

環境中のヨウ素 129 とその分析法について

川村 秀久*・天日 美薫*・北里 美保*・平佐田 紗恵*・百島 則幸**

1. はじめに

福島第一原子力発電所（F1NPP）事故では、放射性ヨウ素が環境中に大量に放出された。放射性ヨウ素は体内に摂取されると甲状腺に濃縮するため被ばく評価上重要な核種とされている。放射性ヨウ素の中でもヨウ素 129 (^{129}I) は、その半減期（1570 万年）が ^{131}I （8.0 日）や ^{132}I （2.3 時間）、 ^{133}I （21 時間）に比較し極めて長いことから、環境中に放出されると年月を経て広く分布することになる。

本稿では、現在環境中に存在する ^{129}I とその分析法について、最新の知見を紹介する^{1) - 6)}。

2. 環境中の ^{129}I

環境中の ^{129}I はその起源の違いにより天然起源と人工起源に大別される。天然起源の ^{129}I は、大気圏においてキセノンと宇宙線との反応やウラン 238 の自発核分裂により生成する。その ^{129}I の存在量は地殻圏で約 50,000kg（320TBq）と最も多く、 ^{129}I が自由に挙動する大気圏、水圏および生物圏（以下、自由挙動圏）では合算しても約 263 kg（1.7TBq）程度と見積もられている。一方、人工起源の ^{129}I は、1940 年代以降の核実験や原子力発電所事故、使用済核燃料再処理施設の稼働により環境中に放出され、自由挙動圏に於ける存在量を急激に増加させている。核実験では約 43kg（0.3TBq）の ^{129}I が拡散され、また、使用済核燃料再処理施設（La Hague と Sellafield）の稼働に伴って 1995 年迄に約 1,700 kg（11TBq）が気体もしくは液体状廃棄物として管理放出されたと見積もられている。さらに、チェルノ

ブイリ事故では 2kg（0.013TBq）が漏洩したと考えられている。

^{129}I は自由挙動圏では安定同位体の ^{127}I と挙動を共にすることから、 ^{129}I を表す指標としてその濃度（単位重量もしくは面積当たりの放射能濃度）とともに比（ $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ）が慣例的に用いられている。ちなみに、核実験以前の海洋に於ける天然起源の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は 10^{-12} 程度と考えられている。しかし、その後の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は前述の理由のために上昇傾向にあり現在（ $10^{-11} \sim 10^{-6}$ ）に至っている。

3. ^{129}I の分析法

環境中の ^{129}I 分析法には、中性子放射化分析（NAA）法、加速器質量分析（AMS）法および誘導結合プラズマ質量分析（ICP-MS）法の 3 種類がある。NAA 法は石英アンプル封入試料に熱中性子を照射し、 ^{129}I （n, γ ） ^{130}I と ^{127}I （n,2n） ^{126}I 反応により生成する γ 線放出核種を分離精製後にゲルマニウム半導体検出器で測定する方法である。従来から用いられていた手法であるが、供試料量が多いこと（例えば乾土で 100g）、前処理が煩雑なこと、放射性廃棄物が生成することなどの欠点があった。また検出下限値（ $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ）は $10^{-10} \sim 10^{-9}$ 程度であり、一般環境試料の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ の測定は困難であった。AMS 法は試料中ヨウ素からを調製されるヨウ化銀（AgI）ターゲットを用いセシウムスパッターにより発生するヨウ素イオンを電磁石で分別後に ^{127}I をファラデイカップで ^{129}I をガスカウンターや飛行時間型検出器で検出し $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ を求める手法である。検出下限値

*一般財団法人 九州環境管理協会 調査分析部 **九州大学アイソトープ総合センター

($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) は $10^{-15} \sim 10^{-14}$ 程度と低く、一般環境試料だけでなく ^{129}I による年代測定にも利用されている。NAA 法に比較し検出下限値が低いことから少ない供試料量で測定できる利点がある（例えば乾土で 0.5 ～ 2g）。ICP-MS 法は近年報告されている手法である。当初、 ^{129}Xe による同重体干渉や $^{127}\text{I}^+\text{H}_2$ による分子イオン干渉のために、検出下限値 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) は 10^{-6} 程度であった。しかし、干渉作用を除去するリアクションセル等の技術開発が進展し、現在では 10^{-8} 程度まで測定可能とされている。3 種類の手法の中では検出下限値は高いものの、前処理の煩雑さが軽減され測定時間も 10 分以内と短いことから、FINPP 周辺でのスクリーニング等への適用が期待されている。

4. AMS 法

九環協が米国パデュー大学の協力を得て実施している AMS 法の概要を紹介する。

環境試料は、土壌・堆積物試料、有機物試料（水産物・農産物・日常食）、水試料（海水・汽水・湖沼水・降水）および大気試料である。分析手順を図 1 に示す。土壌・堆積物試料の場合、五酸化バナジウム (V_2O_5) と混合後にキャリアー (Woodward iodine) を添加し酸素気流中で加熱（石英燃焼管法）して揮散するヨウ素を水酸化テトラメチルアンモニウム (TMAH) 溶液に捕集する。その溶液を用い溶媒抽出と逆抽出によりヨウ素を精製回収後にアンモニア存在下で硝酸銀と反応させることによりヨウ素を AgI として回収する。有機物試料の場合、 V_2O_5 を用いずに燃焼しその後の操作を行う。水試料の場合、キャリアーを添加後に溶媒抽出と逆抽出及びその後の操作を行う。大気試料の場合、フィルターや活性炭カートリッジを用いて粒子状及び気体状ヨウ素を捕集する。それらからヨウ素を TMAH 溶液により抽出しキャリアーを添加後に溶媒抽出と逆抽出及びその後の操作を行う。いずれの AgI 試料もニオブパウダーと混合しターゲット試料を調製後に、パデュー大学の 7.5MV FN タンデム型加速器 (PRIME Lab AMS システム) を用いて $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 測定を行う。

なお、環境試料の分析とともに、試料媒体ごとのプロセスブランク値の確認や二重測定、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ レベルが異なる IAEA-375 (土壌)、NIST-1547 (桃葉) 及び NIST-8435 (全粉乳) の定期測定による妥当性確認など品質管理に努めている。

5. 福島県内で採取した土壌の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ と $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$

FINPP 事故後、半減期の短い ^{131}I は壊変し尽くしているため現在では検出されない。一方、半減期が極めて長い ^{129}I は将来にわたって存在し続ける。 ^{129}I と ^{131}I の環境中での化学的挙動に大きな差異は無いことから、 ^{129}I を分析することで事故当時の ^{131}I の挙動を推定できる可能性がある。そのためには、 $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ を予め把握しておくことが重要である。

2011 年 4 月 18 日から 21 日にかけて福島県内で表層土壌試料を採取し、安定ヨウ素 (^{127}I) 濃度と $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 及び $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ を調べた。 ^{127}I 濃度は ICP-MS 法で、 ^{129}I ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) は AMS 法で、また ^{131}I はゲルマニウム半導体検出器を用いた γ 線分析法により分析した。その結果、 ^{127}I 濃度は 1 ～ 10mg/kg の範囲に、また $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ は $3.3 \times 10^{-9} \sim 5.0 \times 10^{-7}$ の範囲にあった。 ^{129}I と ^{131}I との間には正の相関があり $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ (3 月 15 日に半減期補正) は 12 ～ 52 の範囲にあった。本結果 ($^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$) は、既に報告されている表層土壌の値 (31.6 ± 8.9) や、大気降下物の値 (19.2) とほぼ同じレベルであった。

FINPP 事故では複数の原子炉から放射性物質が漏洩したとされている。各原子炉の燃料の燃焼条件は異なるために、固有の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ を示す放射性ヨウ

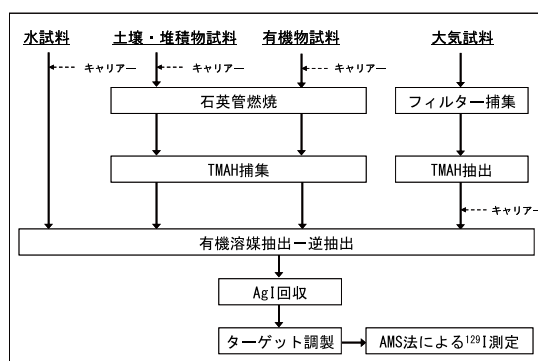


図 1 分析手順

素が各原子炉から漏洩したと考えられる。そのため、本調査の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ に見られる比較的大きな変動の理由の1つとして、各原子炉からの放射性ヨウ素の寄与率が表層土壌の採取地点ごとに異なることが考えられた。

今後、 $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ についてはさらに検討を加える必要がある。またそれと同時に環境中の ^{129}I の挙動を把握することも重要であると考えられる。

参考文献

- 1) S.Szidat et al. “RNAA and AMS of Iodine-129 in environmental materials – comparison of analytical methods and Quality assurance” *KERNTECHNIK*, 65, 160-167 (2000)
- 2) Y. Miyake et al. “Isotopic ratio of radioactive iodine ($^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$) released from Fukushima Daiichi NPP accident” *Geochem. J.*, 46, 327-333 (2012)
- 3) 山形ら “東京都心における福島第一原子力発電所起源 ^{129}I の沈着量の時間変動と事故時の $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ の推定” 第14回「環境放射能」研究会要旨論文集 (2013)
- 4) 村松 “ヨウ素の微量分析とその応用—地球化学・環境化学分野を中心に—” *ぶんせき*, 12, 709 – 715 (2003)
- 5) P. Sharma et al. “The ^{129}I AMS program at PRIME Lab” *Nucl. Instr. And Meth. B*, 123, 347-351 (1997)
- 6) 川村ら “AMS による環境試料中ヨウ素 -129 分析法” 2007 日本放射化学会年会・第51回放射化学討論会講演要旨集, 118 (2007)