sup>Iのコンブ類への影響はわずかなものと見られた。

### 3-2. コンブ類と海水の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比の関係

コンブ類の<sup>129</sup>I濃度は、ヨウ素取り込み能力の個体差や、環境ストレスによって変化するため、<sup>129</sup>I濃度の変動がわずかな場合、自然変動との違いは見分けづらい。そこで環境中のわずかな<sup>129</sup>Iの変動の指標として<sup>129</sup>I濃度よりも有効と考えたのがコンブ類の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>Iの原子数比である。<sup>127</sup>I、<sup>129</sup>Iは質量数にほとんど差がないため、海水からコンブ類への取り込みと排出の過程において区別されない。そのため、<sup>127</sup>I、<sup>129</sup>Iは海水中に存在する<sup>127</sup>I、<sup>129</sup>Iと同じ割合でコンブ類に取り込まれ、海水とコンブ類との間で<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>Iの原子数比が一致する。<sup>127</sup>Iは海洋における滞留時間が34,000年と長く、コンブ類の生育期間の範囲内において、海水中の濃度は一定とみなせるため、コンブ類の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比から海水の<sup>129</sup>I濃度を復元できる。<sup>129</sup>Iは半減期が長く、海洋での滞留時間が長いため、人為的な<sup>129</sup>Iが付加される以前の海洋では<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>Iの原子数比は $1.5 \times 10^{-12}$ とほぼ一定であった<sup>13)</sup>。しかし、現在の北日本沖合の表層海水の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比は前述のように(2)～(4)の人為的な<sup>129</sup>Iの付加の影響を受けているため、一時的な増加が見られる2006～2008年と2011年のデータを除いても<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比の平均値は $(7.0 \pm 0.9) \times 10^{-11}$ と、人為的な<sup>129</sup>Iが付加される以前の海洋に比べて高い値を示した(図2b)。

コンブ類の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比は2006～2008年と2011年の一時的な増加を除けば表層海水の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比とよく一致した(図2b)。2006～2008年と2011年に両者の比が一致しなかった原因としては、コンブ類試料と海水試料では採取場所が異なること、また海水試料は採取時の瞬間的な<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比を表すのに対して、コンブ類の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比はコンブが生育していた期間(2～3年)の海水の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比を平均化した値を表しているためと考えられた。

### 3-3. コンブ類の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比と人為的な<sup>129</sup>I排出との関係

2007～2008年のコンブ類の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比は $(21 \sim 260) \times 10^{-11}$ の範囲にあり、2009～2019

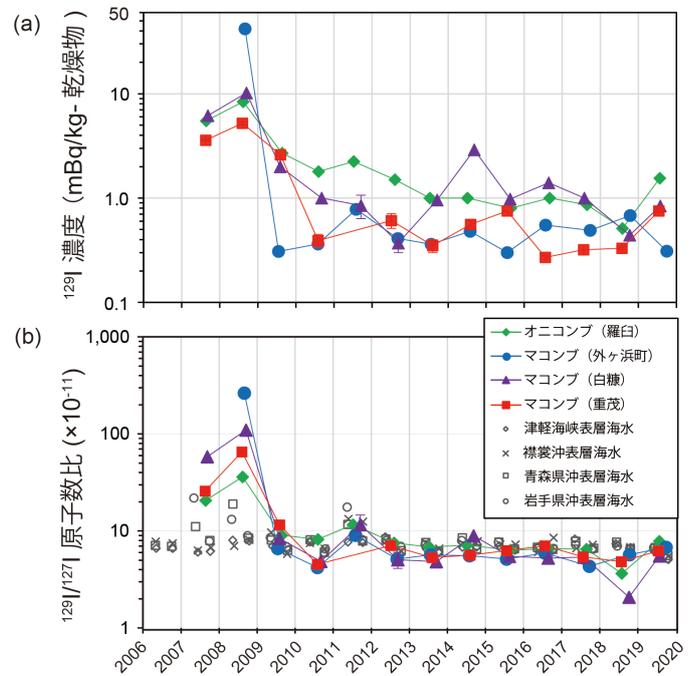


図2 (a)コンブ類の<sup>129</sup>I濃度、(b)コンブ類及び海水の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比  
青森県沖表層海水及び岩手県沖表層海水の<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I原子数比は各海域の平均値。

年に観測された  $(2.1\sim 12)\times 10^{-11}$  の範囲よりも一桁以上高い値を示した。六ヶ所村再処理施設からの液体廃棄物の放出は太平洋側で行われており、表層海流による輸送経路（図 1）や速度を考慮すると<sup>12)</sup>、羅臼と外ヶ浜町の海水の  $^{129}\text{I}$  濃度には影響を与えない可能性が高い。日本周辺の気象条件を考慮すると<sup>12)</sup>、2007～2008 年の羅臼と外ヶ浜町のコンブ試料の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比の増加は、六ヶ所村再処理施設の気体状廃棄物中の  $^{129}\text{I}$  が大気によって輸送され、日本海側の海水面に降下したのち、対馬暖流、宗谷暖流、津軽暖流により運ばれ、コンブ類に取り込まれたためと考えられた。重茂と白糠のコンブ類は、気体だけでなく液体として放出された  $^{129}\text{I}$  も取り込んだ可能性があるが、両者の寄与は区別できなかった。

2011 年の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子比は、 $(9.0\sim 12)\times 10^{-11}$  の範囲であり、2010 年及び 2012 年以降と比較して 31～462%（中央値 78%）高い値を示した。2011 年は、六ヶ所村再処理施設から気体廃棄物は放出されず、液体廃棄物が 0.003 kg のみ放出された<sup>4)</sup>。海流を考慮すると、2011 年に採取された羅臼と外ヶ浜のコンブ試料の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比の増加は、東電福島第一原発事故により気体として放出された  $^{129}\text{I}$  が海面に沈着したのち、コンブ類に取り込まれた結果と考えられた。白糠では、液体として放出された  $^{129}\text{I}$  も取り込んだ可能性がある。

#### 4. 結論と今後の展望

コンブ類の  $^{129}\text{I}$  濃度は、六ヶ所村再処理施設の試験運転による  $^{129}\text{I}$  放出量最大時及び東電福島第一原発事故直後においても、食品の規制値 100 Bq/kg を大きく下回ることを確認した。海水試料の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は、海水採取時の瞬間値であるため、 $^{129}\text{I}$  濃度が短期間に大きく変動する場合、過大もしくは過小評価する恐れがある。しかし、コンブ類の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比は、生育していた期間における海水の平均的な  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  原子数比を反映し、六ヶ所村再処理施設と東電福島第一原発事故による  $^{129}\text{I}$  放出を検出できることが分かった。また、地理的に離れた複数点で観測することで、気体廃棄物中の  $^{129}\text{I}$  のコンブ類への拡散プロセスを明らかにすることができた。コンブ類は沖合の海水試料に比べて採取が容易で、海水の  $^{129}\text{I}$  濃度のわずかな変化を反映するため、三陸海域の海水中の  $^{129}\text{I}$  の長期モニタリングのための優れた指標となり得る。海洋における  $^{131}\text{I}$  の挙動は、半減期が極端に短いため、観測では捉えることが困難だが、挙動が類似する  $^{129}\text{I}$  を詳細に調べることで予測が可能になるだろう。今後は、三陸海域のコンブ類の観測点を増やすことで液体廃棄物に由来する  $^{129}\text{I}$  の挙動も明らかにし、水産資源の安全・安心に資するデータを取得したいと考えている。

#### 5. 引用文献

- 1) Suzuki et al. 2010. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 268:1229–1231; 2) Snyder et al. 2010. *Geochemistry, Geophys. Geosystems* 11:Q04010; 3) Aldahan et al. 2007. *Appl. Geochemistry* 22:606–618; 4) JFNL, [https://www.jnfl.co.jp/ja/business/report/public\\_archive/](https://www.jnfl.co.jp/ja/business/report/public_archive/); 5) Povinec et al. 2013. *Biogeosciences* 10:5481e5496; 6) Yotsukura et al. 2008. *J. Jpn. Bot.* 83:165–176; 7) Hou et al. 1997. *Sci. Total Environ.* 204:215–221; 8) Hou et al. 2000. *Sci. Total Environ.* 246:285–291; 9) Yiou et al. 2002. *J. Environ. Radioact.* 60:61–71; 10) Satoh et al. 2019. *Environ. Monit. Assess.* 191:61; 11) Schnetger and Muramatsu 1996. *Analyst* 121:1627–1631; 12) Ikenoue et al. 2020. *Mar. Pollut. Bull.* 161:111775; 13) Fehn et al. 2007. *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* 259:496–502.