

環境中のヨウ素-129 と炭素-14 の分布と挙動に関する研究

Distribution and behavior of I-129 and C-14 in the environment

村松 康行¹⁾、井上 章¹⁾、稲川直也¹⁾、松崎 浩之²⁾

Yasuyuki MURAMATSU、Aki INOUE、Naoya Inagawa、Hiroyuki MATSUZAKI

¹⁾学習院大学 ²⁾東京大学

我々のグループは環境試料中に含まれるヨウ素-129 と炭素-14 に注目し、むつ事業所の AMS を用い分析を行っている。今年度は、平成 23 年 3 月におこった福島第 1 発電所の事故後に採取された試料を用い測定を行った。ヨウ素-129 に関しては土壌試料を分析し、事故時に放出されている事が確認できた。また、C-14 に関しては、汚染濃度が高い地域の植物試料中で若干であるが高めの値が見られた。

キーワード : I-129、C-14、AMS、環境試料、福島第 1 発電所事故

1. 目的

ヨウ素の同位体は 20 種類以上知られているが、安定同位体は ^{127}I のみで残りは放射性同位体である。そのうち半減期が最も長いのは ^{129}I (1570 万年) である。この核種は自然界にはほんの僅かしか存在しないが、核実験や原子力施設 (特に使用済核燃料再処理施設) の稼働に伴い環境中に放出されている。 ^{129}I は長い半減期を持つことと土壌や生物などに取り込まれる傾向があるため、環境への蓄積が懸念されている。ヨウ素は人や動物にとって必須元素であり甲状腺の機能に重要な役割を果たしている。その為、放射性ヨウ素が一旦体内に入ると甲状腺に濃縮し被曝に繋がる。そのようなことから、 ^{129}I は環境安全評価上重要な核種と見なされている。国連科学委員会報告書でも ^{129}I のグローバルな環境評価の重要性が指摘されている。

炭素-14 は宇宙線と上層大気中の窒素との反応で生成される。これは大気中酸素分子と反応し、C-14 を含む二酸化炭素となる。これらは光合成によって植物中に取り込まれる。宇宙線の地球への入射は太陽風によって妨げられるため、植物中 C-14 を分析することによって過去の太陽活動の変動を知ることができる。一方、大気中 C-14 濃度は核実験や原子力発電所の事故などの人為的な放出の影響を受ける。

すでに我々は、様々な試料に含まれるヨウ素-129 と炭素-14 の分析を東京大学の TANDEM 施設や日本原子力研究開発機構むつ事業所の施設を使用し、おこなって来た。平成 23 年 3 月におこった福島第 1 発電所の事故によりこれらの核種も放出されたと考えられる。そこで、今年度は、福島県内で採取した試料を用い、事故によるこれらの核種の濃度上昇が起こったか調べることを目的とする。ヨウ素-129 の分析は福島県内の土壌などを中心に行い、また、C-14 に関しては、福島県内の汚染濃度が高い地域の植物を用い分析を行った。

2. 試料及び分析方法

①ヨウ素-129

試料は福島県内で採取した土壌および牛の甲状腺を用いた。土壌試料に関しては乾燥シメノウのボールミルで均一に粉にした。甲状腺は凍結乾燥した後ブレンダーで粉碎し均一にした。ヨウ素の分離は加熱気化法により行い、キャリアとして安定ヨウ素を添加した。次に、溶媒抽出法により不純物を除き、ヨウ素を I^- として水

溶液中に精製した。溶媒抽出後、水相にヨウ化物イオンとして逆抽出した後、硝酸銀溶液を加え AgI の沈殿を作成した。沈殿に塩化銀などが混入していることもあるのでアンモニア水で洗った。乾燥させた後、ニオブ粉末と混ぜ、それをターゲットとしイオン源にセットし測定した。なお、測定時のブランクを調べるために、試薬のヨウ素で作成した AgI 試料を測定した。

②炭素-14

福島県で採取した植物試料を用いた。また、比較として新潟産の米の試料も分析した。それらの試料を乾燥させた後、真空条件下で加熱して燃焼させ、CO₂を主とする混合ガスを得た。これより CO₂を精製し水素ガスと共に加熱して測定試料となるグラフアイトを生成した。これについてむつ事業所の加速器質量分析計を用い、¹⁴C/¹²C 比を測定した。標準試料には米国 NIST シュウ酸 (SRM4990C Oxalic Acid II, HOx II)、バックランド試料には一般的シュウ酸 (Wako No. 159-00425) を用いた。得られた AMS の結果から $\Delta^{14}\text{C}(\text{‰})$ 値を算出した。

3. 研究成果

測定時のブランクを調べるために、試薬 (KI 溶液、IonPlus /Orion) 試料を測定した結果は、¹²⁹I/¹²⁷I 比として約 2.2×10^{-13} であった (表 1)。東大 MALT での測定値は $1.7\text{--}2.0 \times 10^{-13}$ であり、若干高い傾向があるが、ほぼ同レベルであるといえる。または、むつの AMS が環境試料を測るターンであったため、他の試料の影響を受け、若干高めに出た可能性もある。

また、表 1 に原発事故後福島県で採取した土壌中のヨウ素 129 を測定した結果を示す。ヨウ素-129 の濃度は、1 キログラムあたり mBq/kg のオーダーであった。通常は 0.1 mBq/kg かそれ以下であるのに比べると、福島県の汚染レベルが高い地域で採取した土壌試料では明らかにヨウ素 129 が高い傾向にあった。

表 1 ヨウ素 129 の分析結果

試料	I-129 (Bq/kg dry)
ionplus	2.28E-13
ionplus 抽出	2.13E-13
土壌 Ii	3.34E-03
土壌 Na (IN)	4.07E-04
土壌 Sh	3.92E-03
土壌 AK 4/5	6.24E-03
土壌 Na 4/5	2.63E-03
土壌 AK 4/24	4.03E-03
土壌 Ko H-3 0-2cm	3.24E-04
土壌 Ko H-3 2-4cm	1.48E-04
土壌 Ko H-3 4-6cm	1.73E-05
牛の甲状腺 7998	5.63E-03
牛の甲状腺 7592	8.57E-03

炭素 14 の分析は飯舘村及び福島市内で採取した植物試料を測定したところ、試料により $\Delta^{14}\text{C}$ [‰] に違いが見られた。結果は、表 2 に示す。飯舘村で採取した草や松葉でそれ以外の試料と比べ高い傾向にあった。原発事故の影響で炭素 14 の濃度が高くなったかどうかはまだデータが少ないのではっきりしたことは言えないが、今後検討する必要がある。

表 2 炭素 14 の分析結果

採取場所	種類	$\Delta^{14}\text{C}$ [‰]	±
飯舘村	草	37.7	5.9
飯舘村	松葉	51.5	6.1
福島市	草	22.0	5.8
飯舘村	樹皮 (ブドウ)	17.9	5.7
新潟	米	26.0	5.8

4. 結論・考察

ヨウ素-129 に関しては土壌試料を分析し、事故時に放出されている事が確認できた。また、ヨウ素 131 の測定結果と比べると良い相関が見られた。さらに、牛の甲状腺においてもヨウ素 129 が検出できた。ヨウ素 131 は事故後数ヶ月で大きく減少してしまっており、現在では測定できない。しかし、ヨウ素 129 を測ることによりヨウ素 131 の沈着量を評価できると考えられる。

炭素-14 に関しては、汚染濃度が高い地域の植物試料中で若干であるが高めの値が見られた。福島第一原子力発電所の事故による C-14 の放出は未だ報告されていないので、分析データを増やし、どのようなメカニズムで植物に取り込まれたかなど検討することは興味深い。但し、炭素-14 は濃度が低いので被曝線量上の心配は無い。

5. 参考文献等

- Y. Muramatsu et al., Earth Planet. Sci. Lett., 192, 583-593 (2001).
 H. Matsuzaki, et al., Nucl. Instr. Methods in Physics Research Section B 259, 721-726 (2007).
 Y. Muramatsu, Takada Y., Matsuzaki H., Yoshida S.: AMS analysis of ^{129}I in Japanese soil samples collected from background areas far from nuclear facilities. Quaternary Geochronology, 3, 291-297 (2008)

6. 謝辞

試料の採取に関しては福島県農業総合センターのお世話になった。また、試料の幾つかを提供してもらった。