技術論文

環境試料中の ^{127}I および ^{129}I の中性子放射化分析法武石 稔^{*1}, 並木 篤^{*1}, 石田順一郎^{*1}, 岩井 誠^{*1}

(1986 年 9 月 10 日受理)

(1986 年 10 月 23 日再受理)

Neutron Activation Analysis of ^{127}I and ^{129}I in Environmental SamplesMinoru TAKEISHI,^{*1} Atsushi NAMIKI,^{*1} Junichiro ISHIDA^{*1} and Makoto IWAI^{*1}

The analytical method of ^{127}I and ^{129}I in environmental samples has been studied and the background levels of these nuclides in soils, seaweeds and milk were measured.

The analytical method consists of the combustion technique and neutron activation analysis (N.A.A.).

The iodine was separated from samples by ignition at about $1,000^\circ\text{C}$ in a quartz combustion apparatus with an oxygen and a nitrogen stream, and was absorbed by small amounts of active charcoal. The iodine was then purified through the carbontetrachloride extraction method and the PdI_2 decomposition method. Irradiation was conducted by JRR-4 ($n_{\text{th}}: 8 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) for 40 min. After irradiation, the iodine was purified by the solvent extraction method same as pre-irradiation extraction. Each activity of ^{126}I and ^{130}I , which was produced by $^{127}\text{I}(n, 2n)^{126}\text{I}$ and $^{129}\text{I}(n, \gamma)^{130}\text{I}$ reaction respectively, was measured by γ -spectrometry using a Ge-detector.

The lower detection limits of ^{129}I by this method were $4 \times 10^{-7} \text{ Bq/g}$ for dry soil, $7 \times 10^{-8} \text{ Bq/g}$ for fresh seaweeds and $7 \times 10^{-6} \text{ Bq/l}$ for fresh milk, respectively. The relative standard deviation of ^{129}I measurements in soil and milk were less than 10%.

KEY WORDS : ^{127}I , ^{129}I , soil, milk, seaweeds, combustion technique, neutron activation analysis

I 緒 言

^{129}I は 1,600 万年の半減期を有する放射性核種であり、天然には上層大気における高エネルギー宇宙線とキセノンとの相互作用などにより生成するほか、人工的には大気圏内核実験、原子力発電などにより生成する。 ^{129}I は半減期がきわめて長いので、今後長期的観点から環境中における ^{129}I の挙動を調査していく必要がある^{1,2)}。しかし現在の環境試料中の ^{129}I 濃度はきわめて低く、通常の放射化学的分析法では分析が困難である²⁾。

そこで筆者らは、ヨウ素の揮発性を利用し、試料を燃焼することにより試料からヨウ素を分離した後、中性子放射化を行う分析法を検討してきた^{3,4)}。今回、土壌、海藻、原乳について、 ^{129}I および ^{127}I の同時分析法を確立したので、その検討結果も含め分析方法について報告する（なお、本報告において単にヨウ素と記した場合は、ヨウ素元素全体を指すこととする）。

II 分 析 法

1. 試料の前処理

土壌、海藻は、採取後、低温乾燥法にて、また原乳はイオン交換樹脂によるヨウ素吸着法にて前処理を行った。

^{*}1 動力炉・核燃料開発事業団東海事業所安全管理部；茨城県那珂郡東海村村松 4-33 (〒319-11)

Health and Safety Division, Tokai-Works, Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation; Tokai-mura, Ibaraki-ken, Japan.

1.1 土 壤

地表から 5 cm 深さまでの土壌を, 7.5 cm 縦×7.5 cm 横×5 cm 深さの金型で, 同一地点につき 4~5 点採取, 混合した。次に約 70°C で 2~4 日間乾燥した後 2 mm 目のふるいを通して, 小石, 夾雑物を除いた。その後供試量として 100~150 g を分取し, 回収率トレーサーとして $^{125}\text{I}^-$ を約 500 Bq 添加し分析試料とした。

1.2 海 藻

海藻は採取後, その日のうちに水洗, 乾燥等の前処理を行ったが, 保存しなければならない場合は, 冷蔵保存とし 2~3 日以内に前処理を行った。水洗は, 海藻を洗浄しやすい大きさに分割した後, 表面に付着した砂等を水道からの流水を用いて約 30 秒~1 分間, 手で拭い取るように洗い落した。次にザルあるいは脱水機を用いて水分を除いた。脱水機にて水分を除く場合は, 通水性の厚手の布袋に水洗した海藻を入れ, 海藻中の体液が漏出しないように, 脱水時間を最大 3 分間程度とし, 水分を除いた。その後, 根の部分切除し, 70°C 以下で 2~4 日間熱風乾燥し, ミキサーにて粉末状に粉碎および混合した。供試量として乾燥重量で 30~50 g を分取し, 土壌同様, $^{125}\text{I}^-$ を添加し分析試料とした。

1.3 原 乳

採取後ただちに, 原乳 5 l に 5 w/v% 亜硫酸ナトリウム溶液 5~10 ml および回収率トレーサーとして $^{125}\text{I}^-$ を加え, 約 1 時間攪拌した。その後, あらかじめ酸, アルカリにてコンディショニングした Dowex 1×8 Cl⁻ 型 100~200 メッシュ陰イオン交換樹脂スラリを 20 ml 加え, 約 40 分間攪拌した。イオン交換樹脂を分離後, 再度原乳にイオン交換樹脂スラリ 20 ml を加え同様の操作

を繰り返し, 原乳中のヨウ素をイオン交換樹脂に吸着させた。イオン交換樹脂は, 数回水で洗浄した後, 約 50°C で約 2 時間乾燥し樹脂表面に湿気が残る状態まで水分を除いた。

2. 試料の燃焼 (燃焼法)⁵⁾

ヨウ素を試料から揮発分離するため, Fig.1 に示す燃焼装置を用いた。燃焼装置は石英ガラス製の燃焼管外管および, 試料を充填する内管 (以下外管, 内管と呼ぶ), 加熱用の管状電気炉 A, B, 活性炭保温用の電気炉 C および電気炉 A を移動させるための駆動装置等より構成されている。

Fig.1 に示すように, 内管に, 両端を石英ウールで止めて, ゆるく試料を詰め, この内管を外管内に挿入した。土壌の場合は可燃成分が少ないため, 内管, 外管ともに酸素を 0.1~0.5 l/min で流しながら, 電気炉 A を 1,000°C に保ち, 試料の端から徐々に移動させ焙焼した。一方, 可燃成分の多い海藻, またはイオン交換樹脂の場合は, 内管に窒素を, 外管には酸素を流しながら, 電気炉 A にて試料を加熱した。加熱は, 試料から分解ガスが安定して発生するように, 電気炉 A の温度を 280°C から 1,000°C まで徐々に上げるとともに, 電気炉 A を試料の端から徐々に移動させ加熱した。発生した分解ガスは, あらかじめ 1,000°C に加熱してある電気炉 B 部にて, 外管の酸素と混合し燃焼させた。試料の燃焼により揮発したヨウ素は 150°C に保温した活性炭に吸着捕集させた。その後, さらにこの活性炭を燃焼し, ヨウ素を約 0.5 g の新たな活性炭に再吸着させた。

3. 中性子照射前のヨウ素の精製

燃焼法により試料から分離したヨウ素は妨害元素を除

Fig. 1 Diagram of sample combustion apparatus.

- ① Movable furnace A for sample heating, ② Movable furnace B for combustion of decomposition gas, ③ Movable furnace C for warming active charcoal column, ④ Quartz tube, ⑤ Active charcoal column, ⑥ Sample.

Fig. 2 Diagram of purification apparatus of sample for irradiation.

① Electric furnace, ② Quartz tube for ampoule.

去するために、中性子照射前に I_2 形の単体の状態まで精製した。活性炭に捕集したヨウ素を超音波洗浄器を用いて、5M の水酸化ナトリウム溶液で浸出した後、硝酸を加え pH を 2~3 に調整した。次に、2.5M 亜硝酸ナトリウム溶液 10 ml および四塩化炭素を加え、分液ロートを用いて振とうし、ヨウ素を有機層に抽出した。有機層は別の分液ロートに分離し、亜硫酸水を加え振とうし、ヨウ素を水層に逆抽出した。煮沸により亜硫酸ガスを除いた後、塩化パラジウム溶液を加えヨウ化パラジウムの沈殿を作成した。この沈殿をガラスフィルタ上で濾過し、Fig. 2 に示す石英ガラス製の熱分解ラインに、ガラスフィルタごと詰めた。ヘリウム気流中 500°C で熱分解し、発生した I_2 蒸気を液体窒素冷却部にいったん捕集し、ここから Fig. 2 の②部分にヨウ素を加熱移動させ、減圧封入して中性子照射用のアンプルとした。

4. 中性子照射

中性子照射は、既知量の ^{127}I および、 ^{129}I を試料と同一形状の石英ガラス製のアンプルに封入した比較標準試料を作成し、試料とともに、日本原子力研究所 JRR-4 号炉、T-パイプ ($n_{\text{th}}: 8 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$, $n_{\text{f}}: 1.2 \times 10^{13} \text{ n/cm}^2 \cdot \text{sec}$) にて 40 分間行った。

5. 中性子照射後のヨウ素の精製および測定

中性子照射後は、 ^{82}Br などの妨害元素を除くために、再度四塩化炭素抽出法によるヨウ素の精製を行った。

中性子照射後のアンプル開封は、安定ヨウ素および臭素をおのおの 20 mg、ならびに亜硫酸水 10 ml を加えた溶液中で粉碎開封した。その後はⅡの 3 で示した溶媒抽出、逆抽出操作を行い、最終的に硝酸銀溶液を加えヨウ化銀の沈殿を生成させた。ヨウ化銀沈殿を $0.45 \mu\text{m}$ のメンブランフィルタ上に濾過、マウントし、 ^{127}I (n , $2n$) ^{126}I , ^{129}I (n , γ) ^{130}I 反応で生じた ^{126}I , ^{130}I を相対効率 30% の Ge 半導体検出器で測定した。 ^{127}I , ^{129}I への換算は、同時に中性子照射を行った比較標準試料か

ら生成した ^{126}I , ^{130}I の生成比を用い、比例計算により行った。また全体および各工程の回収率は分析当初に添加した ^{125}I を、低エネルギー用ピュア Ge 半導体検出器を用いて測定し求めた。

Ⅲ 分析法の検討結果および考察

1. 前処理法

ヨウ素は、 I_2 , I^- , IO_3^- あるいは有機ヨウ素等種々の化学形を有し、 I_2 など化学形によっては揮発性を示す元素である。そのため、土壌、海藻試料の乾燥、海藻試料の水洗、原乳の保存処理などの前処理操作において、ヨウ素が損失する可能性がある。そこで前処理法について検討を行った。検討方法としては、実際の土壌、海藻、原乳を用いて前処理操作を行い、安定ヨウ素の損失を測定する方法で行った。安定ヨウ素濃度測定法としては、中性子放射化分析法より簡便で迅速な分析法であるヨウ素イオン選択性電極を用いた化学分析法を用いた。化学分析法⁶⁾についての詳細は省略するが、土壌は、炭酸ナトリウム、炭酸カリウム、酸化マグネシウムを 2:2:1 の割合で混合したフラックスとともに電気炉にて約 670 °C で約 2 時間焙焼後、蒸留水を加え、サンドパス上で加熱浸出した。濾過後、濾液に過マンガン酸カリウム溶液を加え濾液中のヨウ素を酸化後、硫酸 (1+1) を加え炭酸ガスを除いた。クエン酸二アンモニウム溶液、亜硫酸水を加えた後、pH を 5.0 に、またイオン強度、液量を一定にし、ヨウ素イオン選択性電極にて安定ヨウ素濃度を測定した (以下、炭酸塩焙焼法と呼ぶ)。

また海藻は、重クロム酸カリウム、硫酸の混液で有機物の分解および海藻中のヨウ素を IO_3^- まで酸化した後、亜リン酸、硝酸ナトリウムを加え還元通気蒸留を行い、ヨウ素を 10% の水酸化ナトリウム溶液に吸収分離した。その後、土壌の場合と同様、ヨウ素イオン選択性電極にて安定ヨウ素濃度を測定した (以下、蒸留法と呼ぶ)。土壌、海藻分析時において、両法の回収率はいずれも定量的であり、約 100% であった。化学分析法による安定ヨウ素濃度の測定は、同一試料について 2 回行い、測定値に著しい違いがないことを確認し、その平均値を定量値とした。

1.1 土 壌

土壌の前処理法は、科技庁放射能測定法「環境試料採取法」⁷⁾によると、105°C で乾燥後、2 mm 目のふるいで選別する方法が示されている。一方、野菜、海藻類等の放射性ヨウ素分析法においては、乾燥温度として、60 ~ 70°C を推奨している。そこで土壌についても、ヨウ素の損失を可能な限り低く押える観点から、野菜、海藻

等の乾燥温度に準じて、70°C で乾燥することとした。この温度で、実際の畑土を約1カ月間乾燥し、安定ヨウ素の損失を調査したが、有意な損失は確認されなかった。

むしろ、試料の混合状態および、分取法により、安定ヨウ素濃度が変化した。土壌試料はポリエチレン製の容器に密栓して保管したが、運搬等の振動により、土壌粒子の比較的大きな成分が表面に集まる現象が見られた。その状態で表面から約1gを分取し、炭酸塩焙焼法にて安定ヨウ素濃度を測定したところ、測定値が分取前に試料を混合した場合に比べ、低めに出る傾向が見られた。茨城県内で採取した畑土（おもにさつまいも畑）4件を、乾燥後9 TYLER メッシュ（JIS 2 mm 目）および、60 TYLER メッシュ（JIS 0.25 mm 目）のふるいで選別し、安定ヨウ素濃度を測定した。その結果、4件とも60 メッシュ以下の土壌中の安定ヨウ素濃度が、9 メッシュ以下の土壌より1.2~1.4 倍高い値を示した。今回の分析法では、土壌は2 mm 目のふるいで選別したが、分析に供するときは十分に混合してから分取するように注意した。

1.2 海 藻

海藻は安定ヨウ素含有量が、他の試料に比べきわめて高い試料である。また真水に浸した場合、安定ヨウ素が溶出するおそれがある。70°C で低温乾燥したワカメおよびカジメの葉2~3 cm を室温水および約100°C の水100 ml に10分間浸出後、浸出液中の安定ヨウ素濃度を蒸留法にて測定し、溶出率を求めた。室温水では、ワカメはヨウ素溶出率が、平均約12%（4件）、カジメは約70%（1件）であった。また約100°C の水では、ワカメ平均約34%（4件）、カジメ約82%（1件）のヨウ素溶出率を示した。このように、海藻は種類によって異なるものの高いヨウ素溶出率を示した。このため本法では、海藻は採取後、表面に付着している砂等を、流水（水道水）にて、手早く洗い流すだけとし、長時間浸すことは避けるようにした。また水洗後の乾燥温度は、土壌の前処理法で示した科技庁法⁷⁾に準じて70°C 以下とした。

1.3 原乳中ヨウ素のイオン交換樹脂吸着率

原乳中のヨウ素をイオン交換樹脂に吸着させる方法は、¹³¹I の分析法として科技庁放射性ヨウ素分析法⁸⁾に採用されている。しかし科技庁放射性ヨウ素分析法においては、牛乳を採取後、腐敗防止剤としてホルマリンを、また吸着率の向上等を目的に多量の担体ヨウ素を加えている。本分析法においては¹²⁷I についても分析対象であるため、安定ヨウ素(¹²⁷I)を担体として加えることはできない。また無担体状態でホルマリンを添加すると牛乳の保存性はよくなるものの、ヨウ素のイオン交換樹脂吸

Fig. 3 Influence of time on recovery of iodine by different preservation.

○ : Preservation at about 7°C, ● : Preservation at room temperature (about 20°C), □ : Preservation with formaldehyde at room temperature (formalin : 2 ml/100 ml milk).

着率が50%以下まで低下する現象が見られた。そこで無担体およびホルマリン無添加時の牛乳中のヨウ素のイオン交換樹脂吸着方法について検討した。茨城県内で採取した原乳を用いて、ヨウ素のイオン交換樹脂吸着率と、加えるイオン交換樹脂スラリー量の関係を求めた。ヨウ素のイオン交換樹脂吸着率は、原乳採取直後に添加した¹²⁵I⁻を低エネルギー用ビュア Ge 半導体検出器を用いて測定し、求めた。その結果、原乳2.0 l に対し、イオン交換樹脂スラリーを8 ml 以上加えることにより、約90%の吸着率が得られた。今回は、1回の分析に原乳5.0 l を用いたため、イオン交換樹脂スラリーを20 ml 加えた。また吸着操作はパッチ法にて2回行うこととした。

次に、ヨウ素のイオン交換樹脂吸着率と保存期間、保存方法について検討した。結果をFig. 3に示す。Fig. 3より原乳中ヨウ素のイオン交換樹脂吸着率は、保存期間が長くなるに従い低下した。保存方法としては冷蔵保存（約7°C）が、室温保存（約20°C）に比較してすぐれていた。また茨城県内2地点（A地点、B地点）で採取した原乳について、ヨウ素吸着率の再現性を確認するために、繰り返し吸着試験を行った。その結果をTable 1に示す。吸着率は、A、B間に若干の差が見られたが、高い値が得られた。また吸着率の変動は小さく、良好な方法であることが確認された。

原乳中ヨウ素の化学形としては、I⁻、IO₃⁻等の水溶性ヨウ素と有機物等と結合している非水溶性のヨウ素が考えられる。本法においては、おもに水溶性ヨウ素の化学形をI⁻へ調整する目的で亜硫酸ナトリウム溶液を、また回収率補正用に¹²⁵IをI⁻形で加えた。原乳中の有機

Table 1 Recovery of iodine in milk by ion exchange resin.

Run	Recovery (%)	
	Sample A	Sample B
1	86	80
2	95	78
3	86	81
4	89	81
5	—	73
Mean	89	79
S.D.	4.2	3.4
C.V.	4.7%	4.3%

物結合ヨウ素が水溶性ヨウ素に比較して多量に存在した場合、イオン交換樹脂吸着法での原乳中ヨウ素の回収率は低下する。また $^{125}\text{I}^-$ トレーサーによる回収率の測定にも影響を与えると推察される。そこで有機物結合形のヨウ素についても分析可能な化学分析法を用いて、原乳中の安定ヨウ素の分析を行い、本法での分析結果と比較した。原乳中の安定ヨウ素の化学分析法としては、原乳をアルカリとともに焙焼した後、最終的にヨウ素イオン選択性電極にて安定ヨウ素濃度を測定する方法を用いた。原乳 200 ml に水酸化ナトリウムおよび回収率トレーサーとして $^{125}\text{I}^-$ を加え、70°C で熱風乾燥、次いで電気炉にて 250°C から 650°C まで徐々に温度を上げながら約 7 時間焙焼した。次に蒸留水を加えサンドバス上で約 40 分間加熱浸出した。濾過後、II の 3 に示した四塩化炭素抽出法にてヨウ素を精製し、pH を 5.0 に、イオン強度、液量を一定にし、ヨウ素イオン選択性電極にて安定ヨウ素濃度を測定した。回収率は、四塩化炭素抽出精製後の試料溶液から一定量を分取し、安定ヨウ素を 20 mg 加えた後、ヨウ化銀の沈殿を作成し、沈殿中の ^{125}I を低エネルギー用ビュア Ge 半導体検出器にて測定し求めた（以下、アルカリ焙焼法と呼ぶ）。

茨城県内で採取した原乳 1 件について、アルカリ焙焼法 4 回、本法 5 回の繰り返し分析を行った。その結果、安定ヨウ素濃度測定値は、アルカリ焙焼法が、 $264 \pm 16 \mu\text{g/l}$ 、本法が $222 \pm 29 \mu\text{g/l}$ であった。分析件数が 1 件と少ないため結論は出せないが、両者の測定値の差は標準偏差に対してわずかであり、有機物結合ヨウ素等の非水溶性ヨウ素の存在量は、水溶性ヨウ素の存在量に比較して少ないか、もしくは非水溶性ヨウ素の存在が、本法の測定値に与える影響は少ないと推察された。

Table 2 Recovery of iodine in soil relating to chemical forms after combustion and chemical separation.

Chemical form*	Recovery (%)	
	AgI gravimetric method	^{125}I -tracer method
I_2	86	91
I^-	89	88
IO_3^-	87	89

* 10 mg I of each species was added.

2. 燃焼法におけるヨウ素化学形の影響

土壌等環境試料中に存在するヨウ素は、 I_2 、 I^- 、 IO_3^- および有機ヨウ素等種々の化学形を有すると推察されている。そこで化学形の異なるヨウ素が本分析法、とくに燃焼法に及ぼす影響について検討した。また回収率トレーサーとして、試料に添加する ^{125}I を I^- 形で加えることの妥当性についても、合わせて検討した。安定ヨウ素含有量が低く、かつ安定ヨウ素濃度をあらかじめ炭酸塩焙焼法⁶⁾にて定量した土壌に、 I_2 、 I^- 、 IO_3^- を、四塩化炭素溶液、ヨウ化ナトリウム溶液、ヨウ素酸溶液として、おのおのヨウ素 10 mg 添加した。また同時に ^{125}I を I^- 形で添加し、II. 2 に示した方法で土壌を焙焼した。その後、II. 3 に示した四塩化炭素抽出法にてヨウ素を精製し、ヨウ素を水層に逆抽出した後、ヨウ化銀の沈殿とした。乾燥後ヨウ化銀の重量および、 ^{125}I の放射能の両者を測定し、おのおの回収率を求めた。その結果を Table 2 に示す。同表の結果より、 I_2 、 I^- 、 IO_3^- 各化学形間に回収率の著しい違いは認められなかった。また重量法で求めた回収率と、 ^{125}I 放射能で求めた回収率との間にも、顕著な差はなかった。また $^{125}\text{I}^-$ と実際の土壌中ヨウ素が同一挙動をとるかどうかにについては、土壌中の安定ヨウ素濃度を、 $^{125}\text{I}^-$ を回収率トレーサーとして用いない炭酸塩焙焼法、蒸留法ならびに本法の三法で測定し、比較することにより検討した。その結果を Table 3 に示す。同表より、炭酸塩焙焼法、蒸留法と本法間の安定ヨウ素濃度測定値に顕著な違いは認められず、 $^{125}\text{I}^-$ トレーサーによる回収率の補正が良好であることが確認された。

3. 分析精度

本分析法について、茨城県内で採取した畑土および原乳を用いて、繰り返し分析を行った。その結果を Table 4, 5 に示す。 ^{129}I 濃度の分析値は、土壌、原乳ともに、変動係数(c.v.)10% 以内であり、環境試料中の微量元素分析法としては良好な再現性を有していた。 ^{127}I につい

Table 3 Comparison among three methods on measurements of stable iodine in soil.

Sample	N.A.A.	Concentration of ^{127}I ($\mu\text{g/g-dry}$)	
		Ion selective electrode (I.S.E.) Method*	
		Fusion by carbonate flux	Distillation after $\text{H}_2\text{SO}_4\text{-K}_2\text{Cr}_2\text{O}_7$ oxidation
1 Cultivated soil	25	25	23
2 Cultivated soil	41	44	43
3 Surface soil	23	18	17
4 Surface soil	16	13	14

* After decomposition or distillation, iodine was measured by ion selective electrode (I.S.E.).

Table 4 Measurements of ^{127}I and ^{129}I in soil.

Run	^{127}I ($\mu\text{g/g-dry}$)	^{129}I (Bq/g-dry)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ Atom ratio
1	29	2.0×10^{-5}	11×10^{-8}
2	30	1.8×10^{-5}	9.1×10^{-8}
3	35	2.0×10^{-5}	8.5×10^{-8}
4	29	1.9×10^{-5}	9.8×10^{-8}
5	26	1.8×10^{-5}	10×10^{-8}
Mean	30	1.9×10^{-5}	9.7×10^{-8}
S.D.	3.3	0.11×10^{-5}	0.95×10^{-8}
C.V.	11	5.8 (%)	9.8 (%)

Sample used was collected in Ibaraki-ken in 1982.

Table 5 Measurements of ^{127}I and ^{129}I in milk.

Run	^{127}I ($\mu\text{g/l-fresh}$)	^{129}I (Bq/l-fresh)	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ Atom ratio
1	224	2.0×10^{-4}	1.4×10^{-7}
2	239	2.1×10^{-4}	1.3×10^{-7}
3	259	2.1×10^{-4}	1.2×10^{-7}
4	198	2.0×10^{-4}	1.5×10^{-7}
5	190	1.8×10^{-4}	1.4×10^{-7}
Mean	222	2.0×10^{-4}	1.4×10^{-7}
S.D.	29	0.14×10^{-4}	0.11×10^{-7}
C.V.	13 (%)	7.0 (%)	8.4 (%)

Sample used was collected in Ibaraki-ken in 1985.

では, ^{129}I よりも若干再現性が低下する傾向が見られた。

検出限界は, 供試量, 回収率, 冷却時間, 測定器の効率等により変動したが, 今回測定した試料について, 測

定値の標準偏差の3倍を検出限界値とすると, ^{129}I は土壌約 4×10^{-7} Bq/g 乾, 海藻約 7×10^{-8} Bq/g 生, 原乳約 7×10^{-6} Bq/l 生であった。また ^{127}I は, 土壌約 $1 \mu\text{g/g}$ 乾, 海藻約 $0.3 \mu\text{g/g}$ 生, 牛乳約 $10 \mu\text{g/l}$ 生であった。

IV ま と め

(1) 本分析法は, 試料の性状にかかわらず前処理工程にて, 固形化可能であれば, 種々の環境試料に適用可能な汎用性の高い分析法である。

(2) 検出限界は, 分析に用いる試料の量を増加させることにより, 向上させることが可能である。最大供試量は燃焼装置の処理能力に依存し, 今回使用した燃焼装置の1回の処理能力は, 土壌約 150 g 乾, 海藻約 50 g 乾 (ワカメで約 500 g 生相当) である。

(3) 本分析法を用いて, 現在のバックグラウンドレベルの土壌, 海藻, 原乳中の ^{127}I , ^{129}I 濃度を測定することが可能であり, 良好な検出限界, 分析精度を有している。

(4) 中性子照射前のヨウ素の精製により, ^{82}Br 等の妨害元素, ^{235}U (n, f) ^{130}I 等の妨害反応の影響の低減化, また中性子照射時間が40分間と ^{129}I 分析法としては短いことから, ^{127}I (3n, γ) ^{130}I 等の競合反応の影響も低く押えることができる。

参 考 文 献

- 1) 福田整司; “最近の環境における放射性ヨウ素の諸問題”, 放医研環境セミナーシリーズ, p. 301 (1981), 技術寄与研究会, 東京。
- 2) NCRP; Iodine-129: Evaluation of releases from nuclear power generation, Report 75 (1983).
- 3) A. YAMATO and H. KATAGIRI; Determination of ^{129}I in seaweeds by neutron activation anal-

- ysis, *Radioisotopes*, **30**, 159 (1981).
- 4) 野村 保; “環境放射性物質に関する 最近の 分析測定法とその将来”, 放医研環境セミナーシリーズ, p.189 (1984), 実業公報社, 東京.
 - 5) F.P. BRAUER and H. TENNY; ^{129}I Analysis methodology, BNWL-SA-5287 (1975).
 - 6) 武石 稔, 宮永尚武, 下川雄嗣, 野村 保, 岩井 誠; 環境試料中の安定ヨウ素の測定, 保物学会第19回研究発表会要旨集, p.29 (1984).
 - 7) 科技厅; “環境試料採取法”, 放射能測定法シリーズ 16 (1983), 日本分析センター, 千葉.
 - 8) 科技厅; “放射性ヨウ素分析法”, 放射能測定法シリーズ 4 (1977), 日本分析センター, 千葉.