

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

(1) 目的

福島第一原発事故により大量の I-131 が放出された。放射性ヨウ素は甲状腺に濃縮され被ばくをもたらすため、住民への初期被曝を評価する上でその広がりや各地点での濃度を評価することが大変重要である。しかし、I-131 の半減期は 8 日と短いため平成 23 年 6 月の調査においては多くの試料で検出できなかった。そのため I-131 のマップはデータ数がごく限られたものとなっている。

事故時に I-131 と同時に I-129 (半減期 : 1600 万年) も放出されている。これら 2 つ核種の比はほぼ一定であったと考えると、土壌中の I-129 を分析することで、現在は減衰して測定できない I-131 について当時の土壌中濃度を推定することが可能と考える。

そこで、ここでは、第 1 次分布状況調査で昨年 6 月に採取し放射性セシウムなどの分析に用いた試料のうち I-131 が測定されているものを使用し、それらに含まれる I-129 を測定する。そして、I-129 と I-131 との相関があるかを調べることをも目的とする。相関があることが確認できれば、I-129/I-131 比を求め、I-131 が検出できなかった試料中の I-129 の測定値から、当時の I-131 の土壌中濃度を推定することが可能となる。それにより、データの不足を補い、I-131 の土壌濃度マップの精緻化を目指す。

なお、I-129 の濃度は非常に低いため、これの定量のために試料から I-を化学分離し、測定感度に優れた高度な分析法である加速器質量分析法 (AMS) を用いる。

(2) 背景

I-129 は半減期が 1,600 万年と非常に長い核種であり、自然界ではウランの自発核分裂や宇宙線と大気との核反応で生成されている。核実験が行われる以前における I-127 (安定ヨウ素) との原子数比 (I-129/I-127 比) は 1.5×10^{-12} 程度であった。また、I-129 は I-131 と同様に核分裂によっても生成されるので、核実験や再処理施設からも放出されており現在の表層土壌中でのバックグラウンドは、 10^{-9} 程度と考えられている。

チェルノブイリ事故においても I-129 は放出された。しかし、事故当時の I-129 と I-131 を同一試料から測った例はごく限られたものしかない (Paul et al. 1987)。それらの測定値や燃料の燃焼度から計算すると I-129/I-131 比 (原子比) は 12~23 程度 (事故時に換算) である。(事故時の I-129 と I-131 の放出量を較べると、放射能としては I-131 の方がはるかに高いが、原子数としては半減期の関係で I-129 の方が多い。) また、I-129 を測定しチェルノブイリ事故当時の I-131 を推定し被曝線量評価を行ったポーランドの例が報告されている (Pietrzak-Flis et al. 2003) が、当時は放射化分析法を用いており測定に手間と時間がかかり、測定数は少ない。その後、加速器質量分析法 (AMS) を用いた I-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、処理時間も改善された。今回の福島第一原発事故では、今までに培ってきた I-129 の分析手法を活用することで初期の I-131 の分布や沈着量に関する情報が得られる可能性がある。

(3) 調査内容

a) 土壌試料とその調整

第 1 次分布状況調査で採取され、Ge 半導体検出器による測定時に放射性セシウムだけでなく I-131 が測定されている土壌試料の中から 82 試料を分析に供した。

b) 土壌試料の前処理

上記の土壌試料を 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。なお、U-8 容器中の試料は十分に均一に混ざっていないものも見受けられ、最初の均一化する作業に時間を要した。

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。ヨウ素の分析では、酸で分解すると揮発してしまうため好ましくない。そこで、ヨウ素が揮発し易い性質を逆に利用し、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 (100~500mg) を燃焼ボートに秤量し、それに、五酸化バナジウムを混ぜる。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す。試料は電気管状炉 (1000°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。加熱分離法のプロットと化学分離法のプロットを図 4.1-1 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、I-127 (安定ヨウ素) を測定した。また、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。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。なお、AMS の測定条件などは、Matsuzaki et al. (2007) に従った。

以下に、ICP-MS 法と AMS 法について概要を述べる。

c) ICP-MS 法による I-127 (安定ヨウ素) の分析

ICP-MS (誘導結合プラズマ質量分析法: Inductively Coupled Plasma Mass Spectrometry) は最近ハード及びソフトの面で急速に発展してきた元素分析法である。試料溶液はネブライザに送られ噴霧されエアロゾルとなり、アルゴンガスと共に ICP トーチに送られる。プラズマの温度は 6,000~7,000K であるため、試料は蒸発、原子化、そしてイオン化が起こる。四重極マスフィルターにおいて、印加電圧を掃引することにより質量スペクトルを見ることができる。検出器は二次電子増倍管が用いられており、高い感度が可能である。測定中の信号強度の変動を補正するために、内部標準 (Internal standard) として既知量の元素を試料溶液及びスタンダード溶液に添加しておく。ヨウ素の分析に用いる内部標準としての適性を検討したところ、Cs-133 が適当であることが分かった。スタンダード溶液は、予め 100ppm ヨウ化カリウム溶液を用意し、それを希釈して作成した。通常 0.2、1、2、10、20、50 ppb の濃度に調製した。今回用いた分析装置は Agilent 社製の 7700 である。

d) AMS 法による I-129 の分析および解析手法

測定システム：

施設 (MALT) の I-129AMS システムを用いて行った (図 4.1-2)。本システムは、Matsuzaki et al. (2007) を修正したものであり、現在は、ターミナル電圧 3.48MV、荷電変換後の電荷 5+ を選択している。I-129 の検出において妨害となる要因としては、同重分子イオン、質量-電荷比の近いイオンの干渉、I-127 の混入が挙げられる。MALT では、加速後 (高エネルギー側) の質量分析系の精密なチューニングを行った上で、ガスカウンターを用いて I-129 を検出している。ガスカウンターとは、ガス中にイオンを導入し、イオンのエネルギー損失の大きさを電離した電子のパルスとして検出するものであり、2 枚以上のプレートで信号を集め、エネルギー損失の大きさの違いを 2 次元的にスペクトル表示することにより、イオン種の分離性を高めている。以上の方策により、東京大学 MALT の I-129-AMS システムでは、バックグラウンドとして、 $I-129/I-127 < 2 \times 10^{-14}$ を実現している。

解析手法：

東京大学の AMS システムでは、入射電磁石の部位に、ミリ秒オーダーで入射するイオンの質量数を切り替えるシステム (逐次入射システム: Sequential Injection System) を備え、質量数 127 の I-127 と質量数 129 の I-129 を交互に加速器に入射している。加速器で加速後、I-129⁵⁺ は、ガスカウンターでカウントされ、I-127⁵⁺ は、ファラデーカップにより、電流値として測定する。得られた I-129⁵⁺ の総カウント数を N_{129} 、計測時間 (測定時間) を $t[\text{sec}]$ 、このときの平均の I-127⁵⁺ のカレント (電流値) を $I-127 [\text{A}]$ とすれば、同位体比 I-129/I-127 は、

$$\frac{I-129}{I-127} = \frac{N_{129}[\text{counts}]/t[\text{sec}]}{I-127[\text{A}]/(5 \times 1.602 \times 10^{-19}[\text{C}])} \quad [1]$$

で与えられる。誤差は、I-129⁵⁺ のカウント数で決まるため、この測定の誤差率は、 $1/\sqrt{N_{129}}$ となる。ここで得られる同位体比は、土壌試料の前処理過程において、I-127 (安定ヨウ素) のキャリアを加えた試料に対する同位体比であり、土壌中のヨウ素の同位体比とは異なる点に注意されたい。土壌中の I-129 濃度の計算法については、後述する。

東京大学ではさらに、標準試料の個々の測定では十分なカウント数を確保した上で、繰り返し測定を行うことにより、システム全体の変動を評価し、誤差に加えている。すなわち、

(報告される誤差) = (未知試料測定の統計誤差) + (システムの不安定生に起因する誤差) となっている。

標準試料：

ところで、I-129 のカウンティングと I-127 の電流測定で一般には検出効率が異なるため、上記の [1] 式で求まる同位体比は、試料中の真の同位体比とはならない。そこで、これをキャンセルし、真の同位体比を求めるために、同位体比既知の標準試料の測定を同時に行い、規格化する。

東京大学 AMS では、米国パーデュー大学の AMS 研究施設 (PRIME-Lab) より提供された Z94-0596 ヨウ素標準試料を用いており、その同位体比は、 $I-129/I-127 = 6.3565 \times 10^{-11}$ とされている。東京大学の測定では、この値を既知の値として、未知試料の同位体比を計算している。

土壌中の I-129 濃度の計算：

土壌試料の前処理に関わる諸量を以下の通りとする：

w : 処理した土壌の乾燥重量

n_{127} : 土壌中の I-127 (安定ヨウ素) 濃度 (重量比)

n_{129} : 土壌中の I-129 濃度 (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

v_q : ICP-MS 用に取り分けたトラップ溶液の重量

b : 加えたキャリアのヨウ素重量

R : AMS による測定結果 (I-129/I-127 比) : [1] 式で計算され、標準試料の結果で規格化した値。

R_c : キャリアの持つ I-129/I-127 比 ($=1.7 \times 10^{-13}$)

このとき、土壌中の I-129 濃度 (重量比) は

$$n_{129} = \frac{1}{w} \left(R \times \left(w n_{127} \times \frac{v_1 - v_q}{v_1} + b \right) - R_c b \right) \times \frac{v_1}{v_1 - v_q} \quad [2]$$

で与えられる。ここで、 n_{127} は ICP-MS の測定を待つて初めて分かるものであるが、通常は、キャリア量 b に比べて十分小さいため、無視できる。また、キャリアとしては、サーモエレクトロン社の Ionplus ヨウ素標準を使用した。

[2]式で得られる土壌中の I-129濃度の誤差を評価する場合、[2]式中で大きく効くファクターは、AMS測定に関わる R の誤差である。この他には、土壌の均質化の不十分さと、土壌焼成時におけるヨウ素の収率が不確定性の要因となる。前者は、過大評価にも過小評価にもつながる可能性があるが、後者は、過小評価の可能性を生む。ただし、いずれも誤差は10%以内であると考えられる。

e) I-129 と I-131 との相関

I-127 及び I-129 の分析はどの試料に於いても十分に検出できた。得られた土壌中の I-129 濃度と既に測定されている I-131 濃度と比較し、両者の相関を求めた。分析結果については次章で述べる。

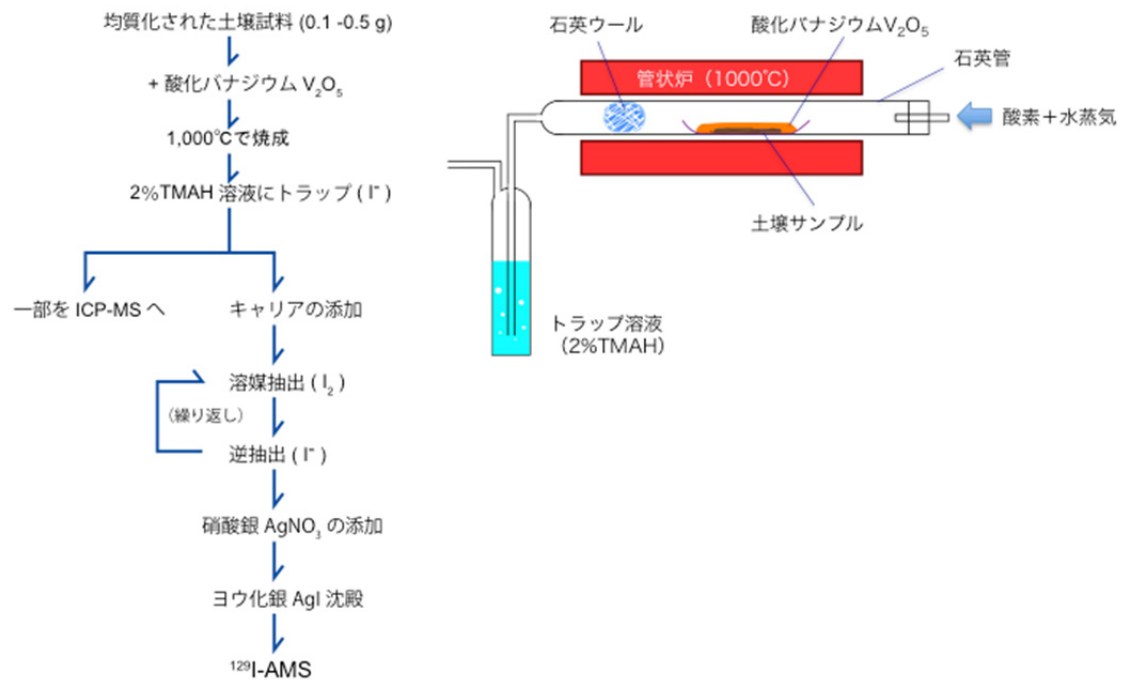


図 4.1-1 ヨウ素の化学分離の土壌前処理の流れと焼成のイメージ

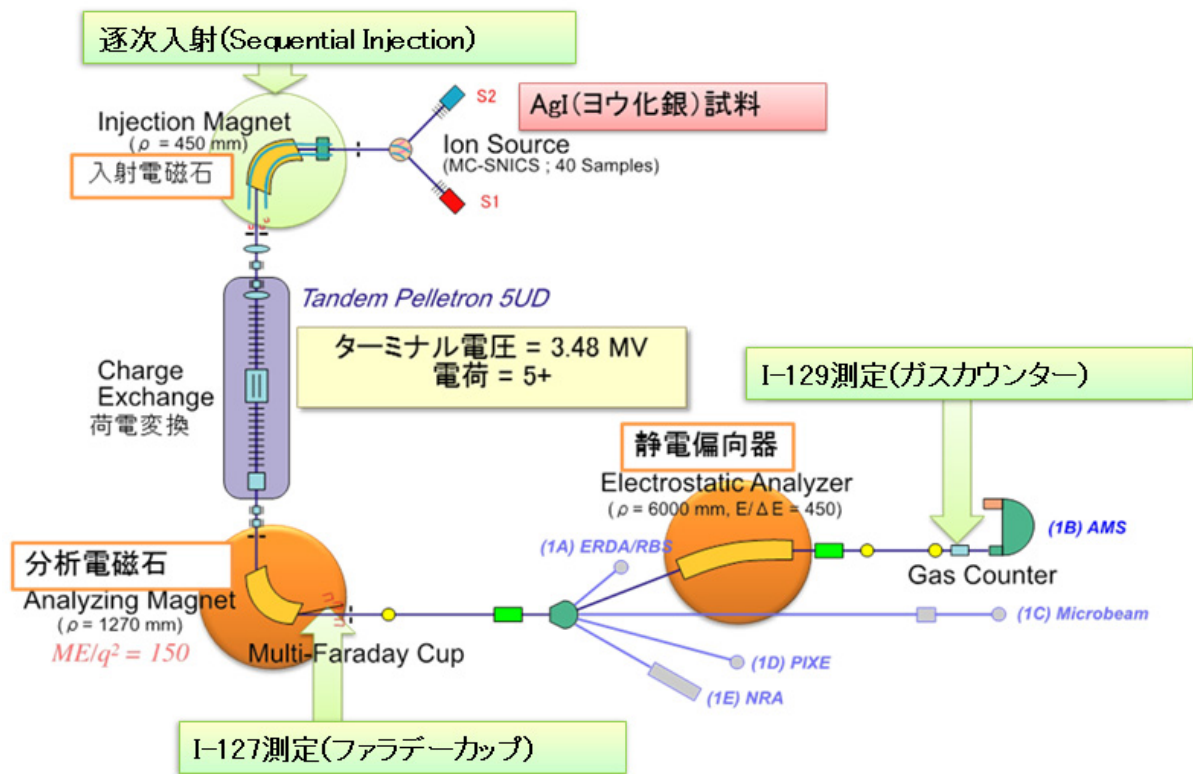


図 4.1-2 東京大学タンデム加速器研究施設における I-129-AMS システムの概要

表 4. 1-1 I-129 の分析結果およびそれから計算された I-129 と I-131 の沈着量 (Bq/m²)

通し 番号	調査箇所	試料 番号	市町村名	当該試料の I-131沈着量 (6/14補正)	I-131沈着 量平均 (6/14補正)	マップ 上の表 記	サンプルの I-129濃度 (mBq/kg)	I-129 Bq/m ²	最大/平均 補正 Factor	(I-129→) I-131Bq/m ² ※I131 =9368 * I129	(I-129→) I-131Bq/m ² ※平均Factor を考慮
1	42N40	1	伊達市	2166	1279	○	9.63	0.210	1.69	1968	1162
2	42N44	4	福島市	2072	1694	○	2.66	0.150	1.22	1402	1146
3	38N22	4	飯舘村	1786	1462	○	3.58	0.132	1.22	1239	1014
4	38N36	3	伊達市	2291	1657	○	7.67	0.295	1.38	2767	2001
5	38N44	4	福島市	3385	2928	○	6.17	0.313	1.16	2935	2539
6	36N40	5	福島市	1746	1591	○	2.46	0.154	1.10	1445	1317
7	36N44	5	福島市	2206	1658	○	2.45	0.177	1.33	1659	1247
9	26N24	5	飯舘村	4612	3528	○	7.12	0.329	1.31	3083	2358
13	24N18	5	飯舘村	4297	3702	○	20.60	0.608	1.16	5700	4911
15	22N10	2	南相馬市	3510	1467	○	6.71	0.275	2.39	2578	1078
18	18N18	5	浪江町	13197	10006	○	32.26	1.339	1.32	12543	9510
19	18N24	4	浪江町	5135	4654	○	12.80	0.627	1.10	5872	5322
21	18N26(浪江)	3	浪江町	5836	3637	○	4.37	0.224	1.60	2096	1306
22	18N38	5	二本松市	892	538	○	1.78	0.065	1.66	609	367
23	16N18	3	浪江町	24848	19451	○	57.08	2.391	1.28	22403	17537
24	16N22	2	浪江町	7277	5084	○	9.41	0.510	1.43	4782	3341
25	14N20	3	葛尾村	10539	7345	○	30.46	0.746	1.43	6990	4872
26	22S2	2	広野町	2252	1819	○	9.17	0.341	1.24	3190	2577
27	22S6	3	檜葉町	5467	3247	○	18.52	0.674	1.68	6313	3750
28	24S4	4	広野町	1869	1490	○	2.42	0.182	1.25	1704	1358
29	24S6	5	広野町	2911	2166	○	8.57	0.337	1.34	3161	2352
30	26S6	4	広野町	1673	1141	○	10.81	0.704	1.47	6599	4501
31	28S2	3	広野町	4653	2070	○	10.98	0.506	2.25	4744	2110
32	30S6	2	いわき市	1762	1518	○	3.38	0.208	1.16	1952	1682
33	32S4	3	いわき市	1055	747	△	2.99	0.120	1.41	1124	796
34	34S6	4	いわき市	703	634	○	2.24	0.095	1.11	889	802
35	46S6	2	いわき市	1409	964	○	1.14	0.055	1.46	512	350
36	48S10	5	いわき市	1117	818	○	1.24	0.081	1.37	760	557
37	50S4	5	いわき市	2466	1739	○	5.89	0.263	1.42	2460	1734
38	52S8	5	いわき市	1174	718	○	1.25	0.071	1.64	667	408
39	52S12	5	いわき市	2427	1723	○	4.55	0.252	1.41	2357	1673
40	58S8	1	いわき市	1333	799	○	1.16	0.078	1.67	728	436
41	60S28	4	いわき市	897	815	○	3.17	0.116	1.10	1088	988
42	52N42	1	桑折町	2328	1838	△	1.91	0.098	1.27	920	726
43	48N36	3	伊達市	1308	1045	△	2.17	0.096	1.25	898	717
44	46N48	3	福島市	1948	1283	△	5.06	0.193	1.52	1809	1192
45	44N40	1	伊達市	2900	1833	△	3.21	0.181	1.58	1699	1074
46	42N48	1	福島市	2306	1320	△	3.26	0.161	1.75	1512	865
47	40N38	2	福島市	5490	2934	△	39.51	1.254	1.87	11750	6280
48	38N24	5	飯舘村	3433	2249	△	6.06	0.315	1.53	2947	1931
49	38N28	1	飯舘村	3579	2175	△	4.71	0.271	1.65	2536	1541
50	36N24	4	飯舘村	4463	2604	△	4.43	0.283	1.71	2647	1545
51	34N26	2	飯舘村	3270	2178	△	6.28	0.349	1.50	3265	2175
52	34N36	3	伊達市	2933	1930	△	7.92	0.240	1.52	2249	1480
54	32N26	5	飯舘村	4557	3577	△	6.32	0.384	1.27	3599	2825
55	32N48	2	福島市	1552	1069	△	3.57	0.109	1.45	1019	702
56	30N22	3	飯舘村	3536	1706	△	6.17	0.264	2.07	2475	1194
58	30N44	4	福島市	1288	708	△	2.69	0.122	1.82	1140	627
59	30N48	2	福島市	1327	929	△	2.07	0.110	1.43	1032	722
64	24N10	4	南相馬市	2165	975	△	3.13	0.160	2.22	1503	677

表 4. 1-1 I-129 の分析結果およびそれから計算された I-129 と I-131 の沈着量 (続き)

65	24N20	2	飯舘村	4210	2368	△	12.76	0.521	1.78	4876	2743
66	24N32	5	川俣町	1548	1179	△	2.74	0.137	1.31	1288	981
68	24N38	3	二本松市	1450	1054	△	2.58	0.150	1.38	1409	1024
69	22N18	3	飯舘村	3638	2900	△	7.52	0.416	1.25	3899	3108
70	22N26	5	飯舘村	4983	2962	△	18.66	0.706	1.68	6611	3930
72	16N26	5	浪江町	1615	1198	△	1.99	0.117	1.35	1094	812
73	14N44	3	二本松市	1993	1721	△	4.63	0.174	1.16	1631	1408
74	12N18	5	葛尾村	5646	2996	△	13.58	0.652	1.88	6112	3244
75	12N22	2	葛尾村	2364	1492	△	6.14	0.278	1.58	2603	1643
76	12N40	1	二本松市	957	702	△	1.63	0.065	1.36	610	448
77	28S6	5	広野町	3917	2045	△	4.71	0.291	1.92	2729	1425
79	36S6	5	いわき市	482	379	△	1.47	0.082	1.27	765	602
80	36S8	3	いわき市	1546	1091	△	5.02	0.251	1.42	2347	1657
81	38S4	4	いわき市	1176	1016	△	4.21	0.105	1.16	979	846
82	40S4	2	いわき市	1034	762	△	1.90	0.147	1.36	1381	1018
83	42S6	4	いわき市	975	726	△	1.87	0.090	1.34	844	629
84	42S10	4	いわき市	2422	1585	△	7.85	0.347	1.53	3252	2128
85	44S4	2	いわき市	1033	835	△	1.62	0.116	1.24	1084	876
86	44S6	4	いわき市	1963	1396	△	2.93	0.166	1.41	1551	1103
87	44S10	2	いわき市	1107	568	△	2.40	0.149	1.95	1393	715
88	46S12	3	いわき市	1035	616	△	2.67	0.169	1.68	1587	944
89	46S14	2	いわき市	1123	694	△	2.15	0.078	1.62	734	454
90	46S16	1	いわき市	867	737	△	3.07	0.111	1.18	1039	883
91	48S6	1	いわき市	2546	2014	△	2.79	0.193	1.26	1807	1429
92	48S16	5	いわき市	1413	845	△	1.36	0.077	1.67	717	429
93	50S16	2	いわき市	788	534	△	1.57	0.079	1.48	736	499
94	52S4	2	いわき市	1901	1192	△	5.46	0.166	1.59	1560	978
95	52S10	1	いわき市	1021	697	△	1.04	0.058	1.46	548	374
96	52S14	2	いわき市	1304	829	△	4.47	0.131	1.57	1227	780
97	54S6	2	いわき市	1768	1116	△	2.64	0.128	1.58	1200	758
98	58S10	4	いわき市	1281	772	△	1.80	0.091	1.66	848	511
99	58S28	5	いわき市	934	636	△	1.46	0.071	1.47	668	455

(注：欠番あり)

(4) 分析結果

a) 土壤中 I-129 の分析結果および I-131 との相関

合計 82 試料 (82 地点) について I-129 の分析データが得られた。また、分析値の質の検証を行うために、幾つかの試料において再分析も行った。値はほぼ±10%以内におさまっている。更に、スタンダード試料やブランク試料の分析を行い、データの信頼性を担保した。

AMS 測定で得られた I-129/I-127 比のデータと、ICP-MS 測定で得られた I-127 の濃度の値から、試料に含まれる I-129 の濃度 (Bq/kg) を求めた。その値に、それぞれの測定試料の重量と体積を考慮し、単位面積あたりの I-129 の沈着量を計算した。

但し、試料重量が 50g 程度しかないものや、石が多い試料もあり、それらの値から面積あたりの沈着量を計算する場合、誤差が大きい可能性もある。U-8 容器内の試料の均一性に関しては、必ずしも良くないことが考えられたので、容器からとりだし、かなり均一にしてから、メノウのボールミルを用いて粉末試料とした。このため、I-129 の分析用の粉末試料に関しては均一性が良いと考える。

AMS 分析で得られた I-129 の濃度 (Bq/kg) および、それから単位面積に換算した沈着量 (Bq/m²) を表 4. 1-1 に示す。また、表の中には、それらの試料中の I-131 の値 (Bq/m²) を示した。なお、I-131 の濃度は、第 1 次分布状況調査で得られたマップに示されている日時 (6 月 14 日) に減衰補正したものをを用いた。

I-129 と I-131 の沈着量の間に関係があるか調べるため、これらを図 4. 1-3 にプロットした (単位は「Bq/m²」である)。幾つかのばらつく点はあるが、I-129 と I-131 の間に正の相関が見られた。全試料 (82 試料) で相関を計算した場合の傾き (I-131/I-129 比) と相関係数 (R²) は 9368 (R²=0. 84) であった。

I-129 および I-131 の関係を求める場合、上述した相関を調べる方法以外に、試料それぞれについて I-131/I-129 比を求めそれらの平均を取る方法が考えられる。しかし、I-129 および I-131 の濃度が低い試料では誤差が大きくなりがちであり、また、遅い時期に測定が行われた試料では I-131 がかなり減衰しており測定誤差なども大きいと考えられる。濃度が低い試料の I-131/I-129 比は変動が大きい傾向が見られた。そこで、今回は上述した図 4. 1-3 から求めた傾き「9368」を用いることとした。既に述べたが、I-129 と I-131 は R² をみても 0. 84 と良い相関を示している。

今回の調査では、I-131/I-129 比に関しては上述の傾きを使うことが妥当と考えられるが、データのばらつきもあるので、今後もう少し I-131 測定済みの試料を分析し、データ数を増やして行くことが望まれる。なお、誤差の原因として考えられるのは以下の点である：試料の不均一性 (I-131 測定では U-8 容器に入った全量を測るが、I-129 分析ではその一部を均一にし測定)、I-131 は 1 箇所だけでなく複数の機関で測定していることによる差、I-129 分析過程における誤差の可能性、などが考えられる。

I-131/I-129 比に地域差があるか否かは、バラツキがある程度あるため、誤差範囲を越えた有意な差は現状では認められなかった。このことは、もしも放出源により I-131/I-129 に差があったとしてもそれほど大きなものではないと考える。この点も今後データを増やし調べることで評価できると考える。また、ORIGEN コードなどを用い炉内で生成した様々な核種の量を計算しているグループもあるので、今後それが発表されれば、参考になる。

b) I-129 の分析結果から I-131 の沈着量の推定

I-129 の分析結果に上述の I-131/I-129 比 (9368) を掛け合わせ計算した 82 試料についての I-131 の推定値を表 4. 2. 3-1 に示す。これらの値はももとの測定値 (その地点における公表されている I-131 の平均値) とは良い相関を示しているが、全般的に高い傾向にあった。これは、次のように考えられる。すなわち、公表されている I-131 値は各地点で 5 点とった試料を Ge 半導体検出器で測定した平均値である (場所によっては幾つか検出限界以下の値もある)。一方、I-129 を分析した試料は同一地点の試料の中でも一番高い値のものがほとんどである。そのため、I-129 の値に上で求めた I-131/I-129 比を掛けただけでは、その地点の平均値よりは高い値になる。そこで、当該試料の I-131 の濃度とその地点での I-131 の平均値との比を求め、それを係数として I-129 から求めた I-131 に掛け合わせた。そのようにして求めた I-131 沈着量 (Bq/m²) を表 4. 1-1 の表の右側のカラムに示す。

得られたデータをマップにプロットした (図 4. 1-4)。図 4. 1-4 は今回の I-129 の分析値を用い

マップ化したものである。この結果からも、北西方向に高い値の地域があり、また、南方向にも高い地域が見られた。なお、I-129 から求めた I-131 は上述したように各地点での平均値を考慮して換算してある。その結果、この図から分かるように、すでに公表済みのマップと同様な傾向が見られた。

このことから、I-131 が検出されていなかった地域においても I-129 の分析をすることで、I-131 のマップの精緻化に貢献できると考える。

c) 放出されたテルル 129 (Te-129m) から生じるヨウ素 129 の影響について

原子炉内で核分裂により Te-129m (半減期：33.6 日) が生成されている。Te-129m は壊変して I-129 が生ずる。Te-129m は大気中にも放出され、土壌表面にも沈着しているため、I-129 の値が高くなる可能性がある。そこで、Te-129m からの寄与がどの程度あるか検討した。

既に得られている土壌中の Te-129m の測定データを見ると、その濃度は高いところで 673,000Bq/m² 程度である。この値を基に原子数を求めると、

$$\text{Te-129m} \quad 33.6\text{d} \quad \lambda = 0.693 / (33.6 \times 24 \times 60 \times 60) = 0.24 \times 10^{-6}$$

$$N = A / \lambda = 673,000 / 0.24 \times 10^{-6} = 2.8 \times 10^{12} \text{ 個/m}^2 \quad (\text{I-129 も同数生成される}) \dots \langle a \rangle$$

同一試料中の I-129 の値は、2.12 Bq/m² であり、これより原子数を計算すると

$$N = A / \lambda = 2.12 / 1.4 \times 10^{-15} = 8.0 \times 10^{14} \text{ 個/m}^2 \quad \dots \langle b \rangle$$

これらの値の比は、a/b = 1.9 x 10⁻³ であり、Te-129m からの寄与は 0.3%程度である。

その他、幾つかの試料について、Te-129m の含有量とそれから生成する I-129 の量 (原子数) を計算し、今回測定した I-129 に影響を与えているか計算した。それらの結果を表 4.1-2 にまとめる。

表4.1-2より、Te-129mの原子数 / I-129の原子数比は 約0.1~0.2%程度である。この値は、平成23年6月14日の時点であるため、Te-129mの半減期を考慮し事故時(平成23年3月11日)に換算すると約1%程度となる。つまり、Te-129m起源のI-129は約1%加わる程度である。これらの結果から、I-129測定値に基づくI-131の推定におけるTe-129mからの影響は無視しうると考える。

表 4.1-2 Te-129m の崩壊で生ずる I-129 の寄与 (H23/6/14 の時点における計算例)

試料 番号	A Te-129m の 降下量(測定 値) Bq/m ²	B Te-129m から 生じた I-129 の原子数 atom/m ²	C I-129 の降下 量(測定値) Bq/m ²	D I-129 の原子 数 atom/m ²	B/D Te-129m から 生じた I-129 の割合 (%)
4 (38N36)	1.12E+05	4.67E+11	0.290	2.07E+14	0.22
23 (16N18)	6.73E+05	2.80E+12	2.120	1.51E+15	0.18
32 (30S6)	5.56E+04	2.32E+11	0.200	1.43E+14	0.16
47 (40N38)	2.31E+05	9.62E+11	1.120	8.00E+14	0.12
93 (50S16)	2.20E+04	9.18E+10	0.077	5.50E+13	0.17

(4) まとめ及び今後の予定

a. 得られた結果から、I-131/I-129 比は良い相関を示すと考えられる。このことから、I-129 の放射能濃度測定を通じた I-131 の土壌濃度推定の可能性が示唆された。

b. 今回 U-8 容器に保管されている試料を実際に取り出し、分析をしてみると、かなり不均一に詰められている試料や、石が多い試料もある。そのため、I-131 分析と I-129 分析では試料の均一性が異なることによる差が生じる可能性がある。また、得られた I-129 の分析値 (Bq/kg) を面積あたりの値 (Bq/m²) に変換する上で誤差が大きいものもあると考える。今後、¹³¹I/¹²⁹I のデータも更にとり、精度を高めていく予定である。(なお、代表的な I-131/I-129 比を求める場合は、濃度も比較的高く測定誤差も少ない試料を選び解析する必要がある。))

c. 今回は、82 試料の分析結果の中で得られた、I-131/I-129 放射能比 (I-129 と I-131 の相関をとった傾き) は 6 月 14 日の時点で、9368 ($R^2=0.84$) であった。

推定した I-131 の値を第 1 次分布状況調査で得られた I-131 のマップにおとしたところ、同様な傾向が見られた。このことから、今後、I-131 が測られていなかった地域においても I-129 の分析をすることで、I-131 のマップの精緻化に貢献できると考える。

d. ヨウ素の土壌への吸着力は強いことが知られており、土壌-溶液間の分配係数 (Kd) は通常数百~数千である (Muramatsu et al. 1990, Yoshida et al. 1992)。このことから地面に沈着した放射性ヨウ素のほとんどが表層土壌に吸着されて留まっていると推定される。その為、文科省の土壌サンプリングが行われた平成 23 年 6 月 14 日の表層 5cm のデータから I-131 が沈着した平成 24 年 3 月後半の値に戻すには、物理的減衰を補正することである程度評価できると考えられる。

e. 以上のことから、平成 23 年 6 月 14 日時点の I-129 に対する I-131 の沈着量の比率を物理的減衰を考慮して算出することで、事故発生初期の I-131 の土壌濃度マップの作成がある程度可能であると考えられる。他方で I-131 がいつの時点で土壌に沈着したのかわからないため、基準日の設定には検討が必要である。また、ヨウ素の土壌への吸着力は強いと考えられるが、平成 23 年 6 月 14 日までの時点で 5cm 以深に移行した I-129 がどの程度あるか、深度分布を調べ、評価することも今後の検討課題の一つである。

f. 今後、土壌中の I-129 濃度が低い試料の分析をすることも出てくるので、事故以前に核実験や再処理の影響で蓄積していた I-129 の寄与を評価することも大切である。事故以前に福島県で採取された土壌が保管されていれば、それらも分析することが望ましい。

g. 幾つかのグループが異なる AMS 施設を使う場合を考え、試料の前処理法、分析法、スタンダード、データの処理法を統一することが大切。たくさん試料の分析を行う場合は、しっかりと計画を立てネットワークを組んで実施していく必要がある。(注: 現在日本で I-129 の分析ができる

AMS 施設は、東大と日本原子力研究開発機構むつ事務所の 2 か所であり、海外でも限られた施設しか I-129 の分析を行っていない。)

h. 新しい分析法の試み：コリジョンタイプの ICP-MS を用いて I-129 の濃度が高い試料については測定ができる可能性もある。試料の前処理法の改良や分析条件を最適化することで、濃度が高い警戒区域の試料などについては対応可能になることが期待される。

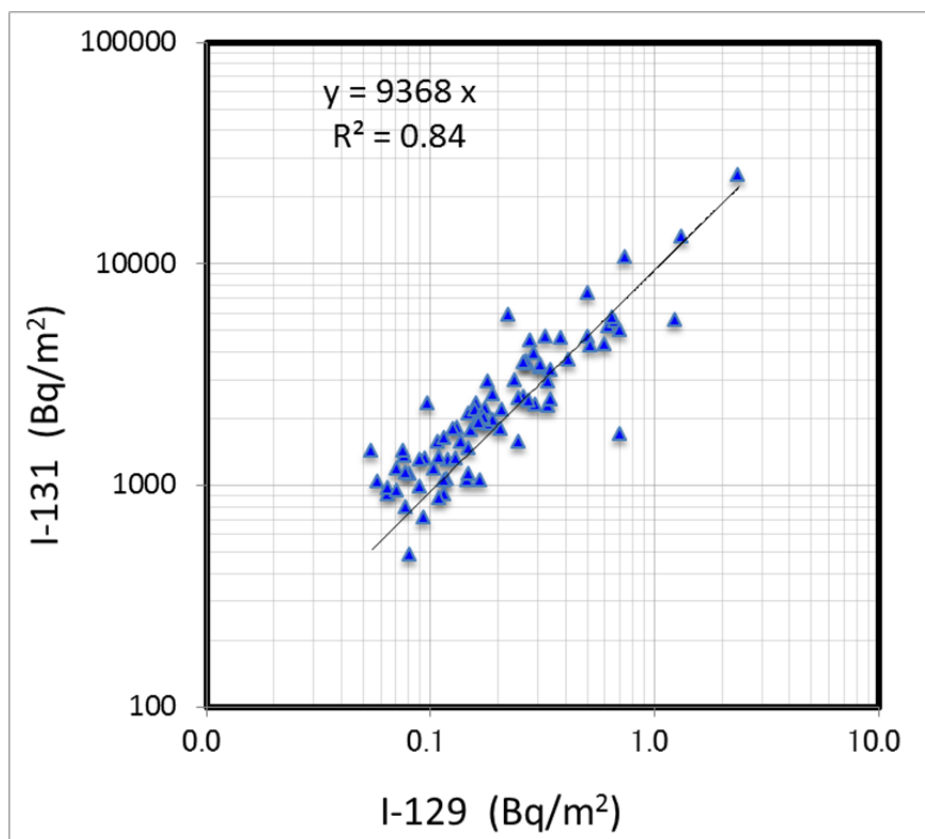


図 4.1-3 I-129 分析結果と I-131 の相関 n=82
(平成 23 年 6 月 14 日時点に放射能濃度を換算)

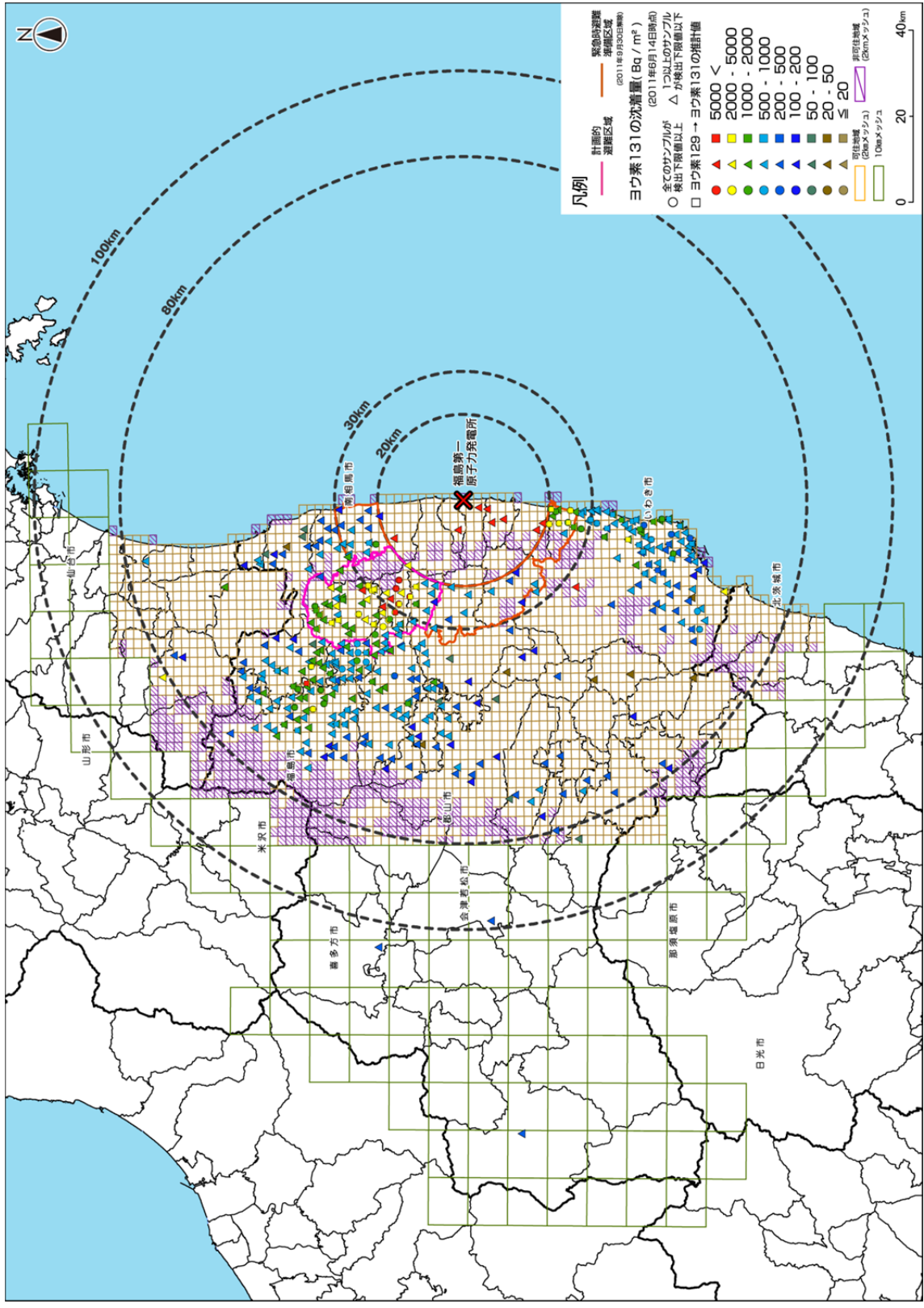


図 4.1-4 ヨウ素 131 の土壌濃度マップ（基準日：6月 14 日）（ヨウ素 129 とヨウ素 131 の
 比率の平均値から算出したヨウ素 131 の推計値含む）（各箇所で採取した複数試料の沈着量
 の平均値に対する当該試料のヨウ素 131 の沈着量の比率を考慮）