

令和 5 年 6 月 19 日現在

機関番号：82110

研究種目：研究活動スタート支援

研究期間：2020～2022

課題番号：20K22337

研究課題名(和文) 地表環境中のヨウ素129の化学形態分析と新規測定法の確立

研究課題名(英文) Advanced speciation method for Iodine-129 in the terrestrial environment

研究代表者

本多 真紀 (Honda, Maki)

国立研究開発法人日本原子力研究開発機構・安全研究・防災支援部門 安全研究センター・博士研究員

研究者番号：80881432

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,200,000円

研究成果の概要(和文)：地下水中のI-129の移行挙動を支配する主要な物理化学的形態を特定する為に、紫外線照射(有機物を分解)と逐次濾過(溶存態I-129と懸濁態I-129に分離)を組み合わせた独自のスキームをつくり、この分析法を地下水試料に適用した。その結果、全I-129(懸濁態+溶存態)、懸濁態I-129(0.45 μmを超える)、溶存態I-129(0.45 μm未満で10 kDaを超える浮遊物とイオン)の評価に成功した。地表からの深さが250m地点の地下水では、懸濁態I-129量(原子数)よりも溶存態I-129量の方が少なかったことからI-129は粒子径の大きな浮遊物と共に地下深部を流れていることが分かった。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究では従来は困難であった環境試料で、I-129スペシエーションの分析に成功した。地下水試料だけでなく、本分析手法を河川水等の水試料に適用することで、水圏におけるI-129の移行挙動を支配する主要な物理化学的形態を特定できる可能性がある。従って本研究成果は、原子力施設から継続的に環境に放出されているI-129の複雑な生物地球化学的循環システムにおける移行挙動の解明に資するものである。

研究成果の概要(英文)：To identify the primary physicochemical forms controlling the migration behavior of I-129 in groundwater, an original scheme combining UV irradiation (decomposition of organic matter) and sequential filtration (separation into dissolved and suspended I-129) was developed, and this analytical method was applied to groundwater samples. As a result, total I-129 (suspended + dissolved), suspended I-129 (>0.45 μm), and dissolved I-129 (suspended matter below 0.45 μm and above 10 kDa, and ions) were successfully assessed. In groundwater at a depth of 250 m below the surface, the amount of dissolved I-129 (number of atoms) was lower than the amount of suspended I-129, indicating that I-129 was flowing deep underground with suspended matter of larger particle size.

研究分野：環境放射能

キーワード：環境放射能 I-129 スペシエーション

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。

1. 研究開始当初の背景

長半減期の放射性ヨウ素 (^{129}I 、半減期 1570 万年) の地表環境中の濃度は、1950 年代以降に世界各地で稼働を開始した原子力施設からの放出によって上昇している。その為、複雑な生物地球化学的循環システムで ^{129}I がどのように移行しているのか、そのメカニズムを解明するために、 ^{129}I の移行挙動を支配する主要な物理化学的形態 (イオン、溶存態、懸濁態) を特定する様々な研究が実施された。例えば米国の Savannah River Site では酸性溶液と共に ^{129}I が多量に放射性廃棄物から漏洩し、付近の地下水の ^{129}I 濃度が米国飲料水の規制値 0.037 Bq/L の 10 - 100 倍に達した。pH が低いなど特殊な環境条件であるが、 I^- は土壤に捕捉される一方で IO_3^- は大部分が土壤を通過し、有機態 I (土壤中の有機物や地下水中の浮遊物に収着している I) の存在量が土壤や地下水中には多いことが明らかになっている [1, 2]。有機態 I は更に、水生生物に取り込まれて生物に移行・濃縮することが分かっている [3]。ヨウ素の安定同位体 (^{127}I) は ^{129}I よりも存在量が多いため分析し易い。しかし、 ^{127}I は地球誕生時から存在していて定常状態に達している一方で、核活動で付加された ^{129}I はより安定な化学形態へ移行している過渡的な過程にあるため、 ^{129}I と ^{127}I とでは支配的な物理化学的形態が異なる可能性がある。従って、国内で地表環境中の ^{129}I の移行挙動に関する研究を今後更に発展させるためには、地表環境における ^{129}I の物理化学的形態のデータを取得し、地表環境条件の違いによる存在形態の特徴を明らかにする必要がある。国内の表層水中の ^{129}I 濃度は $\mu\text{Bq/L}$ 程度と極めて低く一般的な環境条件下であり、海外のデータ・分析手法を適応できないため、極微量の ^{129}I を物理化学的形態ごとに分析可能な新たな分析手法が必要である。水圏での I の物理化学的形態はイオンと様々な粒子径の浮遊物 (Seston) に収着している I が考えられるので、これをもとに本研究では図 1 のように浮遊物のサイズごとに分画した。

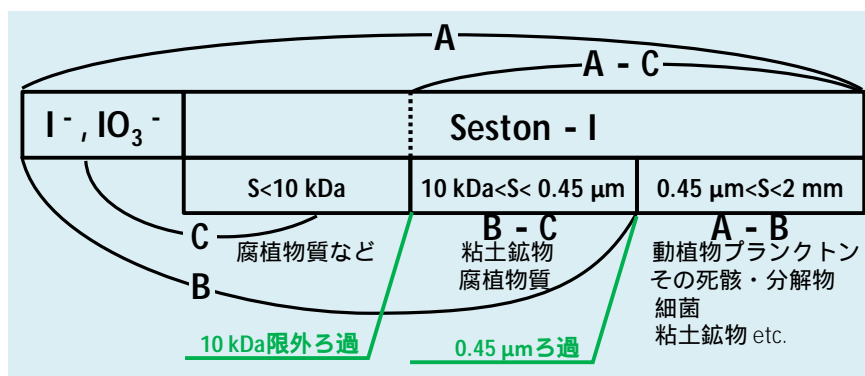


図 1 水圏でのヨウ素の物理化学的形態 ([4]-[7]を参考に分類)

2. 研究の目的

地下水中の ^{129}I の移行挙動を支配する主要な物理化学的形態を特定する為に、本研究では溶存態 ^{129}I と懸濁態 ^{129}I を含む地下水中の ^{129}I を対象として、紫外線照射 (有機物を分解) と逐次濾過 (溶存態 ^{129}I と懸濁態 ^{129}I に分離) を組み合わせた独自のスキームを確立する。また、地下水試料中の ^{129}I の主要な物理化学的形態を評価する。

3. 研究の方法

(1) 紫外線照射による地下水試料中の有機物分解 (UV/O₃分解)

地下水試料に含まれる有機物を分解し、全 ^{129}I を求めるために、地下水試料 500 mL をガラ

ス容器に移し、紫外線照射装置 (ASM1101N、110W 合成石英低圧水銀ランプ 1 灯、あすみ技研) で紫外線を照射した。照射時間は、超純水に市販試薬 (ヨウ化カリウム、ヨウ素酸カリウム、イオヘキソール、フタル酸水素カリウム) を加えた試料での紫外線照射試験の結果から決定した。紫外線照射は低圧水銀ランプの出力が 40W と 110W で試験した。

(2) 地下水試料の化学処理と加速器質量分析 (AMS)

地下水試料は地表からの深さが 250 m の地点で採取し、試料採取現場でメンブレンフィルター (孔径 0.45 μm 、47 mm、セルロースアセテート) でろ過し、ガラス瓶に封入した (地下水試料)。その後、地下水試料を実験室に輸送し、直ちに限外ろ過を実施した (分画分子量 10 kDa、76 mm、ポリサルホン)。また、全 ^{129}I を求める為にろ過を実施しない地下水試料も採取した。0.45 μm と 10 kDa でろ過した地下水試料は紫外線照射装置で有機物を分解した。その後、ヨウ素を精製する為に四塩化炭素で溶媒抽出をして、硝酸銀でヨウ化銀沈殿を作成した (AMS 用ターゲット)。地下水試料の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比は AMS (筑波大学の 6MV タンデム加速器) で、 ^{127}I 濃度は ICP-MS で決定し、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 原子数比と ^{127}I 濃度 [ppm] より、 ^{129}I 量 [atoms] を求めた。

全 ^{129}I 、懸濁態 ^{129}I 、溶存態 ^{129}I 、イオン+10 kDa 未満の溶存態 ^{129}I の求め方は以下の通りである。

全 ^{129}I : 無ろ過の地下水試料を紫外線照射し、化学処理した (図 1 の A)

懸濁態 ^{129}I : 無ろ過の地下水試料の全 ^{129}I から、0.45 μm ろ過後の地下水試料中 ^{129}I を引いた (図 1 の A-B)

溶存態 ^{129}I : 0.45 μm ろ過後の地下水試料中 ^{129}I から、10 kDa 限外ろ過後の地下水試料中 ^{129}I を引いた (図 1 の B-C)

イオン+10 kDa 未満の溶存態 ^{129}I : 10 kDa 限外ろ過後の地下水試料を紫外線照射し、化学処理した (図 1 の C)

4 . 研究成果

(1) 紫外線照射による地下水試料中の有機物分解 (UV/ O_3 分解)

超純水に市販試薬を加えた試料 100-500 mL に紫外線を照射した結果、低圧水銀ランプの出力が 40W の場合では約 2 時間で有機物が分解される一方で、110W では約 1 時間で有機物が分解されることが分かった。従って地下水試料では、低圧水銀ランプの出力 110W で 1 時間紫外線を照射することで、有機物分解を行った。

(2) 地下水試料に含まれる ^{129}I の物理化学的形態と量

逐次ろ過をした地下水試料の分析結果から、250m 地点の地下水に含まれる ^{129}I の量 [atoms] は、懸濁態 > 溶存態 > イオン+10 kDa 未満の溶存態となった。この結果から、250m 地点では ^{129}I は粒子径の大きな浮遊物と共に地下深部を流れていることが分かった。

本研究では従来は困難であった環境試料で、 ^{129}I スペシエーションの分析に成功した。地下水試料だけでなく、本分析手法を河川水等の水試料に適用することで、水圏における ^{129}I の移行挙動を支配する主要な物理化学的形態を特定できる可能性がある。従って本研究成果は、原子力施設から継続的に環境に放出されている ^{129}I の複雑な生物地球化学的循環システムにおける移行挙動の解明に資することが期待される。

<引用文献>

[1] SavannahRiverNational Laboratory, SRNL-STI-2012-00518 (2012)

[2] Q.Hu et al., J.Contam.Hydrol. (2005)

- [3] V.T.Bowen et al., InRadioactivity in themarine environment. (1971)
- [4] R. G. Wetzel, Limnology: Lake and River Ecosystems, 3rd edn. Academic press, San Diego, (2001)
- [5] T. Pagano, M. Bida, J.E. Kenny, Water, 6(10), 2862-2897 (2014)
- [6] P. Monroy, E. H.-Garcia, V. Rossi, C. Lopez, Nonlin. Processes Geophys., 24(2): 293-305 (2017)
- [7] Y. Ju-Nam, J.R. Lead, Sci. Total Environ., 400(1-3), 396-414 (2008)

5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計0件

〔学会発表〕 計0件

〔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
---------	---------