

4 土壤濃度マップの精緻化に向けた調査

4.1 ヨウ素 131 の土壤濃度マップの精緻化

村松 康行 (学習院大学)

松崎 浩之 (東京大学)

(1) 調査目的

福島第一原発事故により大量のヨウ素 131 (I-131) が放出された。放射性ヨウ素は人体に取り込まれると甲状腺に濃縮するため、住民の初期被ばくを評価する上でヨウ素 131 の詳細な沈着量を調べるのが重要である。しかし、ヨウ素 131 は半減期が 8 日と短いので事故後数ヶ月たつと減衰してしまい、環境中ではほとんど検出されない。そのため、沈着量に関する情報は不足している。第 1 次分布状況等調査が行われた平成 23 年 6 月期では、ヨウ素 131 について検出下限値以上の測定結果が得られた箇所は 2,200 箇所のうち 2 割未満であった。そのため、放射性ヨウ素の土壤濃度マップ[1] は放射性セシウムに比べデータ数が少ないのが現状である。

第 1 次分布状況等調査において放射性ヨウ素の分布は放射性セシウムと異なることが分かった。つまり、放射性ヨウ素と放射性セシウムの比が場所によって違うため、放射性セシウムの値から放射性ヨウ素を推定することは難しい。そこで、ヨウ素 131 と同時に放出されたと考えられる長半減期の放射性同位体であるヨウ素 129 (I-129; 半減期 1,570 万年) が指標になると考えられた。ヨウ素 129 は微量であるため分析は難しく、試料からヨウ素を化学分離した後、加速器質量分析法^{*26} (AMS) で測定する高度な手法を用いた。第 2 次分布状況等調査で土壤中のヨウ素 129 とヨウ素 131 濃度の関係を調べたところ、両者には良い相関が見られ、ヨウ素 129 を測定することにより減衰してしまったヨウ素 131 の濃度を推定できることが確認された[2]。

本調査研究においては、第 1 次分布状況等調査で採取された土壤試料の中から約 400 試料を選び、ヨウ素 129 の分析を行う。得られたヨウ素 129 の値から、その地点におけるヨウ素 131 の沈着量 (Bq/m²) を求め、ヨウ素 131 のマップの精緻化をはかる。

(2) 調査内容

試料は、第 1 次分布状況等調査で採取した土壤のうち、30 km 圏内を中心に、その他データが少ない地域の試料を選んだ。ヨウ素 129 を分析した試料数は 388 箇所、採取した合計 405 試料であった。学習院大学と東京大学における比較分析の為にそれぞれ 17 試料を分析したので、ヨウ素 129 を測定した数は合計で 405 試料である。

第 1 次分布状況等調査では、2 km メッシュに分けた各箇所において 5 地点 (5 試料) の土壤試料を採取しガンマ線放出核種 (ヨウ素 131 含む) の放射能濃度の測定を行っている。しかし、ヨウ素 129 の分析には時間がかかるため、1 箇所 1 試料 (1 メッシュあたり 1 試料) に限った。放射性セシウムの分析結果を参考にして、各箇所 5 地点で採取された土壤試料の放射能濃度の平均値に対して標準偏差が約 40% 以内に収まっている箇所を主として選び、その中で平均値に近い値を出している試料を分析対象にした。しかし、30 km 圏内の試料では同一箇所でもバラツキが大きいこともあり、

^{*26} 加速器質量分析法 (AMS: Accelerator Mass Spectrometry)

質量分析の原理とタンデム加速器の特徴を組み合わせ、試料に含まれる極微量の同位体を正確に数えて同位体比を測定する分析法。

標準偏差が 50%以上のサンプルも分析に供した。

ヨウ素の化学分離操作の概要は Muramatsu et al. (2008) [3] を基本とし、AMS の測定条件等は、Matsuzaki et al. (2007) [4] に従った。土壌試料の処理法及びヨウ素 129 と 127 の分析法の概要は以下のとおりである。

1) 土壌試料の前処理 (重量測定、混合、乾燥、粉碎、粉末化)

土壌試料を測定容器 (U-8 容器) から取り出し、ビニール袋中で良く混ぜ合わせ、均一にした。これより一部を取り、乾燥させ、メノウ製のボールミルにかけ粉碎し、分析用の粉末試料を作った。(学習院大学及び東京大学で実施)

2) ヨウ素の化学分離 (加熱分離、溶媒抽出による精製、ターゲット作成)

分析を行う場合、土壌試料よりヨウ素を分離し、溶液に溶かす必要がある。そこで、ヨウ素が揮発し易い性質を利用し、試料を石英管中で加熱することで試料からヨウ素を揮発分離させ、トラップ溶液に捕集する方法をとった。試料 (100~500 mg) を燃焼ボートに秤量し、それに溶融剤として五酸化バナジウムを混ぜた。試料をのせた燃焼ボートを石英管に入れ、水蒸気を含んだ酸素気流を流した。試料は電気管状炉 (1,000°C) の端にセットし、徐々に石英管を中心部に向け動かしながら、加熱を続けた。揮発してきたヨウ素は、有機アルカリである TMAH (tetramethyl ammonium hydroxide) 溶液 (0.6%) 入りのトラップで捕集した。

トラップ溶液の一部を ICP-MS 分析^{*27} 用に取り分けた後、安定ヨウ素 (ヨウ素 127) のキャリアを加え、溶媒抽出によりヨウ素を精製・分離した。なお、ヨウ素の化学分離法は、Muramatsu et al. (2008) [3] に従った。(学習院大学及び東京大学で実施)

3) ヨウ素 127 測定 (ICP-MS 分析)

トラップ溶液の一部を用い、学習院大学において ICP-MS (Agilent 7700) により、ヨウ素 127 (安定ヨウ素) を測定した。残りのトラップ溶液を用い溶媒抽出・逆抽出を行い、ヨウ素を分離・精製し、それに硝酸銀を加えて AgI を作成した。

4) I-129/I-127 比の測定 (AMS 分析)

この AgI をターゲットとし、東京大学の AMS (加速器質量分析器) により、I-129/I-127 比を測定した。詳しくは、Matsuzaki et al. (2007) [4] を参照。

5) データ解析 (分析のデータ整理、ヨウ素 131 の沈着量推定、マップへプロット)

分析データの解析を行い、得られたヨウ素 131 の沈着量を地図にプロットした。

(3) 結果と考察

1) ヨウ素 129 の分析とヨウ素 131 沈着量の推定

本調査において、388 箇所採取した土壌試料について上記の方法で分析を行い、ヨウ素 129 についてのデータが得られた。それに加え 17 試料については、学習院大学及び東京大学において比較分析を行った。つまり、ヨウ素 129 の測定は東京大学のタンデム加速器を用いているが、試料からヨウ素の分離・抽出の操作は、両大学において行った。そのため、分析精度を確認する必要があるとあり、同じ試料を両グループで分析し、比較した。その結果、両者の差はほぼ 5%以内に収まっていることが確認できた。

AMS 法で求まるのは「I-129/I-127 比」であるので、それに分析試料中の安定ヨウ素濃度 (土

*27 誘導結合プラズマ質量分析 (ICP-MS : Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry)

プラズマ (ICP) をイオン源として使用して発生したイオンを質量分析部 (MS) で検出し、周期表上のほとんどすべての元素を同時に測定可能な分析法。

壤試料に生来的に含まれているヨウ素 127 及びキャリア中のヨウ素 127 によるもの) を掛け合わせるにより、「ヨウ素 129 濃度(Bq/kg)」が求まる。次に、そのヨウ素 129 の濃度(Bq/kg) に U-8 容器 (直径 5.0 cm) に入っていた試料の重量を加味し、容器の断面積当たりのヨウ素 129 の量(Bq) を求めた。容器の断面積は試料を採取した地表面の面積と一致しているので、その値より地表面積 1 m² 当たりの沈着量(Bq/m²) を計算した。

ヨウ素 131 の沈着量(Bq/m²) を求めるには、ヨウ素 129 の沈着量(Bq/m²) の値に、第 2 次分布状況等調査で求めた I-131/I-129 比である「9,368」(平成 23 年 6 月 14 日の時点) [2] を掛け合わせた。これらの結果を Appendix 4.1-1 に示す。

また、各地点での平均的なヨウ素 131 の沈着量を求めるため、各箇所 5 試料のセシウム 137 分析値の平均値と、当該試料に対するセシウム 137 分析値との比(「各箇所 5 地点の沈着量の平均値」/「当該試料沈着量」) をファクターとして乗じた。それより各サンプリング箇所におけるヨウ素 131 の平均沈着量(Bq/m²) を試算した。但し、30 km 圏内では各箇所の試料数が 5 試料未満(場所によっては 1 試料のみ) の場合もあった。

ヨウ素 129 は核実験や再処理施設の稼働により少量ながら放出されており、既に環境中に存在している。その降下量を Toyama, Muramatsu 等(2012) [5] が行った東京におけるヨウ素 129 の降下物(1963 年~2005 年) の分析結果から試算すると、1950 年から 2010 年の期間に 13 mBq/m² 程度が地表に溜まったと推定される。その値から考えると今回測定した殆どの試料では 1 割を大きく下回っている量である。今後、福島第一原発からより離れた場所で採取した試料を測定する場合は、福島第一原発事故前のヨウ素 129 を推定して差し引く必要がある。また、事故時に放出されたテルル 129m(半減期; 33.6 日) の壊変により生成されるヨウ素 129 の影響の可能性についても考察した。その結果、多くても 1%程度であると推定された(テルル 129m に付いての詳細は、参考文献[2] の「Appendix 4.1 ヨウ素 129 の分析を通じた土壌中のヨウ素 131 の放射能濃度の推定に関する検討」を参照)。

2) ヨウ素マップ精緻化

第 1 次分布状況等調査でヨウ素 131 が検出されたのは、2,200 箇所のうち 421 箇所であった。そのうち 5 試料全部が検出されているのは 41 箇所のみである。また、1 点しか検出されていないものは 185 箇所である。これらの数字を見ても、ヨウ素 131 のデータ数が少ない事が分かる。平成 23 年 6 月中旬の時点で検出されたそれらの値をマップにしたものは文部科学省から報告されている[1]。参考までに福島第一原発から 80 km 圏内のヨウ素 131 土壌濃度マップを図 4.1-1 に示す。このマップからもヨウ素 131 のデータが不足していることが見て取れる。

今回、ヨウ素 129 の分析から計算して得られた約 388 箇所のヨウ素 131 の値から作成した土壌濃度マップを図 4.1-2 に示す。第 1 次分布状況等調査でデータが不足していた 30 km 圏を中心にヨウ素 131 の値を再構築できた。特に、福島第一原発から 20 km 圏内や北側と南西側では殆どデータがなかったが、今回、それらの地域においてもプロット数を増やすことができた。

図 4.1-3 に第 1 次分布状況等調査のマップに今回ヨウ素 129 の分析値から算出したヨウ素 131 の値を加えた結果を示す。地点数がかなり増えたため、分布の状況が分かりやすくなっている。今回値が加わったことで、ヨウ素 131 の沈着量の地域分布の特徴が鮮明になってきた。例えば、高い値(5,000 Bq/m² 以上) を示した地域は北西及び南側に延びている。また、福島第一原発の北側 20 km 圏内についてのデータは殆どなかったが、今回加えられた値から判断すると北側は低めの値であった(概ね 1,000 Bq/m² 以下)。

構築されたヨウ素 131 の値は、主として以下の 3 つの要因からの誤差を持つ。(詳細については Appendix4.1-2 を参照のこと) :

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が、ランダム誤差を支配するのは加速器質量分析による同位体比測定誤差であり、測定のカウンティングの統計により 2~4%である。また、加速器質量分析においては、同位体比既知の標準試料を用いて測定を決める。現在東京大学では、米国 Purdue 大学が提供している Z94-0596 という標準試料を用いているが、他の標準試料と比べ最大で 9%程度ずれている可能性がある。詳細は現在検討中であるが、測定のランダム誤差(統計誤差)と合わせると、最大で 10%程度の誤差を含む可能性がある。

② ヨウ素 131/ヨウ素 129 比 (I-131/I-129 比) の推定値の誤差

I-131/I-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。第 2 次分布状況等調査で実際に I-131/I-129 比の推定に供した 82 試料について、ヨウ素 131/ヨウ素 129 放射能濃度比(平成 23 年 6 月 14 日に補正)は、35%程度のばらつきがある。

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

各メッシュ内の放射性核種濃度の分布は、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される。すなわち、5 つのデータ(標本)の平均を取り、代表値とする(この値を a とする)。代表値推定の誤差は、5 つの標本の標準偏差を標本数(この場合 5)の平方根で除して見積もることができる。そのうち、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)をヨウ素 129 分析対象試料とし、得られた値をヨウ素 131 へ変換する(これを x3 とする)。それに 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 の分布は同じ、と仮定すれば、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。実際に、セシウム 137 の誤差率は、メッシュによって様々であるが、平均すると 18%程度である。

以上、まとめると、再構築されたヨウ素 131 値の誤差のうち、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 (I-131/I-129 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。

3) 検討事項及び今後の課題

(a) I-131/I-129比の精度向上

第2次分布状況等調査で求めた82試料の分析結果から、I-131/I-129比として「9, 368」[2] という値が得られた。その他、本調査においては、I-131既知の試料を69試料について分析し、それら合計151試料についてヨウ素131とヨウ素129をプロットしてI-131/I-129の傾きを求めた。その結果、傾きは「9, 334」($R^2 = 0.83$) という値であった。これらの値は殆ど同じであることから、ここでは、第2次分布状況等調査で求めた「9, 368」を用いた。しかし、バラツキは35%程あり、精度向上のため、I-131/I-129比については地域差等も含め今後もさらに検

討する必要がある。

(b) 深度分布

今回得られた放射性ヨウ素の沈着量を福島第一原発事故が発生した平成23年3月の時点で半減期補正をして戻す場合、6月の時点で土壤中にどの程度浸透しており、5 cmの深度で充分なのかを確認する必要がある。東京大学や学習院大学で独自に採取した試料で分析をした結果を見ると、平成23年4月時点では9割またはそれ以上が表層5 cm程度にあり、1年後でも8~9割が表層5 cm程度に留まっている。また、一般の土壌では、ヨウ素（ヨウ化物イオン、ヨウ素酸イオン）の分配係数（Kd）は大きく、吸着しやすいことが知られている[6]。それらを考えると、サンプリングが行われた平成23年6月時点では、9割程度は表層5 cmに留まっていたと推定される。但し、放射性セシウムに較べて放射性ヨウ素の方が土壌への浸透は早いので、砂地等ではより深くまで入っている可能性もある。深度分布に関しては今後データをとることが望まれる。

(c) コリジョンタイプICP-MSによるヨウ素129分析

ICP-MS法は安定ヨウ素（I-127）の分析に用いたが、ヨウ素129の分析にも濃度が高い試料について使用できるか検討した。一番の課題は、ICP-MS測定時にヨウ素129に妨害を与えるキセノン129（Xe-129）の除去法を検討することである。そこで、コリジョンタイプICP-MSを用い、キセノン129の除去条件等の最適化を検討した。その結果、キセノン129のピークを大幅に減少させ、ヨウ素129の濃度が高めの土壌試料（福島第一原発から20 km圏内）ではヨウ素129を分析できる目処が付きつつある。但し、AMSに較べて分析試料の量を数十倍多くする必要があり、前処理に時間が掛かる。試料の導入法等を検討し、効率良く測定することで、実際の福島の試料への適用が可能になると考える（検討結果はAppendix 4.1-3に示す）。

(4) まとめ

放射性ヨウ素は人体に取り込まれると甲状腺に濃縮するため、住民の初期被ばくを評価することが求められている。しかし、ヨウ素131は半減期が8日と短いため事故後数ヶ月たつと減衰してしまうため、実測データは少ない。そこで、不足したデータを補う目的で、長半減期のヨウ素129（半減期：1,570万年）をAMS法により測定し、ヨウ素131の沈着量の推定を行った。その結果、388試料についてヨウ素129を分析し、ヨウ素131の沈着量を求めた。それらの値をヨウ素131のマップに追加し、精緻化を行った。第1次分布状況等調査では分からなかったヨウ素131降下量の分布を得ることができた。今後、更にデータを増やし、より詳細な分布を調べることは意味があると考えられる。これらのデータは、拡散シミュレーションや移行モデルの検証及び被ばく線量の評価の基礎として役立つと考える。

参考文献：

- [1] 文部科学省，“文部科学省による放射線量等分布マップ（ヨウ素131の土壌濃度マップ）の作成について（平成23年9月21日）”，原子力規制委員会ホームページ，
<http://radioactivity.nsr.go.jp/ja/contents/6000/5047/view.html>

- [2] 日本原子力研究開発機構, “「福島第一原子力発電所事故に伴う放射性物質の第二次分布状況等に関する調査研究」”, 日本原子力研究開発機構ホームページ,
http://www.jaea.go.jp/fukushima/kankyoanzen/mapping_report/mappinglist.html
- [3] Y. Muramatsu, Y. Takada, H. Matsuzaki, S. Yoshida, “AMS analysis of ^{129}I in Japanese soil samples collected from background areas far from nuclear facilities”, *Quaternary Geochronology*, 3, 291-297 (2008)
- [4] H. Matsuzaki, Y. Muramatsu, K. Kato, M. Yasumoto and C. Nakano, “Development of ^{129}I -AMS system at MALT and measurements of ^{129}I concentrations in several Japanese soils”, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 259, 721-726 (2007)
- [5] C. Toyama, Y. Muramatsu, Y. Uchida, Y. Igarashi, M. Aoyama, H. Matsuzaki, Variations of ^{129}I in the atmospheric fallout of Tokyo, Japan: 1963-2003. *J. Environ. Radioact.*, 113, 116-122 (2012)
- [6] Y. Muramatsu, S. Uchida, P. Sriyotha, K. Sriyotha, “Some considerations on the sorption and desorption phenomena of iodide and iodate on soil”, *Water, Air and Soil Pollution*, 49, 125-138 (1990)

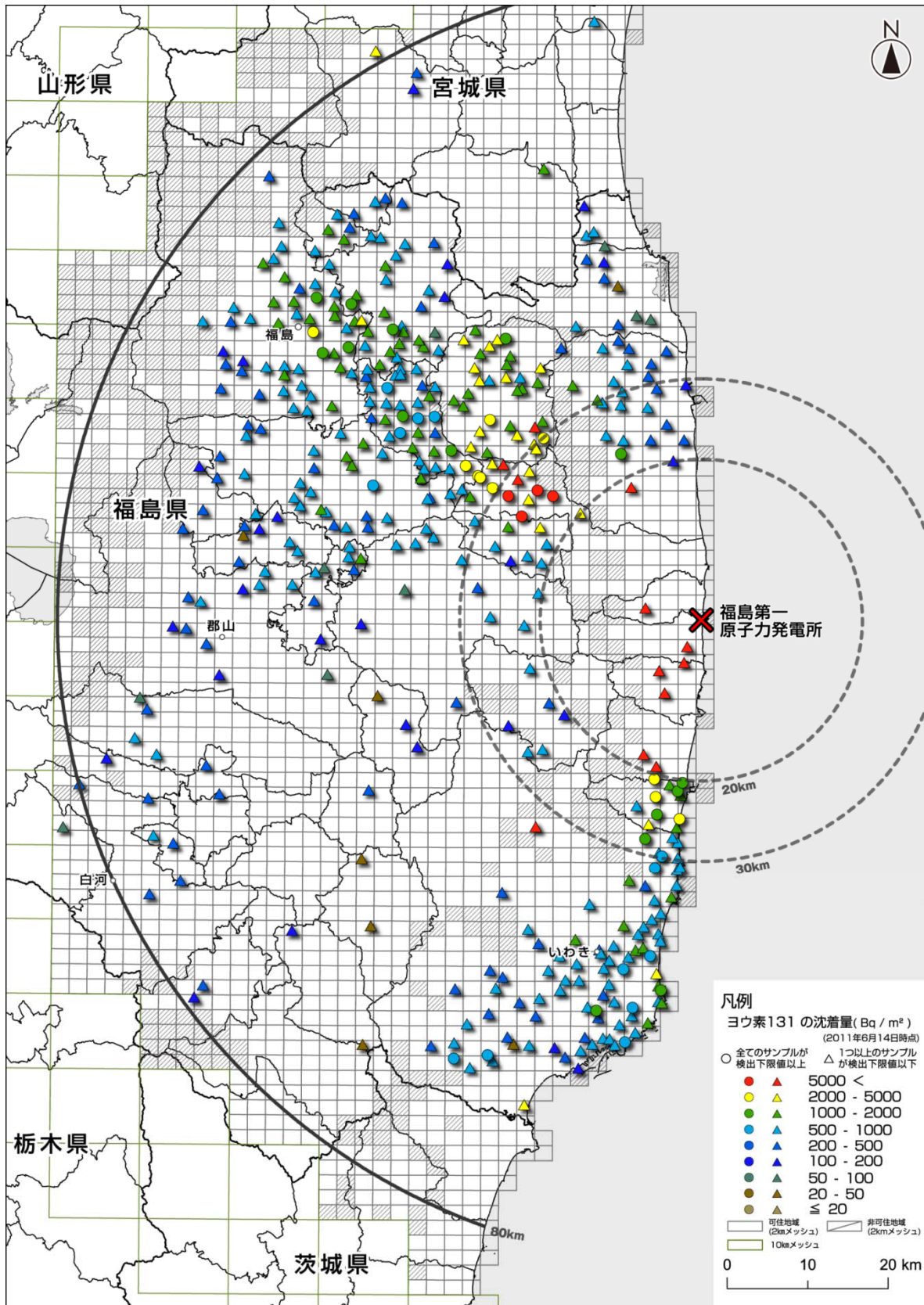


図 4.1-1 福島第一原子力発電所から 80 km 圏内のヨウ素 131 土壌濃度マップ
(第 1 次分布状況等調査で得られた分析結果)

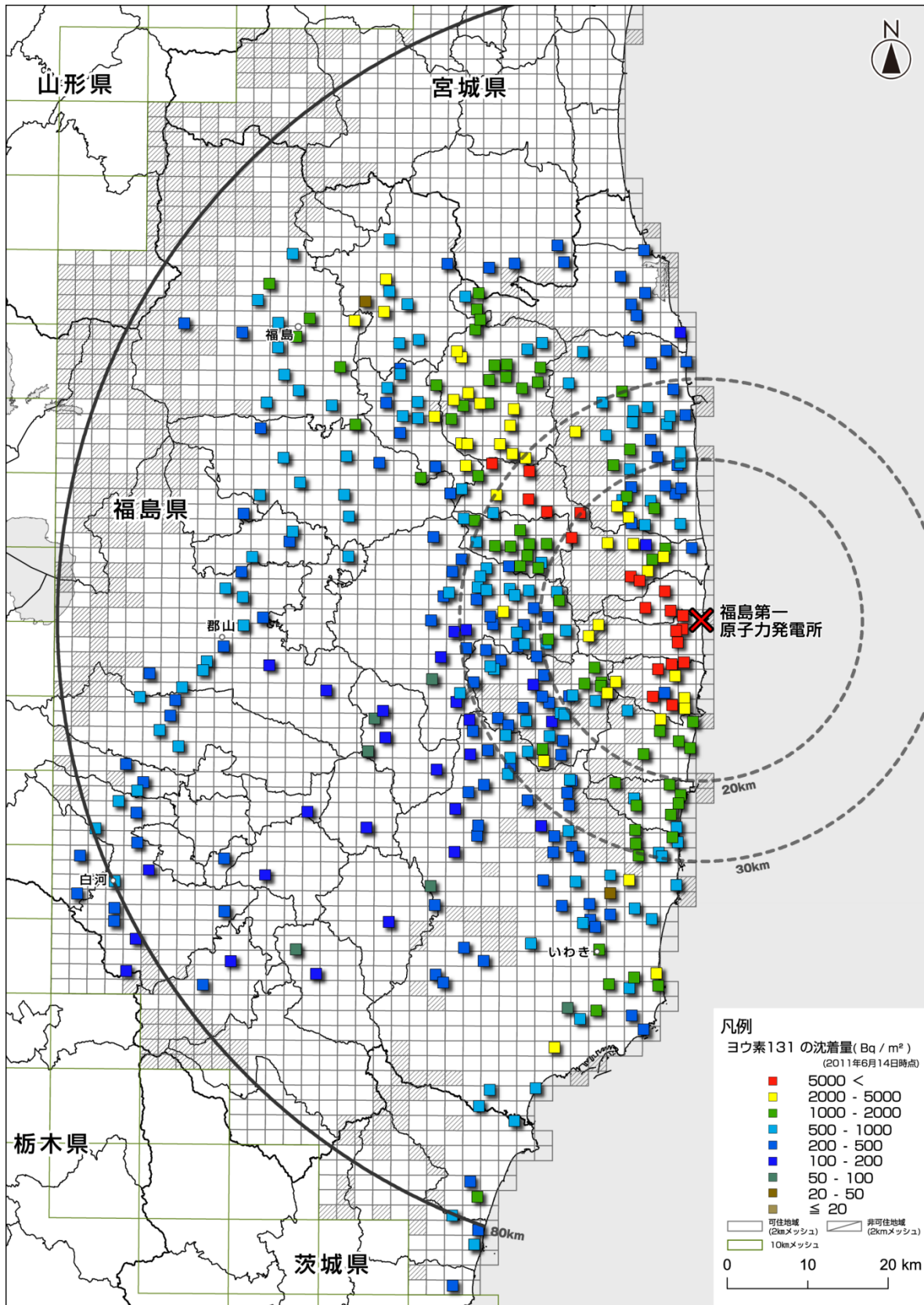


図 4.1-2 ヨウ素 129 の分析を通して得られたヨウ素 131 土壌濃度マップ
(第 3 次分布状況等調査で得られた分析結果)

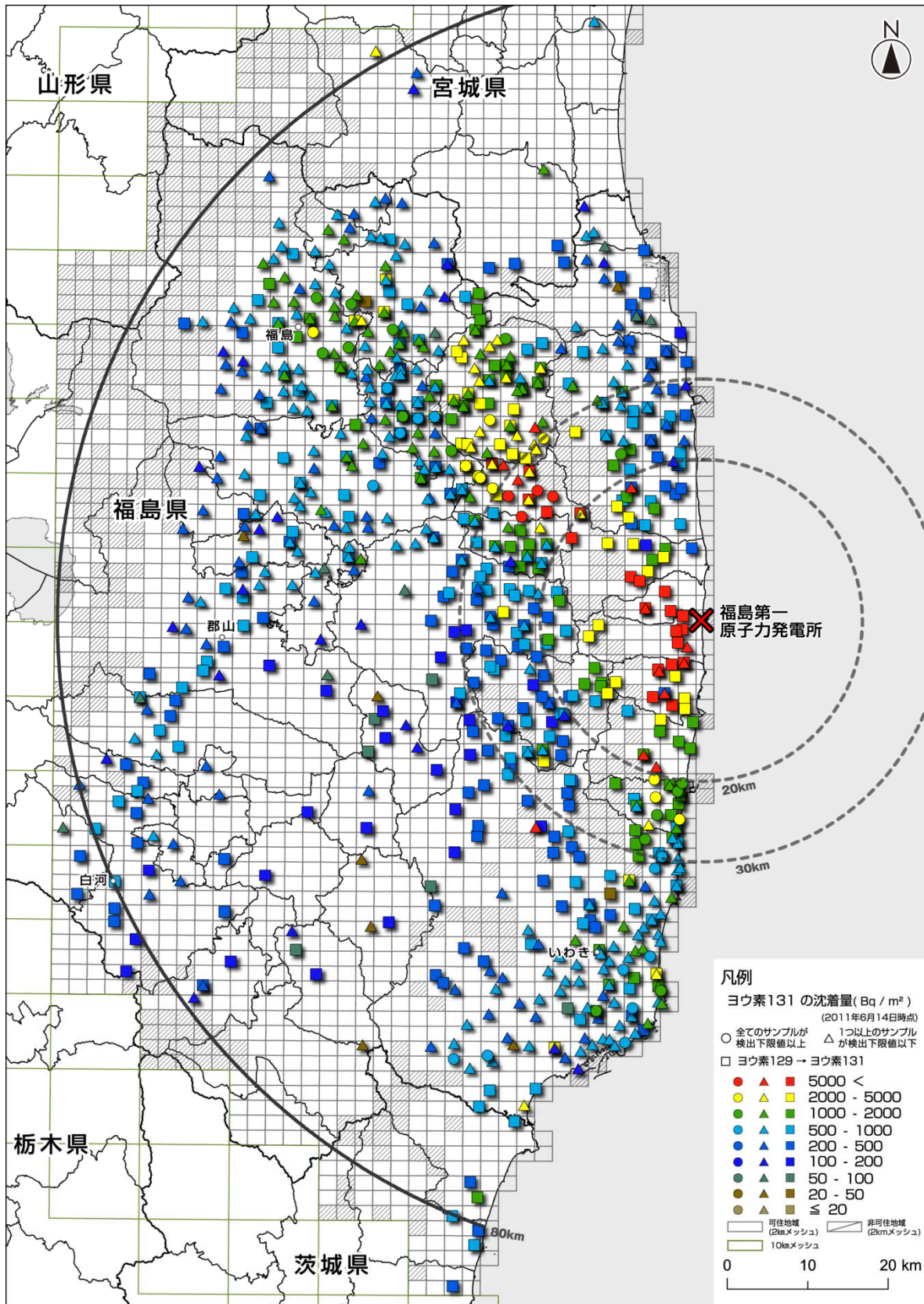


図 4.1-3 再構築したヨウ素 131 土壌濃度マップ (ヨウ素 129 の分析から推定したヨウ素 131 の値を、第 1 次分布状況等調査のヨウ素 131 土壌濃度マップに重ねた図)