

放射性廃棄物処分関連分野
複数課題プログラムを構成する
研究開発課題（プロジェクト）

C. 放射性廃棄物共通技術調査

評価用資料

令和元年 11月7日

経済産業省資源エネルギー庁電力・ガス事業部放射性廃棄物対策課
国立研究開発法人量子科学技術研究開発機構量子医学・医療部門放射線医学総合研究所

目 次

	ページ
<u>I. 研究開発課題（プロジェクト）概要</u>	2
1. 事業アウトカム	3
2. 研究開発内容及び事業アウトプット	4
3. 当省（国）が実施することの必要性	5
4. 事業アウトカム達成に至るまでのロードマップ	6
5. 研究開発の実施・マネジメント体制等	7
6. 費用対効果	7

I. 研究開発課題（プロジェクト）概要

プロジェクト名	放射性廃棄物共通技術調査			
行政事業レビューとの関係	平成28年度	行政事業レビューシート	事業番号	0403
	平成29年度	行政事業レビューシート	事業番号	0348
	平成30年度	行政事業レビューシート	事業番号	0324
上位施策名	第4期科学技術基本計画（平成23年8月）、エネルギー基本計画（平成26年4月）、特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針（平成27年5月）			
担当課室	経済産業省資源エネルギー庁 電力・ガス事業部 放射性廃棄物対策課			

プロジェクトの目的・概要

放射性廃棄物の着実な処分の実施、処分候補地選定の推進や安全性の向上を通じた国民の地層処分に対する納得感や安心感の向上・醸成を目的として、処分事業の推進に必要な基盤技術（調査技術や評価技術）の整備及び高度化を実施する。これらを通じて、放射性廃棄物の処分に関する国民理解の獲得・促進と着実な処分の実施を推進する。

高レベル放射性廃棄物等の地層処分を始めとして、放射性廃棄物処分については長期的事業展開等を視野に入れた継続的取組が不可欠である。そのため、処分事業等の基盤となる共通的な技術を先行的に整備し、これによって処分事業等の円滑な推進に資する。

具体的には、日本固有の特徴を考慮し、農作物や土壌等に対する放射性核種の生物圏移行評価手法の高度化を図る。これらを通じて、放射性廃棄物の安全評価技術に関する国民理解の獲得・促進と着実な処分の実施を推進する。

予算額等（委託）

(単位：百万円)

開始年度	終了年度	中間評価時期	終了時評価時期	事業実施主体
平成12年度	平成29年度	平成28年度	令和元年度	量子科学技術研究開発機構
H28FY 執行額	H29FY 執行額	H30FY 執行額	総執行額	総予算額
89	75	—	164	172

1. 事業アウトカム

事業アウトカム指標		
各検討項目を着実に実施することで、信頼性のあるデータの拡充・評価方法の精緻化が進められ、これが放射性廃棄物処分の安全評価に対する納得感・安心感の醸成に資すると考えられる。そこで、生物圏における核種移行特性の拡充と、それに伴う人間への影響評価の精緻化をする上で必要な検討項目数を指標と設定する。		
指標目標値		
事業開始時（25 年度）	計画： 事業終了時までに 86 項目	—
中間評価時（28 年度）		実績：56項目 ・気温が異なる地域で土壌－植物間移行係数（TF）を収集・ ^{14}C の土壌から大気へのガス化率のデータ収集・Pu および Th の高精度質量分析法を確立
終了時評価時（令和元年度）		実績：86項目 ・気温の異なる地域での TF および異なる気温での Kd データベースを拡充。 ・ ^{14}C の水稻移行は、微生物活動による土壌から大気への ^{14}C 放出がキー・パラメータになることを示した。 ・日本の Pu, Th および Cl の TF データを収集した。さらに、日本全域から採取した畑土壌中の Am 濃度を測定し、Pu との比較を行った。（達成度：100%）
事業目的達成時		実績：同上 ・IAEA 等の国際機関のデータベースに本事業で得られたデータを登録 ・ ^{14}C の土壌中挙動は土壌微生物によるガス化が重要であることを IAEA の TECDOC に記載 ・ ^{14}C の水稻移行モデル構築 ・実際の水田環境における Pu の TF が既存値より、1-2 桁低いことを示した。

2. 研究開発内容及び事業アウトプット

(1) 研究開発内容

放射性廃棄物の地層処分に関わる安全評価では、対象とする時間スケールが超長期に渡ることから、地下の処分場から放射性核種が地下水により移動し、最終的に人間の生活環境を含む生物圏に到達することをあえて想定している。したがって、その生物圏における核種移行プロセスとこれによる被ばく経路について適切にモデル化を行い、人間への影響を評価することが必要である。地球環境の長期変遷を考慮した閉鎖後 s 長期の安全評価に関する技術開発課題として、地表環境の長期的変遷を考慮した生物圏モデルの開発(含、GBI の取り扱い)が挙げられている(NUMO-TR-11-01 pp. 7-78、2011)。長期の安全評価を行うためには、生物圏モデルに使用するデータベースも気候変動等を考慮したものを構築することが必要である。

本事業では、上記の状況を踏まえ、生物圏移行パラメータに及ぼす気温や微生物活動等の影響評価を行うと共に、その変動を考慮したデータベースを構築する。さらに、これまでほとんどデータが得られていない核種(Pu、Am、Th 及び Cl 等)についても、超高精度分析法を開発して我が国のパラメータ収集を進める。

本事業は、以下の3つの課題から構成されている。

- 1) 気候変動を考慮した環境移行パラメータ(TF および Kd) データベースの構築
- 2) 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査
- 3) 重要核種(Pu、Am、Th および Cl 等)の超高精度分析による環境移行パラメータ収集

1) 気候変動を考慮した環境移行パラメータ(TF および Kd) データベースの構築

気温の異なる条件における TF および Kd の文献調査を進めるとともに、国内の比較的温暖地と寒冷地において農作物試料の採取とその耕作土壌を採取し、元素分析を行って TF を導出した。また、統計解析により温暖および寒冷条件で得られた TF や Kd に変動を与える因子の抽出を行った。さらに福島第一原発事故由来の放射性 Cs に着目して実環境における挙動調査を行い、現実的な環境移行パラメータを蓄積して成果を公表した。

2) 放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査

放射性炭素(^{14}C)の水稻への移行量推定モデルの精緻化における移行パラメータ整備においては、水稻近傍大気における $^{14}\text{CO}_2$ 濃度の変化が重要なパラメータであることを明らかにした。微生物活性により土壌から発生する $^{14}\text{CO}_2$ 量が増加することから、微生物活動を反映する指標として土壌呼吸活性を選定してパラメータを蓄積した。全国各地の水田土壌においてこれらのデータを迅速に得るため多試料同時測定法を開発し、全国各地の水田土壌におけるデータを収集した。さらに重要な移行パラメータである ^{14}C のガス化と微生物活動の指標との関係について整理し、これまでに開発してきた水田における放射性炭素移行モデルの精緻化に活用した。

3) 重要核種(Pu、Am、Th および Cl 等)の超高精度分析による環境移行パラメータ収集

これまでに我が国で測定されていない、または測定例の少ない重要核種(Pu、Am、Th および Cl 等)の環境移行パラメータを取得するため、超高精度分析法を開発した。これにより Pu の玄米への TF を導出しデータを初めて提示した。Cl については安定元素に着目し ICP-QQQ を用いることで土壌中の低濃度分析が可能となった。土壌中の Pu の化学分離では、有機物が回収率低下の原因となるため、灰化処理(400-900℃)を行うが、その温度は研究者により異なっている。本事業において、灰化温度が 450℃以上になると硝酸抽出出来ない Pu 量が増大し、精確な定量が出来ない事を明らかにした。Th については、高分解能 ICP-MS により玄米の定量を行い、TF データを蓄積すると共に、分析法によっては植物定量値が誤って計測されることを明らかにした。Am については土壌中の分析法を開発し、我が国の土壌中の Am 分布を明らかにした。さらに、開発した Pu 分析法を用いて福島第一原発事故周辺の試料を分析することで、環境移行パラメータ導出のためのデータを得た。

(2) 事業アウトプット

事業アウトプット指標		
指標：事業実施によって得られた技術や知見に関する外部発表件数 理由：技術の開発を実施する上では、その過程で種々の要素技術など外部発表が可能な知見が得られる。そこで、進捗確認の観点から外部発表件数を指標とした。		
指標目標値	計画	実績
事業開始時（25 年度）	・事業終了時までには複数件の外部発表を実施する。	実績：—
中間評価時（27 年度）		実績：170 件 福島原子力発電所事故により環境中に放出された放射性物質の環境半減期の把握、IAEA TRS-479 にデータを記載等
終了時評価時（令和元年度）		実績：242 件（合計） IAEA の TecDoc にデータを記載（3 報）、米への TF-Pu 取得等

< 共通指標実績 >

論文数	論文の被引用度数	特許等件数（出願を含む）	特許権の実施件数	ライセンス供与数	国際標準への寄与	プロトタイプの実成
26	129	0	—	—	1	—

3. 当省(国)が実施することの必要性

原子力発電に伴い必然的に発生する放射性廃棄物の処分は、公益性が極めて高く、国民全体の利益からみても重要な課題である。地層処分や中深度処分求められる長期的な安全確保や処分事業の期間を踏まえれば、わが国の処分計画の着実な推進にむけて、国としても先導性と継続性をもって基盤的な研究開発を着実に進め、国民各層の理解を得ていくことが重要である。

【参考：国の施策での位置付け】

(1) エネルギー基本計画（平成30年7月30日閣議決定）

- ・地層処分の技術的信頼性について最新の科学的知見を定期的かつ継続的に評価・反映するとともに、将来に向けて幅広い選択肢を確保し、柔軟な対応を可能とする観点から、使用済燃料の直接処分など代替処分オプションに関する調査・研究を着実に推進する。あわせて、処分場を閉鎖せずに回収可能性を維持した場合の影響等について調査・研究を進め、処分場閉鎖までの間の高レベル放射性廃棄物の管理の在り方を具体化する。
- ・廃炉等に伴って生じる放射性廃棄物の処理・処分については、低レベル放射性廃棄物も含め、（中略）処分の円滑な実現に向け、国として、規制環境を整えとともに、必要な研究開発を推進するなど、安全確保のための取組を促進する。

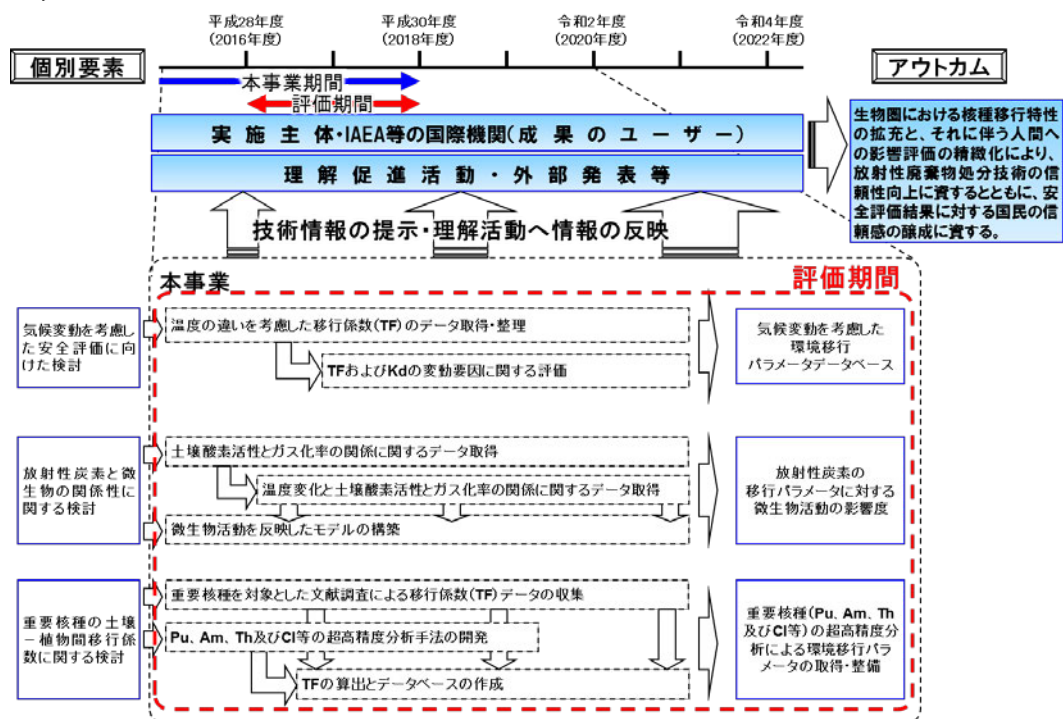
(2) 特定放射性廃棄物の最終処分に関する基本方針（平成27年5月22日閣議決定）

- ・国、原子力発電環境整備機構及び関係研究機関は、連携及び協力を行いつつ、最終処分の技術的信頼性等の定期的な評価を行うことを通じ、全体を俯瞰して総合的、計画的かつ効率的に当該技術開発等を進めるものとする。

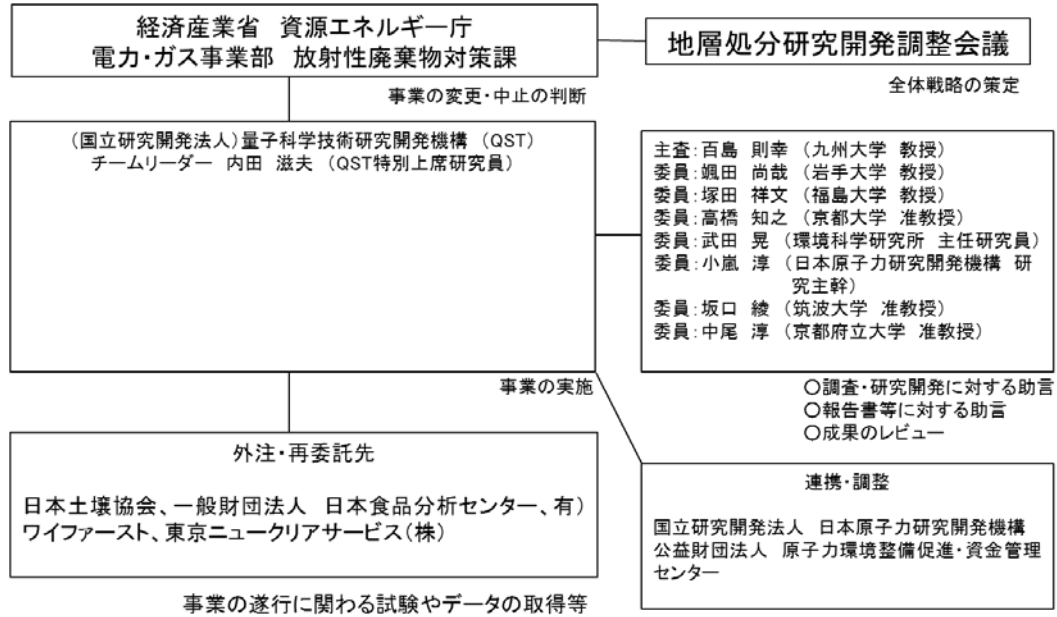
4. 事業アウトカム達成に至るまでのロードマップ 全体スケジュール

事業項目	25年度	26年度	27年度	28年度	29年度
1.気候変動を考慮した環境移行パラメータ(TFおよびKd)データベースの構築		移行係数に対する気温の影響調査とデータ収集		データベース	
2.放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査		微生物活動と環境移行パラメータ			
		微生物活動を反映したモデルの構築			
3.重要核種(Pu, Am, ThおよびCl)の超高精度分析による環境移行パラメータ収集		超高精度分析法開発			
		土壌-農作物の移行パラメータの収集			

ロードマップ



5. 研究開発の実施・マネジメント体制等



6. 費用対効果

本プロジェクトでは、平成28年度から29年度にかけて1.6億円の国費を投資することにより、日本固有の特徴を反映したデータを多く取得し63件の外部発表がなされているとともに、国際機関が発行するレポートに多く引用され、その費用対効果は特筆すべきものである。

加えて、それぞれの外部発表は、当該分野の国内外の技術者・研究者への理解促進にも寄与しているとともに、外部発表の結果として得られるフィードバックで成果が着実に高度化されており、事業アウトプット及び事業アウトカムに照らし合わせても妥当であると考えられる。

【参考資料】

＜事業成果（詳細版）＞

（１）気候変動を考慮した環境移行パラメータ（TF および Kd）データベースの構築

（１）-１ TF の文献調査結果

国際的に利用される IAEA Technical Report Series No. 472 の文献値には、熱帯亜熱帯と温帯のデータがあり、表 1-1 で示す植物群分類で比較できるものの作物間差が考慮されないものの、気候間での変動は数倍程度である可能性が示唆された。

表 1-1. IAEA の TRS-472 に記載されている熱帯、亜熱帯および温帯の TF の比較（一部）

Elem ent	Tropical				Sub-tropical				Temperate			
	n	GM	min	max	n	GM	min	max	n	GM	min	max
穀類												
Co									61	8.5E-3	4.0E-4	7.2E-1
Cs	4	2.3E-1	6.0E-2	1.0E+0	23	3.1E-3	1.0E-3	2.6E-2	470	2.9E-2	2.0E-4	9.0E-1
I					1	1.5E-4			13	6.3E-4	1.0E-4	1.1E-2
Pb	1	2.5E-3							9	1.1E-2	1.9E-3	4.8E-2
Ra	3	3.5E-3	1.7E-3	1.0E-2					24	1.7E-2	8.0E-5	6.7E-1
Sr	2	6.0E-1	4.4E-1	7.6E-1	8	5.1E-2	3.6E-2	6.5E-2	282	1.1E-1	3.6E-3	1.0E+0
Tc					1	3.0E-2			2	1.3E+0	1.8E-1	2.4E+0
U	3	1.8E-2	6.0E-4	8.2E-1					59	6.2E-3	1.6E-4	8.2E-1
Zn	2	2.2E+1	1.8E+1	2.6E+1					89	1.8E+0	2.0E-2	1.4E+1
葉菜類												
Ag					8	2.1E-2	2.0E-3	1.2E-1	5	1.8E-4	5.9E-5	1.3E-3
Co	41	9.2E-2	3.2E-2	2.8E-1	19	1.1E-1	4.8E-3	1.5E+0	185	1.7E-1	1.3E-2	1.0E+0
Cs	49	9.8E-1	1.1E-1	2.9E+0	35	3.8E-2	1.1E-3	1.4E+0	290	6.0E-2	3.0E-4	9.8E-1
I					8	3.0E-2	6.7E-3	8.0E-2	12	6.5E-3	1.1E-3	1.0E-1
Mn					4	1.0E+0	2.3E-1	1.3E+1	103	4.1E-1	5.2E-2	3.0E+0
Pu					2	1.1E-3	1.9E-4	2.0E-3	13	8.3E-5	1.0E-5	2.9E-4
Ra*	22	2.7E-2	3.0E-3	4.3E-1					73	6.6E-2	1.8E-3	5.9E-1
Sr	34	3.6E+0	1.4E+0	1.2E+1	36	9.8E-1	5.2E-2	5.0E+0	217	7.6E-1	3.9E-3	7.8E+0
Tc					6	7.2E-1	1.7E-1	1.3E+0	10	1.8E+2	4.5E+0	3.4E+3
Th	6	3.4E-5	1.8E-5	7.6E-5					24	1.2E-3	9.4E-5	2.1E-1
U	19	4.8E-2	4.4E-3	4.1E-1					108	2.0E-2	7.8E-5	8.8E+0
Zn	41	1.7E+0	7.3E-1	4.8E+0	18	8.9E-1	1.1E-1	1.4E+1	112	2.4E+0	1.0E-1	1.7E+1
果菜類等												
Ag					1	3.0E-3			5	6.4E-4	2.5E-4	2.0E-3
Co	7	1.4E-1	5.7E-2	2.3E-1	3	7.9E-1	7.3E-1	8.8E-1	28	3.1E-1	1.4E-1	6.9E-1
Cs	38	7.0E-1	5.0E-2	1.1E+1	13	1.9E-2	2.3E-3	3.0E-1	38	2.1E-2	7.0E-4	7.3E-1
I					3	1.2E-3	6.5E-4	2.7E-3	1	1.0E-1		
Pu	1	1.7E-5			2	8.2E-4	4.3E-4	1.2E-3	9	6.5E-5	6.0E-6	2.0E-4
Pb	2	7.0E-3	7.0E-3	7.0E-3					5	1.5E-2	1.5E-3	3.9E+0
Ra*	9	3.2E-3	5.2E-4	7.0E-2					41	1.2E-2	2.4E-4	3.4E-1
Sr	16	1.2E+0	2.6E-1	4.2E+0	15	1.1E-1	1.9E-2	6.5E-1	19	3.6E-1	7.1E-3	7.9E+0
Tc					2	3.0E-1	3.0E-1	3.0E-1				
Th	2	5.3E-6	3.3E-6	7.3E-6					17	7.8E-4	6.2E-5	1.6E-2

赤：温帯の TF の 5 倍以上。太字：10 倍以上。青：温帯の TF の 1/5 以下。太字：1/10 以下。*:訂正値（corrigendum 参照）

(1) -2 実環境試料 TF の導出と温暖地と寒冷地の相違

収集したデータベースから、温暖地（沖縄、鹿児島、宮崎、熊本、高知、長崎と福岡）と寒冷地（北海道、青森、秋田、岩手）の TF データをそれぞれ抽出した。寒冷地および温暖地の条件はそれぞれの都道府県庁所在地において過去 10 年間の年間平均気温 12℃以下または 17℃以上である。比較する TF は玄米については寒冷地 26 試料、温暖地 24 試料、ジャガイモについては寒冷地 23 試料、温暖地 21 試料である。一部の元素の TF について箱ひげ図を図 1-1 に示した。

解析の結果、玄米の TF について有意差が認められたのは、 $0.01 < p < 0.05$ は Na、Si、Co、As、Ba、 $p < 0.01$ の項目は Fe、Zn、Se、Mo であった。 $P < 0.01$ の項目は全て温暖地において TF が高くなることを示し、Fe、Zn、Se で温暖地は寒冷地の TF の幾何平均値の 1.5 倍、Mo では 2.3 倍であった。ジャガイモでは $0.01 < p < 0.05$ は Na、Mg、Ca、V、Gd であり、Mn と Ba で $p < 0.01$ となった。Mn と Ba の幾何平均値を比較すると、どちらの元素も温暖地で TF が高く、それぞれ 1.5 倍、2.3 倍であった。Ba については玄米でも同様に温暖地で高くなる傾向が示されている ($p < 0.05$)。

なお、葉菜類についても同様に解析を行ったが、差が見られなかった。一方で、葉菜類についてはキャベツのように結球性のものと、ホウレンソウのように非結球性のものがあるため、これらに分類して TF を比較したところ、TF の低い元素ほど非結球性の葉菜類への移行係数が結球性に比べて高くなることがわかった。すなわち、種類（ここでは作物の形状）による違いの方が気温の違いよりも影響が大きいと言えた。

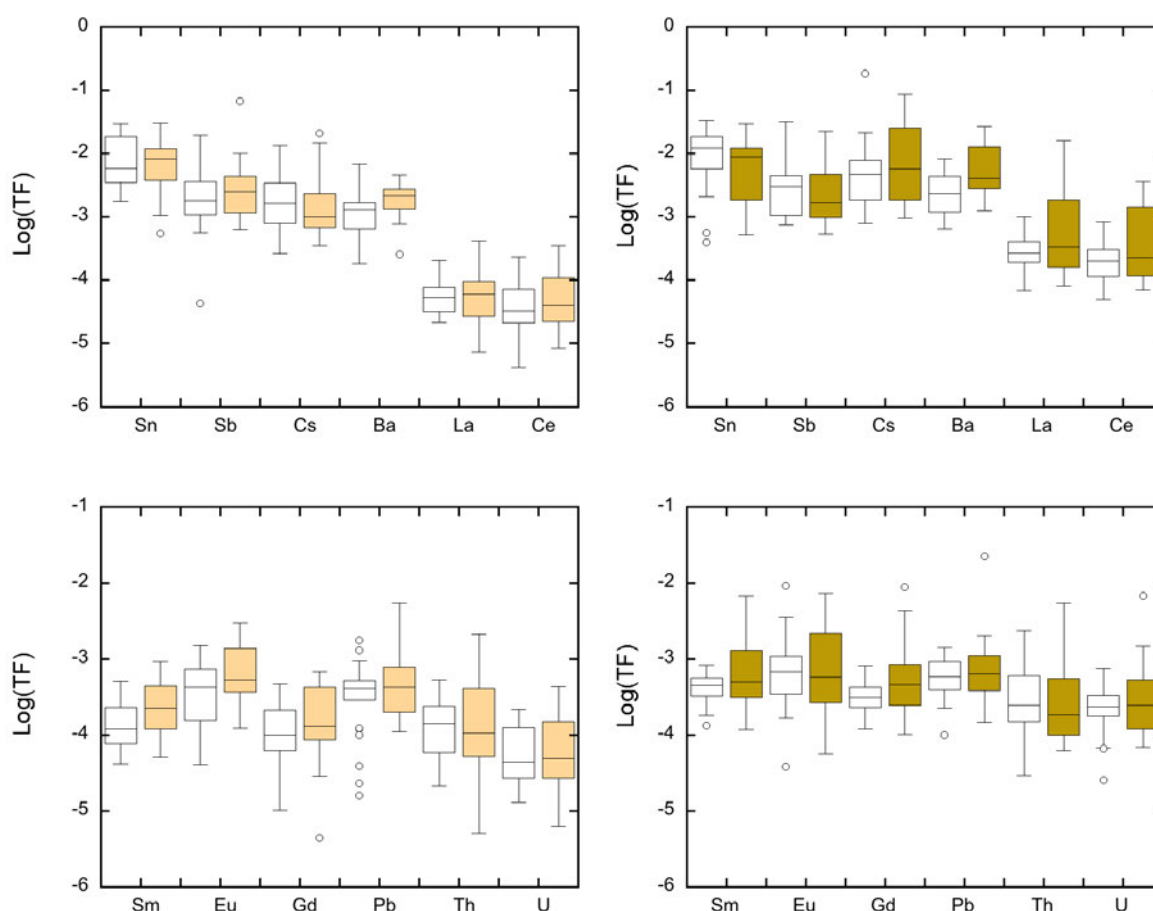


図 1-1 比較的寒冷地（白）と温暖地（着色）の Log(TF) の比較（一部）。

（左：玄米、右：ジャガイモ）

(1) -3 Kd-Csの温度による違い

全てのKdデータを図1-2にプロットし、それぞれの温度でKdは対数正規分布に近似できた。水田土壌と畑土壌に分けて解析した結果、水田土壌のKd値は、23℃の結果と30℃の結果がほぼ一致したが、10℃では有意にKdが高くなる結果が得られた（対数変換後のKd値について、異なった分散をもつ独立2群データとして解析した。t-検定：対30℃で $p=0.0075$ 、対23℃で $p=0.037$ ）。一方、畑土でも23℃におけるKd値は30℃の場合との相関が高く結果がほぼ一致した。10℃と23℃ではやや違いが見られたものの有意差はなかった（対数変換後のKd値について、異なった分散をもつ独立2群データとして解析）。

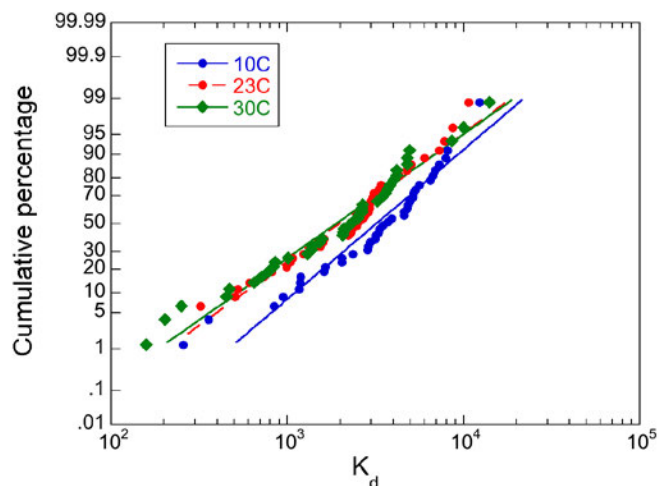


図1-2 10、23、30℃におけるKd-Csの確率度数分布

<まとめ>

本事業では、生物圏における核種移行プロセスとこれによる被ばく経路について人間への影響を評価可能にすることにより、放射性廃棄物処分技術の信頼性向上に資するとともに、安全評価結果に対する国民の信頼感の醸成に資することを目的としており、特に（1）では長期評価期間における気候変化を考慮した調査研究をTFおよびKdに着目して行った。本調査によるTFデータは少なくとも、比較的温暖な地域と寒冷な地域において、TFの差は生じないことから、温暖からやや寒冷な気候条件において、異なるTFを設定する必要はないといえる。また、KdについてはCsについて実験的に値を得たところ、差が見られるもののその違いは数倍程度の範囲であることがわかった。

(2)放射性炭素の移行パラメータに対する微生物活動の影響調査

<課題設定の背景、目的および妥当性>

放射性廃棄物(TRU 廃棄物)の地層処分における長期的な安全性確保の観点から、放射性炭素の移行に関与することが示唆されている微生物活動の影響を評価することは重要である。しかし、微生物活動は気候などの環境が変われば変動することが予想される。

そこで本課題では、微生物活動を反映した統括的指標を考慮した放射性炭素の環境移行パラメータを整備することを目的としている。

微生物活動を考慮することにより、土壌溶液-土壌分配係数(K_d)や土壌-農作物移行係数(TF)では十分に評価できなかった、大気から農作物への $C-14$ の移行評価に貢献できることから、本課題設定は妥当と考える。

<具体的な調査・検討内容>

1. 放射性炭素の水稲移行モデルの構築とモデルパラメータの重要度評価

これまで実験的に取得したデータのパラメータ化に加え、実圃場での環境観測結果も踏まえて放射性炭素の水稲移行モデルの精緻化を行った。さらに、収穫時における水稲穂部 ^{14}C 含量に対する重要度を評価するために、モデルパラメータの不確実さ伝播解析を行った。

2. 微生物活動と水稲による ^{14}C 取り込みに対する気温の効果

気温変化と微生物群集構造の関係を明らかにするとともに、 ^{14}C ガス発生に関与する細菌の帰属分類を推定した。さらに、気温変化と水稲による ^{14}C 取り込みについても試験を行い、水稲穂部の ^{14}C 含量に対する気温の効果について検討した。

<事業成果>

1. 放射性炭素の水稲移行モデルの構築とモデルパラメータの重要度評価

これまでに行われてきた本事業の調査結果から、放射性炭素の近傍大気-環境大気間移行半減期が収穫時における水稲穂部の ^{14}C 含量に影響する可能性が示唆されてきた。そこで、水稲移行モデルの精緻化に資するため、実際の水田で微気象観測を行い、得られたデータをパラメータ化しモデルに実装した。

水田における微気象観測は、2018年6月中旬から9月中旬の期間中に合計8回、水稲栽培圃場(50 m × 20 m)のほぼ中央地点において、水平および鉛直方向の風向風速、そして水稲群落内の CO_2 濃度を測定した。その結果、以下の結果が得られた。

- ・近傍大気から環境大気への移行は、主に水平移動であった。
- ・群落内部から群落上部へのガス移行はほとんど起こらなかった。
- ・上の結果は、田植え直後を除き水稲の生長段階に因らなかった。
- ・群落内部のガスの水平移動速度は 0.08 m/s から 0.28 m/s であった。但し、群落内のガスは渦状態で水平方向移動している可能性があるため、ガスの塊の水平移動速度はさらに小さい可能性がある。

これらの結果から、近傍大気と環境大気の移行半減期は基準値を 0.1 day とし、下限値と上限値をそれぞれ 0.01 day と 1 day とした。基準値で解析解析した結果、収穫時における水稻穂部の ^{14}C 含量は以前事業で評価された値より 1 桁減少した。これは近傍大気から環境大気への移行半減期が短くなったことで、近傍大気内の ^{14}C 量が少なくなり、それに伴いイネへの ^{14}C 取り込み量も少なくなったことが要因と考えられた。収穫時における穂部の ^{14}C 含量と近傍大気と環境大気の移行半減期の関係を調査したところ有意な相関関係が認められた(図 2-1)。また、近傍大気と環境大気の移行半減期が短くなるにつれ、穂部の ^{14}C 含量が極端に少なくなることが分かった。

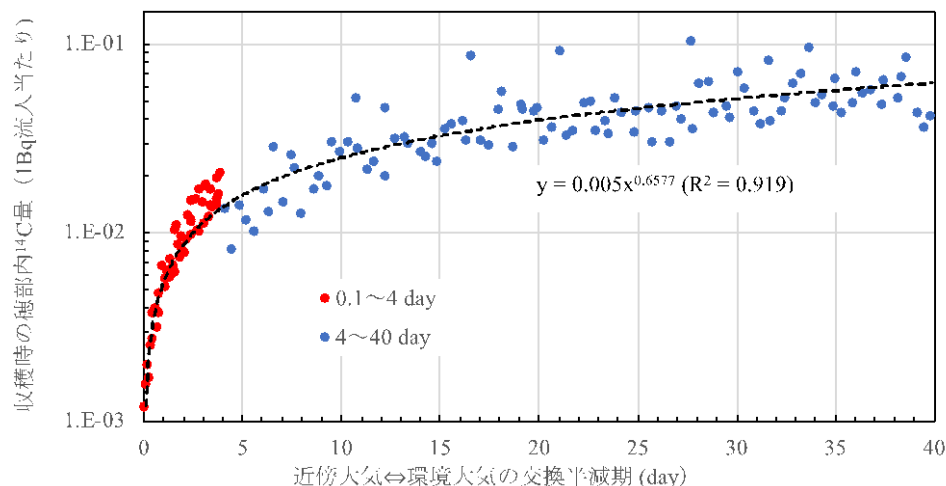


図 2-1 近傍大気と環境大気の移行半減期と収穫時における穂部の ^{14}C 含量との関係

最終的に得られたパラメータを基に、単年曝露および連続曝露した水稻の収穫時における穂部 ^{14}C 含量の変動を 50 年にわたって解析を行った(多年解析)。各コンパートメントの基準値に対し、1 年目のみ水稻を ^{14}C で曝露し、その後 50 年間の多年解析を行ったところ、穂部内 ^{14}C 量は年ごとに急激に減少した。構築した本モデルにおいて、 ^{14}C は主にリターに蓄積されるので、2 年目以降の穂部 ^{14}C 含量はリターへの蓄積量に影響されることが分かった。この結果から、単年曝露では曝露した年における穂部 ^{14}C 量に対して、2 年目の穂部 ^{14}C 量は約 2 桁(1%未満)、3 年目では約 4 桁(0.01%以下)、5 年目では約 6 桁まで低下し、曝露した年に比べてほぼ無視できる量となることが推測された。

次に連続曝露に対する多年解析を行ったところ、 ^{14}C 含量が 15 年間連続で増加したのは難分解性リターのみであり、穂部の ^{14}C 含量は変化が認められなかった。

最後に、構築したモデルにおいて、水稻穂部の ^{14}C 含量に対する各パラメータの重要度を不確実さ伝播解析で評価した。

その結果、穂部の ^{14}C 含量は近傍大気中の ^{14}C 含量の影響度が高いことが確認できた。2 年目以降は刈り株に残存する ^{14}C がリターコンパートメントを介し、土壌 1 から近傍大気へ、そして穂部へ移行する。そのため近傍大気の ^{14}C 存在量は、土壌 1 からの移行量に依存するので「土壌 1→近傍大気の移行半減期」の重要度が高くなる。このモデル内の「土壌 1→近傍大気の移行半減期」は、土壌内の「微生物活動」を模擬したものである。従って、微生物活性が高い(移行半減期が短い)場合、近傍大気中の $^{14}\text{CO}_2$ 濃度の増加し水稻に取り込まれる ^{14}C 量も多くなる。以上より、刈り株だけが曝露源となるような単年曝露の多年解析では微生物活性の重要度が非常に高いことが分かった。

2. 微生物活動と水稻による ^{14}C 取り込みに対する気温の効果

土壌には多くの微生物が生息しており、それぞれ固有の微生物群集構造(群集を構成している微生物の種組成と量)を有している。土壌有機物の分解は微生物活動に依存している割合が高いため、群集構造が

異なれば有機物の分解率や土壌からの炭酸ガス発生量も異なることが推測される。気温も同様に有機物の分解率や土壌からの炭酸ガス発生量影響する要因であることから、微生物群集構造と気温の関係について調査した。群集構造に対する気温の効果については、寒冷地域である岩手県の水田から採取した土壌(P2)と温暖地域である福岡県の水田から採取した土壌(P11)を微生物群集構造の調査対象として選定した。両土壌試料を湛水し、15℃、20℃、25℃、および 30℃で培養した後、微生物群集構造を変性剤濃度勾配ゲル電気泳動(DGGE)法で解析した。

電気泳動の結果を図 2-2 に示す。P2 土壌では培養温度が異なるにも関わらず、類似した電気泳動パターンが得られた。この電気泳動画像におけるバンドは、それぞれが異なる細菌種を示しており、そしてバンド強度が細菌種の相対量を表している。つまり、バンドパターンが似ていることは群集構造が似ていることを意味するので、この電気泳動の結果は、細菌群集構造に対する温度の影響は小さいことを示している。P11 土壌においても P2 土壌と同様に、電気泳動のパターンは培養温度に関わらず類似であった。つまり、P11 土壌においても温度は土壌細菌群集構造を変化させるほどの影響がなかったことが分かった。

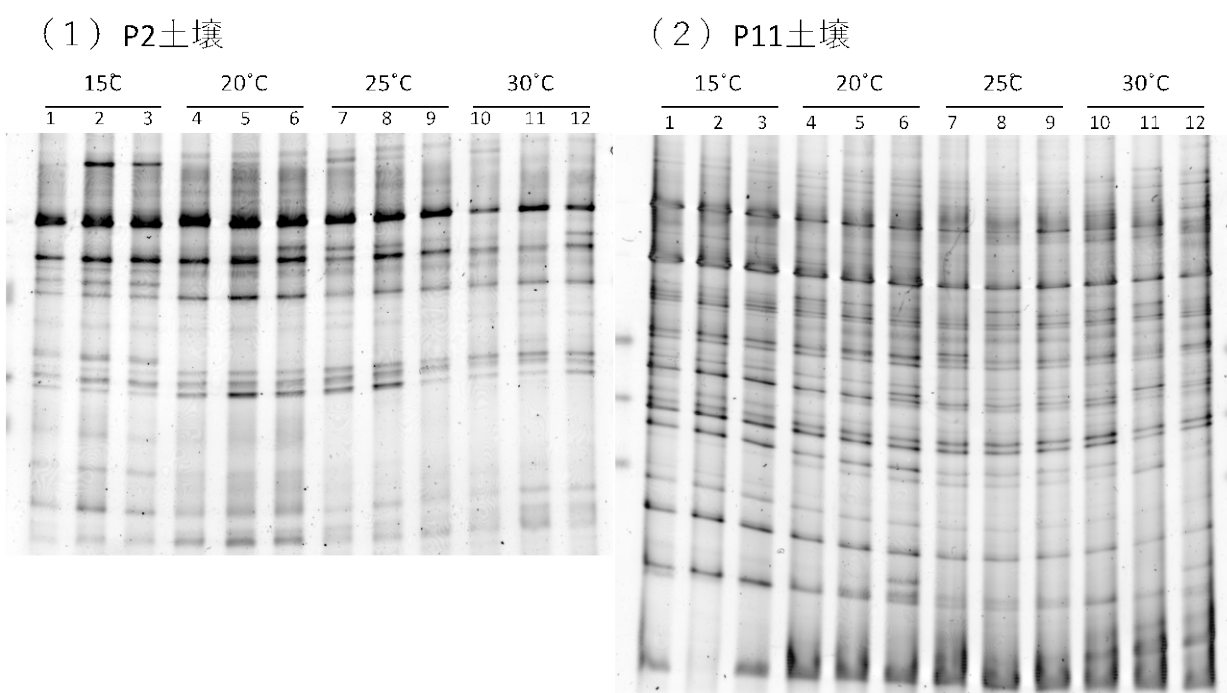


図 2-2 寒冷地域(P2)と温暖地域から採取した水田土壌微生物群集に対する気温の効果

次に、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生量が異なる土壌の微生物群集構造を DGGE 法で比較し、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生に関わる可能性がある微生物の帰属分類を推定すると共に、微生物群集構造に対する温度の効果について調査を行った。

[1、2- ^{14}C]酢酸ナトリウムを炭素源としたとき、培養 7 日目までに初期添加量の 75%がガスとして ^{14}C が放出された土壌と 47%しか放出されなかった土壌を比較したところ、明らかに異なる群集構造が示された。 $^{14}\text{CO}_2$ ガスの発生に寄与している可能性のある 4 種類の細菌の遺伝子配列から帰属分類を推定したところ、*Clostridium carboxidivorans*、*Bacillus niacini*、*Tumebacillus ginsengisoli*、そして *Ramlibacter solisilvae* に近縁の種であった。*C. carboxidivorans* は酢酸を合成する細菌であったが、そのほかの種については、いずれも酢酸を利用することができる菌であった。つまり、*C. carboxidivorans* を除いたこれらの細菌が [1、2- ^{14}C]酢酸ナトリウムを利用し、 $^{14}\text{CO}_2$ ガスを発生させた原因菌であると考えられた。

気温は微生物活動だけでなく、水稻自体の ^{14}C 取り込みにも影響する可能性がある。そこで、水稻による ^{14}C 取り込みに対する気温の効果についても調査した。温度制御された人工気象室で水稻を栽培し、栄養

生長期および登熟期において、それぞれ連続3日間、気象器内で $^{14}\text{CO}_2$ ガスを曝露した。この期間、気象室の開閉は行わず、

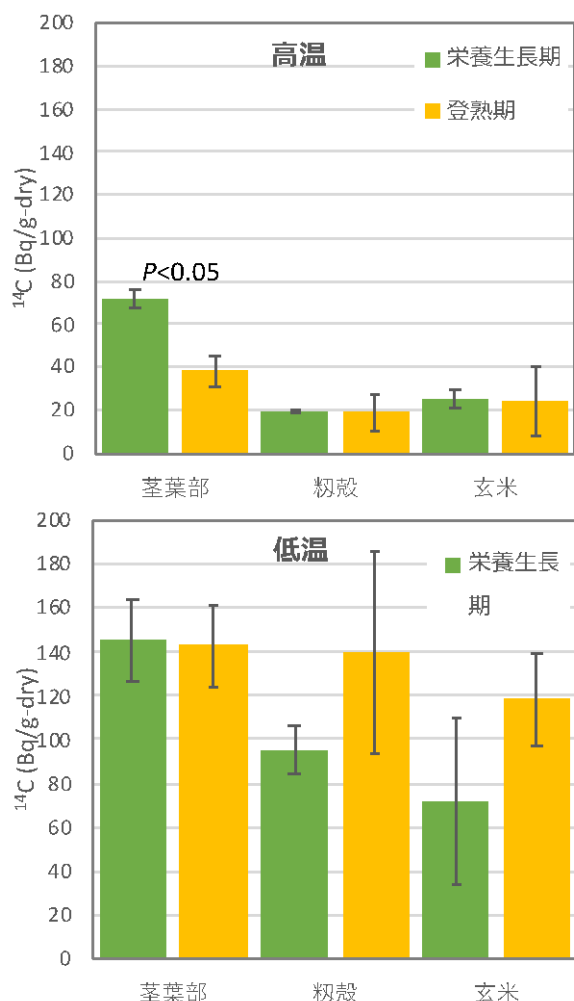


図 2-3 ^{14}C 取り込みに対する曝露時期の効果

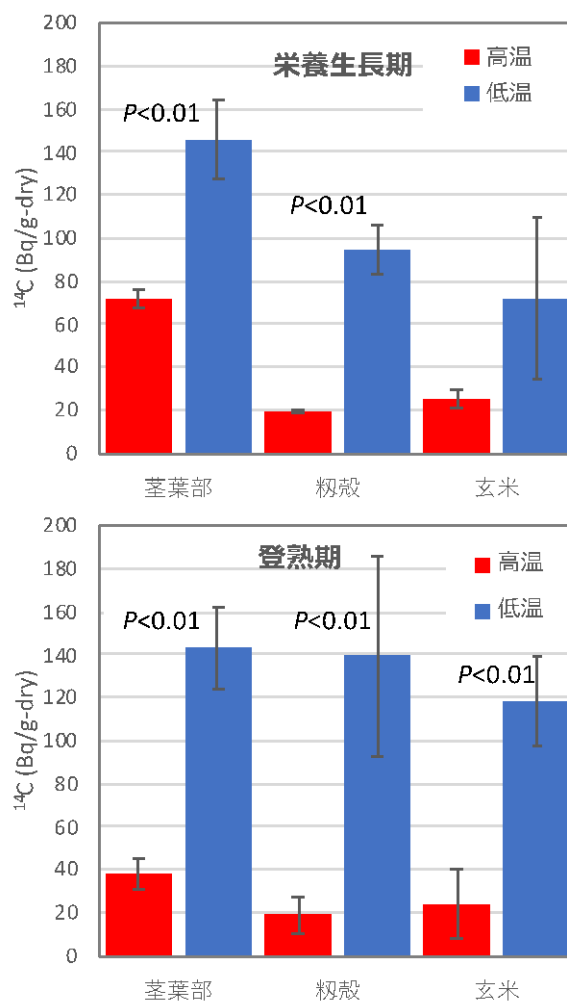


図 2-4 ^{14}C 取り込みに対する気温の効果

気象室外の空気の入出りを限りなく制限するため、給水は行わなかった。 ^{14}C の取り込みに対する曝露時期の効果は、高温条件で栽培した水稻の茎葉部においてのみ観察された(図 2-3)。水稻を家畜飼料として用いる場合、茎葉部と種子を丸ごと発酵し飼料とする。そのため、水稻を飼料とした場合、栄養生長期に ^{14}C で曝露されると ^{14}C による汚染度が高くなる可能性がある。

^{14}C の取り込みに対する気温の効果は曝露時期の効果よりも明確であった。各部位の ^{14}C 濃度を気温で比較した結果を図 2-4 に示す。栄養生長期に曝露した玄米を除き、いずれも低温で栽培した水稻において ^{14}C 濃度が高くなった。将来、現在より低温で水稻栽培が行われることになれば、水稻への ^{14}C の移行量は現在の試算よりも多くなる可能性を、この結果は示唆している。

これまでの調査結果から、気温は明らかに微生物活動に影響する。但し、その影響は $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度に対して顕著であり、 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生総量に対しては影響が小さい。 $^{14}\text{CO}_2$ ガス発生速度が緩やかなために、低温では大気中での拡散速度も緩やかになる。土壌から発生した $^{14}\text{CO}_2$ ガスの一部は、まず水稻群落内における光合成により消費される。但し、栄養生長期や登熟期において、群落内に届く光量は茂った葉により制限されるので $^{14}\text{CO}_2$ はほとんど利用されず、多くは群落頂や、さらには群落外へと拡散するのである。

う。拡散も低温条件より高温条件で速くなるので、群落外へと移行した $^{14}\text{CO}_2$ ガスは、高温条件において希釈されやすいと考えられる。光を多く得ることができる群落外では、群落内と比較して活発に光合成が行われる。従って、群落外で $^{14}\text{CO}_2$ ガス濃度が高くなる低温条件において、 $^{14}\text{CO}_2$ ガスがより多く取り込まれると考えられる。以上のような理由で、低温条件において玄米中の ^{14}C 濃度が高温条件のそれよりも高くなったと考えられる。(図 2-5)

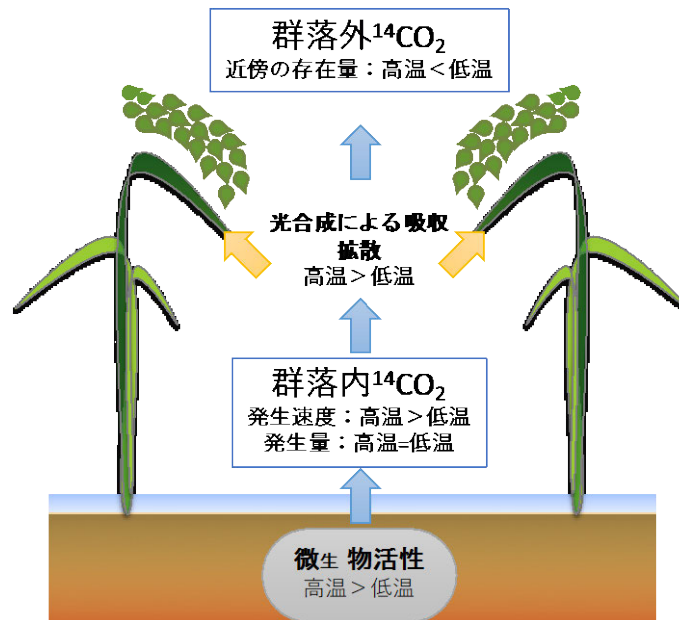


図 2-5 水稻の ^{14}C 取り込みに対する気温の効果

(3) 重要核種 (Pu、Am、Th および Cl 等) の超高精度分析による環境移行パラメータ収集

<課題設定の背景、目的および妥当性>

Pu、Am、Th 及び塩素(Cl)は放射性廃棄物の地層処分に係わる安全評価において重要核種である。しかし、その測定は極めて高度の分析技術が要求され、核種移行モデルに使用される環境移行パラメータは十分蓄積されていない。多くの環境移行パラメータが纏められている IAEA-TRS-472 でも、これらの核種のデータは各作物群に対して、数点である。例えば、塩素の移行係数は穀類で7点、葉菜類で6点しかない。[表 3-1 参照]

本事業では、分析法の開発を行ったのち、得られた分析法を用いて実環境試料中の濃度データを収集し、移行係数を蓄積する。

<具体的な調査・検討内容>

- 1) 重要核種 (Pu、Am、Th および Cl 等) の超高精度質量分析法開発
(Pu、Th および Cl の超高精度質量分析法は、H25-H27 で開発済)
- 2) 開発した超高精度質量分析法を用いて、土壌-農作物の環境移行パラメータの収集

<事業成果>

1. 土壌中超微量 ^{241}Am の超高精度質量分析法開発及び畑土中 Am 濃度分布

土壌中の超微量 ^{241}Am を測定するための高精度分析法の開発に焦点を絞って調査・研究を進めた。最初に、Am 分離に用いられる DGA-N 樹脂において Am 分析の妨害となる元素の抽出挙動を調査するために溶出実験を行い、Am と妨害元素の分離手順を検討した。三つ共沈法によるマトリクス除去効率および共沈法後の Am 分離法を比較した結果、 CaC_2O_4 共沈法と DGA-N 樹脂抽出クロマトグラフィー Am 分離を結合する方法が最適である事が分かった。Am と希土類元素の化学性質が非常に類似しているため、いまままで報告された分離法では Am と希土類元素の分離が十分に行われず、Am 分析用のサンプル中に希土類元素が高い濃度で存在していた。SF-ICP-MS を用いて Am 測定する際、希土類元素によりマトリクス効果が生じるため感度が低下する。この問題点を改善するために、本研究では、TEVA 樹脂を用いて、Am 分析用サンプルから希土類元素を除去する方法を検討した。これらの調査結果から、土壌中 Am 高精度質量分析法を確立した。

開発した分析法における Am の回収率は、77%から 82%で非常に安定している。また、本分析法の検出下限値 (LOD) は、1g の土壌サンプルに対して 0.097 fg g^{-1} (0.012 mBq g^{-1}) である。この LOD は、いまままで報告された α 線スペクトロ

メトリ法よりも低い。本分析法は、優れた特徴 (低 LOD、安定した高回収率、妨害元素の高 DF および効果的なマトリクス効果除去) を有しており、土壌中の超微量レベル ^{241}Am の分析に適している。土壌中の Am 濃度の精度良い測定は、Am の土壌中挙動や土壌-植物移行の研究において必須条件で

表1. 重要核種のTFデータ数一覧 (IAEA-TRS-472より)

元素	穀類	米	葉菜類	芋類
塩素	7	0	6	0
プルトニウム	105 (砂:76)	0	13	87 (砂:72)
アメリシウム	83 (砂:66)	0	10	78 (砂:65)
ネプツニウム	85 (砂:79)	0	5	57 (砂:56)
トリウム	36	57	24	24
セシウム	470 (砂:156)	466	290	138 (砂:69)

ある。現在、日本の土壌については、グローバルフォールアウト起源のプルトニウムの分布状況と環境移行についてのデータが利用可能であるが、Am に関してはデータはほとんどない。したがって、日本の環境におけるアメリシウムの挙動について、さらなる研究が必要とされている。

表 3-2. 畑土試料(44 試料)中の ^{241}Am および $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度、および Pu 同位体および $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 放射能比測定結果

	^{241}Am activity (mBq/g)	$^{239+240}\text{Pu}$ activity (mBq/g)	$^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$	$^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$
最小値	0.022	0.053	0.152	0.338
最大値	0.255	0.678	0.193	0.689
中央値	0.087	0.198	0.175	0.400
算術平均値	0.099	0.245	0.175	0.418
幾何平均値	0.087	0.211	0.175	0.414

本調査では、日本全域から採取した 44 件の畑土試料を用いて、 ^{241}Am 濃度、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度と $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 同位体比の分析を行った。分析結果を表 3-2 に示す。本研究の調査結果から、日本畑土中の ^{241}Am 濃度は $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度より低く、0.022 から 0.255 mBq/g の範囲であった。44 件の畑土試料の ^{241}Am 濃度の平均値は 0.099 mBq/g、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度の平均値は 0.245 mBq/g であった。 $^{240}\text{Pu}/^{239}\text{Pu}$ 原子数比は、0.152 から 0.193 の範囲であり、平均値は 0.175 ± 0.009 であった。本研究で調査した畑土試料の Pu の主なソースはグローバルフォールアウトであることを示唆している。

Pu と ^{241}Am は土壌中の有機物に強く吸着するという報告があるが、図 3-1A に示したとおり、畑土中 ^{241}Am 濃度と有機物含有量には相関が認められなかった。図 3-1B、C に ^{241}Am 濃度と $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度および ^{137}Cs 濃度の相関を示す。図から分かるように、 ^{241}Am 濃度は $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度および ^{137}Cs 濃度と非常に高い相関がある。これは、畑土中の ^{241}Am と ^{137}Cs 、Pu 同位体は、環境動態が非常に相似していることを示唆している。 $^{241}\text{Am}/^{239+240}\text{Pu}$ 濃度比は 0.34~0.52 であり、非常に狭い範囲であった(表 2)。この結果は、畑土中 ^{241}Am と Pu 同位体の起源はグローバルフォールアウトであることを示唆している。

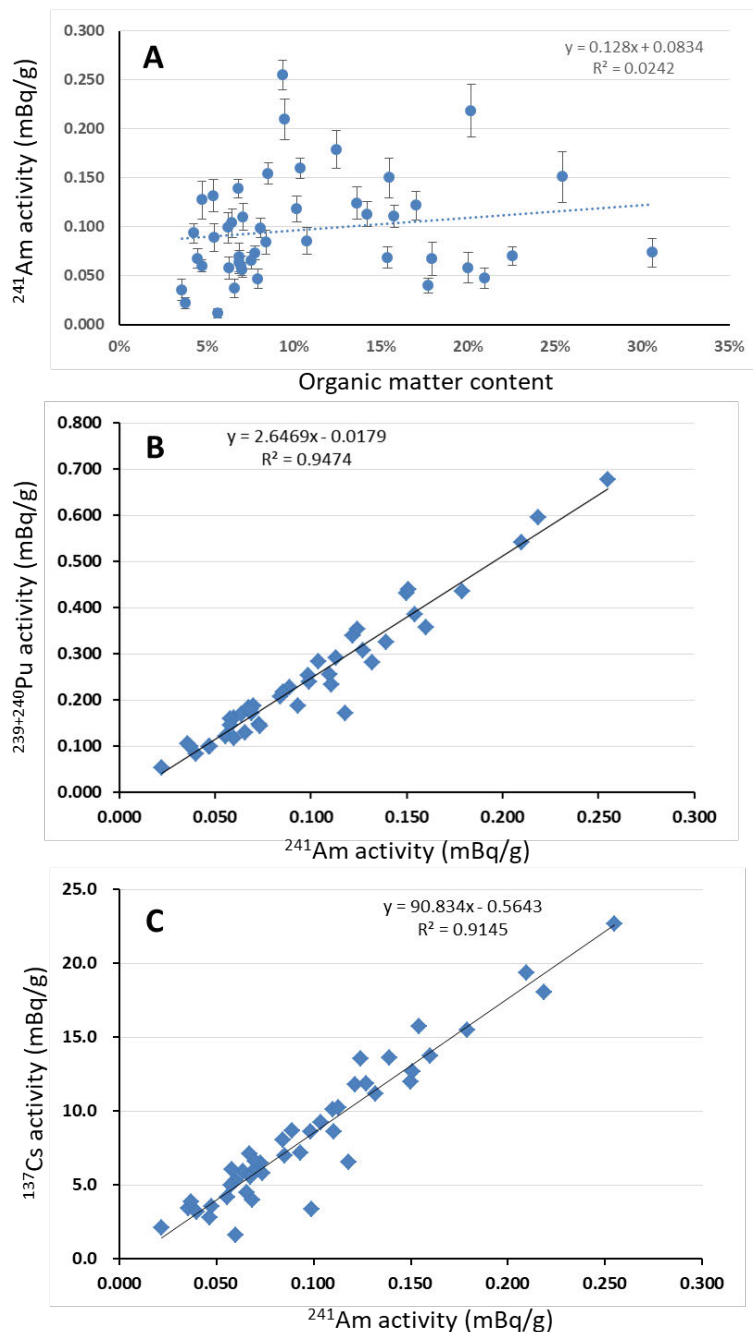


図 3-1. 畑土中 ^{241}Am 濃度と有機物含有量、 $^{239+240}\text{Pu}$ 濃度および ^{137}Cs 濃度の相関

2. 土壌-農作物の環境移行パラメータの収集

2.1 Pu の土壌-米の移行係数

放射性核種の土壌から農作物への移動は、移行係数(TF)[植物中の放射性核種の濃度(Bq / kg 乾燥重量)と土壌中の放射性核種の濃度(Bq / kg 乾燥重量)との比として定義される]によって定量化される。1994 年に、IAEA は、自然放射性核種と人工放射性核種の報告された TF をまとめた技術報告書 (TRS-364) を発表した。その後、IAEA は、さらに多くの TF のデータを追加した技術報告書 (TRS 472) を発表した。しかしながら、TRS-472 では、Pu に関しては非常に限定された TF データしか報告されておらず、例えば、米や果実のような幾つかの植物種についてはその TF は掲載されていない。米はアジアの食糧構造において重要な役割を果たしており、土壌から米への TF データを補完することが不可欠である。

本研究では、水田から採取された玄米試料および土壌試料の ^{239}Pu 濃度を分析することにより、グローバルフォールアウト起源の Pu-TF データを取得した ($n=16$)。表 3-3 に示すように、Pu の土壌-米の TF は 4.5×10^{-6} から 1.2×10^{-4} の範囲であり、その幾何平均値と算数平均値は、それぞれ 3.3×10^{-5} と 4.6×10^{-5} であった。

表 3-3 水田土壌と玄米中 ^{239}Pu 測定結果および Pu の土壌-米間移行係数 (TF)

	^{239}Pu activity in rice (mBq/g)	^{239}Pu activity in soil (mBq/g)	TF
最小値	9.0E-07	4.6E-02	4.5E-06
最大値	2.5 E-05	5.6 E-01	1.2 E-04
中央値	6.0E-06	2.3E-01	2.9E-05
算術平均値	8.3E-06	2.3E-01	4.6E-05
幾何平均値	6.3E-06	1.9E-01	3.3E-05

以前に公表されたデータと、本研究で得られた値を比較すると、本研究における TF データが 1~2 桁低いことがわかった。これはおそらく、異なる Pu のソース及びサンプリング環境の違いによるものと思われる。表 3-4 に示すように、以前報告されたデータは、 239 、 ^{240}Pu 汚染サイト、核実験サイトまたは ^{238}Pu スパイク実験のいずれかから取得されたものである。汚染地域で採取した試料から求められた TF には、根からの吸収、すなわち、土壌-米間の移行以外のプロセス、例えば、re-suspension や表面汚染などにより、米試料中の Pu 濃度が上昇する可能性があり、その場合、TF が過大評価されることになる。一方、re-suspension や表面汚染以外にも、TF に影響を及ぼす因子として、エイジング効果が考えられる。すなわち、グローバルフォールアウト起源の Pu では、土壌に添加されてから数十年以上が経過しており、植物が吸収できるフラクションに存在する Pu (可給態 Pu) 量が次第に少なくなっているものと思われる。一方、土壌に Pu が添加された直後では、可給態フラクションに存在する Pu が多く、得られた TF データは 1~2 桁程度過大評価される可能性がある。また、報告されたデータについては、対象が玄米なのか白米なのかも明記されていない。放射性廃棄物の地層処分に係わる長期間の安全評価においては、本研究によって示されたデータは、汚染された地域の実験と添加されたポット実験から得られた TF 値よりも長期的安全評価においてより現実的であると考えられる。

表 3-4. Pu の土壌-米間移行係数の比較

Country	Pu source and sampling environment	TF of Pu	Reference
France	$^{239,240}\text{Pu}$ contaminated area	1.4×10^{-3}	Duffa et al., 2003
China	Chinese nuclear test site and controlled area	2.0×10^{-3}	Zhang et al., 1989
America	^{238}Pu contaminated soil in pot experiment	1.7×10^{-4}	Ariano et al., 1981
Japan	Global fallout $^{239,240}\text{Pu}$ in paddy field	$4.5 \times 10^{-6} - 1.2 \times 10^{-4}$	This study

IAEA TRS-472 では、Pu の土壌-農作物間 TF データを取りまとめているが、前述したように土壌-米間 TF データは示されていない(図 3-2)。図 3-2 には比較のため、TRS-472 に掲載されている葉菜類 Pu の

TF 範囲と本調査で測定された日本の葉菜類 Pu の TF 値も示す。土壌-穀物(穀物、食用部分)間 TF データの幾何平均値は 9.5×10^{-6} ($n=105$) であると報告されている(IAEA TRS-472)。本研究で得られた土壌-玄米間 TF データの幾何平均値 (3.1×10^{-5}) ($n = 14$) は十分に信頼性があると考えられる。

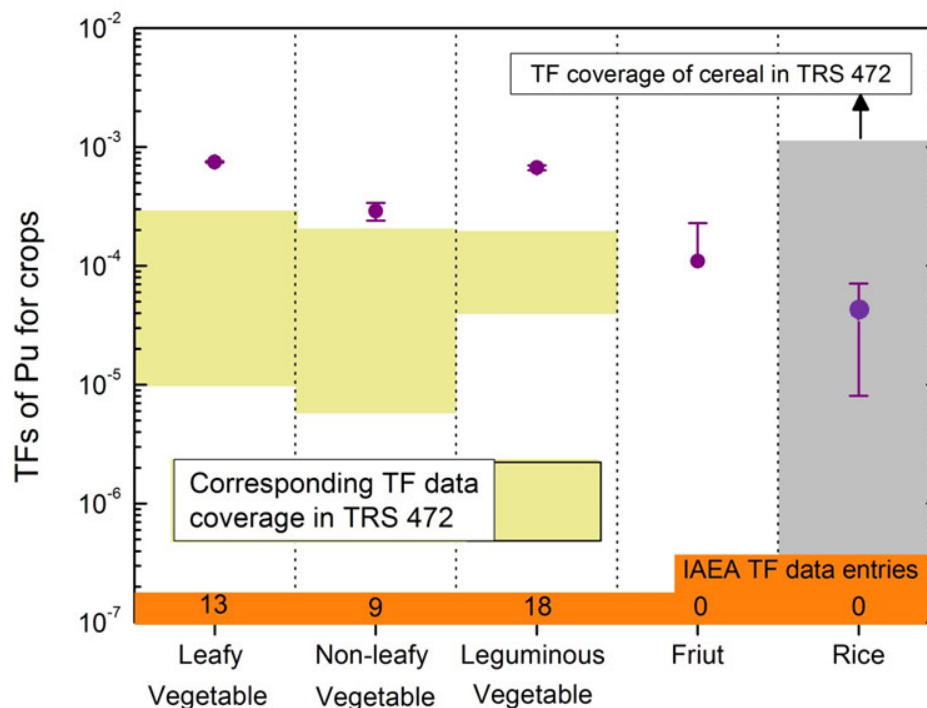


図 3-2. 本事業で得られた日本の Pu の土壌-農作物間移行係数と IAEA TRS-472 に報告されている値との比較（紫色ドットは本事業で得られた日本の TF 値）

2.2 塩素の土壌-農作物の環境移行パラメータデータ

塩素-36 (^{36}Cl) は物理学的半減期 30.1 万年の長半減期核種であり、安定同位体である ^{35}Cl (天然存在度 75.78%) の中性子放射化によって生成される。一般に、塩素は水中においては陰イオンで存在することから、 ^{36}Cl も地質環境中や生活圏において易動性が高く、そのため放射性廃棄物処分の安全評価において重要核種とされている。塩素の移行係数(TF)を求めるにあたり、安定元素をアナログとできることから(放射線医学総合研究所、2014)、本研究では土壌および農作物中の Cl の分析を行ってきた。

土壌および農作物中の Cl 分析から得られた結果を基に TF を導出した。得られた TF は対数正規分布に近いことがわかった。そこで幾何平均値を求めたところ、Cl の TF は 9.0 (範囲: 3.7-40) であった。野生植物葉に対し同様の結果を結田ら(1984)も報告している。なお、IAEA(2010)には穀類への Cl の TF として 36 (範囲: 20-86, $N=7$) が報告されており、本調査で報告した値の範囲内であった。

2.3 Th の土壌-米の環境移行パラメータデータ

地層処分に伴う生物圏での安全評価において、Th は重要核種である。放射性廃棄物の地層処分システムは地球規模で周期的に起こる気候変動の影響を受ける。Th の環境移行パラメータ・データは、IAEA-TRS-472 の気候帯別 TF の結果から、気候によって値が変動する可能性があると考えられる。今後、閉鎖後長期の安全性について現実的な安全評価を行うため、気候変動を考慮したデータベースを構築することが必要である。しかし、Th の土壌-農作物間移行係数(TF)に関しては、測定法により値が大きく異なる

る事が報告されている。すなわち、線スペクトル分析では、過大評価となる事が指摘されている。したがって、ICP-MS による測定が望まれる。

本調査研究では、H26 年度に開発した土壌と米中 Th 濃度の高精度分析法を用いて、水田土(20 点)試料と玄米試料(20 点)、および白米試料(10 点)を測定し、Th の土壌-米間の TF データを獲得した。分析結果を表 3-5 に示す。

土壌試料 20 点の Th 濃度範囲は 2.3 から 10 mg/kg であった。算術平均値および幾何平均値は、それぞれ 4.7 と 4.4 mg/kg であった。玄米試料 20 点の Th 濃度範囲は 4.1×10^{-5} から 6.1×10^{-4} mg/kg、算術平均値および幾何平均値は、それぞれ 1.8×10^{-4} と 1.3×10^{-4} mg/kg であった。白米試料 10 点の Th 濃度範囲は 2.2×10^{-5} から 1.4×10^{-4} mg/kg、算術平均値および幾何平均値は、それぞれ 5.6×10^{-5} と 4.6×10^{-5} mg/kg であった。

表 3-5. 水田土壌と米中 Th 測定結果および Th の土壌-米間移行パラメータ

	Th activity in soil (mg/kg)	Th activity in brown rice (mg/kg)	Th activity in white rice (mg/kg)	TF (Brown rice)	TF (White rice)
最小値	2.3E+00	4.1E-05	2.2E-05	7.6E-06	5.1E-06
最大値	1.0 E+01	6.1 E-04	1.4 E-04	1.4 E-04	3.5 E-05
中央値	4.2E+00	1.5E-04	3.7E-05	2.9E-05	1.2E-05
算術平均値	4.7E+00	1.8E-04	5.6E-05	4.2E-05	1.6E-05
幾何平均値	4.4E+00	1.3E-04	4.6E-05	3.0E-05	1.3E-05

Th の土壌-玄米間の TF ($n = 20$) は 7.6×10^{-6} から 1.4×10^{-4} の範囲であり、その幾何平均値と算数平均値は、それぞれ 3.0×10^{-5} と 4.2×10^{-5} であった。土壌-白米間の TF ($n = 9$) は 5.1×10^{-6} から 3.5×10^{-5} の範囲であり、その幾何平均値と算数平均値は、それぞれ 1.3×10^{-5} と 1.6×10^{-5} であった。