

## 環境中のヨウ素-129 の分布に関する研究 Studies on the distribution of I-129 in the environment

村松 康行<sup>1)</sup>, 岡部 宣章<sup>1)</sup>

Yasuyuki MURAMATSU, Nobuaki OKABE

学習院大学<sup>1)</sup>

### （概要）

福島原発事故により大量のヨウ素-131 が放出された。この核種は、半減期が 8 日と短いため、数ヶ月すると測定できなくなる。そこで、半減期が 1600 万年と非常に長いヨウ素-129 (<sup>129</sup>I) に注目し、その分析法の検討と幾つかの環境試料の分析を行った。<sup>129</sup>I は、再処理施設に起因して放出される核種でもあり、注目されている。また、半減期が長いことを利用して、環境中でのヨウ素の挙動を調べるトレーサとしても活用できる。

本研究では、日本原子力研究開発機構むつ事業所の AMS（タンデトロン）を用い、海水など環境水試料に含まれる <sup>129</sup>I の分析を行った。海水試料は <sup>129</sup>I 濃度が低いため、キャリアとしては、<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I 比の低い Old iodine を用いた。ブランクとして測った Old iodine の <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I 比は、 $7 \times 10^{-14}$  程度であった。

今回測定した 19 試料の海水試料は福島第 1 原子力発電所周辺で採取したものではないため、<sup>129</sup>I 濃度は低く、有意に <sup>129</sup>I が検出されたものは少なかった。これらの試料中の <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I 比は、 $< 1 \times 10^{-11} \sim 6.9 \times 10^{-11}$  の範囲であった。核実験以前の海水中の <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I 比は、 $1.5 \times 10^{-12}$  と推定されていることから、その値よりも明らかに高い。しかし、核実験や再処理の影響も考えられるため、福島事故に起因する <sup>129</sup>I の影響の可能性については、採取時期と採取場所等を考慮して現在検討中である。なお、福島県沿岸で採取した試料については、別の研究（東大の AMS で測定）で調べており、相馬や小名浜の海水試料では、<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I 比は  $10^{-10}$  オーダーの値が見られた。

### キーワード：

I-129、AMS、環境試料、海水、福島第 1 発電所事故

### 1. 目的

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、<sup>129</sup>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 <sup>129</sup>I（半減期 1600 万年）のグローバルな環境評価の重要性が指摘されている。

また、放射性ヨウ素は原子力発電所の事故によっても、放出される。福島第 1 原子力発電所事故に起因する放射性ヨウ素のうち放出量が 1 番多かったのは <sup>131</sup>I ( $1.6 \times 10^{17}$  Bq) であり、<sup>133</sup>I、<sup>135</sup>I、<sup>132</sup>I と続く。<sup>131</sup>I（半減期 8 日）は半減期が短いため、3 ヶ月経つと数千分の一に減少し検出が難しくなる。<sup>133</sup>I、<sup>135</sup>I、<sup>132</sup>I は半減期が更に短く 1 日以内なので、10 日間も経つと殆ど検出されない。しかし、事故により半減期が長い <sup>129</sup>I（1570 万年）も同時に放出されており、環境への蓄積が懸念されている。また、消えてしまった <sup>131</sup>I の広がりを知るためのトレーサとして

も  $^{129}\text{I}$  を活用することが期待される。

今年度は、海水を中心に日本原子力研究開発機構むつ事業所の AMS (タンデトロン) を用いて  $^{129}\text{I}$  の分析を行った。また、比較として東京大学タンデム加速器の AMS を用いた測定も行い、事故後の海水中の  $^{129}\text{I}$  濃度変化等について調べた。

## 2. 方法

試料の調整法の概要は以下の通りである。海水試料を約 100mL とり、正確に重量を測定した。それに亜硫酸ナトリウムを加え、ヨウ素の化学形態をヨウ化物イオン ( $\text{I}^-$ ) に揃え、キャリアとして安定ヨウ素をヨウ化物イオンの形態で 1mg 添加した。試料を分液ロートに入れ、四塩化炭素を有機溶媒として加え、酸性にした後、亜硝酸ナトリウムを添加し、ヨウ化物イオンを  $\text{I}_2$  に還元し、有機溶媒に抽出した。ヨウ素を不純物から分離するため、有機溶媒相を新しい分液ロートに移し、還元剤として亜硫酸ナトリウム水溶液を加え、 $\text{I}^-$  にし液相に逆抽出した。水相を分離し、それに硝酸銀溶液を加え  $\text{AgI}$  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 AMS 測定用のターゲットとした。 $\text{AgI}$  ターゲットを日本原子力研究開発機構むつ事業所に送り、AMS 測定を依頼した。

## 3. 結果及び考察

測定時のブランクを調べるために、 $^{129}\text{I}$  濃度が低い古いヨウ素で作成した  $\text{AgI}$  試料を測定した。結果は、 $7 \times 10^{-14}$  であった。ここで用いた古いヨウ素は、Rochester 大学の Udo Fehn 博士から提供されたものである。これは、古い地層から採れたヨウ素であるため  $^{129}\text{I}$  がかなり壊変しており  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比が低いので、低濃度の分析を行う場合のキャリアとして有効である。Purdue 大学や東京大学の MALT で測定したブランク値の結果は、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比が約  $3 \times 10^{-14}$  であり、今回得られた  $7 \times 10^{-14}$  という値はそれよりも高い傾向にあった。今回ブランク値が高めであったのは、環境試料を測るターンであったため、他の試料からの影響を受けた可能性も考えられる。

なお、加えたキャリアに起因する  $^{129}\text{I}$  の影響があるため、それを差し引くと、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比が  $1 \times 10^{-11}$  以上の値でないとは有意な測定はできないと考える。今回は、海水 19 試料とブランク試料 1 つを測定した。なお、19 試料の海水は、青山道夫博士 (気象研究所、現在は福島大学所属) が計画した、ボランティア観測協力船により採取されたものである。結果は、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比として、 $< 1 \times 10^{-11} \sim 6.9 \times 10^{-11}$  の範囲であった。核実験前の自然界における  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比は、 $1.5 \times 10^{-12}$  程度と推定されており、それに比べ海水中の値は高いことが見て取れる。しかし、有意に検出されなかった海水試料も 2/3 程度あり、予想よりも低い試料が多かった。

試料は 2011 年 5 月半ば頃に採取されており、また、採取場所は福島第 1 原子力発電所の沿岸ではないため、明らかな原発事故の影響は見られなかった。また、比較的高い値が得られたのは北海道の太平洋側であったが、この地域が特別高いというわけではなく、沿岸で採取した原発事故の影響を直接受けている試料を測っていないためである。採取位置の確認作業がまだできていないので、それについては今後行う予定である。

むつの AMS で測定した以外にも、別の研究グループから提供してもらった海水試料を東京大学 MALT の AMS を用いて測定した。それらの中には福島県沿岸で採取した試料も含まれている。例えば、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比は、相馬沿岸で採取された試料では  $1.1 \times 10^{-10}$  であり、小名浜沿岸で採取された試料では  $2.6 \times 10^{-9}$  と高い値であった。また、東京湾やその周辺で採取した試料でも、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比として、 $1 \times 10^{-10}$  程度の値が観測されている。これらは、事故後、河川水を通じて放射性ヨウ素が東京湾に流れ込んだ影響を反映していると推定される。

海水中の<sup>129</sup>I濃度は低いので、測定する場合、キャリアとして加える安定ヨウ素（ヨウ化物イオン）は<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I比が低い必要がある。今回、日本原子力研究開発機構むつ事業所のAMS（タンデトロン）を用いて実際の海水を分析した結果、試料量100mLで<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I比として $1 \times 10^{-11}$ 程度の濃度まで測定できることが分かった。試料量を増やすことで更に低い濃度まで検出できる。原発事故後、2011年5月半ば頃に日本近海（太平洋側）で採取した試料についての分析結果は、高いものでも、<sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I比として $5 \times 10^{-11}$ 程度とそれほど高い値ではなかった。これらは北海道沖の試料であり、原発からの距離も離れており、希釈されたためそれ程高い値にはなっていないと思われる。福島県沿岸地域で採取した試料については東大のAMSで測定したが、福島第1原子力発電所の影響を受けて高めの値が観測された。例えば、上述したように小名浜沿岸で採取した試料では、 $10^{-9}$ オーダーの値が見られた。

事故の影響を受けた海水試料を系統的に得るのは簡単ではないが、今後、様々な場所での系統的な試料が入手できれば<sup>129</sup>Iの広がりなどに関するデータを取ることができるであろう。

海洋以外にも、山林土壌に沈着した<sup>129</sup>Iの量は多いと推定され、放射性ヨウ素の方が放射性セシウムよりも動き易いので、河川水や地下水を通じた<sup>129</sup>Iの環境動態を調べる上でも興味深いトレーサーとして利用できるであろう。

#### 4. 引用(参照)文献等

- Matsuzaki, H. et al., Nucl. Instr. Methods in Physics Research Section B 259, 721-726 (2007).
- Miyake, Y., Matsuzaki, H., Fujiwara, T., Saito, T., Yamagata, T., Honda, M., Muramatsu, Y., 2012. Isotopic ratio of radioactive iodine (<sup>129</sup>I/<sup>131</sup>I) released from Fukushima Daiichi NPP accident, *Geochem. J.* 46, 327-333.
- Muramatsu Y., Takada Y., Matsuzaki H., Yoshida S.: AMS analysis of <sup>129</sup>I in Japanese soil samples collected from background areas far from nuclear facilities. *Quaternary Geochronology*, 3, 291-297 (2008)