

## Appendix 4.1-2 再構築されたヨウ素 131 値の誤差について

再構築されたヨウ素 131 の値は、主として以下の要因からの誤差を持つ。

### ① ヨウ素 129 濃度の測定誤差

ヨウ素 129 濃度の測定値を出すまでには、土壌の均質化、秤量、化学処理（ヨウ素の抽出）、キャリアを始めとする薬品類の秤量、加速器質量分析、ICP-MS 測定等のプロセスが含まれる。これらの中で、加速器質量分析による同位体比測定の誤差が 2-4%（主にカウンティングの統計誤差）である。実際のヨウ素 129 濃度は、キャリアとして加えた安定ヨウ素量に乗じて算出するが、キャリアの秤量の誤差は無視できる。また、キャリア中に含まれる微量のヨウ素 129 量及び土壌中に生来含まれるヨウ素 127 の量は、ヨウ素 129 濃度算出の際には、補正項として厳密に計算しているが、その寄与は小さく、それらが持ち込む誤差は無視できる。ICP-MS による土壌中の安定ヨウ素（ヨウ素 127）濃度の測定誤差は、5%以下であるが、これは、土壌中のヨウ素同位体比（ヨウ素 129/ヨウ素 127）を求める際には考慮すべきであるが、ヨウ素 129 濃度そのものを算出する際には無視できる。

加速器質量分析の中で、測定同位体比を決める際、同位体比既知の標準試料の測定値を用いる。現在は、Purdue 大学が提供している Z94-0596 を用いているが、その公称値が、NIST-3230、3231 標準試料と比較測定すると、最大で 9%程度ずれている可能性があり、現在検討中である。したがって、加速器質量分析の部分でランダム誤差（統計誤差）が 2-4%程度、標準試料の公称値に対する系統誤差が最大で 9%含まれる可能性があり、合わせると、最大で 10%程度の誤差を含む可能性がある。

ヨウ素 129 の測定は、土壌試料 0.4 g 程度に対して行われるため、その部分の全体土壌に対する代表性が重要である。今回の処理法は、U-8 容器から土壌試料を一旦全部取り出し均一にし、その一部（3 割程度）を分取した上で、それをボールミルにて徹底的に均質化を行っており、代表性に問題はないと考えている。

化学処理については、土壌からのヨウ素の抽出（燃焼・加熱・溶媒トラップ）の部分の回収率が結果に影響を与えるが、これは、Muramatu (2008)によって、方法が確立されており、回収率は 95%以上が保証されている。その後は、安定ヨウ素のキャリアを加えた後の処理になるため、例えば溶媒抽出等でロスがあっても、試料中の同位体比は変化しないので、誤差は入ってこない。

以上から、ヨウ素 129 濃度の測定誤差については、最大で 10%程度と見積もることができる。

### ② ヨウ素 131/ヨウ素 129 比の推定値の誤差

ヨウ素 131/ヨウ素 129 比の推定値は、第 1 次分布状況等調査で得られているゲルマニウム半導体によるヨウ素 131 の測定値と今回の加速器質量分析によるヨウ素 129 の測定値を用いて算出した。先述したように、文部科学省の第 1 次分布状況等調査の（試料採取）時点（6 月 14 日）では、ヨウ素 131 の減衰により、ヨウ素 131 のデータとして意味のある試料数が少なく、得られたカウントも少ないため、統計誤差も大きくついている（最大で 20%程度）。またヨウ素 131 の測定は様々な研究機関のゲルマニウム半導体検出器を用いて平成 23 年 6 月後半から 7 月に行われており、研究機関同士は校正をしているものの、実際の土壌試料は、容器内の重点率・土壌組成・粒度・水分含有率等がまちまちであり、ヨウ素 129 が均質化後にわずかな試料量に対して分析されることから、その同位体比の推定には誤差が含まれることが考えられる。実際に

ヨウ素 131/ヨウ素 129 比の推定に供した 82 試料についてヨウ素 131/ヨウ素 129 放射能比(6/14 に補正)は、11400 ± 3900 で 35%程度のばらつきがある。今回はここで得られたヨウ素 131/ヨウ素 129 比の推定値の中心値を再構築に利用するが、そこには最大 35%の系統的なずれが入っている可能性がある。今後、さまざまなデータの蓄積、検討を経て、この誤差を小さくしていく努力が求められよう。しかし、一方で、これは再構築に置ける系統的なずれの問題であり、相対的な分布状況については、正しく再現される。

③ 分析値を分析対象メッシュの代表値とすることの不確定性

推定したヨウ素 131 レベルの、当該メッシュにおける代表性について考える。まず、メッシュ内は小領域であるとして、放射性物質降下量の空間分布は、どの核種でも同じと考える。すなわち、各メッシュ内の放射性核種の分布は、セシウム 137 の分布と等しいとする。そこで、各メッシュ内の代表値の推定をメッシュごとに採取されている 5 試料(場合によっては 5 試料無い場合もある)のセシウム 137 の値の分布から推定する。すなわち、5 つのデータ(標本)の平均を取る(この値を  $a$  とする)。標本平均を、母集団の平均の推定値とする場合、その誤差は、標本の標準偏差を標本数(この場合 5)の平方根で除することによって見積もることができる。ヨウ素 129 を分析した試料は、5 つの試料のうち、セシウム 137 分析値の中央のもの(上から 3 番目のもの、この値を  $r3$  とする)である。ヨウ素 129 分析値をヨウ素 131 へ変換する(これを  $x3$  とする)。当該メッシュの平均値の推定値としては、 $r3$  より  $a$  の方が適していると考え、得られた  $x3$  に  $a/r3$  を乗じて、そのメッシュのヨウ素 131 推定値とする。当該メッシュ内のヨウ素 131 の分布とセシウム 137 の分布も同じ、と仮定しているから、このヨウ素 131 推定値に対する誤差率は、セシウム 137 の 5 つのデータから求める誤差率に等しいと考える。セシウム 137 の誤差率は、メッシュによって 2%程度のものから、70%程度まで様々であるが、平均すると 18%程度である。したがって、分析対象試料選択に関する代表性の不確定性は 18%程度と見積もることができる。

以上、まとめると、再構築されたヨウ素 131 値の誤差は、ランダム誤差は 20%程度(加速器質量分析の統計誤差 max 5% + 代表性の不確定性 18%)である。一方で、系統的には、同位体比の推定に係る誤差が支配的であり、最大でおよそ 35%程度系統的にずれる可能性もある。