

## 課題名⑥：ヨウ素 129 の放射能濃度測定によるヨウ素 131 の土壤濃度マップの精緻化

代表研究者：村松委員(学習院大学)

## 1. 調査の目的

- 第 1 次調査において、福島第一原子力発電所から 100 km 圏内及びその圏外の福島県について、ヨウ素 131 (I-131) の土壤濃度マップを作成した。しかし、試料採取終了日が 6 月 14 日であり、測定は主として 6 月後半から 7 月に行われたため、I-131 の減衰が進んでおり、I-131 が検出されない試料が多数存在した。なお、20 km 圏内の濃度が高いと考えられる試料であっても、放射性セシウムに起因するコンプトン効果の影響でスペクトルのバックグラウンドが上がり、I-131 の有意な測定結果が得られないものが多かった。
- 他方で、I-131 と同時に放出された同位体である、ヨウ素 129 (I-129) については半減期が 1570 万年と非常に長い為、I-129 の放射能濃度を求めて、I-131 の放射能濃度を推定できる可能性がある。(第 1 次調査では、調査数が少なかったため、明確な関係を得ることができなかった。)
- そこで、本調査では、第 1 次調査で採取した土壤試料を中心に、I-131 が定量されている試料を選び、ヨウ素の分画を化学分離した後、AMS(加速器質量分析計)を用いて、I-129 の濃度を測定する。その結果から、I-129 と I-131 の放射能濃度の関係を求める。I-129/I-131 の比が分かれば、第 1 次調査で I-131 が検出できなかった土壤試料を用い、それぞれの試料に含まれる I-129 を測定することで、当時の I-131 の濃度を推定できる。それにより、濃度マップの精緻化を図る。

## 2. 調査内容

本調査では、第 1 次調査で採取した土壤試料のうち、I-131 が測定されている試料を選び、それに含まれるヨウ素の分画を化学分離し、AMS 法で I-129/I-127 の比を測定する。(I-127 は安定同位体のヨウ素である。また、AMS 法は I-129 の濃度を測定するのではなく、I-129 / I-127 の比を測る。)I-127 の放射能濃度は ICP-MS 法で測定し、その値と AMS 法で求めた I-129 / I-127 の比から、試料中の I-129 の放射能濃度を求める。次に、第 1 次調査で測定した I-131 の放射能濃度と I-131 の放射能濃度の比を求める。

試料の調整と分析は複雑であり、技術と時間を要する。以下に概要を示す。

### (分析の概要)

- (a) 土壤試料を U8 容器より取り出し、ビニール袋中で時間をかけてもみほぐし、均一にする。石などがかなり入っていて均一にするのが難しいものもある。
- (b) ほぼ均一になった試料より、約 10g をとり乾燥させる。それを篩(2mm メッシュ)にかける。また、乾燥重量も測る。
- (c) メノウのボールミルで粉にする。
- (d) 粉末状にした試料 0.2-1g を取り、石英管に入れ酸素気流中で加熱(1100°C)する。
- (e) 揮発したヨウ素をトラップ溶液に捕集する。
- (f) トラップ溶液の一部を用い、学習院大学の ICP-MS を用い I-127 を測定する。
- (g) 残りのトラップ溶液を用い、溶媒抽出法などによりヨウ素の分画を分離・精製する。
- (h) 最終的には AgI の沈殿にし、AMS 測定用ターゲットを作成する。
- (i) 東京大学の AMS を用い I-129 / I-127 の比を測定する。
- (j) AMS の分析結果と ICP-MS の測定結果より、I-129 の濃度をもとめる。
- (k) 求めた I-129 濃度と、第 1 次調査で測定した I-131 の濃度を比較し、比を求める。

### 3. 調査地点

第1次調査でI-131が検出されている地点より約90試料を選び、分析に供する。また、その他、村松(学習院大)が独自に採取した試料でI-131が測定されているものや、福島県が4月に採取し測定した試料も参考にする。

### 4. 調査の進捗状況

第1次調査で採取した土壌試料については、現在、乾燥させ、篩にかけた後、粉碎している。乾燥重量を求める操作もあり、時間がかかっている。また、メノウのミルで粉末状にした試料については、化学分離をしているところである。

参考として関連する別なプロジェクトで既に開始している、村松や福島県が採取した土壌を用い、同様な処理をし、I-129を分析した。その結果とGe半導体検出器で測定したI-131の値を比較し、図1aにプロットする。また図1bは、低い濃度の部分を拡大したものである。これらの図を見ると、I-129とI-131の放射能濃度の間には良い相関があることが分かる。

### 5. 今後のスケジュール

現在行っている前処理や化学分離の作業を早く終わらせ、I-127の濃度をICP-MS法で測定し、I-129/I-127の比は東京大学のAMSを用い測定する。それから求めたI-129濃度と、第1次調査で測定したI-131濃度を比較し、I-129/I-131の比を求める。なお、資料の処理や測定は東京大学と連携して進める。また、分析データを増やすことにより、地域ごとにI-129/I-131の比に特徴があるかなどについての情報を得る。

### 6. 留意事項

(1)放出されたTe-129mからI-129が生じるが、それによる有意な影響は出ないか？

汚染土壌中のTe-129m濃度は高いところで1000Bq/kgとし、Te-129mの原子数を求めると：

$$\text{Te-129m} \quad 37.5\text{d} \quad \lambda = 0.693 / (37.5 \times 24 \times 60 \times 60) = 0.21 \times 10^{-6}$$

$N = A / \lambda = 1000 / 0.21 \times 10^{-6} = 4.8 \times 10^9$  個である。つまり、Te-129mが壊変してできたI-129は同じく、 $4.8 \times 10^9$  個である。

事故以前の一般的な表層土壌中のI-129の濃度は、0.001 Bq/kg 程度であるので、この場合のI-129の原子数を求めると、

$$\text{I-129} \quad 1.6 \times 10^7 \text{ y} \quad \lambda = 0.693 / (1.6 \times 10^7 \times 365 \times 24 \times 60 \times 60) = 1.4 \times 10^{-15}$$

$$N = A / \lambda = 0.001 / 1.4 \times 10^{-15} = 7.1 \times 10^{11} \text{ 個 である。}$$

Te-129mの原子数 / I-129の原子数 比 は

$$4.8 \times 10^9 \text{ 個} / 7.1 \times 10^{11} \text{ 個} = 0.0068 \text{ (つまり、Te-129mより0.7\%加わった計算)}$$

実際は事故により同時にI-129が降って土壌に加わっているので、Te-129mからの影響は更に小さいと考えられる。

(Te-129mを測定した試料が入手できれば、I-129も分析し、検証する予定である。)

(2)I-129は核実験や再処理からの影響を受け、以前から土壌中にある程度はバックグラウンドとして含まれている。そのバックグラウンド値を引く必要がある。今回の事故で降下したI-129の量が多い地域においては問題ないが、降下量が低い地域では、バックグラウンド値をどの程度に見積もるかは検討が必要である。

<参考資料>

土壤試料中のヨウ素-129 の分析結果:ヨウ素-129 とヨウ素-131 濃度の相関(暫定値)

ヨウ素-129 とヨウ素-131 濃度の相関を調べた予備分析の結果を以下に示す。  
試料は、村松研究室、福島県、恩田研究室などが採取した土壤を用いた。これらは別なプロジェクトで分析したデータであります。また、暫定値につき取扱を注意願います。

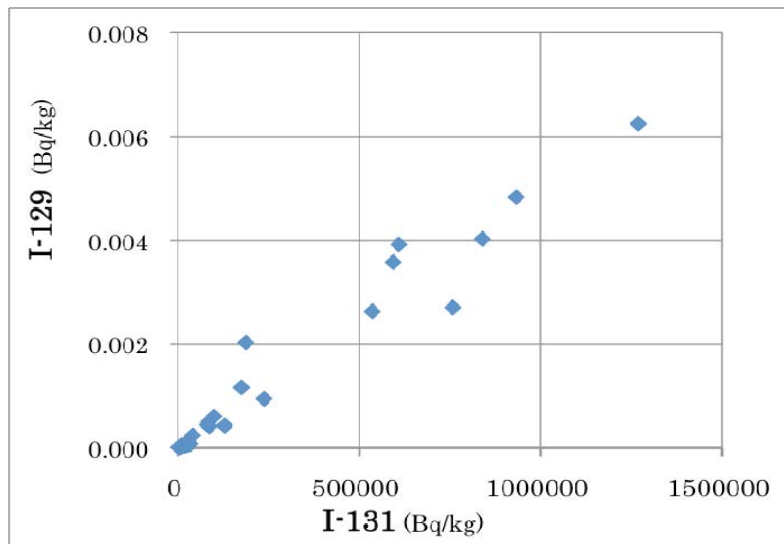


図1-a ヨウ素 129 とヨウ素 131 の相関(n-36)<暫定値> 減衰補正は 3 月 12 日

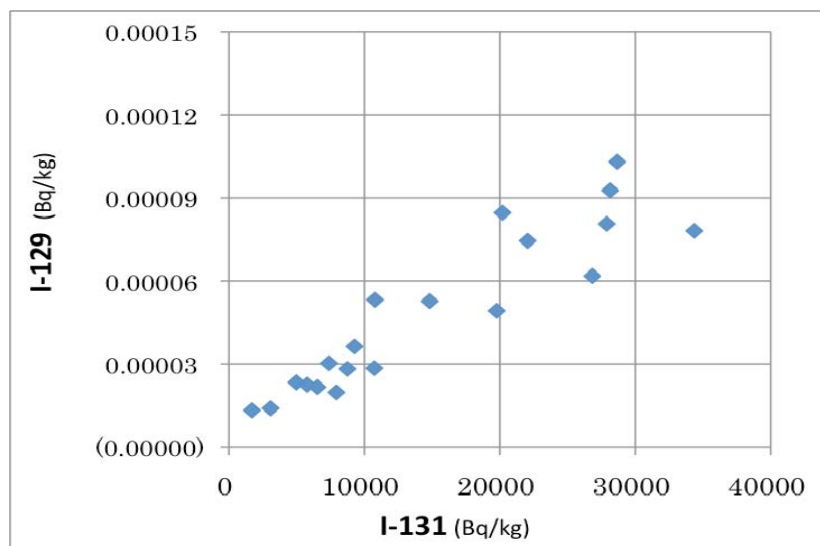


図1-b ヨウ素 129 とヨウ素 131 の相関 低濃度部分の拡大図 <暫定値>

# 第2次調査 ヨウ素129の調査箇所

(参考)

