

土壌試料中のヨウ素-129 分析による福島事故時のヨウ素-131 降下量の復元



太田 朋子

1 はじめに

2011年の福島原子力災害時に首都圏でヨウ素-131が水道水より検出されたことは記憶に新しい。ヨウ素-131(半減期8日)は短半減期の放射性核種のため、原子力災害時にはヨウ素-131の大気エアロゾル中の濃度や降下量の実測データが欠如している地域もある。従って、大気中のヨウ素-131濃度が不明な地域も多く、ヨウ素-131による内部被ばくの評価を目的とした大気中のヨウ素-131濃度の再現手法が渴望されている。大気中のヨウ素-131濃度の再現手法として最も有効な手法は、震災当時のエアロゾル中のヨウ素-129/ヨウ素-131同位体比(以下 $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比)による評価であろう。福島近傍の県では、Doiらが茨城県つくば市の国立環境研究所敷地内で2011年3月15日よりエアロゾル中の放射性核種分析(ヨウ素-131, ヨウ素-132, ヨウ素-133などの短寿命放射性核種を含む)を行っているが¹⁾、福島県内の2011年3月中旬の大気エアロゾル中の放射性核種の定量値はない。よって、大気中エアロゾル中の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比から事故当時の福島県内のローカルな大気中のヨウ素-131濃度情報を得ることは困難である。

現在我が国で、放射性プルーム通過時の大気中のヨウ素-131濃度の再現手法の一つとして最も注目されている手法は、表層土壌中の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比による評価である²⁾³⁾。大気中の放射性ヨウ素が乾性沈着および湿性沈着により表層土壌に降下した後、地表面のヨウ素同位体は土壌水の浸透速度よりはるかに遅いため、表層土壌に捕捉されやすい。よって、表層土壌中の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比は福島県内のローカルな大気中のヨウ素-131濃度情報を得る指標になり得る。ヨウ素-129は、半減期が1570万年の放射性核種であり、天然起源のものと人為起源のものがある。天然起源のヨウ素-129は大気中のXeと宇宙線の核破砕反応および地殻中のウラン-238の自発核分裂反応により極微量に環境中で生成される。

Reconstruction of Deposition Record of Iodine-131 at Fukushima NPP Accident Deduced from I-129 in Soil Samples.

一方、人為起源のヨウ素-129は核実験および再処理工場の原子力施設より環境中へ放出された。今回の福島第一の原子力災害でも、ヨウ素-131とともにヨウ素-129が大気中へ放出された。

この誌面では、土壌試料中のヨウ素-129の前処理から測定までの手法、および $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比をベースとしたヨウ素-131の降下量の復元手法を紹介する。

2 環境試料中のヨウ素-129の定量手法

ヨウ素-131は γ 線スペクトロメトリーによる放射能測定が可能であるが、ヨウ素-129は半減期が長い核種であるため、環境試料中のヨウ素-129の放射能測定は容易ではない。環境試料中のヨウ素-129は放射化学中性子放射化分析法、加速器質量分析法で測定を行うことができる。近年では、トリプル四重極誘導結合プラズマ質量分析計(ICP-MS, Agilent Tec.)によるヨウ素-129の測定も可能となったが、ヨウ素-129の測定可能な濃度レベルは0.1 pg オーダーである⁴⁾。表1にヨウ素-129の測定手法に応じたヨウ素-129の検出レベルと測定試料中のヨウ素-129/ヨウ素-127同位体比(以下、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比)レベルを記す⁵⁾⁶⁾。

上記三つの方法を比較した場合、放射化学中性子放射化分析法は他の二つより ^{129}I の検出下限値が高い。この手法を用いた場合、ヨウ素-129の降下量が少ない地域ではヨウ素-129の検出が困難であるため、測定可能な地域は限られる。また、放射化学中性子放射化分析法およびトリプル四重極誘導結合プラズマ質量分析法では、同重体や多原子イオンの干渉を避けるために化学分離が必要となり、分析までに時間を要す。

一方、加速器質量分析法による土壌中のヨウ素-129の定量は、他の二つの手法と同様に化学分離が必要であるものの、同位体希釈法を利用することにより、必要な土壌量は僅か数100 mgで、アトグラムレベルのヨウ素-129の高感度分析が可能である。

ここでは、加速器質量分析法による土壌中のヨウ素-129の前処理から測定までのプロセスを図1に示す。土壌試料を均質化し、0.1 g程度の土壌試料をアルミナボードに分取する。土壌試料へ五酸化バナジウムを添加し、試料を充填したアルミナボードを燃焼管に設置する。土壌試料を管状炉で1000℃で30分間加熱を行い、酸素ガスを流入させ、試料より揮発したヨウ素同位体を水酸化テトラメチルアンモニウム(以下、TMAH)

表1 各種分析法による土壌中のヨウ素-129の検出下限レベルおよび分析に必要な土壌量

測定手法	^{129}I 検出下限レベル	$^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$	土壌量(g)	文献
放射化分析	$\sim 10^{-2}$ mBq	10^{-9}	100	5)
加速器質量分析	~ 10 ag*	3×10^{-14}	0.1-0.2 0.2-0.5	3) 2)
トリプル四重極 ICP-MS (Agilent, 8800x)	0.1 pg (検出限界 0.071 ng/L)	—	2	6) 4)

* $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比と AgI 量より算出

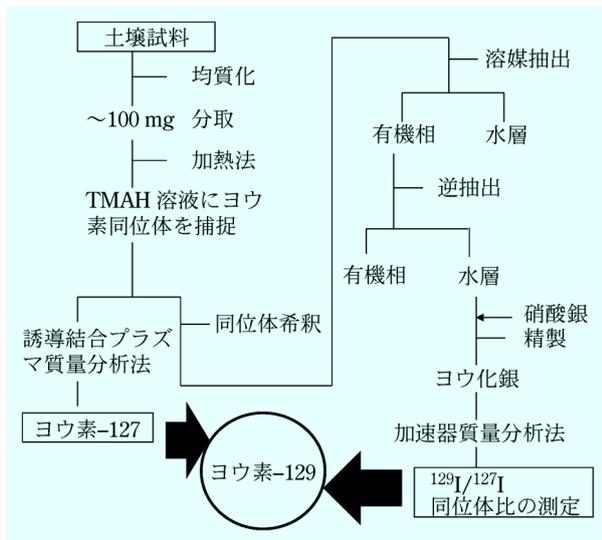


図1 土壤中のヨウ素-129の定量分析までの手順

溶液（還元剤を含む）に捕捉させる。捕捉したヨウ素同位体を含む TMAH 溶液は加速器質量分析法で $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比を測定するための試料とヨウ素-127 分析用の試料に供す。ヨウ素-127 は誘導結合プラズマ質量分析法で定量を行う。 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比の分析に供する試料溶液は、同位体希釈分析を行うためにキャリアの添加を行う。核実験後の環境試料中の $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比の同位体希釈分析を行うケースでは、キャリアは $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比が 1.8×10^{-13} のヨウ素試薬を用いる。キャリアを添加後の溶液中に HNO_3 および酸化剤 (NaNO_2 もしくは H_2O_2) を添加し、試料水中のヨウ素を I_2 に酸化し、 I_2 を有機溶媒 (CCl_4 など) に捕捉させる。次に、試料溶液から有機溶媒の分離を行い、有機溶媒に還元剤を含む水溶液 (Na_2SO_3 など) を添加し、有機層に捕捉された I_2 を水層へ逆抽出させる。水層に含有されたヨウ素に AgNO_3 溶液を添加した後に、 AgI の分離精製を行う。 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比は加速器質量分析計で測定を行う。加速器質量分析法と誘導結合プラズマ質量分析法で得られた $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比とヨウ素-127 の濃度より、土壤試料中のヨウ素-129 濃度を算出する。

3 原子力災害後の福島県内の土壤中のヨウ素-129

Muramatsu ら²⁾ と Miyake ら³⁾ は 2011 年に福島県内で得られた表層土壌コア（直径 5 cm × 高さ 5 cm）中のヨウ素-131 を γ 線スペクトロメトリー、 $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比を加速器質量分析法、ヨウ素-127 を誘導結合プラズマ質量分析法で実測を行い、土壤中の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比を得た。福島県内の土壌より得られたヨウ素-129 とヨウ素-131 の関係式 (Muramatsu ら²⁾ のヨウ素-131 の補正は 2011 年 6 月 14 日) および $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比 (2011 年 3 月 11 日に補正) を表 2 に掲げる。

得られた土壌中の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比は、20.8²⁾ と 22.3 ± 6.3³⁾ である。一方、ORIGEN2 code (燃焼計算コード)⁷⁾ を用いた 1 号炉、2 号炉、3 号炉の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比は 31.4, 21.9, 20.8 であり、ORIGEN2 code で算出さ

表 2 福島表層土壌中の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比

$(^{131}\text{I}-^{129}\text{I})^*$	試料数	$^{129}\text{I}/^{131}\text{I}^{**}$	文献
$Y=9.37 \times 10^3 X$	82	20.8	2)
—	28	22.3 ± 6.3	3)

X: ヨウ素-129 (Bq/m²), Y: ヨウ素-131 (Bq/m²),
*: ヨウ素-131 の補正は 2011 年 6 月 14 日
** 2011 年 3 月 11 日に補正

れた $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比と福島県の表層土壌中の $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比はおおむね一致している²⁾。

ヨウ素-131 降下量が未知な土壌中のヨウ素-129 の降下量を加速器質量分析法で実測し、 $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比をベースとして再現されたヨウ素-131 のコンターマップ (土壌の汚染マップ) は、土壌中のヨウ素-131 は放射性セシウム (セシウム-137, セシウム-134) の沈着量のコンターと異なる傾向を示し、大気中のヨウ素-131 と放射性セシウムの挙動が異なると推測された。

4 おわりに

表層土壌に残存したヨウ素-129 を加速器質量分析法により $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ 同位体比を実測し、 $^{129}\text{I}/^{131}\text{I}$ 同位体比をベースにヨウ素-131 降下量を再現する試みが行われ、ヨウ素-131 の降下量が不明な地域を対象としたヨウ素-131 の再現が行われつつある。しかし、ヨウ素-129 の降下量の小さい地域では、福島事故以前に降下した global fallout によるヨウ素-129 の存在は無視することができないため、global fallout レベルのヨウ素-129 を考慮したヨウ素-131 の再現手法が望まれる。

文 献

- 1) T. Doi, K. Masumoto, A. Toyoda, A. Tanaka, Y. Shibata, K. Hirose: *J. Environ. Radioact.*, **122**, 55 (2013).
- 2) Y. Muramatsu, H., Matsuzaki, C. Toyama, T. Ohno: *J. Environ. Radioact.*, **139**, 344 (2015).
- 3) Y. Miyake, H. Matsuzaki, T. Fujiwara, T. Saito, T. Yamagata, M. Honda, Y. Muramatsu: *Geochem. J.*, **46**, 327 (2012).
- 4) 中野かずみ, 鹿籠康行, 杉山尚樹, 角田伸一郎: 第 72 回分析化学討論会,
- 5) Y. Muramatsu, Y. Ohmomo: *Sci. Total Environ.*, **48**, 33 (1986).
- 6) T. Ohno, Y. Muramatsu, Y. Shikamori, C. Toyama, N. Okabe, H. Matsuzaki: *J. Anal. At. Spectrom.*, **28**, 1283 (2013).
- 7) 西原健司, 岩本大樹, 須山賢也: 福島第一発電所の燃料評価, JAEA-Data/code 2012-018 (2012).



太田朋子 (Tomoko OHTA)

北海道大学大学院工学研究院 (〒060-8628 北海道札幌市北区北 13 条西 8)。明治大学大学院理工学研究院工業化学専攻修了。博士 (工学)。《現在の研究テーマ》我が国の樹木年輪への放射性核種の取り込みメカニズムの解明。《趣味》ハーブ。E-mail: tomohta@eng.hokudai.ac.jp