

ヨウ素 129 の定量を通じたヨウ素 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. 背景及び調査目的

平成 23 年 6 月に、約 2,200 箇所各 5 試料の土壤試料が採取された（合計約 11,000 試料）。それらの殆ど全部の試料において放射性セシウムが検出されたが、ヨウ素 131 については、半減期が 8 日と短いため試料採取時点ではすでに多くが減衰しており、検出下限値以上の測定結果が得られたのは 421 試料であった。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) が指標になると考えた。ヨウ素 129 は半減期が 1,570 万年と極めて長く、現在でも検出可能である。ただし、測定においては放射線計測の手法では感度が足りないため、試料からヨウ素を化学分離した後、加速器質量分析法¹を用いて測定した。

平成 23 年度の調査で、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た。その結果から、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を確認した。

平成 24 年度の調査では、平成 23 年 6 月に採取した土壤の中から福島第一原発から 30 km 圏を中心に土壤試料を選び、ヨウ素 129 の分析を行った。その結果、合計 388 箇所分析結果が得られ、ヨウ素 131 の土壤中濃度を推定した。それら得られた値と、平成 23 年度の調査で直接測定した約 421 箇所におけるヨウ素 131 の値と合わせ、合計約 800 箇所についてのデータを得た。

平成 25 年度は、今までデータがあまり得られていない地域を対象にさらに約 400 試料についてヨウ素 129 の分析を行い、ヨウ素 131 沈着量の推定値マップの精緻化を図った。

2. 調査内容

(1) 使用した土壤試料

平成 23 年 6 月に採取された土壤試料から、平成 24 年度に測定されていなかった箇所（メッシュ）より 400 試料程度を選び、ヨウ素 129 を分析した。主として、福島第一原発から概ね 80 km の範囲を対象としたが、その周辺のサンプルも幾つか分析した。

試料は、深度が 0~5 cm の土壤を採取し均一にして測定しているため、深さ 5 cm 以内にヨウ素 129 が留まっていることを確認する必要がある。そこで、平成 25 年度は、平成 23 年 12 月にスクレーパープレートで採取した深度別の土壤試料を測定し、分布を調べた。なお、試料は 5 箇所採取されたものであり、各箇所とも深度は 0~0.5 cm、0.5~1.0 cm、1.0~1.5 cm、1.5~2.0 cm、2.0~2.5 cm、2.5~3.0 cm、3.0~4.0 cm、4.0~5.0 cm、5.0~8.0 cm の 8 段階に分けてある。

(2) 土壤試料の前処理及び化学分離操作

¹ 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測定して同位体比を求める分析法。

ヨウ素 129 の分析には U-8 容器に保存された土壌試料の一部を用いるため、一般に性状は様々で不均質なものが多く、時間をかけて均一にする必要がある。そこで、試料を U-8 容器から取り出し、ビニール袋の中で良く混ぜ合わせ均一にした。これより一部を取り、乾燥後、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。

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。前段で乾燥・均質化処理された試料 (100 ~ 800 mg) を燃焼ポートに秤量し、それに、五酸化バナジウムを混ぜた。試料をのせた燃焼ポートを石英管に入れ、水蒸気を含んだ酸素気流を流した。試料は電气管状炉 (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、TMAH (tetramethyl ammonium hydroxide) 溶液 (0.5%) 入りのトラップ管に捕集した。なお、ヨウ素の化学分離法の詳細は、Muramatsu et al. (2008)²によった。

(3) ヨウ素 127 とヨウ素 129 の測定

トラップ溶液の一部を用い、学習院大において ICP-MS³ (Agilent 8800、又は 7700) により土壌中の安定ヨウ素であるヨウ素 127 の濃度を分析した。また、残りのトラップ溶液に、4 mg のヨウ素 127 (I⁻) をキャリアとして加えた後、溶媒抽出・逆抽出によりヨウ素を分離・精製し、それに硝酸銀を加えてヨウ化銀を生成した。このヨウ化銀を対象とし、東京大学の AMS により、I-129/I-127 比を測定した。なお、AMS の測定条件などは、Matsuzaki et al. (2007)⁴に従った。なお、一部の試料は、学習院大学で化学分離した後、原子力機構の青森研究開発センター むつ事業所のタンデトロン AMS 装置 (以下「むつ AMS」という。) を利用して測定した。

土壌中のヨウ素 129 濃度 (重量比) は、

$$n_{129} = \frac{1}{w} \left(R \times \left(wn_{127} \times \frac{v_1 - v_q}{v_1} + b \right) - R_c b \right) \times \frac{v_1}{v_1 - v_q} \quad (1)$$

で計算される。ここで、

- w : 処理した土壌の乾燥重量 (g)
- n_{127} : 土壌中の安定ヨウ素濃度 (g/g、重量比: ICP-MS で決定)
- n_{129} : 土壌中のヨウ素 129 濃度 (g/g、重量比)
- v_1 : 土壌焼結後にヨウ素をトラップした TMAH 溶液の重量 (g)
- v_q : ICP-MS 用に取り分けたトラップ溶液の重量 (g)
- b : 加えたキャリアのヨウ素重量 (g)

² Y. Muramatsu, Y. Takada, H. Matsuzaki, S. Yoshida, "AMS analysis of ¹²⁹I in Japanese soil samples collected from background areas far from nuclear facilities", *Quaternary Geochronology*, 3, 291-297, (2008).

³ ICP-MS (誘導結合プラズマ質量分析: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry) プラズマ (ICP) を使用して発生したイオンを質量分析部 (MS) で検出する。多くの元素を同時に測定可能な分析法。

⁴ H. Matsuzaki, Y. Muramatsu, K. Kato, M. Yasumoto and C. Nakano, "Development of ¹²⁹I-AMS system at MALT and measurements of ¹²⁹I concentrations in several Japanese soils", *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B*, 259, 721-726, (2007).

- R : AMSによる測定結果 (I-129/I-127 比) : 式(1)で計算され、標準試料の結果で規格化された値
- R_0 : キャリアの持つ I-129/I-127 比 ($= 1.7 \times 10^{-13}$)

である。この計算においては、結果の不確定性に最も影響のあるのは、AMS の測定であるが、その測定誤差は5%以下である。

(4) ヨウ素 131 とヨウ素 129 の相関 (I-131/I-129 比) とヨウ素 131 の濃度の算出

ヨウ素 129 の分析結果からヨウ素 131 の沈着量を求めるためには、福島第一原発事故により放出された I-131/I-129 比が必要である。平成 23 年に、ヨウ素 131 が検出された 82 試料についてヨウ素 129 を分析して求めた I-131/I-129 比である「9,368 (Bq/Bq)」を用いた (減衰補正は平成 23 年 6 月 14 日の時点)。なお、相関係数は 0.84 であった²。誤差としては 30~40%程度の範囲に入っていると考える。

ヨウ素 129 の分析結果からヨウ素 131 の降下量 (Bq/m²) を求める方法の概要は次の通り。

- ① 式(1)で求めた土壌中のヨウ素 129 濃度 (重量比) を放射能濃度 (mBq/kg) に換算。
- ② ヨウ素 129 の放射能濃度 (mBq/kg) より、ヨウ素 129 の沈着量 (Bq/m²) を算出。なお、放射能濃度から沈着量へは、採取表土 5 cm (U-8 容器入り) の重量と、U-8 容器の面積を考慮し、単位面積当たり (1 m²) のヨウ素 129 放射能濃度 (mBq/kg) に換算した。
- ③ 上で求めたヨウ素 129 の沈着量に前述の I-131/I-129 比を掛け、ヨウ素 131 の沈着量 (Bq/m²) を算出 (減衰補正は平成 23 年 6 月 14 日の時点)。

(4) 土壌採取場所におけるヨウ素 131 の平均的な沈着量 (Bq/m²) の推定

ゲルマニウム半導体検出器での測定においては、各測定箇所原則 5 試料を測定し、その平均値をとっている。しかし、ヨウ素 129 の分析は手間と時間がかかることから、各測定箇所 1 試料のみを選んで分析をしたが、測定箇所内でのばらつきが大きい場合も少なくない。そこで、採取試料のセシウム 137 沈着量と各箇所 5 試料のセシウム 137 沈着量の平均値との比を求め、各箇所におけるヨウ素 131 の平均的な沈着量を推定する。つまり、当該試料のヨウ素 131 沈着量に、以下のファクター (F) を掛け合わせ求めた。

$$F = \text{「各箇所 5 試料のセシウム 137 沈着量の平均値」} / \text{「当該試料のセシウム 137 沈着量」}$$

この平均値の見積もりは、あくまでもセシウム 137 の測定値を基準としたものであるが、各箇所 1 試料のヨウ素 129 データから推定するよりは、その箇所を代表するものと考えられる。なお、各箇所の試料数が 5 試料未満の場合もある。特に、30 km 圏内では立入りができない地域が多く、5 試料未満の箇所が多かった。そのような箇所でも、得られている試料の平均値より同様のファクターを求め掛け合わせた。

3. 結果と考察

(1) ヨウ素 129 の深度分布

前述のスクレーパープレートで採取した 8 段階の深度別の土壌試料中のヨウ素 129 濃度を測定した。その結果を、セシウム 137 の値と合わせ表-1 に示す。

また、ヨウ素 129 濃度とセシウム 137 濃度の深度分布を図-1 に示す。スクレーパープレ

ートによるサンプリングでは表層から 8 cm までしか採取していないが、一番深いフラクションである 5~8 cm に含まれるヨウ素 129 は、0~8 cm に含まれる総量と比べ 4% 程度（5 箇所 の 平均値）と 僅かであった。この結果より、表層 5cm の試料に 9 割以上のヨウ素 129 が保持されていると考えられる。

得られたヨウ素 129 の分析結果を基に、ヨウ素 131 沈着量（Bq/m²）を計算で求め、直接測定した 421 試料（図-2）と、ヨウ素 129 からヨウ素 131 の沈着量を推定した 741 試料（図-3）を合わせた 1,162 試料のマップを図-4 に示す。

(2) ヨウ素 131 の再構築結果に対する誤差

ヨウ素 131 の再構築にあたっては、いくつかの不確定要因が存在する。それらを以下にまとめる。

(a) ヨウ素 129 濃度の測定

ヨウ素 129 濃度の解析における測定誤差は 3% 程度であり、これは、おおよそ AMS の測定誤差で決まる。ただし、絶対値を決める時に使用する参照用標準試料（ここでは Pardue 大学のヨウ素 129 スタナード Z94-0596 を使用）の参照値も不確実性を持っていることが指摘されている。これは系統的な誤差となる。

(b) ヨウ素同位体比（I-131/I-129）の推定

サンプルごとの同位体比は大きくばらつく。また、原子炉内で燃料燃焼により生成した核種の量を算出するシミュレーションプログラムである ORIGEN-2 による計算から推定される同位体比⁵や、東京大学や学習院大などで独自に採取した土壌試料の分析結果ともずれがある。総合すると、同位体比の推定値は 30% 程度の誤差があると考えられる。

(c) 採取箇所ごとの代表値への補正に関する誤差

平成 23 年に得られた試料は、1 箇所につき最大 5 試料である。これらについてのセシウム 137 の測定結果は一般にばらついているが、その平均値（a とする）をもって、その箇所の代表値としている。このように平均値をもって、代表値（仮想的な母集団の平均値）を推定する場合、その推定誤差は、

$$\delta = \sqrt{\frac{1}{n(n-1)} \sum_{i=1}^n (r_i - a)^2} \quad (2)$$

で与えられる。ここで、n は 1 箇所における試料数（ここでは n = 5）、r_i (i = 1~5) は個々の測定値である。このような δ は、箇所ごとに異なるが、平均するとセシウム 137 の場合は 17% 程度であった。ヨウ素 131 の濃度の推定は、セシウム 137 の分析値を参考に箇所平均へ補正されている。すなわち、セシウム 137 と同等のばらつきを仮定して代表値を推定していることになるので、その推定誤差は 17% 程度と考えられる。

以上を総合すると、再構築で得られたヨウ素 131 沈着量の絶対値としては、最大で 35%

⁵ 西原 健司, 岩元 大樹, 須山 賢也, 福島第一原子力発電所の燃料組成評価, JAEA-Data/Code 2012-018, (2012).

程度の誤差を含むと考えられる。

(d) ヨウ素 129 の分析法に関する検討

ヨウ素 129 の分析値の妥当性を検証するため、土壌試料から分離した AgI を用い、東京大学 AMS とむつ AMS で比較分析を行った。これに用いた土壌の総数は 33 試料であった。その結果、両者の相関係数は 0.994 と良い一致を示した (図-5)。なお、東京大学 AMS とむつ AMS の結果の間には、5%程度の系統的な差が認められたが、これは両者が異なる参照用標準試料を用いていることに起因すると考えられる。

(3) 放射性ヨウ素の分布に関する考察

福島第一原発から南西 30 km ラインを越えたあたりに赤い▲印で示す箇所がある。しかし、それらの周りの試料を用いヨウ素 129 を測定しヨウ素 131 を再構築したが、それほど高い値は見つからなかった。この赤い▲印の値は、平成 23 年 6 月の調査で得られた実測データであり、同箇所を検出されたヨウ素 131 の値は 1 試料のみである。また、計数誤差も 30%程度と大きいことから、この値の定量性は低いと考えられる。

I-131/Cs-137 比は地域によって大きく異なり、南の方向は I-131/Cs-137 比が高い傾向にあることは、平成 23 年度の調査でも示されている。ヨウ素 131 沈着量が高かった北西方向の箇所においては、I-131/Cs-137 比に関しては特に高くない。しかし、福島第一原発から北側の海岸線沿いに I-131/Cs-137 比が比較的高い箇所がのびている。また、南西方向にも I-131/Cs-137 比が高めの箇所が点在する。

I-131/Cs-137 比の分布を考える場合、原発事故前に核実験フォールアウトや再処理施設の影響で土壌中に加わったヨウ素 129 のバックグラウンド値を考慮する必要がある。しかし、原発に近い地域では、ヨウ素 129 のレベルが高いため、バックグラウンド値を差し引かなくてもヨウ素のマップにはあまり影響はないと思われる。

Toyama et al. 2012⁶は降下物 (1960 年代から 2000 年代) 中のヨウ素 129 の経年変化の測定から、核実験寄与と再処理寄与のヨウ素 129 の東京における降下量の累積量を見積もり、0.013 Bq/m²と報告している。この値から考えると、概ね 60 km 圏内では大きくバックグラウンドを上げるには至っていないと考える。しかし、原発事故起源のヨウ素 129 のレベルがそれほど高くない場所では、ヨウ素 131 に変換するとき、ヨウ素 129 のバックグラウンドが、影響する可能性も否定できない。より精度良く再構築する場合は、この点を検討する必要がある。また、Torii 等 (2013)⁷は、航空機モニタリングデータからガンマ線のエネルギー情報を抽出し、ヨウ素 131 の地表面沈着量を解析しマップ化しているが、本調査で求めた分布 (ヨウ素 129 から求めた分布) と傾向としては整合している。本調査では、実際の土壌試料を用いて分析していることから、“その場所における”沈着量を知ることができる。

⁶ C. Toyama, Y. Muramatsu, Y. Uchida, Y. Igarashi, M. Aoyama, H. Matsuzaki, “Variations of 129I in the atmospheric fallout of Tokyo, Japan: 1963–2003”, J. Environ. Radioact., 113, 116–122, (2012).

⁷ T. Torii, T. Sugita, C.E. Okada, “Enhanced analysis methods to derive the spatial distribution of 131I deposition on the ground by airborne surveys at an early stage after the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident”, Health Phys. 105, 192–200, (2013).

表-1 スクレーパープレートで採取した深度別の土壌試料中の Cs-137 と I-129

シリーズ名	深度 (cm)	体積 (cm ³)	I-129 濃度 mBq/kg dry	I-129 濃度比 上部=1	I-129 各深度における量 (Bq)	I-129 各深度における割合	Cs-137 濃度 mBq/kg dry	Cs-137 濃度比 上部=1	Cs-137 各深度における量 (Bq)	Cs-137 各深度における割合
須賀川市 (020S065)										
SP1-	0.0-0.5	0.5	11.55	1.00	5.78	0.24	23,162	1.000	11,581	0.530
SP1-	0.5-1.0	0.5	9.88	0.86	4.94	0.20	10,627	0.459	5,314	0.243
SP1-	1.0-1.5	0.5	6.65	0.58	3.33	0.15	4,355	0.188	2,177	0.131
SP1-	1.5-2.0	0.5	4.04	0.35	2.02	0.09	1,633	0.071	817	0.049
SP1-	2.0-3.0	1	3.46	0.30	3.46	0.15	823	0.036	823	0.049
SP1-	3.0-4.0	1	3.68	0.32	3.68	0.33	551	0.024	551	0.063
SP1-	4.0-5.0	1	0.34	0.03	0.34	0.02	283	0.012	283	0.017
SP1-	5.0-8.0	3	0.30	0.03	0.90	0.04	95	0.004	285	0.013
二本松 (025N045)										
SP1-	0.0-0.5	0.5	7.87	1.00	3.94	0.60	12,770	1.000	6,385	0.835
SP1-	0.5-1.0	0.5	3.52	0.45	1.76	0.27	2,051	0.161	1,026	0.134
SP1-	1.0-1.5	0.5	0.67	0.08	0.33	0.05	253	0.020	127	0.017
SP1-	1.5-2.0	0.5	0.30	0.04	0.15	0.02	74	0.006	37	0.005
SP1-	2.0-3.0	1	0.14	0.02	0.14	0.02	25	0.002	25	0.003
SP1-	3.0-4.0	1	0.09	0.01	0.09	0.01	19	0.001	19	0.002
SP1-	4.0-5.0	1	0.06	0.01	0.06	0.01	15	0.001	15	0.002
SP1-	5.0-8.0	3	0.04	0.01	0.13	0.02	5	0.000	15	0.002
白河市 (025S065)										
SP2-	0.0-0.5	0.5	15.55	1.00	7.78	0.38	22,676	1.000	11,338	0.374
SP2-	0.5-1.0	0.5	9.20	0.59	4.60	0.23	16,338	0.720	8,169	0.269
SP2-	1.0-1.5	0.5	6.40	0.41	3.20	0.16	9,868	0.435	4,934	0.163
SP2-	1.5-2.0	0.5	5.21	0.34	2.61	0.13	5,233	0.231	2,616	0.095
SP2-	2.0-3.0	1	0.84	0.05	0.84	0.04	1,456	0.064	1,456	0.053
SP2-	3.0-4.0	1	0.48	0.03	0.48	0.02	578	0.025	578	0.033
SP2-	4.0-5.0	1	0.39	0.03	0.39	0.02	440	0.019	440	0.016
SP2-	5.0-8.0	3	0.12	0.01	0.35	0.02	267	0.012	800	0.026
西郷村 (040S075)										
SP1-	0.0-0.5	0.5	16.60	1.00	8.30	0.29	17,360	1.000	8,680	0.547
SP1-	0.5-1.0	0.5	14.17	0.85	7.08	0.25	8,421	0.485	4,211	0.265
SP1-	1.0-1.5	0.5	11.88	0.72	5.94	0.22	3,324	0.191	1,662	0.066
SP1-	1.5-2.0	0.5	6.17	0.37	3.08	0.11	1,171	0.067	586	0.023
SP1-	2.0-3.0	1	1.13	0.07	1.13	0.04	365	0.021	365	0.014
SP1-	3.0-4.0	1	0.64	0.04	0.64	0.03	161	0.009	161	0.005
SP1-	4.0-5.0	1	0.48	0.03	0.48	0.02	94	0.005	94	0.004
SP1-	5.0-8.0	3	0.75	0.05	2.25	0.08	38	0.002	114	0.007
福島市 (045N045)										
SP1-	0.0-0.5	0.5	14.03	1.00	7.02	0.36	36,038	1.000	18,019	0.569
SP1-	0.5-1.0	0.5	10.89	0.78	5.44	0.28	19,444	0.540	9,722	0.307
SP1-	1.0-1.5	0.5	4.99	0.36	2.50	0.13	5,391	0.150	2,696	0.085
SP1-	1.5-2.0	0.5	4.02	0.29	2.01	0.10	988	0.027	494	0.016
SP1-	2.0-3.0	1	0.48	0.03	0.48	0.02	287	0.008	287	0.009
SP1-	3.0-4.0	1	0.44	0.03	0.44	0.02	152	0.004	152	0.005
SP1-	4.0-5.0	1	0.56	0.04	0.56	0.03	98	0.003	98	0.003
SP1-	5.0-8.0	3	0.40	0.03	1.21	0.06	59	0.002	176	0.006

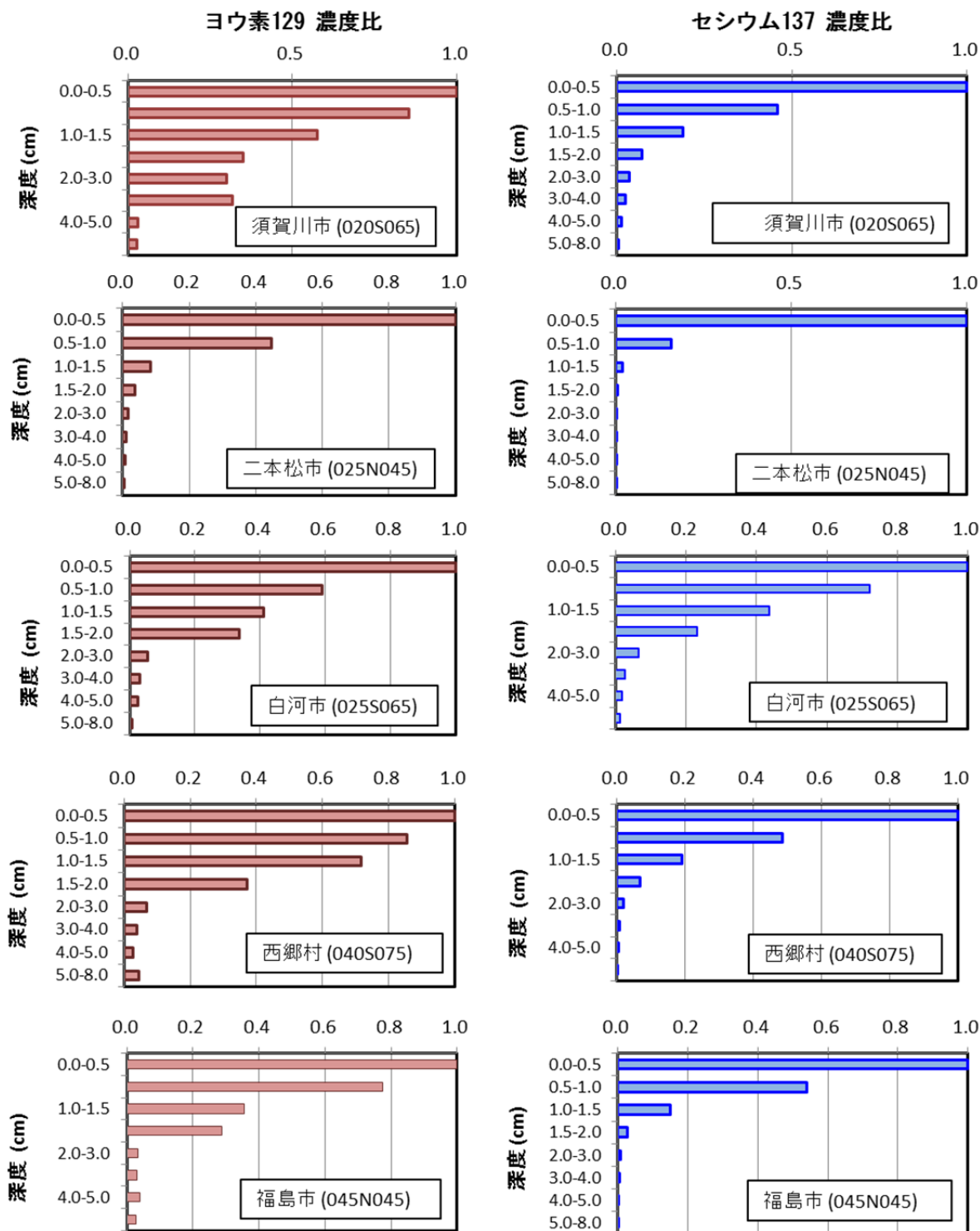


図-1 ヨウ素 129 及びセシウム 137 の深度 0~0.5 cm の濃度を 1 とした場合の各深度の比率 (試料はスクレーパープレートを用いて採取)

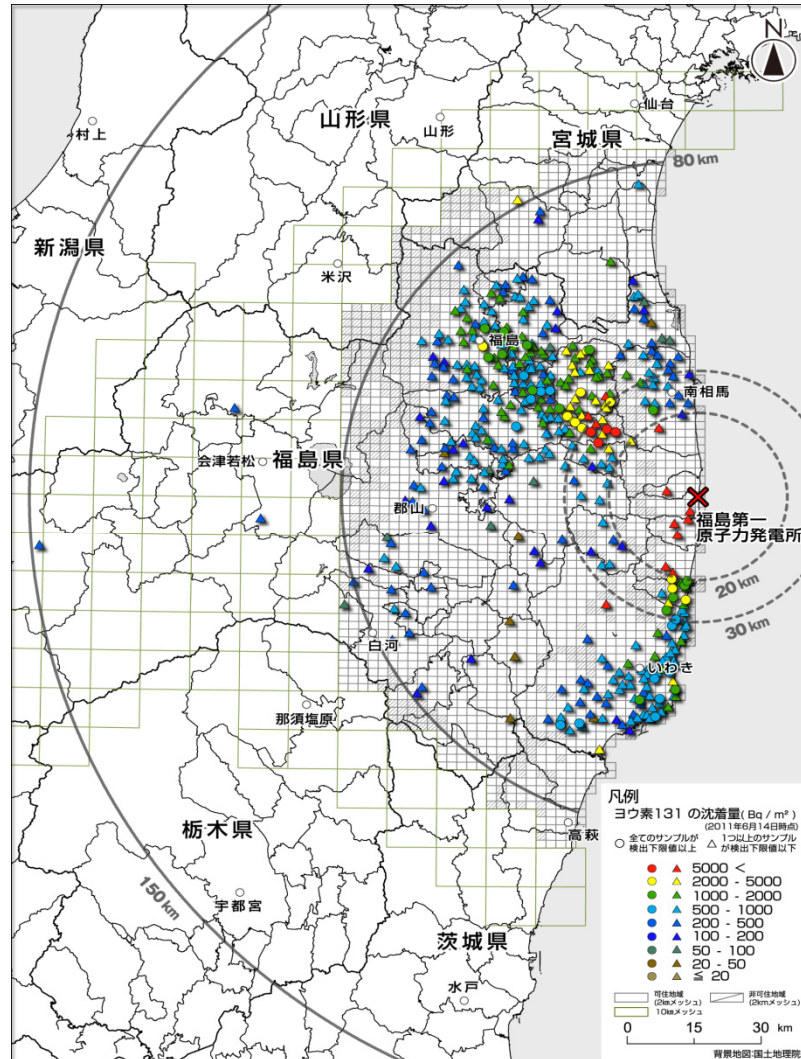


図-2 平成23年6月のヨウ素131沈着量 (Bq/m²)
(平成23年6月の調査で測定されたヨウ素131沈着量マップ)
(減衰補正: 平成23年6月14日)

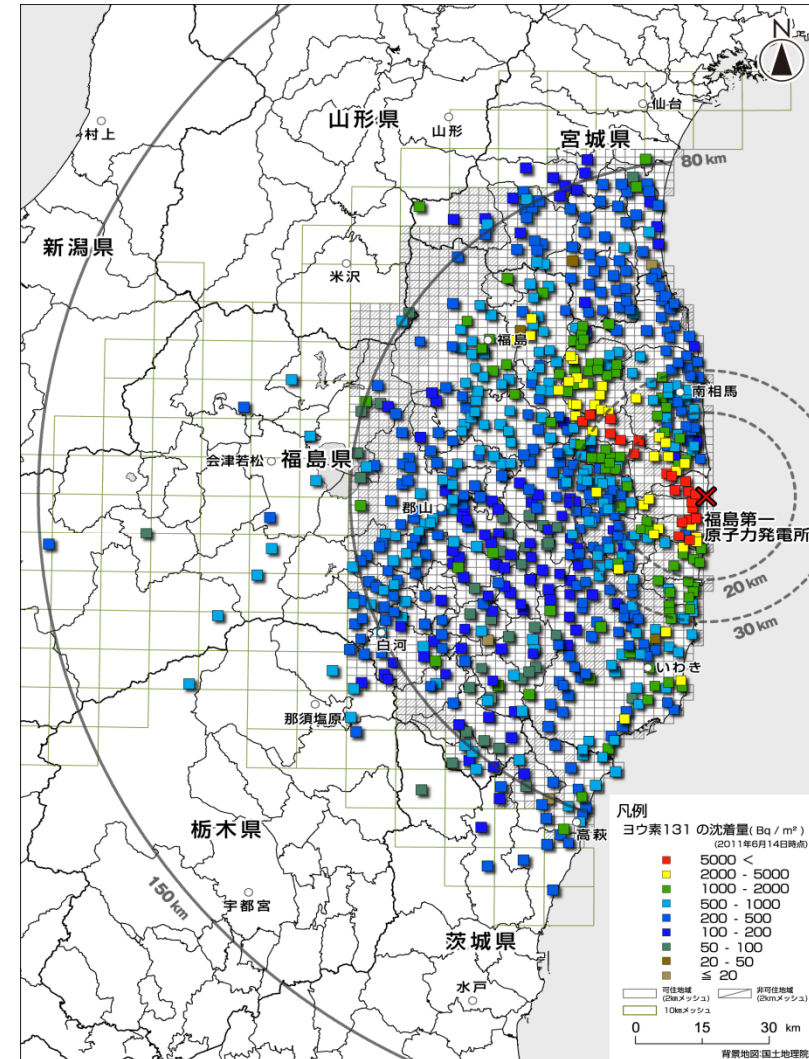


図-3 ヨウ素129から再構築したヨウ素131沈着量 (Bq/m²)
(平成26年1月上旬までに得られたヨウ素131沈着量マップ)
(減衰補正: 平成23年6月14日)

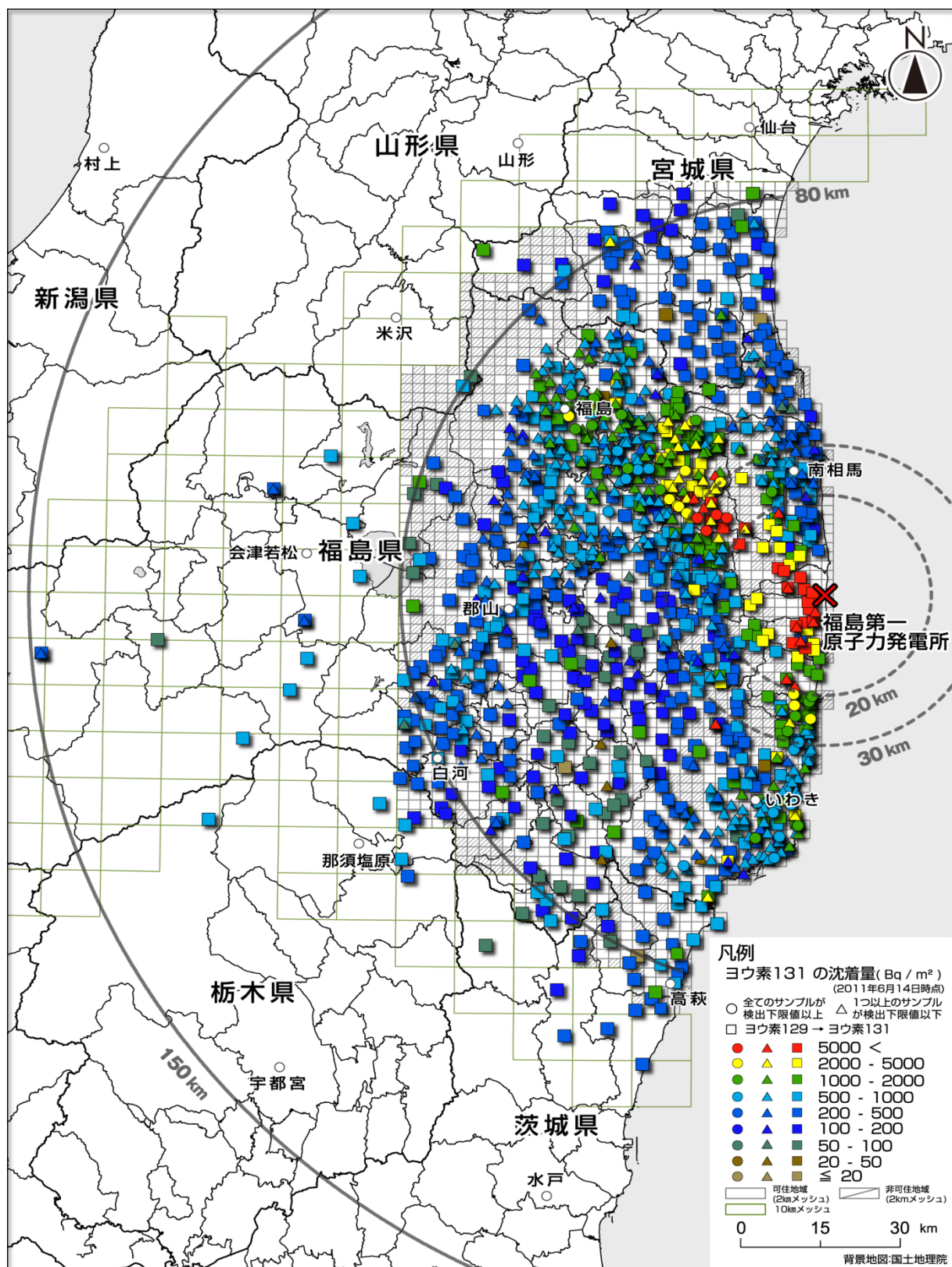


図-4 再構築した結果と平成23年6月のヨウ素131沈着量(Bq/m²)の重ね合わせ
 (図-2と図-3を合わせたヨウ素131沈着量を記したマップ)
 (減衰補正: 平成23年6月14日)

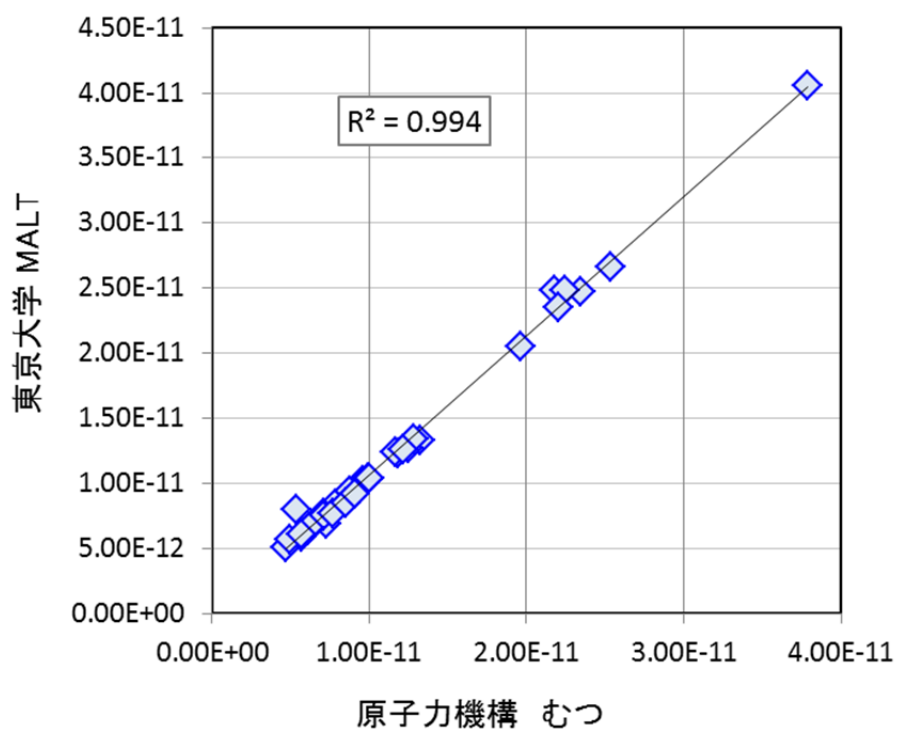


図-5 東京大学 AMS とむつ AMS の測定値の比較