様　式　C－19、F－19－1、Z－19　（共通）

科学研究費助成事業　　研究成果報告書

令和　４ 年　 ６ 月 ２３ 日現在

機関番号：３２６０６
研究種目：基盤研究(C)（一般）
研究期間：2018～2021
課題番号：１８Ｋ０５２０５

研究課題名（和文）福島原発事故による放射性ヨウ素の汚染と事故後の環境動態に関する研究

研究課題名（英文）Environmental radioactivity research on radio-iodine contamination by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident

研究代表者
大野　剛（Takeshi, Ohno）

学習院大学・理学部・教授

研究者番号：４０４５２００７

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費）　　3,400,000円

研究成果の概要（和文）：福島第一原子力発電所の事故により、環境中に大量の放射性物質が放出された。これらの放射性物質の中でも、特に放射性ヨウ素（I-131）は体内に入ると甲状腺に濃縮され、甲状腺がんのリスク上昇の要因となる。そのため、福島第一原発事故による被ばく線量を評価する上で、I-131の大気放出量や土壌沈着量に関する情報は重要である。I-131の半減期は8日と短いため、事故後数ヶ月でI-131の放射能を調べることは困難となった。本研究では、ICP-MS/MS法を用いた長半減期放射性ヨウ素（I-129）迅速分析法を開発し、環境中に放出されたI-131を推定する方法を検討した。

研究成果の学術的意義や社会的意義
福島第一原子力発電所の事故により、大量の放射性ヨウ素（I-131）が放出された。I-131は体内に入ると甲状腺がんのリスク要因となるため、環境中に含まれるI-131に関する情報は重要である。しかし、事故後数ヶ月でI-131の放射能を調べることは困難となったため、本研究では、事故により同様に放出された長半減期放射性ヨウ素（I-129）を用いてI-131を推定する迅速分析法を開発した。本研究で開発したICP-MS/MS法を用いた分析法は従来法に比べ１０倍以上迅速に測定することが可能になった。

研究成果の概要（英文）：The accident at the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant resulted in a substantial release of radionuclides including Iodine-131, Cesium-134, and Cesium-137 to the atmosphere, and caused significant contamination of the environment. An effective dose estimation of released I-131 is important but difficult due to lack of data on the deposition of I-131. The long-lived radioiodine isotope I-129 is one of the important radionuclides released from nuclear fuel reprocessing plants and nuclear accidents into the environment. In particular, I-129 has been used as a tool to reconstruct the initial distribution of I-131 at nuclear accidents. In this study, the determination of I-129 in enviromental samples by ICP-MS/MS was performed, and the distribution of radioactive iodine released by the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident was examined.

研究分野：環境地球化学

キーワード：放射性ヨウ素　ICP-MS　MS/MS　原子力発電所事故

※科研費による研究は、研究者の自覚と責任において実施するものです。そのため、研究の実施や研究成果の公表等については、国の要請等に基づくものではなく、その研究成果に関する見解や責任は、研究者個人に帰属します。

様　式　Ｃ－１９、Ｆ－１９－１、Ｚ－１９（共通）

１．研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所の事故は大規模な放射性物質による環境汚染を引き起こした。事故により放出された放射性セシウムは、半減期が長く、比較的容易にゲルマニウム半導体検出器で測定できるため、汚染実態の把握や環境中での挙動について多くの研究がなされている (e.g. Ohno et al., 2012)。一方、不活性な希ガスを除くと放出量が最も多い放射性ヨウ素(^{131}I)は、半減期が8日と短いため、事故後の環境動態について得られている知見は限定されている。放射性ヨウ素(^{131}I)はチェルノブイリ原発事故で小児甲状腺ガン増加の原因となるなど、原発事故で最も人体に影響を与える可能性のある核種である。しかし、放射性ヨウ素についての研究例は我々のグループを含め限られたものしかない (e.g, Ohno et al., 2012; Muramatsu et al, 2015; Maruoka et al., 2017)。放射性ヨウ素は原発事故で最も注意が必要な核種であるが、これまで研究が進んでいない一つの原因は放射性ヨウ素の分析に手間がかかり、分析できる施設が限られていることが挙げられる。既に減衰した放射性ヨウ素(^{131}I)の推定には、原発事故により同様に放出された ^{129}I(半減期 1570 万年)が用いられる（Muramatsu et al., 2015)。長半減期の ^{129}I の放射能は低く放射線を計測することは困難であるため、これまで加速器質量分析法(AMS)を用いて原子数を直接測定する方法が用いられてきた。近年、我々のグループでは従来法に比べ、迅速分析が可能なトリプル四重極型 ICP-MS(ICP-MS/MS)を用いた分析法の開発に取り組み、放射性ヨウ素の汚染が高い地域の試料分析に成功している(Ohno et al., 2013)。

放射性ヨウ素(^{131}I)の推定には原発事故で放出された $^{129}I/^{131}I$ 比が重要になる。事故を起こした３つの原子炉は核燃料の燃焼度によりそれぞれ異なる $^{129}I/^{131}I$ 比を持つ（1 号機: 32.9、2 号機: 23.0、3 号機: 21.8; Nishihara et al. 2012）ため、どの原子炉からの汚染が強いかにより $^{129}I/^{131}I$ 比は異なることが予想される。しかし、事故を起こした３つの原子炉の持つ $^{129}I/^{131}I$ 比に注目した研究は少なく、^{129}I を用いた ^{131}I 濃度の復元には $^{129}I/^{131}I$ 比の不確かさがつきまとっている。我々のグループでは、福島原発事故起源の $^{135}Cs/^{137}Cs$・$^{134}Cs/^{137}Cs$ 比測定法について報告した(Ohno and Muramatsu, 2014)。これらの手法を用いると、ある地域が事故を起こした３つの原子炉のどこから強く影響を受けたのか調べることが可能となると考えられる。

２．研究の目的

本研究では、福島原発事故の初期被ばく線量評価で重要な放射性ヨウ素(^{131}I)の汚染実態を明らかにすることを目指し、土壌中 ^{129}I 濃度を高感度で測定する迅速放射性同位体分析法を開発することを目的とする。さらに、我々が開発してきた放射性同位体分析法(Ohno and Muramatsu, 2014)を用いて土壌中 $^{135}Cs/^{137}Cs$・$^{134}Cs/^{137}Cs$ 比を測定し、各地域の汚染起源原子炉の寄与率を求め、正確な $^{129}I/^{131}I$ 比と土壌中 ^{129}I 濃度から放射性ヨウ素(^{131}I)の事故後の環境動態を明らかにすることを目的とする。本研究で推進するセシウム・ヨウ素などの複数の元素の放射性同位体分析技術を用いた環境放射能調査は、これまで分析技術的な制約からほとんど行われてこなかった。本研究は、環境放射能調査・影響評価に使用可能な汎用的かつ低コストな分析法を提供できるものと考えており、環境放射能研究全般に対しても波及効果がある。また、原発事故で沈着した放射性ヨウ素の環境中での挙動について理解が進めば、今後の高レベル放射性物質の地層処分と環境への影響を評価する上で役立つと考えている。

３．研究の方法

本研究では、福島原発事故の初期被ばく線量評価で重要な放射性ヨウ素(^{131}I)の汚染実態を明らかにすることを目的に、高感度放射性ヨウ素同位体分析法を用いて土壌中 ^{129}I 濃度を高感度で測定する方法を確立し、汚染地域ごとの $^{135}Cs/^{137}Cs$・$^{134}Cs/^{137}Cs$ 比から原子炉ごとの汚染寄与を推定することの２つの研究を進めた。

土壌中 ^{129}I 濃度測定法の高感度化

放射性ヨウ素による住民の被ばく線量評価には、土壌中の放射性ヨウ素(^{131}I)の情報が必要になる。本研究では、極微量の ^{129}I を感度で測定するため 10 倍の高感度化を目指す。ICP-MS/MS では通常、噴霧器を用いて溶液試料を霧状にしてプラズマに導入する。大きな水滴は捨てられてしまうため、試料の導入効率は 10%以下とされている。本研究では試料を電熱器により気化させ導入する方法を開発することにより試料導入効率を 10 倍向上させる。また、真空排気システムの高容量化の改良により感度を向上させ、高感度化を達成する。

電熱気化法に加えて、溶液中のヨウ化物イオンを元素状ヨウ素として酸化気化する方法も検討する。こちらの方法ではヨウ素の酸化反応 ($2I^- \rightarrow I_2$) を利用して気相とし全量を質量分析計に導入できるため 10 倍程度の高感度化が期待できる。さらに真空インターフェースの改良により感度を数倍向上させ、本研究で高感度化を達成させる。これにより、福島原発事故起源の放射性ヨウ素による汚染の実態と事故後の環境動態を全国的にかつ高精度で明らかにすることが可能になる。

汚染地域ごとの $^{135}Cs/^{137}Cs$・$^{134}Cs/^{137}Cs$ 比から３つの原子炉の汚染寄与を推定する
原子炉のもつセシウム同位体比は燃料棒の燃焼時間により異なる。福島原発についても西原ら(2012)により事故を起こした３つの原子炉ごとのセシウム同位体比が推定されている。本研究では、原子炉ごとにセシウム同位体比が異なることを利用することにより、どの地域がどの原子炉から受けた汚染が強いかという情報を得ることを目指す。セシウム同位体比の具体的な分析法としては、電気炉を用いて500℃・3時間かけて灰化し、試料をテフロン容器に移し、7M HNO_3 を加えてホットプレート上で120℃・3時間かけて加熱し、酸抽出を行った。酸抽出後の溶液を遠沈管に移し、遠心分離後の上澄み溶液をカラムによる元素分離に用いた。さらに、脱溶媒装置AridusⅡを使用することで信号強度の高感度化を目指した。

４．研究成果

本研究では、福島原発事故の初期被ばく線量評価で重要な放射性ヨウ素の汚染実態とその後の環境動態を明らかにすることを目的とし、誘導結合プラズマ質量分析法（ICP-MS）を用いた高感度放射性ヨウ素分析法の開発を進めた。放射性ヨウ素の迅速高感度分析を達成するための溶液試料導入法の改良を進めた。従来のICPMSを用いた放射性ヨウ素分析法では、溶液試料を噴霧器を用いて試料を霧状にし、プラズマに導入する方法が用いられてきた。この方法では、大きな水滴は捨てられてしまうため、試料の導入効率は10%程度である。本研究では、試料導入効率の向上を目指し、ヨウ素の電熱気化法および酸化気化法を用いて、導入する方法を検討した。

ヨウ素の電熱気化法については、ヨウ素イオンの検出は確認できたが、十分な感度上昇が達成できなかった。溶液試料中のヨウ化物イオンがナトリウムイオンと結合し、ヨウ化ナトリウムとして析出したため揮発が達成されなかったためだと考えられる。また、フィラメントに用いたレニウムが質量分析計内を汚染することが明らかとなったため、電熱気化法の開発はヨウ素イオン検出が達成された段階で、中止することとした。

ヨウ素の酸化気化法については、ヨウ化物イオンを酸化剤を用いて元素状ヨウ素に酸化することにより、ガス化させ、質量分析計に導入することを目指した。酸化剤に亜硝酸ナトリウム水溶液を用いて、酸性条件下で高感度化が達成されることが示された。さらに、酸化条件の最適化を進め、酸化剤の種類・濃度と反応pHの制御が重要であることが明らかとなった。酸化剤に亜硝酸ナトリウム溶液を用いる際、pH を酸性に維持できるよう硝酸を添加することで反応溶液を調整し、高感度化が確認できた。

土壌試料や生物試料からヨウ素を抽出する方法として、電気管状炉を用いた加熱気化法の改良を検討した。電気炉の温度と酸素ガス流量を制御することにより、定量的に放射性ヨウ素を土壌試料からTMAH溶液に捕集することが可能となった。これらの開発した分析法を用いて福島県で採取された環境試料中の放射性ヨウ素の分析をおこなった。

地域ごとの $^{135}Cs/^{137}Cs$・$^{134}Cs/^{137}Cs$ 比から３つの原子炉の汚染寄与率を求めるため、土壌試料からセシウム同位体比を測定した。ICP-MSによる $^{135}Cs/^{137}Cs$ 比分析法の検討としてIAEA-375を使用し、得られた $^{135}Cs/^{137}Cs$ 比は文献値と誤差範囲で一致が得られた。$^{135}Cs/^{137}Cs$ 比は過去の大気核実験起源のグローバルフォールアウトやチェルノブイリ周辺地域の値と有意な差が見られたため、新たな環境トレーサーとなり得ることが示された。福島県で採取された土壌中の $^{135}Cs/^{137}Cs$ 比について、南部・周辺部が北西部より高い傾向を示すことが明らかとなった。これらの結果は南部・周辺部がより高い $^{129}I/^{131}I$ 比を持つ可能性を示唆している。セシウム同位体比を利用した方法により求める $^{129}I/^{131}I$ 比の不確かさは分析誤差程度となるため、正確な $^{129}I/^{131}I$ 比を求めることにより、放射性ヨウ素の土壌汚染濃度の不確かさを低減できることが示された。

５．主な発表論文等

〔雑誌論文〕　計3件（うち査読付論文　3件／うち国際共著　1件／うちオープンアクセス　0件）

１．著者名 Yuguchi Takashi、Ishibashi Kozue、Sakata Shuhei、Yokoyama Tatsunori、Itoh Daichi、Ogita Yasuhiro、Yagi Koshi、Ohno Takeshi	４．巻 372-373
２．論文標題 Simultaneous determination of zircon U?Pb age and titanium concentration using LA-ICP-MS for crystallization age and temperature	５．発行年 2020年
３．雑誌名 Lithos	６．最初と最後の頁 105682～105682
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.lithos.2020.105682	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

１．著者名 Lan Zhongwu、Sano Yuji、Yahagi Takuya、Tanaka Kentaro、Shirai Kotaro、Papineau Dominic、Sawaki Yusuke、Ohno Takeshi、Abe Mariko、Yang Hongwei、Liu Hai、Jiang Tao、Wang Teng	４．巻 320
２．論文標題 An integrated chemostratigraphic（δ13C-δ18O-87Sr/86Sr-δ15N) study of the Doushantuo Formation in western Hubei Province, South China	５．発行年 2019年
３．雑誌名 Precambrian Research	６．最初と最後の頁 232～252
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1016/j.precamres.2018.10.018	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 該当する

１．著者名 Ohno Takeshi、Hirono Mutsumi、Kakuta Shinichiro、Sakata Shuhei	４．巻 33
２．論文標題 Determination of strontium 90 in environmental samples by triple quadrupole ICP-MS and its application to Fukushima soil samples	５．発行年 2018年
３．雑誌名 Journal of Analytical Atomic Spectrometry	６．最初と最後の頁 1081～1085
掲載論文のDOI（デジタルオブジェクト識別子） 10.1039/C8JA00017D	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 －

〔学会発表〕　計3件（うち招待講演　0件／うち国際学会　0件）

１．発表者名 大野剛，　實籾佑哉，　佐藤妃奈，　深海雄介
２．発表標題 ICP-MS/MSを用いた極微量放射性同位体分析法の開発と環境放射能研究への応用
３．学会等名 2020年度日本地球化学会第66回年会
４．発表年 2020年

１．発表者名 佐藤妃奈、深海雄介、大野剛
２．発表標題 ICP-MS/MS を用いた酸化気化導入法による高感度放射性ヨウ素分析法の開発及び環境放射能研究への応用
３．学会等名 2019年度日本地球化学会第66回年会
４．発表年 2019年

１．発表者名 佐藤妃奈、大野剛、坂田周平
２．発表標題 ICP-MS/MSを用いた高感度放射性ヨウ素 分析法の開発と環境放射能研究への応用
３．学会等名 2018年度日本地球化学会第65回年会
４．発表年 2018年

〔図書〕　計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

－

６．研究組織

	氏名 （ローマ字氏名） （研究者番号）	所属研究機関・部局・職 （機関番号）	備考

７．科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕　計0件

８．本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関