

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⁾

Yasuyuki MURAMATSU

井上 章¹⁾

Aki INOUE

松崎 浩之²⁾

Hiroyuki MATSUZAKI

¹⁾ 学習院大学²⁾ 東京大学

I-129（半減期 1600 万年）と C-14（半減期 5730 年）と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。本研では、むつ事業所の AMS（加速器質量分析計）を用い、様々な試料において、I-129 と C-14 の分析をおこなっている。C-14 に関しては一部の試料は東濃のタンデトロンでも行っており、むつ事業所の AMS のデータも含め東濃タンデトロンの報告書に述べているので、ここではごく簡単に記し、主として、I-129 について得られた結果を紹介する。今年度は、様々な環境水の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比を測定した。これらの試料の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比は、 $2.0 \times 10^{-10} \sim 1.7 \times 10^{-8}$ の範囲であり、核実験前の自然界における $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比 (1.5×10^{-12}) に比べ 2 枝から 4 枝高い値であった。

キーワード：I-129、C-14、AMS、環境試料

1. 目的

本研究は、自然界や人為起源の I-129 と C-14 の環境における分布と挙動について調べることを目的とする。

ヨウ素の同位体は 20 数種知られているが、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壤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 (UNSCEAR-2000) 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。

C-14 は宇宙線と上層大気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。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ため、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る。そこで、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 C-14 放出の影響を受ける。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 放出の影響を調べることができる。

I-129 については、今年度は、雨水、河川水、などに注目し、安定ヨウ素である I-127 の分析も合わせておこなう。C-14 に関しては、近年の植物試料を用いて測定を行い、近年大気中 C-14 濃度の推移を調べる。

2. 方法

① I-129 の分析法

加速器質量分析法に用いる試料の調整法の概要は以下の通りである。まず、固体試

料については加熱気化法によりヨウ素を化学分離した後、溶媒抽出法により不純物を除き、ヨウ素を I^- として水溶液中に分離・精製した。鹹水など高濃度のヨウ素を含んでいる試料では直接溶媒抽出によりヨウ素を分離した。なお、ヨウ素濃度が低い試料についてはキャリアとして $^{129}I/^{127}I$ 比が低い安定ヨウ素を添加した（その場合はあとで補正が必要）。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。

②C-14 の分析法

試料を真空条件下で加熱して燃焼させ、 CO_2 を主とする混合ガスを得た。これより CO_2 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ァイトを生成した。これについてむつ事業所の加速器質量分析計を用い、 $^{14}C/^{12}C$ 比を測定した。標準試料には米国 NIST シュウ酸 (SRM4990C Oxalic Acid II, H0xII)、IAEA-C1 (Marble)、バックグラウンド試料には一般的なシュウ酸 (Wako No. 159-00425) を用いた。得られた AMS の結果から $\Delta^{14}C$ (‰) 値を算出し、比較した。

3. 研究成果

測定時のプランクを調べるために、古いヨウ素で作成した AgI 試料を測定した結果は、 1.37×10^{-13} であった。ここで用いた古いヨウ素は、古い地層から採れたヨウ素で、Rochester 大学の Udo Fehn 氏から提供されたものであり、Purdue 大学や東京大学の MALT で測定した結果は、 $^{129}I/^{127}I$ 比が約 3×10^{-14} であり、今回得られた 1.37×10^{-13} という値は高い傾向にあった。これは、むつの AMS の限界値かまたは環境試料を測る分析ターンであったため、他の試料の影響を受け、高めに出た可能性もある。

様々な環境水の $^{129}I/^{127}I$ 比を測定した結果を以下に示す。これらの試料の $^{129}I/^{127}I$ 比は、 $2.0 \times 10^{-10} \sim 1.7 \times 10^{-8}$ の範囲であった。核実験前の自然界における $^{129}I/^{127}I$ 比は 1.5×10^{-12} 程度と推定されており、それに比べ環境水中の値は 2 枠から 4 枠高い。ここには再処理施設に近い試料は含まれていないので、一般的なバックグラウンドの値はこの程度と見なしてよいであろう。なお、ヨウ素に富んだ地下の熱水の $^{129}I/^{127}I$ 比（東大 MALT で測定）と比べると数桁高い値であった。

試料	$^{129}I/^{127}I$ 比 (10^{-12})
屈斜路湖	1260
琵琶湖 1	2800
琵琶湖 2	3670
芦ノ湖	8900
中禅寺湖	548
照月湖	196
荒川	320
問寒別川	1 0300
雨水 東京 a	4410
雨水 東京 b	7100
雨水 (学習院屋上)	11800
雨水 (学習院森の中)	16800

C-14 の分析はチェルノブイリ周辺で採取した松の木の年輪を測った。その結果、1986

年の年輪に高い $^{14}\text{C}/^{12}\text{C}$ 比が見られた。これは、チェルノブイリ事故により放出された ^{14}C の影響と考えられる。その他の年の年輪には特段高い値は見られなかった。

4. 結論・考察

環境試料のうち土壤に関しては今まで ^{129}I に関するデータが得られていたが、河川水、湖水、雨水に関しては我が国におけるデータはほとんど無かった。今回の研究で、いくつかの分析値を出すことができた。これらの結果から、核実験前の自然界における $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比である 1.5×10^{-12} に比べると 2 枠～4 枠高いことがわかった。これは、核実験や核燃料再処理施設から大気中に放出された人為起源の ^{129}I が溶け込んだためと考えられ、特に雨水がその影響を大きく受けている。得られた結果は環境中における ^{129}I の分布と挙動を理解する上で貴重な情報であると思われる。

^{14}C についてはチェルノブイリ事故の影響が年輪に記録されていると言うことをはっきりと示すことができた数少ない例である。

5. 参照文献等

- 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, et. al., AMS analysis of ^{129}I in Japanese soil samples collected from background areas far from nuclear facilities. Quaternary Geochronology, 3, 291–297 (2008)