

# 六ヶ所地域で採取した植物試料及び海水試料の炭素 14 濃度測定

村中 健\*・山下 惇\*\*・西塚 貴司\*\*

## <sup>14</sup>C Measurements of Plant and Seawater Samples Collected at Rokkasho Area

Takeshi MURANAKA\*, Jun YAMASHITA\*\* and Takashi NISHIZUKA\*

### Abstract

Carbon dioxide contaminated by <sup>14</sup>C is released to the atmosphere with the active test of the nuclear fuel reprocessing plant at Rokkasho. The purpose of this study is to investigate <sup>14</sup>C concentration of plants and seawater near the facility. Low background liquid scintillation counter is used to measure <sup>14</sup>C concentration of plant samples and the dissolved inorganic <sup>14</sup>C in seawater was analyzed by AMS established by Atomic Energy Agency at Mutsu city. <sup>14</sup>C concentration of mugworts collected at the lakeside of Obuchi in Rokkasho on July in 2008 showed 0.251 Bq/gC which is about 0.01 Bq/gC higher than other mugwort samples collected at the same time near the lakeside of Takahoko in Rokkasho and Shirahama beach in Hachinohe city. Seawater samples were collected from four sites along the Pacific coast in Aomori prefecture including Rokkasho area. The pMC values of 100.7 to 103.6 were obtained for these samples with the statistical error of 0.42 for 1 $\sigma$ .

**Key words:** <sup>14</sup>C concentration, plant, seawater, Rokkasho area

### 1. はじめに

青森県六ヶ所村に原子燃料再処理施設が建設され、アクティブ試験が行われ、大気中に炭素 14 を含む炭酸ガスが放出されている。そのため、事業者、青森県は施設周辺で環境モニタリングを実施し、(財)環境科学技術研究所や国の研究機関他では炭素 14 の拡散モデリングや農作物への移行に関する研究を行っている。

我々はこれまでに、再処理施設が稼働していない 1988～1990 年に六ヶ所地域における農作物等の炭素 14 濃度測定を行い<sup>1)</sup>、青森県内の遺跡で発掘された炭化物や埋没林の年代測定<sup>2),3)</sup>及び自動車排ガスとの関連で、植物試料の生育環境による炭素 14 濃度の違いを調査した<sup>4)</sup>。又、採取試料の前処理方法の改良も行ってきた<sup>5)</sup>。そのような経験を生かして、今回、アクティブ試験以後の六ヶ所地区に生育している植物試料中の炭素 14 濃度測定を始めている。

再処理施設から炭酸ガスとして放出された炭素 14 は光合成によって植物に取り込まれ、その後、動物や人に利用された後、微生物によって大気に戻され、又、一部は無機及び有機懸濁物として河川水や海水に混入する。そこで、青森県太平洋沿岸海水中の炭素 14 濃度を日本原子力研究開発機構青森研究開発センターむつ事務所に設置されている、加速器質量分析装置(以下、AMS と略す)

によって測定調査することを計画し、課題が採択されて測定を始めている。

ここでは現在進めているこれらの測定に関して、試料の前処理方法、測定方法、及び予備的な結果と考察について述べる。

### 2. 測 定

#### 2.1 液シン測定

##### 2.1.1 試料採取

よもぎを調査対象とした。よもぎは色々な場所に生育しているので生育場所による炭素 14 濃度の比較を行う上で好都合である。採取は六ヶ所地区で 2 か所(尾駮沼湖岸、鷹架沼湖岸)及び比較のために八戸市白浜海岸で 2008 年 7 月に採取した。

##### 2.1.2 前処理

採取試料は炭化後、反応管内で直接 Li 金属と反応させて Li カーバイドを生成し、その後、アセチレンを経てベンゼンを合成する方法を採った<sup>5)</sup>。

##### 2.1.3 液シン測定

生成したベンゼンにシンチレータ(オプティフロー-O, パッカーッド)を混合し、20 mL バイアルを作成し、低バックグラウンド液体シンチレーション計数装置(LB-V, アロカ)で 50 分 10 リピート、4 サイクル、合計 1 試料につき 2,000 分間測定した。この装置は文部科学省の私立大学等研究設備整備費等補助金の採択を得て、平成 19 年度に設置された。標準試料は NIST 蔞酸 SRM4990C を用いた。

平成 21 年 1 月 8 日受理

\* 大学院工学研究科機械・生物化学工学専攻/生物環境化学工学科・教授・異分野融合科学研究所併任

\*\* 生物環境化学工学科 4 年生

2.1.4 濃度算出

炭素 14 濃度及び統計誤差 1σ に相当する測定誤差はそれぞれ (1), (2) 式から算出した<sup>1)</sup>。

$$C = C_s \frac{(\sum N_i/E_{AV} - \sum N_{Bi}/E_{BAV})/W}{(\sum N_{Si}/E_{SAV} - \sum N_{Bi}/E_{BAV})/W_s} \quad \dots (1)$$

$$\delta C = C \sqrt{\frac{\sum N_i/E_{AV}^2 + \sum N_{BAV}/E_{BAV}^2 + \frac{\sum N_{Si}/E_{SAV}^2 + \sum N_{Bi}/E_{BAV}^2}{(\sum N_{Si}/E_{SAV} - \sum N_{Bi}/E_{BAV})^2}}{\dots} \quad \dots (2)$$

ここで、(1), (2) 式中の記号は下記の通りである。

- C : 測定試料の炭素 14 濃度 (Bq/gC)
- δC : 計数値の統計誤差 1σ に相当する測定誤差 (Bq/gC)
- C<sub>s</sub> : 標準試料 (NIST 蔞酸 SRM4990C) の炭素 14 濃度  
2008 年の濃度は 0.3048 (Bq/gC) とした<sup>6)</sup>。
- N<sub>Si</sub> : 標準試料の i 回目の 50 分間の計数値
- E<sub>SAV</sub> : 標準試料の平均計数効率
- N<sub>i</sub> : 測定試料の i 回目の 50 分間の計数値
- E<sub>AV</sub> : 測定試料の平均計数効率
- N<sub>Bi</sub> : バックグラウンド試料の i 回目の 50 分間の計数値
- E<sub>BAV</sub> : バックグラウンド試料の平均計数効率
- W<sub>s</sub> : 標準試料の炭素重量 (g)
- W : 測定試料の炭素重量 (g)

2.2 AMS による測定

2.2.1 試料採取

六ヶ所村では尾駮沼の国道 338 号線近く、及び泊海岸の 2 か所、この他に比較のために八戸市白浜海岸及び三沢漁港で 2008 年 4 月及び 7 月に表層海水を採取した。

2.2.2 前処理

大学に採取した海水を持ち帰った後、採取試料中の生物活動を止めるために、海水に塩化第二水銀飽和水溶液を海水 1 L に対して 200 μL の割合で添加した。そして、むつ事務所に搬送し、採取海水中の無機炭素から AMS 測定のためのグラフィットターゲットを作成してもらい、測定に供した。AMS 法は液シン法と比較して測定に必要な炭素重量が約千分の一で済むため、必要な海水は 1 試料当たり 0.5 L である。

2.2.3 AMS 測定

日本原子力研究開発機構青森研究開発センターむつ事務所に設置されている AMS はオランダ High Voltage Engineering Europe から導入されたタンデトロン AMS で、炭素 14 及びヨウ素 129 同位体測定用に設計され、2006 年度からは原子力研究開発機構の共用施設となり、2007 年には第 1 回の AMS 利用報告会も開催されている<sup>7)</sup>。

2.2.4 測定結果の表わし方

炭素 14 は海水に色々な経路を通して取り込まれ、その過程で同位体分別があるので、δ<sup>13</sup>C を測定してその効果を補正して pMC (パーセントモダン炭素) として濃度を表示する場合が多い。pMC は (3) 式で表わされる<sup>8)</sup>。

$$pMC = \frac{A_{SN}}{A_{abs}} \times 100 \quad \dots (3)$$

$$A_{SN} = A_s \left( 1 - \frac{2(25 + \delta^{13}C)}{1000} \right) \quad \dots (4)$$

$$A_{abs} = A_{ON} \exp(\lambda(y - 1950)) \quad \dots (5)$$

ここで、(3), (4), (5) 式中の記号は下記の通りである。

- pMC : 標準試料の炭素 14 濃度に対する測定試料の炭素 14 濃度の割合 (%)
- A<sub>SN</sub> : 測定試料の同位体分別を補正した炭素 14 濃度
- A<sub>s</sub> : 測定試料の炭素 14 測定濃度
- A<sub>abs</sub> : 新しい蔞酸標準試料の測定時の炭素 14 濃度
- A<sub>ON</sub> : 新しい蔞酸標準試料の 1950 年基準の炭素 14 濃度
- y : 測定時の西暦年
- δ<sup>13</sup>C : 測定試料の炭素安定同位体比

3. 測定結果と考察

3.1 液シン測定結果

表 1 に採取したよもぎの炭素 14 濃度測定結果を示す。表 1 に示した結果は 50 分×20 回、合計 1,000 分の測定結果から濃度を算出した。

その結果、六ヶ所村でも鷹架沼湖岸で採取したよもぎの炭素 14 濃度は八戸市白浜海岸で採取したよもぎの炭素 14 濃度と誤差 1σ の範囲内で一致したが、尾駮沼湖岸で採取したよもぎの炭素 14 濃度は誤差 1σ 以上の 0.01 (Bq/gC) 程度高い値を示し、再処理施設からの影響が考えられる。

表 1 六ヶ所地域他で採取したよもぎの炭素 14 濃度

採取場所	炭素 14 濃度 (Bq/gC)	誤差 1σ
白浜海岸 (八戸市)	0.238	±0.0057
鷹架沼湖岸 (六ヶ所村)	0.236	±0.0051
尾駮沼湖岸 (六ヶ所村)	0.251	±0.0056

しかし、環境中の炭素 14 濃度は年々減少傾向にあり<sup>9)</sup>、1988~1990 年に六ヶ所地域で採取した牧草の炭素 14 濃度は 0.262 (Bq/gC) であったのに対し<sup>1)</sup>、今回得られた尾駮沼湖岸で採取したよもぎの炭素 14 濃度は、それよりも約 0.01 (Bq/gC) 低い値となっている。

表 2 青森県太平洋沿岸海水中の無機炭素 14 濃度

採取年月 採取場所	2008.4	2008.7
	pMC 値 (誤差)	pMC 値 (誤差)
白浜海岸 (八戸市)	100.72 ±0.41	102.78 ±0.42
三沢漁港 (三沢市)	102.68 ±0.42	101.47 ±0.42
尾駮沼 (六ヶ所村)	103.14 ±0.42	103.16 ±0.42
泊海岸 (六ヶ所村)	103.01 ±0.42	103.63 ±0.42

### 3.2 AMS 測定結果

表 2 に青森県太平洋沿岸海水中の無機炭素濃度に関する結果を示す。採取場所及び採取時期による変動を明らかにすることが目的であるが、調査は始まったばかりであり、現状では差異は見られない。今年度は 4 月、7 月の他に 10 月、1 月にも試料採取を行い測定する計画であり、又、2009 年度にも測定を継続する予定なので今後の推移に注目したい。

なお、アクティブ試験以前の尾駮沼及びその周辺のいくつかの地点において環境水の pMC が詳細に調査されているが<sup>10)</sup>、今回の結果はそれらのデータと整合性のある値と考えられる。

### 4. ま と め

六ヶ所村で再処理施設のアクティブ試験が開始されたのに伴い、大気環境中に炭素 14 が放出され始め、地域環境変動を注視する必要性が生じている。そのため、六ヶ所地区に生育している植物試料中の炭素 14 濃度及び沿岸

海水の無機炭素 14 濃度に着目し、調査を行っており、次の結果を得た。

- 1) 六ヶ所地区のうち、鷹架沼湖岸のよもぎの炭素 14 濃度は  $0.236 \pm 0.005$  (Bq/gC) であり、八戸市白浜海岸のよもぎの炭素 14 濃度  $0.238 \pm 0.006$  (Bq/gC) と統計誤差  $1\sigma$  の範囲で一致した。しかし、尾駮沼湖岸で採取したよもぎの炭素 14 濃度は  $0.251 \pm 0.0056$  (Bq/gC) であり、前 2 試料と比較して 0.01 (Bq/gC) 程度大きかった。
- 2) 青森県太平洋沿岸海域の海水中の無機炭素 14 濃度として 100.7~103.6 pMC の値を得た。

### 文 献

- 1) 村中 健, 本田和也: RADIOISOTOPES, Vol. 45, pp. 246-248 (1996)
- 2) T. Muranaka, K. Honda: ABSTRACTS of TODAY INTERNATIONAL SYMPOSIUM COSMO-CHRONOLOGY and ISOTOPE GEOSCIENCE, pp. 173-176 (1996)
- 3) 村中 健, 本田和也: 八戸工業大学紀要, 第 20 巻, pp. 241-253 (2001)
- 4) 伊達元成, 村中 健: 八戸工業大学異分野融合科学研究所紀要, 第 1 巻, pp. 97-102 (2003)
- 5) 村中 健, 本田和也: RADIOISOTOPES, Vol. 47, pp. 212-215 (1998)
- 6) 文部科学省: 放射性炭素分析法, (財)日本分析センター, p. 75 (1993)
- 7) 天野 光, 甲 昭二, 木下尚喜: むつタンデトロン AMS 利用の現状, 第 1 回 JAEA タンデトロン AMS 利用報告会論文集, pp. 9-12 (2008)
- 8) M. Stuiver, H.A. Polach: Radiocarbon, Vol. 19, pp. 355-363 (1977)
- 9) 府馬正一, 井上義和, 宮本霧子, 武田 洋, 岩倉哲男, 新井清彦, 樫田義彦, 一政祐輔: RADIOISOTOPES, Vol. 51, pp. 381-391 (2002)
- 10) S. Ueda, K. Kondo, J. Inaba: Radiocarbon, Vol. 49, pp. 161-171 (2007)