

調査名： ヨウ素 129 の測定を通じたヨウ素 131 の土壌濃度マップの精緻化

代表研究者：村松 康行（学習院大学理学部）

松崎 浩之（東京大学タンデム加速器研究施設）

1. 調査の目的

- 福島第一原子力発電所事故により大量のヨウ素 131 が放出されたが、この核種は半減期が 8 日と短いため数ヶ月後には崩壊してしまい、測定が不可能となった。
- その為、ヨウ素 131 の沈着量に関する測定データは少ない。そこで同時に放出された長半減期核種であるヨウ素 129（半減期：1570 万年）に着目し、土壌中における濃度を測定することで当時のヨウ素 131 の沈着量を推定する。
- 第 2 次調査で、この方法の基礎的な知見が得られ、ヨウ素 129 とヨウ素 131 は相関を示し、昨年 6 月 14 日時点の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 比が求まった。
- それを受け、本調査研究においては、ヨウ素 131 が測定されなかった試料中のヨウ素 129 を分析し、得られた結果を基にヨウ素 131 の降下量を推定し、不足データを補うことでマップの精緻化を図る。
- また、ヨウ素は土壌への吸着特性が高いことから、ある時期に測定されたヨウ素 131 の沈着量について物理的減衰を考慮して補正することで、事故発生初期のヨウ素 131 の沈着量の再現が可能か検討する。

2. 調査内容

- ヨウ素 129 ($^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比) の測定は東京大学の AMS (加速器質量分析装置) を用い、ヨウ素 127 (安定ヨウ素) の測定は学習院大学の ICP-MS (誘導結合プラズマ質量分析装置) を用いて行う。
- 測定試料は全部で 350 試料程度を用い分析予定。ヨウ素 131 が不検出の試料を主として選び、それらに含まれるヨウ素 129 を分析し、各地点におけるヨウ素 131 濃度を再構築する。
- また、50~80 試料については、ヨウ素 131 が検出されている試料も分析し、前回求めた $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 比の精度を高める。さらに、深度分布についても分析し、ヨウ素 129 がどの程度しみ込むかも調べ、昨年 6 月時点での評価を行う。

3. 調査地点(図 1 参照)

- 福島第一原子力発電所から 30 km 圏内の土壌試料を中心に、昨年 6 月期に採取し保管されている土壌試料より約 350 試料を選ぶ。
- 30 km 圏内を中心にするのは、ヨウ素 131 の降下量が高かった事が予想されるためであり、また、この地域におけるヨウ素 131 の測定データが少ないからである。なお、調査地点の選定においては、既存の放射性セシウムなどのデータを参考にして、できるだけバラツキの少ない地点を選ぶ。

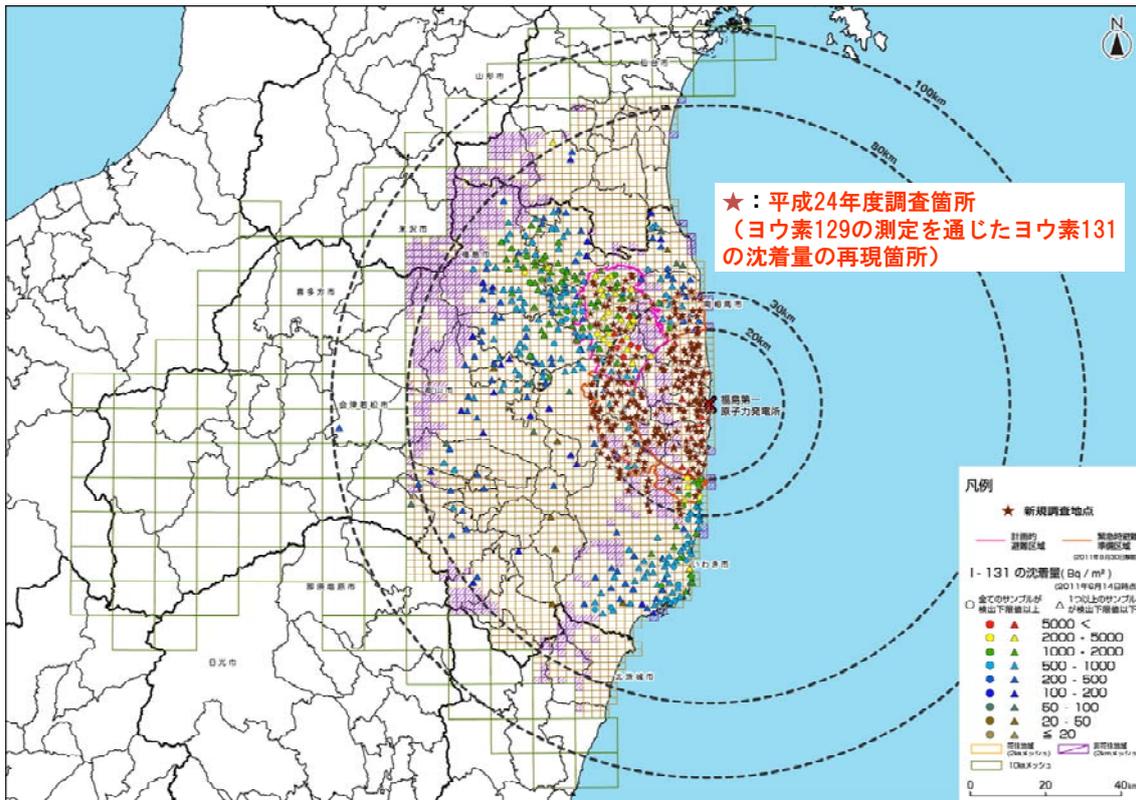


図1：ヨウ素 129 の測定を通じたヨウ素 131 の土壌濃度マップの精緻化に向けた調査箇所(平成 24 年度調査)【背景地図：文部科学省が昨年 6 月期に実施した第 1 次調査におけるヨウ素 131 の土壌濃度マップ(平成 23 年 9 月 21 日公表)】

4. 調査スケジュール

○調査は以下の項目において計画を立て進めていく。

①試料の選定

- ・データベースより、放射性セシウムなどの値を参考に試料を選定する。第 1 弾として 7 月末までに 160 試料を選定済み。第 2 弾以降、順次、試料を選定していく。

②試料の前処理（均一化、乾燥、ボールミルで粉末試料の作成）

- ・現在、第 1 弾の土壌試料のうち、約 80 試料について前処理を開始している。
- ・第 2 弾以降の土壌試料についても、順次、前処理操作を実施。

③ヨウ素の化学分離操作

- ・第 1 弾の土壌試料については、8 月後半から 9 月に化学分離操作を実施。第 2 弾以降の土壌試料についても順次実施。

④ICP-MS による安定ヨウ素（ヨウ素 127）の分析

- ・第 1 弾の土壌試料については、9 月頃に安定ヨウ素の分析を行う。第 2 弾以降は順次実施。

⑤AMS による $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比の分析

- ・第 1 弾の土壌試料については、10 月頃に AMS による $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比の分析を行う。第 2

弾以降は順次。終わりは2月初旬。

⑥ヨウ素 129 の沈着量 (Bq/m²) の測定

- ・ヨウ素 127 濃度と ¹²⁹I/¹²⁷I 比よりヨウ素 129 濃度と沈着量を算出する。

⑦その他

- ・ヨウ素 131 濃度の分析値がある試料も引き続き分析し、¹²⁹I/¹³¹I 比の精度を高める。
- ・ヨウ素 129 の深度分布に関するデータを取り、どの程度浸透しているかについての知見を得る。
- ・AMS 法以外にコリジョンタイプの ICP-MS を用いて、ヨウ素 129 の測定を試みる。
9 月頃から、適宜実験を行う。

土壌中のヨウ素 129 の測定を通じたヨウ素 131 の推定

学習院大 村松康行

はじめに

福島原発事故において環境中に放出されたヨウ素 131 は 1.6×10^{17} Bq と推定されており（保安院）、放出核種の中ではキセノン 133 に次いで量が多い。放射性ヨウ素は甲状腺に濃縮され被曝をもたらすため、住民への初期被曝を評価する上で各地点での降下量を調べることは大変重要である。しかし、 ^{131}I は放出量としては多かったが、半減期が 8 日と短いため、数ヶ月で検出限界以下になった。その為、放射性セシウムなどに比べ測定データが少ない。

一方、 ^{131}I と同時に放出された ^{129}I は放出量こそ少ないが、半減期が 1570 万年と長い為、現在も検出可能である。そこで、ヨウ素 129 を測定することで事故当時のヨウ素 131 の環境中でのレベルを推定できる可能性がある。

チェルノブイリ事故に際してもヨウ素 129 は放出されており、 $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 比（原子比）は事故時に換算すると 12~23 程度である。ヨウ素 129 を測定し事故当時のヨウ素 131 を推定する試みは少ないが、ポーランドの例が報告されている（Pietrzak-Flis et al. 2003）。この中では、村松も共著者として分析に協力している。しかし、当時は放射化分析法を用いていたこともあり、分析に時間がかかり、検出感度も劣っていたため、データは少ない。その後、加速器質量分析法（AMS）を用いたヨウ素 129 の分析法が日本においても開発され（Matsuzaki et al. 2007; Muramatsu et al., 2008）、感度も飛躍的に向上した。また、処理時間も従来の放射化分析法に比べ改善された。

AMS 法を用い、チェルノブイリ周辺（4~30km）で採取した土壌に含まれるヨウ素 129 を東大の AMS により分析したところヨウ素 129 は少量の試料（0.2g 程度またはそれ以下）でも感度良く測定することができた（Sahoo, Muramatsu et al. 2009）。このことから、ヨウ素 129 を分析することは、当時のヨウ素 131 の沈着量を推定する指標として有効であると考えた。しかし、ウクライナやベラルーシにはこの目的で使用可能な AMS 施設がないため、現地での応用までは至らなかった。

ここでは、学習院大学のグループで行った福島県で採取した土壌中のヨウ素 129 の分析について紹介する。なお、文科省が中心になって採取した土壌を用いたヨウ素 129 調査に関しては、現在進行中であるので、ここには含めない。

試料及び分析方法

原発事故後に福島県内で採取し、ヨウ素 131 が測定済みの試料を用い、ヨウ素 129 を AMS 法により約 40 試料を測定した。今回用いた試料は、学習院大学と福島県が採取したものの中から、原発から様々な方向のものを選んだ。

ヨウ素 131 及び放射性セシウムの分析は Ge 半導体検出器で行った。試料を均一にし、乾燥した後、メノウのボールミルで粉碎して粉末状の試料にした。それらの試料（100~500mg）を燃焼ボートに秤量し、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。試料は電気管状炉（1000℃）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、加熱を続ける。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。（なお、ヨウ素の化学分離法は、Muramatsu et al. (2008)によった。）加熱分離法と化学分離法の概要を図-1 に示す。

トラップ溶液の一部を用い、学習院大において ICP-MS (Agilent 7700) により、ヨウ素 127 (安定ヨウ素) を測定した。また、残りの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。この AgI をターゲットとし、東京大学の AMS(加速器質量分析法)により、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 比を測定した。AMS の概要を図-2 に示す。

結果の概要

学習院大学および福島県が昨年 4 月ごろに採取した土壌(ヨウ素 131 を測定済み)を用い、ヨウ素 129 の定量を行った。得られた結果を、図 3 に示す。なお、この図に関しては、ヨウ素 129 とヨウ素 131 共に単位として Bq/kg (乾燥重量) を用いている。(農地関連のデータとしてとったので、重量ベースの濃度になっている。)

この結果から見ると、ヨウ素 129 とヨウ素 131 は良い相関であると言える($R^2=0.96$)。ヨウ素 129 の土壌中濃度(Bq/kg)に対するヨウ素 131 の土壌中濃度(Bq/kg; 4 月 1 日に半減期補正)の比率($^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比)の平均値は、4,100,000 であった。

なお、事故時の値を原子比で表すと、 $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比は約 0.035 であった($^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 比は約 28)。現在さらにデータを増やしているところであり、 $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比については今後検討していく。

環境中に放出されたテルル 129m からの壊変でもヨウ素 129 が生ずるが、その量を計算したところ、事故により沈着したヨウ素 129 の量に比べ無視できる。

このように、ヨウ素 129 とヨウ素 131 は良い相関を示すことから、ヨウ素 129 を測定することで、今では消滅してしまったヨウ素 131 の沈着量を推定できると考えられる。

今回測定した土壌中のヨウ素 129 濃度と放射性セシウム濃度の比($^{129}\text{I}/^{137}\text{Cs}$)を見ると、原発の南側の方が北側に比べ高い傾向にあった。その時流れてきたプルームにより放射性ヨウ素と放射性セシウムの割合が異なっていたことを意味する。これは、放出源が違うことや放出段階が違うことに起因していると考えられる。地域による $^{131}\text{I}/^{129}\text{I}$ 比に違いがあるか得られたデータから見たが、バラツキがある程度あるので、有意な差は見られなかった。

なお、上述した調査以外に、平成 23 年 6 月に実施した文科省の第 1 次調査で採取した土壌試料を用い、ヨウ素 129 の分析を行い、ヨウ素 131 沈着量との相関を求めている。現在結果を解析中であり詳細は別の機会に報告するが、上記の結果と同様な傾向が出ている。

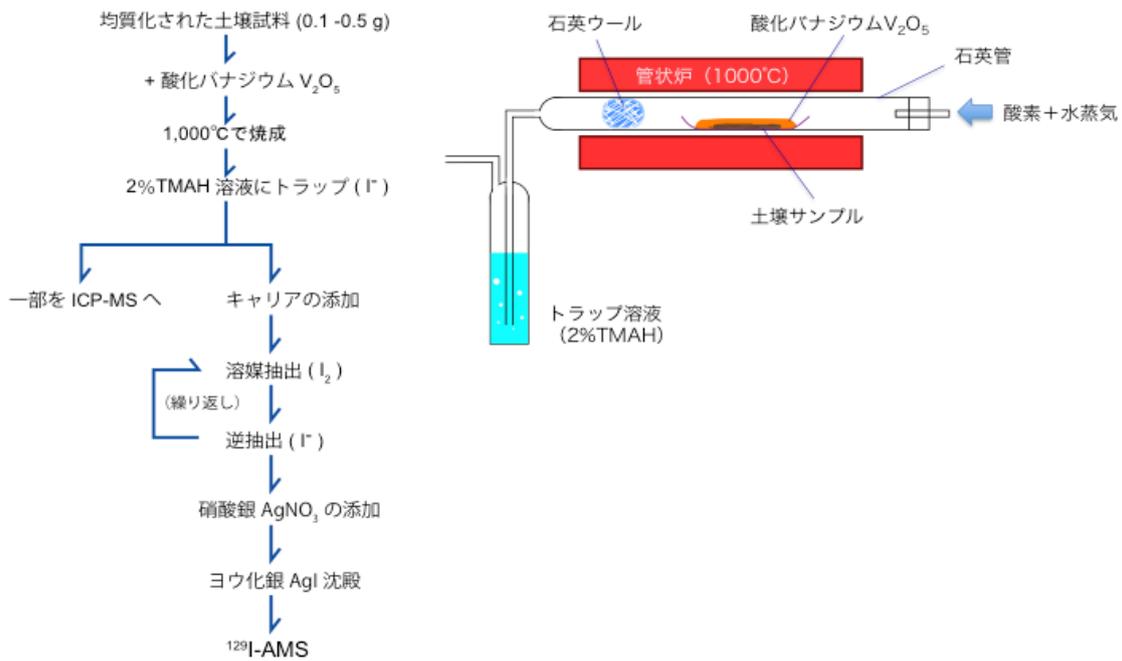


図-1 土壌前処理の流れと焼成のイメージ

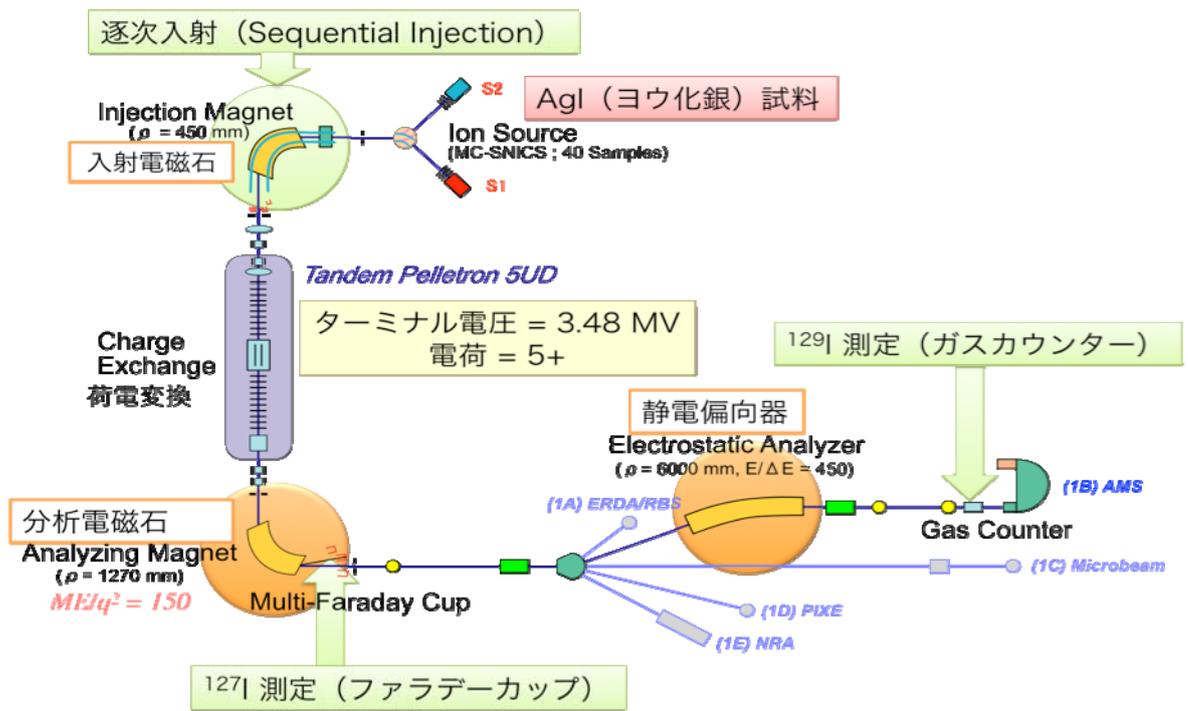


図-2 東京大学タンデム加速器研究施設におけるヨウ素¹²⁹-AMSシステム

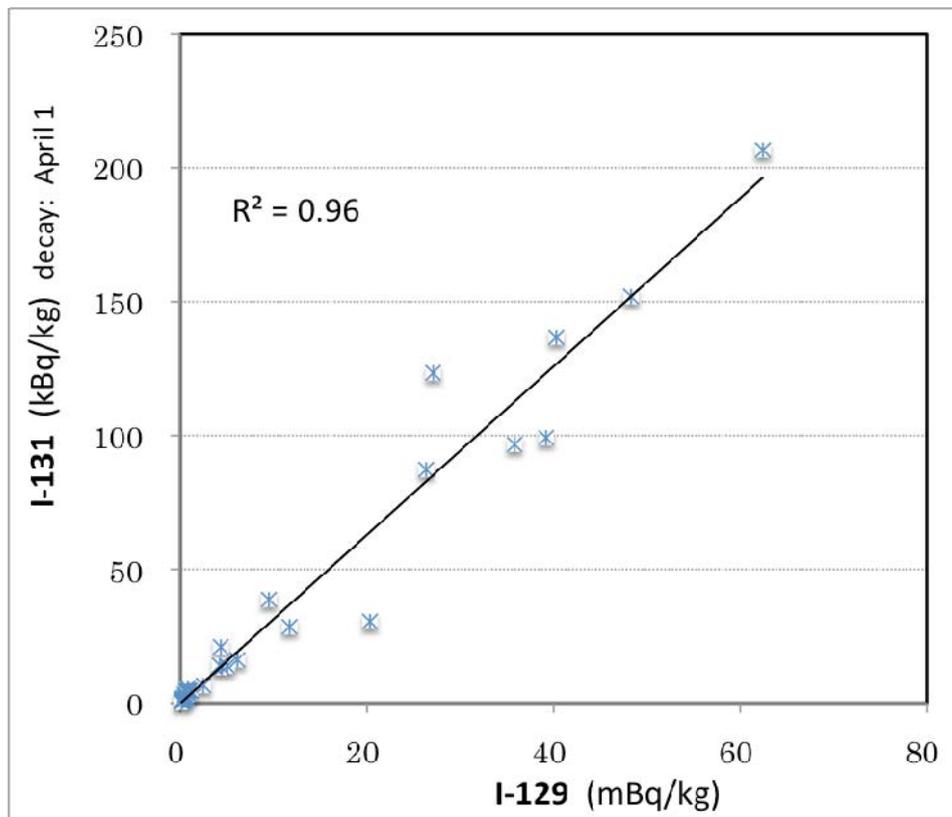


図-3 ヨウ素 129 とヨウ素 131 の相関 (n-36) 減衰補正は 4 月 1 日
(学習院大や福島県が採取した試料の分析)

参考文献

- Matsuzaki, H., 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)
- Muramatsu, Y., 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)
- Muramatsu, Y., Uchida, S., Sriyotha, P. and Sriyotha, K.: Some considerations on the sorption and desorption phenomena of iodide and iodate on soil. *Water, Air and Soil Pollution*, 49, 125-138 (1990).
- Pietrzak-Flis, Z., Krajewski, P., Radwan, I., Muramatsu, Y.: Retrospective evaluation of ^{131}I deposition density and thyroid doses in Poland after the Chernobyl accident, *Health Physics*, 84, 698-708 (2003).
- Sahoo K.S., Muramatsu Y, Yoshida, S., Matsuzaki, H., Ruehm, W.: Determination of ^{129}I and ^{127}I Concentration in Soil Samples from the Chernobyl 30-km Zone by AMS and ICP-MS, *J.Radiation Research*, 50, 325-332 (2009)
- Yoshida, S., Muramatsu, Y. and Uchida, S.: Studies on the sorption of I-(iodide) and IO₃-(iodate) onto Andosols. *Water, Air and Soil Pollution*, 63, 321-329 (1992).