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

井上　章[1)]　　村松　康行[1)]　　松崎　浩之[2)]

Aki INOUE　　Yasuyuki MURAMATSU　　Hiroyuki MATSUZAKI

[1)]学習院大学　　[2)]東京大学

C-14（半減期 5730 年）と I-129（半減期 1600 万年）は再処理施設から放出される核種の中で重要と考えられている。本年度は主として C-14 に注目し研究を行った。この核種は、炭素の放射性同位体であり、地球へ入射する銀河宇宙線と大気中窒素の原子核が(n,p)反応することによって大気上層にて生成する。生成した C-14 は大気中酸素分子とただちに反応し、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。ここで銀河宇宙線の地球への入射は太陽風によって妨げられる。太陽活動が活発であるほど太陽風は強くなるので、大気中 C-14 濃度の変動は太陽活動の活発さの変動と負の相関があり、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。

一方近年の大気中 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 C-14 放出の寄与が大きい。従って近年の植物中 C-14 を分析することで、人為的な C-14 放出の大気中濃度への影響を調べることができる。

本研究室では、AMS（加速器質量分析計）を用い、古木及び近年の植物試料中 C-14/C-12 比についての研究を行っており、今回は環境中の植物試料の測定を行った。

キーワード：C-14、AMS、太陽活動

１．目的

本研究室における C-14 研究は、二つの目的に沿って進めている。一つ目の目的は、西暦 1000 年から 1100 年（オールト極小期）における太陽活動の変動を樹齢 1139 年の屋久杉年輪を試料として調べることである。二つ目の目的は、近年の植物試料を用いて測定を行い、近年の大気中 C-14 濃度の推移を調べると共に、原子力発電所や再処理施設より人為的に放出された C-14 の大気中 C-14 濃度への影響を調べることである。　今回の測定では、再処理工場周辺に自生するススキを試料及びその他の地域で栽培された穀類試料を分析し、大気中 C-14 濃度の変化とその値の大きさを比較することを目的として行った。

２．方法

ここでは、ススキだけでなく、その分析法の基礎となった木材の分析法についても含めて述べる。

①α—セルロースの抽出

年輪試料の分析では雨水の浸透によって付着した炭素などの外部から混入した炭素を取り除く必要がある。そこで、木片試料中のα—セルロースを抽出した。なお、今回測定に用いたススキ試料は、凍結乾燥後、細かく切り刻んだものを用い、③以降の手順で AMS 試料調整した。

＜酸ーアルカリー酸処理（AAA 処理）＞

得られた木片と HCl(1.2N,5h)-NaOH(1.0N,12h)-HCl(1.2N,2h)のそれぞれの溶液を 10 mL のガラス製試験管に入れ、80℃で加熱した。

＜脱リグニン処理＞

木片の主成分の一つであるリグニンを除去するため、AAA 処理を終えた試験管内試料に超純水約 8 mL と亜塩素酸ナトリウム約 1g、少量の塩酸を加えて 80℃で加熱した。木片が白色を呈するまでこれを繰り返し行った。

＜ベンゼン—エタノール抽出＞

木片の副成分を除去するため、エタノール:ベンゼン=1:5 となるように、脱リグニン処理を

終えた試験管にそれぞれを入れ、室温で 5～6 時間静置した。超純水でよく洗浄した後、乾燥させて試料となるα—セルロースを得た。セルロースの収率は 20～30%であった。

②グラファイトの調製

＜試料の酸化＞

セルロース試料および粉砕したその他植物試料を、約 1g の線状酸化銅で挟むようにして外径 6 mm、長さ 50mm の石英小管に入れ、硫黄酸化物を除去するためその上に銀化合物の Sulfix を数粒乗せた。これを外径 9 mm、長さ 300 mm の石英管に入れ、学習院大学の真空ラインで一晩真空挽きした。石英管を封じ切り、炉で酸化した（850℃、2h）。これより二酸化炭素を主とする混合ガスを得た。

＜二酸化炭素の精製と水素還元＞

得られた混合ガスを真空ラインへ導入し、寒剤（-100℃、-197℃）を用い、沸点によって気体を分離、二酸化炭素を精製した。予め水素封入して還元した Fe 触媒入りの石英管に二酸化炭素と水素ガスを導入し、封じ切って炉で加熱した（650℃、6h）。これにより得たグラファイトを AMS 測定用試料とした。なお、約 3～4mg のセルロース試料に対し、約 1mg のグラファイトを得た。

＜AMS 測定＞

標準試料には米国 NIST シュウ酸（SRM4990C Oxalic Acid Ⅱ,HOxⅡ）、IAEA-C1(Marble)、バックグ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$\Delta^{14}C$(‰) 値を算出*1 し、比較した。

３．研究成果

日本の穀類等を試料とした測定の結果と以前の研究で我々が測定したデータを合わせると、1950 年以降世界的に行われた核実験による C-14 の放出により、大気中 C-14 濃度が上昇したことが確かめられた。また、1963 年に部分的核実験禁止条約が結ばれた後の 1964 年の試料をピーク（892.5‰）として 2009 年に至るまでの間に$\Delta^{14}C$ 値が指数関数的に減少してきたことが確かめられた。近年の穀物中$\Delta^{14}C$ 値は、核実験により増加する前より若干高いものの、50～60‰というほぼ一定の値を示すようになってきている。1964 年から 2009 年までの$\Delta^{14}C$ 値の変動を指数関数的な減少として近似し、C-14 の平均滞留時間を算出すると約 11 年であった。放出されてから約 11 年でその半分の C-14 が他の系へと移行したことが示唆された。

青森県六ケ所村にある再処理工場周辺から採取したススキ試料は、北側 1 地点、南側 2 地点、遠く離れた箱根で採取されたススキ試料 1 点で 2009 年～2010 年に採取したものである。箱根で採取されたススキ試料の$\Delta^{14}C$ 値は、54～75‰であり、これは日本で同年に採取された米と比較して同程度の大きさであった。それに対し測定数は少ないが、再処理工場の南側では 84～136‰という比較的高い値が検出され、再処理工場からの人為的な C-14 の放出の影響を受けて値が高くなっていると考えられる。なお、北側では 78～79‰と米試料等と大きく変わらない値を示した。今回の測定から日本に広く分布する一般的な植物であるススキを試料として、年輪試料と同様な手法を用いて C-14 を測定・分析することが可能であることが確かめられた。ススキ試料を用い、地点別、年代別の試料数を増やして継続して測定を行うことで大気中の C-14 に対する人為的放出の影響を調べることができると考えられる。

４．結論・考察

近年の穀類の測定結果から 1950 年以降核実験の影響により大気中 C-14 濃度が上昇し、部分的核実験禁止条約締結（1963）を受け、1964 年以降大気中 C-14 濃度が指数関数的に減少してきていることが確かめられた。また、C-14 の平均滞留時間は約 11 年と算出され、放出後 11 年でその半分が他の系へ移ったと考えられる。

再処理工場周辺のススキの測定結果より、再処理工場から人為的に放出される C-14 の影響を受けて$\Delta^{14}C$ 値が影響を受けていない場合に比べて高くなっていることが確かめられた。また、再処理工場の南側の方が北側に比べ$\Delta^{14}C$ 値が高かった。ススキは広く生育しており、環境中 C-14 の測定に有用であること考える。今後とも継続して測定を行うことで人為的な C-14 放出の影響を調べることができるだろう。

５．引用(参照)文献等

*1 Stuiver,M. and Polach,H.A. : Reporting of ^{14}C data, Radiocarbon 19,355 (1977)