

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 6 月 6 日現在

機関番号：12601

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011 ～ 2012

課題番号：23651007

研究課題名（和文） 沈み込み帯におけるヨウ素同位体システムの解明

研究課題名（英文） Study of iodine isotope system around the subduction zone

研究代表者

松崎 浩之 (MATSUZAKI HIROYUKI)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号：60313194

研究成果の概要（和文）：

北海道の温泉水について、ヨウ素同位体比 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) を分析した。 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} \sim 10^{-13}$ 代と、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} \sim 10^{-14}$ 代の二つのグループが存在した。多くの試料で、同位体比から算出される年代は地質学的年代よりも古かった。福島第一原子力発電所事故後、事故起源のヨウ素 129 に汚染されている河川水中の分析の結果、多くの試料は汚染された雨水と天然の地下水との混合で説明できた。

研究成果の概要（英文）：

The iodine isotopic ratio ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) and the iodine concentration in hot spring water samples collected from Hokkaido, Japan were measured. They can be categorized into two groups, i.e., one with $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio of 10^{-13} order and the other with 10^{-14} order. The age calculated from the iodine isotopic ratio tends to be older than the geologic age. The iodine isotopic ratio ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) and the iodine concentration of river water samples collected after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident can be explained as a mixture of contaminated rain and natural groundwater.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	3,000,000	900,000	3,900,000

研究分野：地球化学

科研費の分科・細目：環境学・環境動態解析

キーワード：ヨウ素 129・加速器質量分析・沈み込み帯・ヨウ素循環・地下流体・河川水・福島第一原子力発電所事故

1. 研究開始当初の背景

地球上の様々な地域の大陸縁辺域(大陸/海洋境界域)に存在するメタンハイドレートや天然ガスなどの有機炭素は、巨大な炭素リザーバーであると同時に、その近傍にヨウ素が濃縮していることが知られている。ロチェスター大学の U.Fehn を中心としたグループは、ヨウ素の長半減期放射性同位体である ^{129}I (半減期 1,570 万年)に着目し、地球上のいくつかの炭化水素リザーバー近傍(フロリダ沖のメタンハイドレート胚胎層やペルー沖、ニュージーランド沖等)のヨウ素同位体比 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) から、ヨウ素の年代を、いず

れも 40-50Ma(4,000-5,000 万年)と算出し、ヨウ素を胚胎する地層の地学的な堆積年代(0.5-5Ma)よりはるかに古いことを示した。このことから、ヨウ素や炭化水素の起源は、その地層の堆積物とは別の起源であろうこと、特に、多くの有機炭素層が、海洋プレートと大陸プレートとの相互作用域近傍に存在することから、海底堆積物中に埋設された有機物とヨウ素との関連を示唆した(Moran et al. 1998 Chemical Geology, Fehn et al. 2000 Science, Fehn et al. 2007 J.Geochm.Exploration など)。

日本列島においても、Y.Muramatsu らが、南

関東天然ガス田から産出する鹹水中のヨウ素同位体比を測定し、平均で $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}=1.7\times 10^{-13}$ (ヨウ素年代:45Ma) という値を得た。この地域で天然ガスや鹹水を胚胎する上総層群は、新第三紀おわりから第四紀にかけて(0.5-2Ma:50-200 万年前)堆積した陸源堆積物であり、ヨウ素年代は地層年代よりはるかに古い。このことから、天然ガスの材料の有機炭素やヨウ素は、陸源堆積物ではなく、200Ma という年齢を持つ太平洋プレート上の堆積物によってもたらされたのではないかと推定している (Muramatsu et al. 2001 EPSL)。

一方、最近の申請者らの分析で、海から離れた内陸部の地下水で同位体比の極めて低いサンプルが見つかって来た。たとえば、長野県松代温泉や、北海道の占冠(湯の沢温泉)などでは、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}=4.0\times 10^{-14}$ という極めて低い値(ヨウ素年代:70Ma)を示し、先に述べた有機炭素貯留域関連のヨウ素とは、また異なった起源および履歴を持つヨウ素である可能性が示された。日本列島を構成する基盤岩には、70Ma 以上の年代の付加体(海成の堆積物)も多く、それらは太古の海洋-大陸境界域における海底プロセスによって形成されている。内陸部の温泉から検出されるヨウ素は、太古の時代の付加体形成プロセスにおいて有機物とともに固定され、はるかな時を経て再び地上に現れたものではないか、と考えられる。

以上より、ヨウ素同位体システムを、日本列島の成り立ちや履歴に大きな影響を与えている、沈み込み帯との関係の中でとらえ直すことが重要と考えられた。

2. 研究の目的

日本各地の地下水中のヨウ素濃度およびヨウ素同位体比 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) を測定し、その地下水を胚胎する岩層の性質と比較することによって、100 万年から 1000 万年スケールにおける、地球表層環境でのヨウ素の循環や濃縮機構を明らかにすることを目的とする。特に、ヨウ素は、メタンハイドレートや天然ガスなどの炭化水素リザーバーとともに、大陸縁辺域に濃縮しており、日本列島のような沈み込み帯においてヨウ素同位体システムを解明することは、長時間スケールにおける炭素循環に関するまったく新しい知見につながるものと考えられる。2011 年 3 月の福島第一原子力発電所事故により、ヨウ素 129 を含む放射性物質が環境中に漏出した。本研究では、その河川等の流体への影響も調べることにした。

3. 研究の方法

日本各地のヨウ素含有の温泉施設を訪れ、温

泉水を採取する。また、ヨウ素を高濃度に含有する鹹水を産出する施設に依頼し、サンプリングを行う。また、河川水、湖水を採取する。採取した試料は、研究室にて溶媒抽出を行い、安定ヨウ素は ICP-MS にて定量を行ない、ヨウ素同位体比は、東京大学タンデム加速器施設において加速器質量分析により測定する。

4. 研究成果

北海道各地から温泉水を採取し分析した。温泉の胚胎岩層は、その成因から大きく 5 つのグループに分類することかできた: 第 1 のグループは、天然ガスサイトに関連する温泉であり、いずれも新第三紀海成層であり、ヨウ素含有温泉のマシヨリティである。泉質はいわゆる“化石海水”的なものであり、主要成分は海の組成に近いが、ヨウ素は極めて濃縮している。第 2 のグループは、新第三紀海成層はあるが、古丹別層に胚胎される温泉であり、重力堆積物層あるいはターヒタイト層とされている。第 3 のグループは、内陸部の温泉水であり、中生代から古第三紀の海成層とされている。第 4 のグループは、古第三紀陸成層、第 5 のグループは、タフや火成岩などの火山活動に関連する層である。これらについて、ヨウ素同位体比 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$) および安定ヨウ素濃度を測定し、流体に関する混合曲線を書くと、その測定点も、単一の岩層と天水および海水の混合によって説明できた。しかし、その単一岩層の持つ同位体比は、第 1 のグループは $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}=1.5\times 10^{-13}$ 程度であるのに対し、第 2、第 3 のグループは、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}=4\times 10^{-14}$ 程度となり、異なる起源の天然ヨウ素の存在が示唆される。また、こうして推定されたオシナルの天然の同位体比から算出される年代は明らかに地質学的年代よりも古く出る。これに関しては、今後「ヨウ素年代は正しいとしてヨウ素動態をメカニカルに解釈する方向」、もしくは「同位体比の初成値を再検討する方向」、の両面から検討していきたい。

2011 年 3 月に起きた、福島第一原子力発電所事故により、ヨウ素 129 を含む放射性核種が環境中に漏出した。この影響により、河川水・地下水等への事故起源のヨウ素 129 が混入したことか考えられる。そこで、原発事故サイト周辺の河川水中のヨウ素 129 とヨウ素 127 を測定し、河川水および地下水か、とのようなソースタームのミキシングとなっているかを検討した。すなわち、事故起源ヨウ素 129 の河川水・地下水への混入経路を明らかにすることを目的とした。このことは、天然の温泉水の、現代の雨水の混入を評価するための貴重なデータとなるはずである。平成 23 年度までに生じた問題点として、ヨウ素同位体比から決定した

年代と地質学的に決定した年代が示されるという問題があったが、その解釈として、天然同位体比の平衡初成値を再検討する場合、これまで「純粋に天然試料と考えられていた地下水(温泉水)が人為起源のヨウ素¹²⁹の汚染を受けていたことになる。そこで、これまで「のデータを再解釈するため、雨水と河川水(地下水)の今後メカニズムの知見が必要になる。このような目的で、本研究では、平成24年度は事故起源放射性物質の影響の強い、福島県相馬郡飯館村、南相馬市、影響の比較的弱い、阿武隈地方の河川水や湖沼水試料の測定を行った。その結果、これらの環境水中のヨウ素¹²⁹およびヨウ素¹²⁷は、多くの試料が事故により極めて汚染された雨水と天然の地下水との間の混合により説明できることが分かった。また、一部の試料はこれらの混合ラインから離れた位置にあるが、これらは、河川水中への土壌の溶解で説明できることが分かった(図)。これらの知見を適用すると、これまで測定した温泉水を始めとする地下流体中のヨウ素¹²⁹およびヨウ素¹²⁷は、オリジナルの天然ソースと現代の雨水との混合で解釈できることが分かった。

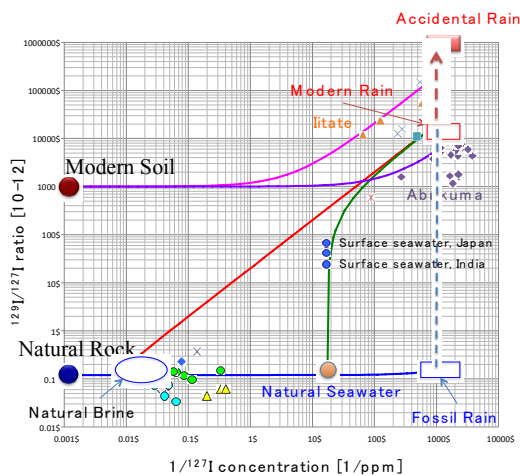


図. 天然水、河川水、雨水等、流体の混合の様子を示すミキシングライン

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計1件)

1) Y. Miyake, H. Matsuzaki (2012) Isotopic ratio of radionuclide (¹²⁹I/¹³¹I) released from Fukushima Daiichi NPP

accident, *Geochemical Journal*, 46, 327-333.

[学会発表] (計8件)

1) H. Matsuzaki, Study of Iodine isotope system, The 4th East Asia Accelerator Mass Spectrometry Symposium, 2011.12.16-17, Tokyo, Japan

2) M. Honda, H. Matsuzaki, T. Yamagata, Y. S. Tsuchiya, C. Nakano, Y. Matsushi, Y. Maejima, H. Nagai, Evaluation of ¹²⁹I mobility in the crop field soil contaminated by the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident, EGU 2013 General Assembly, 2013.4.4-13, Vienna, Austria

3) Y. Miyake, H. Matsuzaki, T. Fujiwara, T. Saito, T. Yamagata, M. Honda, Detailed analysis of isotopic ratio of radioactive iodine in surface soil around Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, EGU 2013 General Assembly, 2013.4.4-13, Vienna, Austria

4) H. Matsuzaki, H. Tokuyama, Y. Miyake, M. Honda, T. Yamagata, Y. Muramatsu, Measurement of Iodine-129 concentration in environmental water samples around Fukushima area - Role of river system in the global iodine cycle, EGU 2013 General Assembly, 2013.4.4-13, Vienna, Austria

5) H. Matsuzaki, Iodine isotope system in the global environment, H24 MALT Symposium, 2012.9.20-21, Tokyo, Japan

6) H. Matsuzaki, Iodine isotope system in environment: Natural system, anthropogenic system, and influence from NPP accident, The 19th International Mass Spectrometry Conference, 2012.9.15-20, Kyoto, Japan

7) M. Honda, H. Matsuzaki, T. Yamagata, Y. S. Tsuchiya, C. Nakano, Y. Matsushi, Y. Maejima, H. Nagai, Depth profile and migration of ¹²⁹I concentration in soil at Abukuma, Fukushima, The 19th International Mass Spectrometry Conference, 2012.9.15-20, Kyoto, Japan

8) H. Matsuzaki, Estimation of the order of ¹²⁹I/¹²⁷I ratio at soil surface before the Fukushima Daiichi NPP accident by radiocarbon measurement, The 21st International Radiocarbon Conference, 2012.7.9-12, Paris, France

[図書] (計0件)

〔産業財産権〕

○出願状況（計 0 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
出願年月日：
国内外の別：

○取得状況（計 件）

名称：
発明者：
権利者：
種類：
番号：
取得年月日：
国内外の別：

〔その他〕

ホームページ等

6. 研究組織

(1) 研究代表者

松崎 浩之 (MATSUZAKI HIROYUKI)

東京大学・大学院工学系研究科・准教授

研究者番号：60313194

(2) 研究分担者

()

研究者番号：

(3) 連携研究者

()

研究者番号：