

氏名	本多 真紀
学位の種類	博士（理学）
学位記番号	博甲第 8464 号
学位授与年月日	平成 30年 3月 23日
学位授与の要件	学位規則第4条第1項該当
審査研究科	数理物質科学研究科
学位論文題目	

The Mobility of Anthropogenic Iodine-129 in the Terrestrial Environment of Fukushima

(福島県内の陸域環境における人為起源 I-129 の動態)

主査	筑波大学 教授	博士(理学)	末木 啓介
副査	筑波大学 教授	理学博士	大塩 寛紀
副査	筑波大学 教授	工学博士	中谷 清治
副査	東京大学 教授	博士(理学)	松崎 浩之

## 論文の要旨

審査対象論文は、長寿命放射性核種ヨウ素 129 の環境中での分布・移行について、2011 年 3 月に発生した福島第一原子力発電所から放出されたヨウ素 129 が降下した福島県内の陸域環境において調査した結果をまとめたものである。第 1 章は環境中に存在するヨウ素 129 についての今までに分かっている事項及び問題点を述べている。第 2 章は現在最も一般的な加速器質量分析 AMS によるヨウ素 129 の分析法について、著者が日ごろから問題としている試料調整の問題及びより高濃度の試料測定に関わる技術的な改良点が述べられている。第 3 章は福島県内の表層土壌について耕作地を対象に事故後採取した 30 cm コア試料についての分析結果とそこから得られた深度分布から下方への移行についての結果をまとめて述べている。第 4 章は溜池、河川における放射性ヨウ素がどのような化学形態を有しているのかを調査し周辺環境との関係を同位体比の観点からの考察を述べている。第 5 章は事故由来のヨウ素 129 の土壌から水圏までの環境動態を第 3、4章で得られた結果と考察が述べられている。

第 1 章において著者は人類による核活動によって放出されたヨウ素 129 の環境中での分布・移行の研究が必要であることを述べている。様々な核施設から放出されているヨウ素 129 は常に蓄積し続けていく傾向であり環境動態予測が必要であるとした。そこで放出起源が明白な福島第一原子力発電所事故によって放出されたヨウ素 129 の土壌中での移行挙動および土壌から水圏への移行挙動を明らかにするために事故後福島県内で採取した様々な環境試料の化学形態分析を含めて行うことを目的に進めたことを述べている

第 2 章は、ヨウ素 129 の分析を進めるうえで、既存の方法では加速器質量分析法(AMS)では AgI の塩として試料調整を行うが、この方法では海水などの塩素を多く含む環境試料から得る際に収率が低くなる

ことが多い欠点があり、これに対し塩素とは難溶塩を形成しないパラジウムの塩  $\text{PdI}_2$  を用いる改良を行った。また現在国内で不足している ICP-MS での分析用の高濃度の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  同位体比を有する標準試料の作成とその値の決定を AMS で行ったことが述べられている。

第 3 章では福島第一原子力発電所から 30km 圏内の 11 地点で円柱状の土壌試料を採取して分画してヨウ素 129 の分析を行い、その深度分布からヨウ素 129 の重量期待深度  $\alpha$  [ $\text{g cm}^{-2}$ ] と見かけの拡散係数  $D$  [ $\text{g}^2 \text{cm}^{-4} \text{d}^{-1}$ ] を求めている。これらの値について同時に降下し移行したセシウム 137 との比較を行っている。事故由来のヨウ素 129 の下方への移動速度を求めるため、ある畑において約 3 か月ごとに土壌コアを採取し、深度分布の経時変化を追った。ヨウ素 129 はセシウムに比べて移行速度が速く、その速度は  $0.81 \text{ g cm}^{-2} \text{ yr}^{-1}$  と報告している。他の 10 地点についてはそれぞれの重量期待深度  $\alpha$  をヨウ素 129 とセシウム 137 に対して求めたところ、チェルノブイリ事故で報告されているようにヨウ素 129 のほうが大きな値を示しているが、福島では逆にセシウム 137 が速い場合もあることを明らかにした。この要因に土壌に含まれるヨウ素と親和性の高い有機物 (TOC) の存在があり、ヨウ素 129 の重量期待深度と TOC との間に負の相関があることを見出したと報告している。見かけの拡散係数  $D$  からの議論により事故発生から時間がたつにつれて拡散係数が減少していることを見出し、ヨウ素 129 が有機物や粘土鉱物などの土壌構成成分に徐々に吸着していくことによって、下方への拡散が阻害されていることを報告している。

第 4 章では土壌構成成分とともに降雨によって流出するヨウ素 129 は何らかの化学形態をとって陸水に移行し、海洋に流入する。事故由来のヨウ素 129 の土壌から陸水までの挙動を支配している要因を明らかにするために、閉鎖系である溜池とその周辺土壌、開放系である河川とその周辺土壌を対象に、主な化学形態別に分離・分析した。土壌試料は逐次抽出法により水溶性画分、酸化物画分、有機態画分、残渣画分に分離した。一方で採水した水試料については全ヨウ素画分と  $0.45 \mu\text{m}$ 、10kDa、活性炭で連続にろ過することで、全粒子状ヨウ素を  $0.45 \mu\text{m}$  以上、 $0.45 \mu\text{m}$  未満から 10kDa 以上、10kDa 以下に分離した。河川、溜池およびプールの各地点での水試料、周辺土壌および堆積物のヨウ素 129 の化学形態別の存在割合と  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  の値を比較検討している。河川においては、河川的全粒子分画と土壌の有機態分画にヨウ素 129 が約 80% 含まれているが、全粒子分画の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  は有機態分画と比較すると約 2 桁程度低い。一方で周辺土壌と比較すると河川堆積物の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  は河川に近いことを報告している。このことから、平常時の河川の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  は堆積物の影響を受けていることを明らかにしている。溜池においては、溜池的全粒子分画と土壌の有機態分画にヨウ素 129 が約 80% 含まれており、両者の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  が同じ値を示すことから、溜池中の粒子状ヨウ素の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  は土壌由来の有機態が支配していることを明らかにしている。溜池のイオン性画分と周辺土壌の水溶性画分の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  はほぼ同じ値を示すことを明らかにしている。横軸に  $1/^{127}\text{I}$  を縦軸に  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  をとった散布図より、原発周辺で採取した事故直後の土壌と事故直後の雨水の  $^{129}\text{I}$ 、 $^{127}\text{I}$  が混合曲線を示し、溜池中の全粒子、全ヨウ素画分がこの混合曲線上にあることから、事故直後の雨水と土壌の  $^{129}\text{I}$ 、 $^{127}\text{I}$  が混合して溜池中の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  を決定していることを明らかにしている。降雨時の土壌から流出してきた水分中の水溶性ヨウ素が溜池のイオン性ヨウ素の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  を支配していることを明らかにした。プールにおいては、土壌や植物などからの物質流入がないので、画分ごとの  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  に大きな違いはない。このことから、溜池の各画分の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  の違いは周囲の環境からのヨウ素の流入によって生じていることを明らかにしている。

第 5 章の総括では、事故由来のヨウ素 129 の土壌から水圏までの環境動態を明らかにするために、ヨウ

素 129 の濃度分布と動態支配する化学形態別分析を行うことを報告している。多地点の土壌の深度分布の分析結果から、事故由来のヨウ素 129 の下方への移動速度を支配している一因は土壌有機物であることを明らかにしている。溜池の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  は土壌有機物が支配的であるが、土壌と事故直後の雨水からの  $^{129}\text{I}$ 、 $^{127}\text{I}$  の混合によって決まっていることを明らかにしている。溜池と周辺土壌中のヨウ素 129 は約 80% が有機態であり、大部分のヨウ素 129 は有機物を含む粒子によって運ばれていることを明らかにしている。従って、事故由来のヨウ素 129 は腐食物質などの有機態によって環境中を移動し、その動態が支配されていることが明らかになったと述べている。

## 審 査 の 要 旨

### 〔批評〕

審査対象論文は、長寿命放射性核種ヨウ素 129 の環境中での分布・移行について、2011 年 3 月に発生した福島第一原子力発電所から放出されたヨウ素 129 が降下した福島県内の陸域環境において調査した結果をまとめたもので、得られた結果は大変重要な内容を含んでいるものと判断する。事故由来のヨウ素 129 の土壌から水圏までの環境動態を明らかにするために、ヨウ素 129 の濃度分布、同位体比と動態支配する化学形態別分析を行い、多地点の土壌の深度分布の分析結果から、事故由来のヨウ素 129 の下方への移動速度を支配している一因は土壌有機物であることを明らかにしている。この研究はすでに国際的な学会誌にも掲載されて評価を得ている。土壌から陸水への移行に関する研究部分では、溜池の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  は土壌有機物が支配的であるが、土壌と事故直後の雨水からの  $^{129}\text{I}$ 、 $^{127}\text{I}$  の混合によって決まっていることを明らかにしている。溜池と周辺土壌中のヨウ素 129 は約 80% が有機態であり、大部分のヨウ素 129 は有機物を含む粒子によって運ばれていることを  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  をもとに明らかにしている。 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  を用いた起源解析は新しい知見であると判断し評価できる。本研究で、事故由来のヨウ素 129 は腐食物質などの有機態によって環境中を移動し、その動態が支配されていることを明らかにしたことは大変重要な成果であると評価できる。

### 〔最終試験結果〕

平成 30 年 2 月 15 日、数理物質科学研究科学学位論文審査委員会において審査委員の全員出席のもと、著者に論文について説明を求め、関連事項につき質疑応答を行った。その結果、審査委員全員によって、合格と判定された。

### 〔結論〕

上記の論文審査ならびに最終試験の結果に基づき、著者は博士(理学)の学位を受けるに十分な資格を有するものと認める。