

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 22 日現在

機関番号：10101

研究種目：若手研究(A)

研究期間：2012～2014

課題番号：24686098

研究課題名(和文) 海藻に刻印された人間活動に伴う海洋環境の変遷

研究課題名(英文) Change of coastal environment which accompanies with human activity obtained from radioactivity in seaweed

研究代表者

太田 朋子(OHTA, TOMOKO)

北海道大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：30373020

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 19,800,000円

研究成果の概要(和文)：人間活動に伴う海洋環境の変化を海藻中の環境放射能から推測した。海藻中のヨウ素同位体比は2011年3月以降の福島から原子力災害以前の100倍高い値が観測された。一方、2011年に採取された福島起源のヨウ素-129は原子力災害事故以前の海洋環境中の同位体比より高いものの、イギリスの再処理工場周辺の海水中のヨウ素-129の同位体比より2桁以上低かった。

研究成果の概要(英文)：The initial value for iodine derived from past marine sediments is said to be  $1.5 \times 10^{-12}$ . However, when seaweed samples of known collection date, which were stored in the Hokkaido University Museum, were dated, values lower than  $1.5 \times 10^{-12}$  were obtained from pre-World War Two samples. This suggests that the initial value that a sample should have may have been overestimated because of emission and environmental pollution with artificial iodine 129 released through nuclear tests since 1945, and other sources.

The  $^{129}\text{I} / ^{127}\text{I}$  ratios in algae samples collected in the pre-nuclear era were  $10^{-13}$  -  $10^{-12}$ , whereas the ratio measured for present algae sample was more than  $10^{-10}$ , thus showing that the  $^{129}\text{I} / ^{127}\text{I}$  ratio in post-nuclear-era algae was 100 - 1000 times as high as that of pre-nuclear-era algae. This drastic increase in the  $^{129}\text{I} / ^{127}\text{I}$  ratio in the algae was attributed to human activity.

研究分野：環境放射能

キーワード：環境放射能 海藻 AMS I-129 核実験 原子力災害

## 1. 研究開始当初の背景

人間活動の発展に伴い環境中に放出された人為起源の放射性核種は、世界各国の共有財産である大気・海洋に放出され続けている。2011年3月11日に東北沿岸にてM 9.0の大地震が発生し、その後の大津波により予備電源系統が破壊された福島第一原子炉では炉心の冷却が遅れ、多大なる放射性核種を環境中へと放出した。

放射性ヨウ素は、ヨウ素-131のほかにヨウ素-129がある。ヨウ素-129は、半減期が1,570万年の放射性核種であり、天然起源のものと同様に人為起源のものがある。天然起源のヨウ素-129は大気中のXeと宇宙線の核破砕反応および地殻中のウラン-238の自発核分裂反応により極微量に環境中で生成される。一方、人為起源のヨウ素-129は核実験および再処理工場の原子力施設の稼働および原子力災害により環境中へ放出される。今回の福島第一の事故でも、天然由来とは桁違いのヨウ素-129が放出されたと予測されるが、特に環境試料中のヨウ素-129は分離・精製が極めて困難であり、ヨウ素-129を測定できる機関は国内で2機関しかなく、核実験前後や原子力施設の稼働に伴うヨウ素-129の環境中の実測数は少ない。さらに福島第一由来のヨウ素-129は全く注目されておらず、調査もほとんど進んでいなかった。

## 2. 研究の目的

産業の発展、核実験、原子力施設の稼働、そして福島第一原子力災害に伴う海洋環境への負荷経時変化を定量化するために、過去100年から原子力災害後までの海藻試料および樹木に刻印された放射性核種を実測し、人間活動に伴う影響の変動情報を得る。

## 2. 研究の方法

採取時期が特定できる海藻類には、海洋環境の記録が正確に残されているため、ヨウ素-129とヨウ素-127の同位体比( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ )を測ることで、急激に $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比が上昇した核実験そして原子力災害前後の海洋同位体比を知ることができると考えられる。戦前および戦後そして原子力災害までの海藻に刻印された、存在形態の異なるヨウ素-129をトレーサーとして、人間活動に伴う海洋環境の変動を明らかにする。

## 4. 研究成果

過去100年の海藻試料に刻印されたヨウ素-129の実測、および福島原子力災害で放出されたヨウ素-129を指標として以下の研究成果を得た。

- 1) 海藻中のヨウ素同位体比は、2011年3月以降の福島の海藻からは原子力災害以前の100倍高い値が観測された。一方、2011年に採取された福島起源のヨウ素-129は

原子力災害事故以前の海洋環境中の同位体比より高いものの、イギリス・再処理工場周辺の海水中のヨウ素-129の同位体比より2桁以上低く、原子力災害より再処理工場稼働に伴う環境負荷のほうが明らかに優勢であった。

- 2) 福島第一原子力災害より放出され降水中にwashoutされた放射性ヨウ素の化学形は全て陰イオン交換態であることがわかった。また、従来まで地圏表面の不飽和土壌中のヨウ素-129は有機物に多く付着していると考えられていたが、地圏に降下したフレッシュなヨウ素-129の化学挙動の観測を行ったところ、地表面に降下1年程度の不飽和層のヨウ素-129は、Fe/Mn酸化物態に主に存在していることがわかった。これは、ヨウ素-129が地表降下直後はFe/Mn酸化物態に主に存在しているが、長い時間経過とともにヨウ素-129の形態が有機物態に移行する機構が示唆された。
- 3) 海洋環境への負荷経時変化の定量化に必須である海藻試料中のヨウ素同位体分析に用いるアトグラムレベルのヨウ素-129の生体標準試料の作製をめざし、AMS分析のクオリティコントロールに重要な標準試料を開発した。
- 4) 本研究では過去の海洋環境が刻印されている海藻を用いて過去の海洋環境中のヨウ素-129濃度を再現することを試みているが、海藻試料の多くは北海道で採取されたものを対象としている。北海道は北方寒冷地であり本州と気候が異なるため、ヨウ素-129の降下は、大気中のヨウ素-129が雪にwashoutされ、海洋圏・地圏にfalloutしたものが主となると考えられる。北海道の浅層地下水、河川水、雪のヨウ素同位体比( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ )のを加速器質量分析計で高感度分析を行い、近年の北海道周辺におけるヨウ素-129の降下量の基礎情報を得た。

また、人間活動の発展に伴った原子力災害による環境負荷を見積もるために、原子力災害後の福島の樹木中の放射性核種の動態調査を行い、以下の結果を得た。

- 1) 森林の放射性セシウムの環境動態解析を行い、樹木中の放射性セシウムの取り込み経路に関する情報を得た。フィールド調査と室内実験より、セシウムの取り込みルートを検証したところ、葉と樹皮の表面からセシウムが樹木内に転流することを実証した。

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 6 件)

- 1) 太田朋子, 土壤試料中のヨウ素-129 分析による福島事故時のヨウ素-131 降下量の復元, *ぶんせき* (in-press). (査読有)
- 2) Y. Mahara, T. Ohta, H. Ogawa, A. Kumata, Atmospheric direct uptake of radiocaesium into trees from the Fukushima nuclear accident and its fate, *Scientific Report*, 4, Article number 7121, doi:10.1038/srep07121 (2014). (査読有)
- 3) T. Ohta, Y. Mahara, H. Ogawa, A. Kumata, R. Fujinaga, A. Nishi, T. Igarashi, Elucidation of the uptake route of radionuclides in deciduous and coniferous trees using radio cesium and radio potassium in annual tree rings, *Proc. the Fifteenth Workshop on Environmental Radioactivity*, **15**, 228-232 (2014). (査読有)
- 4) T. Ohta, Y. Mahara, T. Kubota, T. Igarashi, Aging effect of <sup>137</sup>Cs obtained from <sup>137</sup>Cs in Kanto loam layer from the Fukushima nuclear power plant accident and in the Nishiyama loam layer from the Nagasaki A-bomb explosion, *Analytical Sciences*, **29**, 941-947(2013). (査読有)
- 5) T. Ohta, Y. Mahara, T. Kubota, T. Abe, H. Matsueda, T. Tokunaga, H. Matsuzaki, Separation and measurement of <sup>129</sup>I and <sup>127</sup>I in pre-nuclear-era marine algae with ultra low <sup>129</sup>I/<sup>127</sup>I isotopic ratios, *Nuclear Instrument and Method of Physics Research B*, **294**, 559-562 (2013). (査読有)
- 6) T. Ohta, Y. Mahara, T. Kubota, S. Fukutani, K. Fujiwara, K. Takamiya, N. Yoshinaga, Y. Mizuochi, T. Igarashi, Prediction of groundwater contamination with <sup>137</sup>Cs and <sup>131</sup>I from the Fukushima nuclear accident in the Kanto district, *Journal of Environmental Radioactivity*, **111**, 38-41 (2012). (査読有)

[学会発表](計 7 件)

- 1) 太田朋子、大野修一、馬原保典、五十嵐

敏文、ポットサイズの樹木中のセシウムの汚染経路の解明、第 16 回環境放射能研究会、2015 年 3 月 9-11 日、KEK・つくば市

- 2) 太田朋子、五十嵐敏文、藤吉亮子、渡辺直子、小崎完、森林廃棄物体中の放射性セシウムの環境動態分析、第 16 回環境放射能研究会、2015 年 3 月 9-11 日、KEK・つくば市
- 3) 馬原保典、太田朋子、小川秀樹、熊田敦、長崎・Nancy・福島の樹木への <sup>137</sup>Cs の取り込み経路について、第 16 回環境放射能研究会、2015 年 3 月 9-11 日、KEK・つくば市
- 4) 前川綱基、太田朋子、五十嵐敏文、環境放射能測定の品質管理を目的とした I-129 分析用標準植物サンプル作製、日本アイソトープ協会、2014 年 7 月 8 日 東京大学・文京区
- 5) 太田朋子、窪田卓見、馬原保典、五十嵐敏文、加速器質量分析計を用いた海藻中のヨウ素-129 の測定、日本海水学会、沖縄・ているる、2014 年 6 月 19 日 Bull. Soc. Sea Water Sci., Jpn., Vol.68, No.3 (2014)
- 6) 太田朋子、馬原保典、小川秀樹、熊田敦史、藤永良太、西愛歩、五十嵐敏文、樹木輪中の放射性セシウム分布分析による樹木中の放射性セシウム取り込み経路の解明、第 15 回「環境放射能」研究会、2014 年 3 月 8 日、KEK・つくば市
- 7) Tomoko Ohta, Yasunori Mahara, Satoshi Fukutani, Takumi Kubota, Yuji Shibahara, royuki Matsuzaki, Toshifumi Igarashi, Ryoko Fujiyoshi, Naoko Watanabe, Tamotsu Kozaki, Speciation of <sup>137</sup>Cs and <sup>129</sup>I in soil after the Fukushima NPP accident, International Symposium on Radiological Issues for Fukushima's Revitalized Future, 2015 年 5 月、福島・飯坂温泉

[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 0 件）

名称：  
発明者：  
権利者：  
種類：  
番号：  
出願年月日：  
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

太田朋子 (Tomoko Ohta)  
北海道大学・大学院工学研究院・助教  
研究者番号：30373020