

**ヒト曝露解析**  
**(平成 23～25 年度)**

## 目次

1	平成 23 年度の成果概要.....	1
1-1	大気中の放射性核種.....	1
1-1-1	試料の採取.....	1
1-1-2	事故後の主な放射性核種の挙動.....	2
1-1-3	放射性ヨウ素と放射性セシウムの挙動の違い.....	4
1-1-4	粒径別の放射能の粒径分布.....	5
1-2	セシウム選択性樹脂による水中溶存セシウムの定量.....	7
1-2-1	セシウム選択性樹脂の分析化学的特性評価.....	8
2	平成 24 年度の成果概要.....	10
2-1	常総地区における曝露解析.....	10
2-1-1	常総地区における室内じん中の放射性セシウム.....	10
2-1-2	住民被ばく調査の結果.....	13
3	平成 25 年度の成果概要.....	17
3-1	曝露源に関する解析.....	17
3-1-1	放射性 Cs の可溶性からみたダストの特徴と除染について.....	17
3-1-2	模擬ダスト試料による除染試験.....	19
3-2	加速器質量分析法による大気粉じん試料からの I-129 の捕集と定量.....	21
3-2-1	石英フィルターからの I-129 の捕集と定量.....	22
3-2-2	活性炭素繊維フィルターからの I-129 の捕集と定量.....	24
	謝辞.....	26
	参考文献.....	26

## 1 平成 23 年度の成果概要

### 1-1 大気中の放射性核種

東京電力福島第一原子力発電所（以後、「福島第一原発」と呼ぶ）の事故によって放出された放射性核種は、大気中を移動し、降雨などによって地表や海面に沈着する。ヒトに対する被ばくについても、事故初期については、飲料水・食品の摂取による内部被ばく、放射性核種を含む空気の吸入による内部被ばくに注意する必要がある。

大気試料の捕集による核種分析によって、放出核種の種類と濃度に関する情報が得られるが、大気中の放射性核種の濃度は、気塊の通過によって大きく濃度が増加すること、さらに短半減期の放射性核種も存在する。そのため、大気中の放射性核種の測定は、事故後できるだけ速やかに実施することが求められる。国立環境研究所では、原発事故によって放出された放射性核種の大気中の動態を知ることに加えて、事故初期のヒトに対する放射性核種による曝露解析に役立つデータを採取することを目標に 2011 年 3 月 15 日から観測に着手した。捕集した大気試料に含まれる放射性ヨウ素、放射性セシウムなどのガンマ線放出核種に加え、放射能のイメージングや加速器質量分析法によるヨウ素-129 の分析を行っている。

#### 1-1-1 試料の採取

大気試料は、福島第一原発から約 170 km 南南西に位置する国立環境研究所（茨城県つくば市）構内の環境試料タイムカプセル棟 2F バルコニー（2011 年 3 月）もしくは屋上（2011 年 4 月以降。地上高 10 m）で採取している。ハイボリウムエアサンプラーにより全量大気を、12 段の低圧アンダーセン型サンプラーにより粒径別の大気試料を採取した。全量大気は、石英繊維ろ紙（10 インチ×8 インチ）上に粒子状物質を捕集し、その後段のキャニスターに活性炭素繊維フェルト 2 枚をポリウレタンフォームにはさんで設置することでガス状物質を捕集した。ここでは、この活性炭素繊維フェルトに捕集された物質をガス状と定義する。捕集時間と吸引速度は、大気中の放射能濃度の変化に応じて変更した。試料採取は、その後も継続的に行っている（2014 年 6 月現在）。

粒径分布試料の場合は、石英繊維ろ紙バックアップフィルターの手前に、活性炭素繊維ろ紙を設けてガス状物質を捕集した。2011 年 4 月 4～11 日にかけて全量大気採取と同じ場所で採取した（図 1-1-1）。



**図 1-1-1 ハイポリウムエアサンプラー（右）及びアンダーセン型サンプラー（左）による  
大気試料採取**

（国立環境研究所環境試料タイムカプセル棟屋上。2011年4月4日）

原発事故直後、国立環境研究所内にあるゲルマニウムガンマ線スペクトロメータ遮へい体は、事故由来の放射性核種によって汚染され、使用が困難であった。そのため、全量大気試料中の放射性核種の定量は、高エネルギー加速器研究機構放射線科学センターの協力を仰ぎ、同施設に設置されたゲルマニウムガンマ線スペクトロメータを用いて行った。大気中粒径分布測定用の試料中の放射性核種の定量は、国立環境研究所で行った。活性炭素繊維フェルトによるガス状放射性ヨウ素の捕集効率は、次式によって補正した。

$$\text{捕集補正係数} = A_1 / (A_1 - A_2)$$

$$\text{補正後放射能} = \text{捕集補正係数} \times A_1$$

ここで  $A_1$  と  $A_2$  は、それぞれ 1 枚目、2 枚目の活性炭素繊維フェルトに捕集された I-131 の放射能である。

### 1-1-2 事故後の主な放射性核種の挙動

事故直後の大気試料からは、原発事故由来の多種の核種 I-133、Te-132 (I-132)、I-131、Cs-134、Cs-136、Cs-137、Te-129m (Te-129)、Mo-99 (Tc-99m)、Ag-110m、Nb-95、Ba-140 (La-140) が検出された。これらの核種の定量値は高エネルギー加速器研究機構のホームページ上 (<http://www.kek.jp/ja/Research/ARL/RSC/Radmonitor/>) で速報してきた。

2011年3月15日に福島第一原発から放出された放射性物質を含む気塊（プルーム）は、茨城県北部まで達していたが、風向きの変化により北西方向へ向きを変えたため、つくばでは他の高濃度観測地域にくらべて線量は高くならなかった。最大ピークは15日午前9時ごろに観測されている。この事象をイベント1とし、図中に記している。このイベントがひろく福島県から栃木県などへかけて、帯状に最大の放射性物質の沈着をもたらした。国立環境研究所の大気試料の捕集は15日15時からであるため、この最大ピークは採取されていない。その後、3月21日から22日にかけて2回目の大きなピークが観測されている。

この事象をイベント 2 とし、図中に記している。このイベント 2 が、関東地方に降った雨により大きな放射性物質の沈着をもたらした。イベント 1、2 において、つくばの大気中に高い放射性ヨウ素及びセシウムを観測している (図 1-1-2)。線量的にはわずかな上昇でも、図 1-1-2 のように核種の濃度を見ると前日の 100 倍以上の I-131 が検出されている。地表に沈着した放射性物質由来の線量を検出してしまいう空間線量の測定よりも、大気中を輸送される核種濃度の直接測定の方が鋭敏に変化を検出できることが示されている。このような核種濃度の上昇は、4 月から 5 月にかけて複数回認められている。

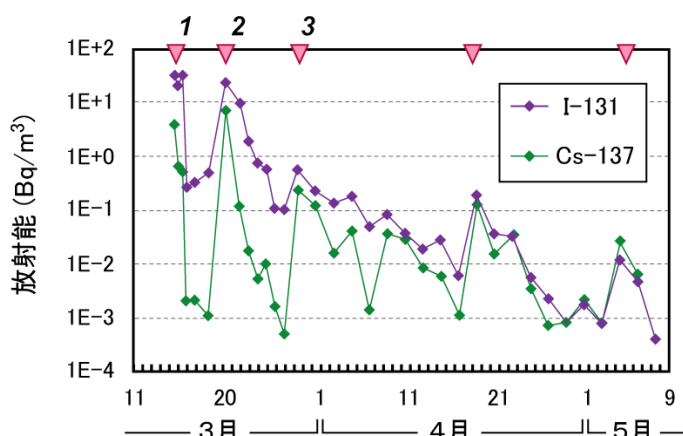


図 1-1-2 つくばで得られた大気中放射性核種の放射能の経時変化  
(2011 年 3 月 15 日～5 月 8 日)

(▽は放射性核種濃度が大きく上昇した事象が観測された日時を示している)

図 1-1-3 に 2011 年 3 月中につくばで 14 回観測した大気試料中の放射能の核種割合を示した。図 1-1-2、1-1-3 とともに、石英フィルター (粒子態) と活性炭素繊維フェルト (ガス態) とを合算した放射能をもとにしている。採取回数 1 では多数の核種が検出されており、I-131 以外の核種が 50% 以上を占めていた。採取回数 6 にかけて、I-131 の割合が高く、他の核種の割合が低くなっている。ヨウ素にくらべて、セシウムやテルル、テクネチウムの揮発性は低い。イベント 1 では原子炉から揮発性の低い核種まで放出されたが、次第に揮発性の高いヨウ素のみが放出されたことと沈着しにくいガス状のヨウ素が環境に残留したことを示す。採取回数 7 はイベント 2 をはさむ時期であり、ふたたび I-131 以外の核種が大きな割合で検出されており、原子炉から揮発性の低い核種がふたたび放出されたことを示している。採取回数 8～12 については図示していないが、採取回数 2～6 と同様に次第に I-131 の割合が高くなって行き、採取回数 13 のようにほとんどが I-131 に占められていた。採取回数 14 がイベント 3 に相当する。この時も原子炉からの放射性核種の放出が報告されており、大気中の核種割合でも揮発性の低い核種の放出があったことが確認できる。

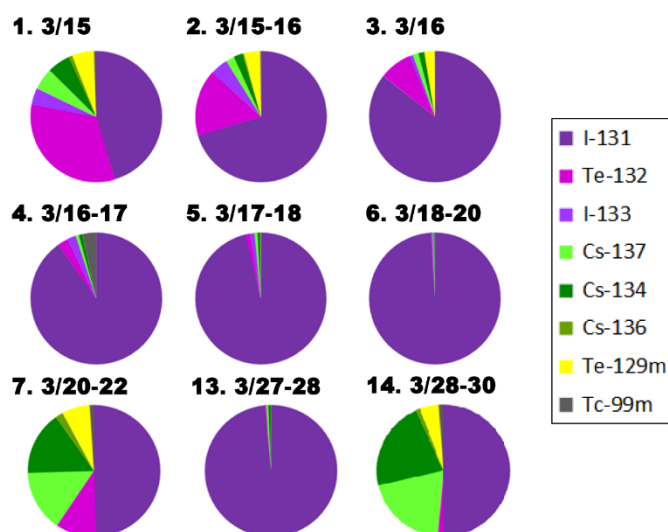


図 1-1-3 2011 年 3 月につくばで採取した大気試料中の放射性核種の放射能の割合  
(数字は何回目の採取かの順序を示す)

### 1-1-3 放射性ヨウ素と放射性セシウムの挙動の違い

放射性ヨウ素として検出されたのは、以下の 3 種類の核種であり、いずれも半減期が短い。I-131 (半減期 8.02 日)、I-132 (半減期 2.3 時間) 及び I-133 (半減期 20.8 時間)。

活性炭素繊維フィルターの I-131 の測定値から求めた捕集補正係数は 1 ~ 1.4 の範囲、平均値 1.1 であった。そこで、個別値ではなく、平均値の 1.1 を用いて放射性ヨウ素の放射能を補正した。I-131 のガス態/トータル (=ガス態+粒子態) 比を図 1-1-4 に示した。最大値 (33 Bq/m<sup>3</sup>, 3 時間平均値) が得られた 3 月 15 日は、空間線量率も最大値を示していた。3 月 20~22 日の大気試料に 2 回目の放射能の増大があり、これはつくばで観測された 2 回目の空間線量率のピークと一致していた。その後も、3 月 28~30 日、4 月 17~19 日、5 月 3~5 日に大気中放射能のピークが認められた (図 1-1-2)。I-131 の濃度は、ほぼ 2.7 日の見かけの半減期にしたがって減少していった。図 1-1-3 に示したようにガス態がヨウ素の多くの割合を占めており、I-131 でのガス態の割合は 12~100%であった。ガス態が少なく、粒子態が多くなるのは図 1-1-2 のピーク時と一致しており、粒子態が最大となるのはイベント 1 の時であり、時間経過とともに次第にその割合は下がっていた。ガス/粒子比は、事故解析・環境中のヨウ素の挙動・初期被ばくを考える上で重要な因子であろう。

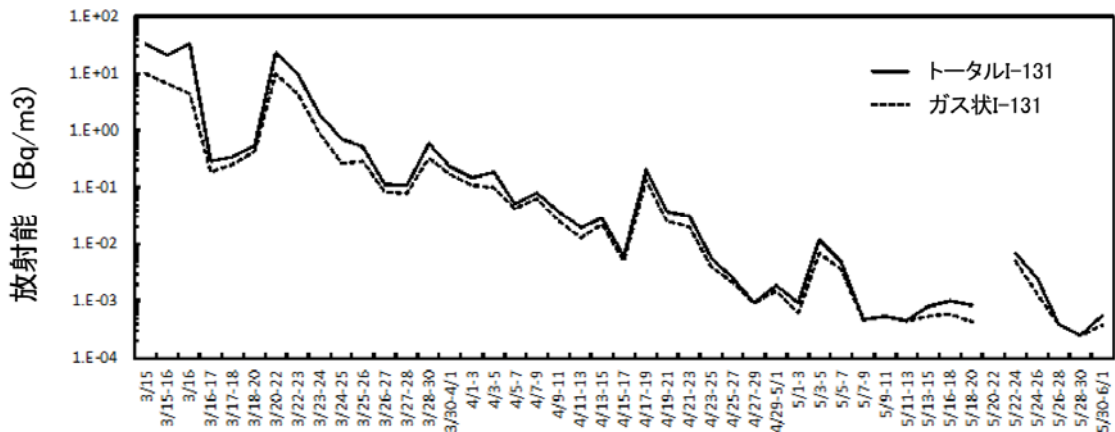


図 1-1-4 つくば大気中のトータルの I-131 とガス状 I-131 放射能の経時変化

一方、図 1-1-2 に示したように、I-131 と Cs-137 の大気中の濃度変動は類似点と相違点がある。半減期の短い I-131 については、事故発生の日時点を減衰補正した (I-131)<sub>c</sub> を用いて、(I-131)<sub>c</sub>/Cs-137 比を求めた (図 1-1-5)。(I-131)<sub>c</sub>/Cs-137 比は、8 から  $1.0 \times 10^3$  まで大きく変化していた。(I-131)<sub>c</sub>/Cs-137 比が高くなるのは、ガス状 I-131 の割合が大きいときで、放射性物質を含むブルームが流れてくるような場合には粒子状 I-131 の割合が比較的高くなり、(I-131)<sub>c</sub>/Cs-137 比は小さくなる。理由のひとつには沈着しにくいガス状放射性ヨウ素が長く大気中に対流すること、原子炉から放射性セシウムが放出されるようなイベント時には、ガス状だけでなく粒子状の放射性ヨウ素も放出されることが考えられる。放射性ヨウ素とセシウムの環境中での挙動は大きく異なることが示された。

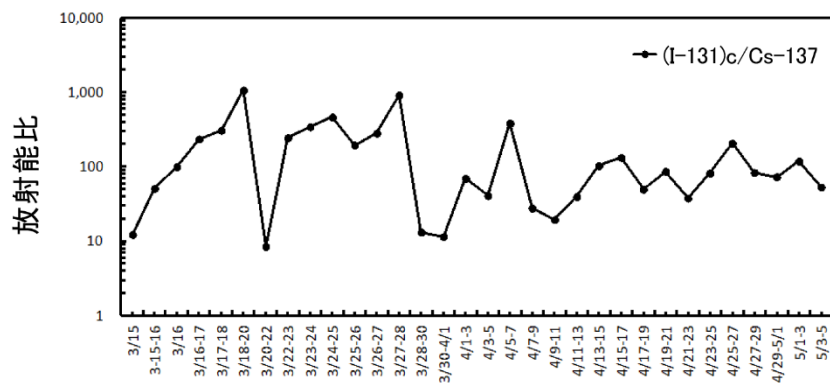


図 1-1-5 減衰補正した (I-131)<sub>c</sub> と Cs-137 との放射能比の経時変化

#### 1-1-4 粒径別の放射能の粒径分布

粒径分布測定の結果を図 1-1-6 に示す。I-131 は、活性炭素繊維に捕集されるガス状の占める割合が大きく、粒子の部分にも小さいピークが認められる。また、放射性セシウムは

活性炭素繊維にピークがなく、放射性ヨウ素とは異なった粒径にピークが認められた。

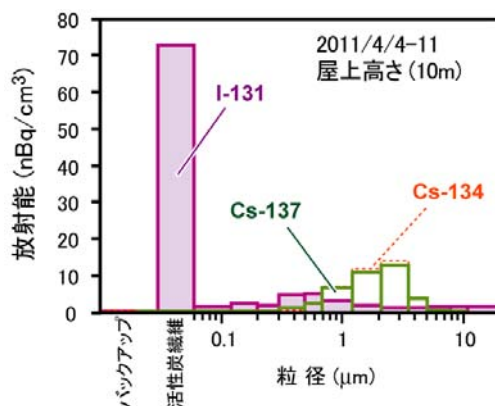


図 1-1-6 粒径別の放射能分布 (2011 年 4 月 4~11 日)

I-131、Cs-134 及び Cs-137 の空気力学的放射能中央径(AMAD) は、それぞれ 0.7、1.8、1.5  $\mu\text{m}$  であった。粒子状放射性ヨウ素のピーク粒径は放射性セシウムよりも小さく、両者の大気中への放出と輸送動態は明らかに異なっている。放射性ヨウ素はガス態から生成した二次粒子の可能性が高い。一方、粒子状放射性セシウムの起源に土壌に沈着した放射性セシウムの巻き上げによる二次的な要因も考えられる。粒子重量の粒径分布(図 1-1-7)は、ふた山型の分布を示していた。なお、バックアップフィルター上には、活性炭素繊維の脱落粒子も付着していたため、重量は過大評価している。また、活性炭素繊維を挿入しているため、圧損特性が異なり、通過線流速が小さく、すなわち、粒径軸をやや過小評価している可能性がある。結果は、小粒径の方は放射性ヨウ素のピークと一致し、大粒径の方は放射性セシウムのピークよりも大きな粒径に中央値があった。

放射能を粒子重量で除すれば粉じん中放射能濃度 (Bq/mg) が計算できる。0.7~2  $\mu\text{m}$  の画分の放射性セシウム放射能濃度が最も高く、粒子自体の分布とは明らかに異なっている。大気を輸送される大部分の粒子とは異なる粒径に放射能を持つことと、土壌の再巻き上げによって発生する粒子の粒径が 10  $\mu\text{m}$  程度と大きいことから、放射性セシウムについても、発生源の情報を保っている可能性があると考えられる。



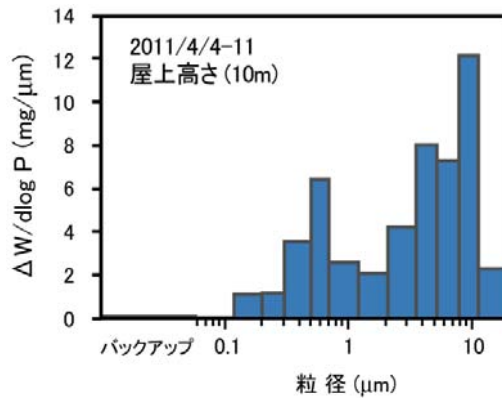


図 1-1-7 捕集された粒子重量の粒径分布 (2011 年 4 月 4~11 日)

### 1-2 セシウム選択性樹脂による水中溶存セシウムの定量

原発事故直後は、水道水からも放射性ヨウ素及び放射性セシウムが検出されていたが、放射性セシウムの環境中濃度が減少するにつれ、直接測定では不検出となってくるのが予想された。しかしながら、放射性物質の環境動態の把握や生物による放射性ヨウ素の取り込み・濃縮過程の解析のためには、1 Bq/L 以下の水中溶存放射性ヨウ素の定量が必要となる。そこで、検出下限値 0.01 Bq/L 程度を目標に、環境水中の放射性 Cs を定量するための、セシウム選択性樹脂による簡便な濃縮する方法を急遽検討した。

なお、環境水中の放射性 Cs 濃度の減少が早く、この方法が適用できなくなると予想していたが、実際には濃度の減少は予想よりも遅く、図 1-2-1 の加圧ろ過方式により 10L 程度の環境水を濃縮することで。現在 (2014 年 6 月時点) でも、霞ヶ浦流入水、福島県浜通りの河川水、福島周辺の沿岸海水でディスク濃縮法による放射性 Cs の定量が可能である。

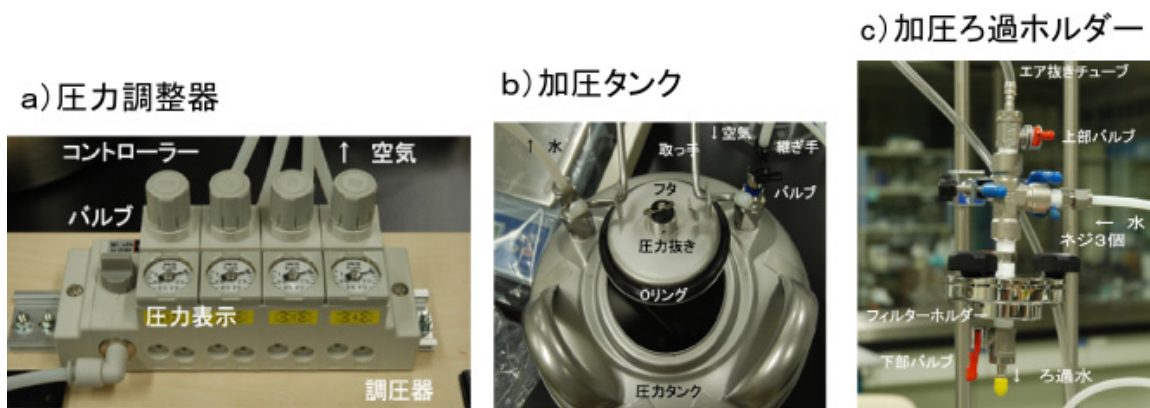


図 1-2-1 加圧式 Cs 選択性樹脂濃縮装置のパーツ図

## 1-2-1 セシウム選択性樹脂の分析化学的特性評価

陸水及び沿岸海水中の溶存放射性セシウムをゲルマニウムガンマ線スペクトロメータで定量することを目標として、セシウム濃縮ディスク ラドディスク Cs (3M Empore、住友スリーエム) の評価を行った。ラドディスク Cs は、直径 47 mm、厚さ 1 mm 程度の柔らかいディスクで、一般のろ過器に装着し、減圧ろ過することで通水した（現在は加圧法に変更）。フィルターの化学組成は、ヘキサシアノ酸鉄コバルトを繊維状のポリテトラフルオロエチレンをバインダーとして成形したものである。ヘキサシアノ酸鉄の立方格子中にセシウムイオンを特異的に吸着し、脱着は困難である。

実験開始当初、水道水には放射性 Cs が環境水と同程度含まれていた。実験に用いた純水は、水道水を逆浸透イオン交換によって生成したもので、この操作により放射性セシウムは検出下限値以下に低減されていた。福島第一原発事故前に購入した塩化セシウムを純水に溶解して安定 Cs 溶液とした。ブランク用淡水試料は、事故後に九州地方大分県で生産されたミネラルウォーターを用いた。

検討した項目は、破過容量、通水速度と捕集率の関係、塩濃度・酸濃度と捕集率の関係、添加回収率及び安定同位体による実試料の回収率評価である。

Cs 負荷量 10 mg までは、ろ液への Cs の漏出は認められなかったが、負荷量 15 mg で少量が、負荷量 20 mg から相当量が漏出していた。カタログ仕様での破過容量は 40 mg であったが、本条件では 10 mg 程度の負荷量に留めることとした。陸水試料程度の妨害がある条件での通水速度と捕集率との関係を見たところ、減圧法での最大ろ過速度（148 mL/分）で、ろ液からは Cs がほとんど検出されず、99.9～100%の保持率が得られた。また、Cs 以外の元素については、試料原液とろ液との間に有意な差が認められず、Cs 以外の元素が吸着する割合は低いことが確認された。

海水 100%までのマトリックス及び酸性（2M 硝酸）～アルカリ性（pH9）の pH 条件下でも 98%以上の Cs 保持率を示した。ただし、酸性条件ではろ液が明らかに紫色に着色しており、100ppm 以上の Fe、Co がろ液中に検出された。酸性条件では、保持剤の溶解もしくはろ過後の保持剤の脱落が起きるようになる。一方、通常の水や海水（pH 8.3 程度）は、pH の調整をすることなく通水することで Cs を保持できる。

一般の天然水中の Cs 濃度は 0.1ppb 以下であるため、安定セシウムを試料水中濃度にくらべて過剰量に加えることで回収率を補正することとした。試料に対して 1ppm の安定セシウムを添加しても、5 kg の試料を捕集した場合でもセシウム負荷量は 5 mg に抑えられるため、フィルターから破過するおそれがない。濃縮ディスク通過液に残留する Cs 濃度を ICP 質量分析法で測定することで、セシウムの回収率を求め、放射能値を補正した。ミネラルウォーター 3 L に、回収率算定用の安定セシウムを添加し、さらに土壌抽出液スパイク（Cs-137 441 Bq/L）を添加して、添加回収率を調べたところ、得られた回収率は 100% 及び 107%であった。これらの結果から、陸水及び海水中の溶存放射性セシウムを 0.01 Bq/L 程度の検出下限で測定できる条件が確立された。5 L の試料を濃縮することで、試料の厚さ

が薄くなることによる検出効率の上昇効果を加味すると、U 8 容器での水試料の直接測定にくらべて、約 100 倍の増感が得られた。

図 1-2-2 に数種の環境試料のガンマ線スペクトルを重ね書きしたものを示す。原発事故以前の 2009 年 5 月に採取したイガイ試料からは放射性セシウムやヨウ素のピークは見られず、バックグラウンドスペクトルと同等の結果になっている。それに対し、2011 年 4 月に採取した海藻では I-131 のピークが、2011 年 4 月に採取したイガイでは Cs-134 と Cs-137 のピークが顕著である。海水試料を約 100 倍に濃縮・増感した結果、海水からの放射性セシウムのピークが明瞭に認められ、さらに近傍に妨害ピークがないことがわかる。このピーク (0.8 Bq/kg 相当) を 1/100 小さくしたならば、ほとんど検出が不能となる。言い換えれば、0.008 Bq/kg の検出がちょうど検出下限付近になることが、図からも理解できる。

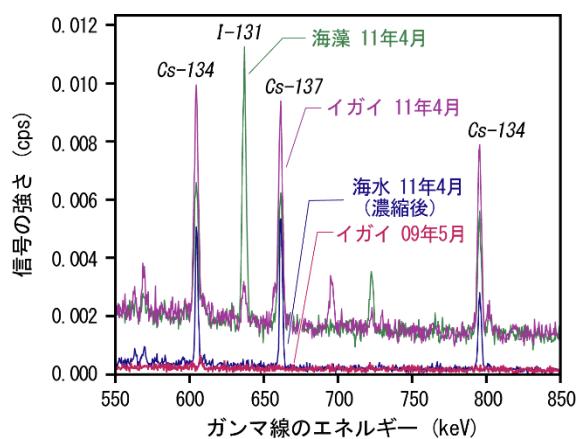


図 1-2-2 環境試料及び海水濃縮後のセシウム濃縮ディスクのガンマ線スペクトルの例

## 2 平成 24 年度の成果概要

### 2-1 常総地区における曝露解析

福島第一原発の事故により環境中に漏出した放射性核種は、福島県などに高い汚染を生じている一方、2011 年 3 月 21 日からの降雨による湿性沈着によって、茨城県南部から千葉県北西部にかけて空間線量の高い地域が形成されている。人に対する被ばく量の推定を、外部被ばく及び複数の曝露源からの内部被ばくを住民の協力を得て、ケーススタディを継続した。曝露源のうち、特にデータの不足している室内じん中の放射性セシウムについては、統計解析可能な量のデータを得るようにつとめた。

#### 2-1-1 常総地区における室内じん中の放射性セシウム

屋内環境中に浮遊する室内じんは、吸引法で放射能測定が可能な量の浮遊室内じんを直接採取することは困難である。そこで、床面に落下したダストを含んではいるが、室内空気を吸引捕集している電気掃除機にたまったダストで代用することにした。掃除機ダストは、一般の家庭に必ずあり、提供についての負担も少ないため、多数の試料を得やすい。一方、人への吸入曝露を考える際には、手に付着して摂取したり、吸引したりするような細かい粒径の放射能データも必要となるため、粒径ごとの分画操作を行った。また、採取期間を限ることにより、各家庭の掃除努力量あたり、単位時間あたりの放射能が計算される。

常総地区（千葉県北部、茨城県南部）では、常総生協の協力のもと、2 回の室内ダストを採取・分析した。採取にあたり、掃除の方法、生活環境等に関するアンケート調査も実施した。1 回目の回収は 2012 年 4 月 17 日前後で、その時まで掃除機にたまっていたゴミを集めた。そのため、ゴミの捕集期間は家庭によって異なる。2 回目の回収は 2012 年 6 月 20 日ごろで、捕集期間は最大で 2 ヶ月程度となる。なお、アンケートに記入された捕集期間を平均すると 48 日間であったが、捕集期間が記入されていない方も多かった。

1 回目の調査結果の概要は以下の通りである。2012 年 4 月 17 日に減衰補正して放射能を出した。検体数 250、放射性セシウム（Cs-134 と Cs-137 の和。以下同様）の最小値は不検出（数十 Bq/kg 以下）、最大値は 21000 Bq/kg、幾何平均 1420 Bq/kg、不検出を 0 としたときの算術平均 1900 Bq/kg、そのヒストグラムは図 2-1-1 左、中央値は 1480 Bq/kg となった。なお、最大値を示した家庭は、エアフィルターにたまったホコリを掃除機で吸い取っており、これが高濃度の原因である可能性が高い。2 回目の調査結果の概要は以下の通りである。2012 年 6 月 20 日に減衰補正して放射能を出した。検体数 242、放射性セシウムの最小値は不検出、最大値は 9530 Bq/kg、幾何平均 1360 Bq/kg、不検出を 0 としたときの算術平均 1550 Bq/kg、そのヒストグラムは図 2-1-1 右、中央値は 1290 Bq/kg となった。1 回目、2 回目ともほぼ対数正規分布をとっていた。

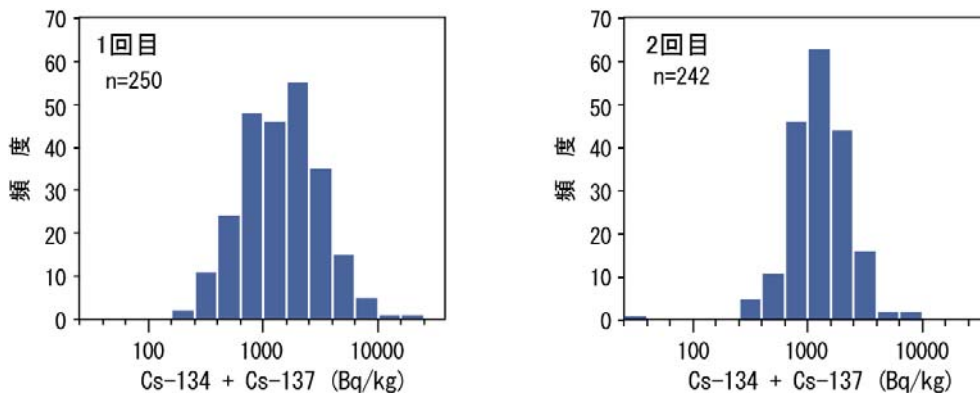


図 2-1-1 常総地区における室内ダスト中放射性セシウムの分布

(左：第 1 回、2012 年 4 月 17 日前後採取、右：第 2 回、2012 年 6 月 20 日前後採取)

1 回目と 2 回目のヒストグラムを比較すると、2 回目の方が中央値がやや小さく (13%)、かつ分布が鋭くなっている (4 割ほど分散が小さく、尖度が高い)。両調査の間に 60 日ほど時間が経過しているため、Cs-134 の自然減衰により、放射能は約 5%減少している。統計的には、対数変換した放射能は 2 回目の分散が 1 回目よりも有意に小さく ( $p < 0.01$ )、平均は差が認められなかった。1 回目と 2 回目の両方の調査に参加した家庭は 242 軒あり、放射能が減少した家庭も増加した家庭もあることがわかる。2 回目の放射能が大きく上がった家庭は 1 軒だけであった。本調査は、原発事故後、1 年を経過して開始したものであり、事故直後の放射能の変動よりも、むしろ定常的な状態になってからの推移を示している可能性がある。

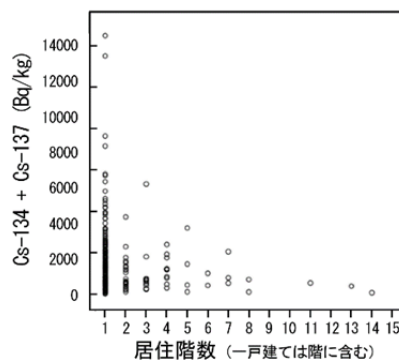


図 2-1-2 住居形態、居住階数の差による放射性セシウムの差異

(常総地区第 1 回調査による。1 戸建ては 1 階としている)

このような仮説を検証するために、アンケート調査結果の統計解析を試みた。使用した統計解析ソフトウェアは SPSS 20 である。なお、吸気口フィルター掃除をして 2 万 Bq/kg を超えた放射性セシウムが検出された 1 家庭は解析から除外している。放射性セシウム濃度は対数変換後、パラメトリック解析を行った。いくつかの解析で統計的に有意な差が現れた。図 2-1-2 に居住階数と放射性セシウムとの関係を示した。一戸建ての階数を 1 階とし

て 1 回目の調査結果を解析したところ、放射性セシウム濃度との間に負の相関が認められた ( $p<0.001$ )。周辺地表環境（土壌）の影響を受けやすいことを表していると考えられる。

また、1 回目と 2 回目の捕集期間の影響を調べた。2 回目の放射性セシウム濃度をアンケートに書かれた捕集期間で割り込んだ一日あたりの捕集濃度は、捕集日数が短いときに高くなる傾向があった。室内ダスト中の放射性セシウム濃度が一定である場合は、このようなことは起きない。時間経過とともにダスト中放射性セシウム濃度が減少する場合やダスト中放射性セシウム濃度が偏りを持っている場合に起きうる。長時間掃除機ゴミを集めると、ダスト中放射性セシウム濃度の偏りが平均化され、一定の値に落ち着くが、短時間の場合、高い放射性セシウムを含むダストを吸った場合に高い濃度が、また、その逆の場合に低濃度が現れると考えられる。実際に図 2-1-3 では、捕集日数 2 日の一例に低濃度の放射性セシウムが検出されていた。

以上をまとめると、掃除機ゴミから推定した室内ダスト中の放射性セシウムは、放射性セシウムを含む近隣土壌の影響を受けているが、それだけでは説明がつかず、高濃度の放射性セシウムを含む別の要因の影響も受けている。そのため、清掃をくりかえしても、室内ダスト中の放射性セシウムを完全に除くことはできず、時に高濃度が現れる。しかし、特に高濃度の放射性セシウムを含む初期汚染の影響を除くためには、ダクト系にたまったゴミを含め、まんべんなく清掃することが望ましい。また、このようなゴミには数万 Bq/kg を超える放射性セシウムが含まれる可能性があるため、マスクの着用が望ましい。手・腕・頭髮、衣服についた放射性セシウムについては、洗浄・入浴や洗濯によって除けるため、吸入被ばくについて注意すべきであろう。

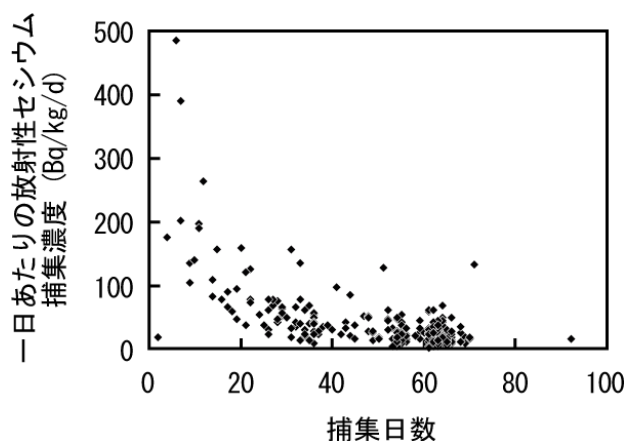


図 2-1-3 常総地区室内ダストの捕集日数と一日あたりの放射性セシウムの濃度との関係  
(2 回目調査。捕集日数はアンケート結果による)

## 2-1-2 住民被ばく調査の結果

住民被ばく調査は、高線量地域である柏市及びその周辺地域でおこなった（平成 23～25 年度）。調査協力者の同意のもと、行動記録とともに外部被ばく線量調査及び内部被ばく源である土壌・室内ダスト・食事試料などの採取と計測を実施した。年齢は、小学生から 50 代で、協力者 1103 は勤務地の東京へ通勤を行っているが、他の対象者は日常的には市内を移動している。なお、本調査は、国立環境研究所と東京大学大学院新領域創成科学研究科の両機関が倫理審査の承認を得たうえ、共同で実施したものである。

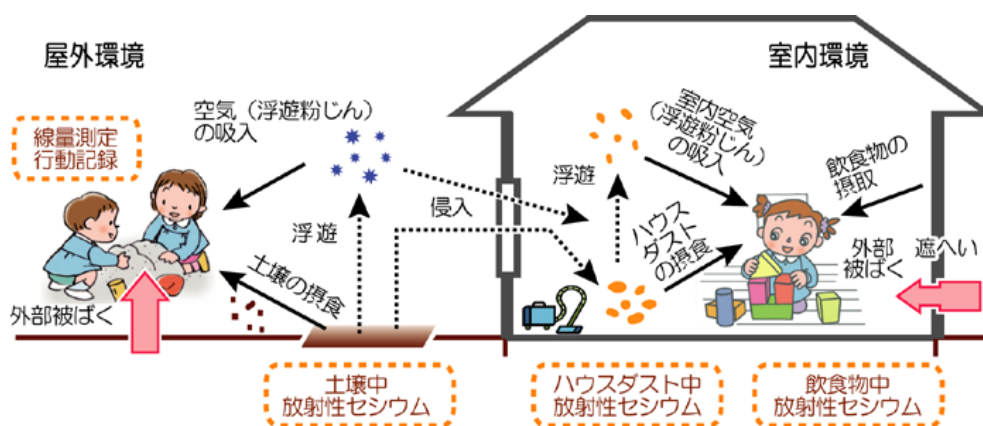


図 2-1-4 被ばく経路の概観図

### ・外部被ばく

表 2-1-1 に携行したポケット線量計の読みと装着時間から推定した月ごとの被ばく線量及び光刺激ルミネセンス線量計（クイクセルバッジ）による 1 cm 当量線量をまとめた。それぞれの線量から、年間あたり外部被ばく線量を合わせて計算してある。それぞれのデータの比較には以下の注意が必要である。

ポケット線量計の装着期間は、食事採取を含む 1 週間程度であり、クイクセルバッジは 1 ヶ月を通して積算されている。食事試料の採取は、提供者の負担から 4 月以降 2 ヶ月に 1 回となったため、線量データも隔月となった。ポケット線量計は、バックグラウンドを含む値であり、震災前のバックグラウンド値を差し引いたものが追加被ばく量となる。ポケット線量計の方は、国立環境研究所実験室内の鉛容器に収めた対照バッジの値を差し引いたものであるため、一般的な使用方法とくらべて、高い値を示す傾向がある。バッジの定量下限は 0.1 mSv とされており、今回の調査ではすべてそれ以下の値であるため、計測値としての信頼性は低い。

5 人の被験者による年間外部被ばく線量は、0.61～1.09 mSv、バックグラウンド値を 0.35 mSv/年（40  $\mu$ Sv/h）とすると、追加被ばく線量は 0.26～0.74 mSv となった。今回は 2 つの線量計を使用した。クイクセルバッジはスイッチの入れ忘れもなく装着の負担感も少ないため、ポケット線量計の補助・バックアップとしての利用に適している。



表 2-1-1 柏地区対象者の外部被ばく線量推定値

ID	線量計	年間 換算値 (mSv)	各月積算値 (mSv)												
			2012年 1月	2月	3月	4月	5月	6月	7月	8月	9月	10月	11月	12月	2013年 1月
1101	P	1.08	0.11	0.06	0.08	-	0.07	-	0.24	-	0.05	-	0.06	-	0.06
	Q	0.33	0.01	0.02	0.04	0.03	0.04	0.02	0.04	<0.01	0.02	0.03	0.02	0.03	0.03
	Q	0.25	<0.01	<0.01	0.03	0.02	0.02	0.03	0.03	<0.01	0.02	0.01	0.02	0.01	-
1102	P	0.96	0.09	0.08	0.08	-	0.07	-	0.07	-	0.06	-	0.07	-	0.11
	Q	0.42	0.02	0.03	0.06	0.06	0.03	0.03	0.06	0.01	0.02	0.04	0.02	0.02	0.05
	Q	0.37	0.02	0.02	0.03	0.03	0.04	0.04	0.03	0.01	0.02	0.02	0.07	0.03	0.04
1103	P	0.61	0.05	-	0.05	-	-	-	-	-	-	-	-	-	-
	Q	0.36	0.03	0.03	0.05	0.03	0.01	-	-	-	-	-	-	-	-
1104	P	1.09	0.11	0.11	0.10	-	0.11	-	0.09	-	0.08	-	0.07	-	0.07
	Q	0.57	0.03	0.04	0.07	0.06	0.06	0.04	0.05	0.02	0.05	0.04	0.06	0.04	0.06
	Q	0.55	0.04	0.04	0.06	0.05	0.05	0.04	0.06	0.02	0.04	0.05	0.05	0.05	0.05
1105	P	0.88	0.10	0.07	0.08	-	0.08	-	0.08	-	0.06	-	0.06	-	0.06
	Q	0.65	0.02	0.04	0.07	0.08	0.06	0.05	0.06	0.05	0.05	0.04	0.05	0.06	0.07
	Q	0.42	0.02	0.03	0.04	0.04	0.03	0.03	0.05	0.02	0.04	0.02	0.04	0.04	0.06

P:ポケット線量計、Q:クイクセルバッジ

(ポケット線量計:P、クイクセルバッジ:Qで計測方法が異なる。追加外部被ばく線量でないことに注意)

・内部被ばく源(食事)とその経時変化

食事試料は1日の陰膳で均質化した湿状態のままの測定(約90g)では、不検出の試料がほとんどであったが、試料全量(1~3kg)を凍結乾燥-灰化を施して減容化した試料では、逆にほとんどの試料から放射性セシウムが検出された(Cs-134で34件中27件検出、Cs-137で34件中33件検出)。その濃度範囲は0.01~4 Bq/kgであり、幾何平均はCs-134で0.068 Bq/kg、Cs-137で0.087 Bq/kgであった。一方、放射性セシウムと同じく、ベータ線・ガンマ線放出核種であるK-40は、カリウムに0.01%の割合で含まれており、その放射能は5~50 Bq/kg程度で、放射性セシウムの100倍以上含まれていた。

2011年4月以降の陰膳試料(柏地区及び常総地区協力者2101)中の放射性セシウムの経時変化を図2-1-5に示す。2011年3月から4月にかけては、関東地区でも広く水道水からI-131が検出されており、陰膳試料中にもI-131が検出されていた。陰膳試料中のI-131は、水道水や原水である霞ヶ浦湖水のI-131の変化と同調しており、水道水及び調理に使われる水、市販食品の材料に使われる水に由来するI-131が濃度を決めていた。放射性セシウムも霞ヶ浦湖水から検出されており、その放射能も3月から4月にかけて次第に減少していった。放射性ヨウ素は自然減衰によって全く検出されなくなった。2013年までの調査では、時として数Bq/kgの放射性セシウムが検出されることがあったが、その濃度は一般の食品の基準である100 Bq/kg(2011年当時は暫定基準500 Bq/kg)を下回っていた。食品中の放射性物質の検査によって基準を超える食品が市場に出まわらなかったことや、被験者がさまざまな産地の他種類の食品を採ることによる希釈効果が陰膳試料中の低い放射性セシウム濃度につながったと考えられる。



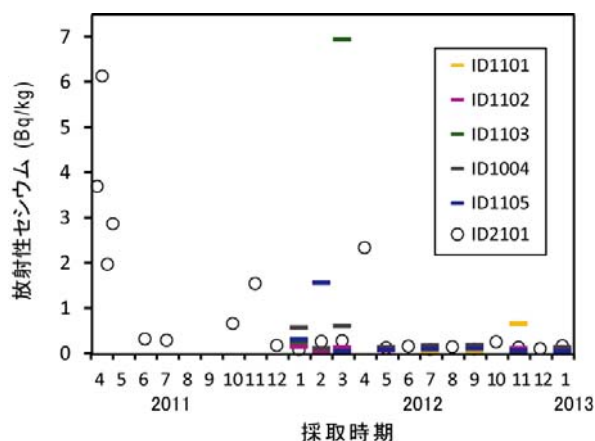


図 2-1-5 陰膳試料中の放射性セシウム濃度の時系列変化

・年間追加被ばく線量の推定

今回測定した外部被ばく線量および各媒体中の放射性セシウム含量をもとに、原発事故由来の年間の追加被ばく線量を推定した。推定にあたって以下の仮定を前提とした。

- －自然起源のガンマ線線量率を  $0.04 \mu\text{Sv/h}$  とし、ポケット線量計で得られた被ばく線量から差し引く。
- －土壌、室内ダストの摂取量はそれぞれ  $50 \text{ mg/日}$  とする。土壌・室内ダストの摂取画分の放射能はバルクの放射能と等しいとする。
- －放射性セシウムが検出されなかった陰膳は、当該試料測定を検出下限の  $1/2$  の値を代入する。食物摂取量は陰膳の重さ(実測値)とする。
- －経口摂取の実効線量係数は ICRP publication72 (ICRP、1996) に従い、Cs-134  $0.019 \mu\text{Sv/Bq}$ 、Cs-137  $0.013 \mu\text{Sv/Bq}$  とする。
- －上記条件・被ばくレベルが調査期間中続いたとして 1 年間あたりの値を計算する。

結果を表 2-1-2 にまとめた。5 名中最大の推定年間被ばく実効線量は  $0.75 \text{ mSv}$  で、ICRP による一般公衆の線量限度  $1 \text{ mSv}$  を下回っていた。5 名の外部被ばくは、総被ばく実効線量の  $90\sim 99\%$  を占め、食物からは  $0.2\sim 8.4\%$  であった。ただし、協力者 1103 は短い調査期間のうちに、 $7 \text{ Bq/kg}$  の放射性セシウムが 1 回検出されたため、他の参加者と比較して食品からの割合が過大評価となっている。また、灰化操作を取り入れて食事試料の検出下限を下げたことによって、湿状態(検出下限  $1 \text{ Bq/kg}$ ) のデータを用いた場合とくらべて  $1/3 \sim 1/10$  に被ばく推定値が低減していた。土壌や室内ダストは数千  $\text{Bq/kg}$  と比較的高い放射性セシウム濃度を示したものの、これらの摂取による被ばく実効線量は、食事試料と同程度であった。両者とも摂取形態の放射能はバルク放射能と異なる可能性がある。実測による  $250 \mu\text{m}$  以下の細粒画分の放射能とバルク放射能との関係を用いて、ダスト及び土壌の摂取・吸入曝露評価を行っている。高線量地区では室内ダストや土壌の放射能も高く、これらを曝露源とする内部被ばく線量は、食物に匹敵する可能性がある。

表 2-1-2 個人ごとの推定年間被ばく線量(単位はすべて mSv/年)

ID	住居	移動	外部被ばく	室内ダスト	土壌	食品	合計
1101	2F	流山	0.73	0.001	0.003	0.002	0.74
1102	一戸建	柏	0.61	0.001	0.000	0.001	0.61
1103	7F	柏→東京	0.26	0.004	-	0.024	0.29
1104	5F	柏→柏	0.74	0.000	0.002	0.003	0.75
1105	一戸建	柏→柏	0.53	0.001	0.001	0.005	0.54

以上をまとめると、柏地区に居住する対象者の被ばくのほとんどは外部被ばくであり、内部被ばく源である室内ダスト・土壌・食物はそれぞれ同程度の寄与を持つことが示された。食品由来の内部被ばく線量は低く、通常の生活による K-40 の摂取と比較して問題にならないレベルであることが明らかになった。しかし、自家消費を行う場合など、その変動幅が大きいことが予想される。土壌環境については、雨水による地下浸透などの自然的要因や、表層土や芝生を取り除くあるいは土壌を深部へ混ぜ込むような手法によって、住民が摂取する可能性を下げることができる。一方、室内ダストについては、能動的に選べる食品と異なり、摂取を避けることが難しい媒体である。ダスト中放射能の起源の探索については平成 25 年度以降に研究を継続している。

### 3 平成 25 年度の成果概要

#### 3-1 曝露源に関する解析

これまでの内部被ばく源に関する調査から、室内じんは、食事と同等程度の内部被ばく源であり、土壌や大気よりも高いことが明らかになってきた。また、室内じん中の放射能については、その特性等に関するデータが不足している。この室内じんの特性について研究を行った。

福島県内のダスト試料は、特定非営利活動法人ふくしま再生の会の協力のもと、飯舘村の家屋及び一部の避難先で採取した。すべての協力家庭試料について、個人情報を切り離し、ID 番号によって分析、データ処理している。

##### 3-1-1 放射性 Cs の可溶性からみたダストの特徴と除染について

ダスト試料は、そのまま（バルク試料）の分析のほか、メッシュサイズの異なるステンレス製ふるいを電磁式振とう器によって振とうすることにより粒径分画した。モデルによる吸入曝露量算定の場合、250  $\mu\text{m}$  超、250  $\mu\text{m}$  以下の 2 段階とした。250  $\mu\text{m}$  以下の画分のダストについては、元素組成を求めた。

これまでの検討の結果、2 mm を超える粒径の大きい画分に高い放射能が認められている。大粒径粒子の放射能の形成過程、微粒子放射能に対する大粒径粒子の役割評価、室内放射能の除染に資するため、ダスト中の放射性セシウムの水可抽出性を評価した。いったん抽出された放射性セシウムが粘土鉱物粒子など、セシウムに対する親和性の高いサイトに再吸着することを避けるために、抽出剤として 1ppm 安定セシウム水溶液を用いた。ダスト試料に安定セシウム水溶液を加え、10 分間超音波抽出をほどこした。抽出液を遠心分離し、上清をデカンテーションにより分離した。この抽出操作を 3 回繰り返した。遠沈管に残った粒子はフルイを通し、綿状粒子と、ろ過（最終的に 0.45  $\mu\text{m}$  孔径のメンブレンフィルター）により粒子態を分離した。

図 3-1-1 に、実験に用いたダストの一例として、飯舘村協力者 3101 ダストの分画と可溶性試験にともなう粒子の形態と放射能との関係を示す。実体顕微鏡に映り込んでいるスケールの目盛はすべて 1 mm である。未処理のバルクダスト（放射性 Cs 21000 Bq/kg）を、目開き 2 mm と 250  $\mu\text{m}$  のフルイにかけた粒子は、それぞれ異なった形態をしていた。2 mm 超画分（写真番号 1）は、色とりどりの繊維状粒子が存在していた。繊維状粒子の繊維長は 2 mm を超えているが、その繊維径は 0.1 mm 以下であることがわかる。繊維状粒子に微細な粒子が付着しているかどうかは判別できない。それにもかかわらず、放射性 Cs の濃度は 15000 Bq/kg と、250  $\mu\text{m}$  以下の粒子と変わらない高い値を示していた。その下の写真番号 2 は、3 回の超音波抽出をほどこした後の 250  $\mu\text{m}$  以上の粒径の粒子で、洗浄前と同様に、やはり繊維状粒子が卓越している。洗浄液は茶褐色に濁っており、ろ過により黄褐色の溶液となった。洗浄後の繊維状粒子も灰色から茶色に着色していた。放射性 Cs 濃度は、洗浄によって 6000 Bq/kg に下がっていた。写真 3 は、2 mm 超画分のダストから洗い出さ

れた微細粒子での写真である。個々の粒子の粒径は非常に細かく、繊維状のものは認められない。色は土壌を思わせる茶褐色であった。放射性 Cs 濃度は 60000 Bq/kg に達しており、微細粒子が高い放射能を持つことが示された。洗浄中の可溶性 Cs 濃度自体は、液量に依存するため意味がないが、元のダストに含まれる濃度割合は 5600 Bq/kg 相当であり、全体の 1 / 3 強が可溶性放射性 Cs であることがわかる。一方、重量的に大部分を占める綿状残渣、重量の少ない粒子状残渣にも、それぞれ 1 / 3 程度の放射性 Cs が存在していた。

今回の実験では、ダストを水抽出することで綿状、粒子状、可溶性の 3 つに分画をしたが、実際のダストは、綿ぼこりに対して粒子状物質（不溶性）やその他の可溶性成分が付着することで構成されているということもできよう。室内には数万 Bq/kg に達する放射性 Cs を含む微小粒子が分布しているが、それを綿ぼこりが絡めとって、掃除機に捕集されやすい形態を作っていると考えられる。通常の清掃を行うことで、室内ダストの除染につながる可能性がある。

写真 4 は、250 μm 目開きのフルイを通過した洗浄前のダストの写真である。薄い茶褐色をしており、細かい繊維状の粒子が含まれていることがわかる。写真 3 の微粒子とは形状が異なっている。放射性 Cs 濃度は 19000 Bq/kg で、不溶性微小粒子にくらべて濃度が低かった。こちらについても、2 mm 超粒子と同様に、繊維状粒子・微小粒子・可溶性成分から構成されていると推測できる。

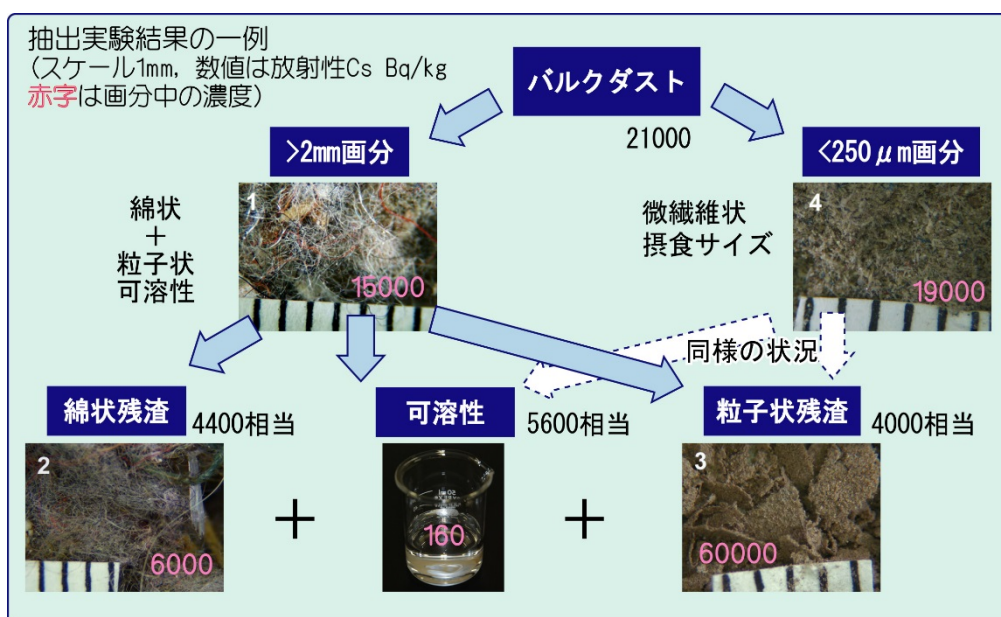


図 3-1-1 ダストの分画と抽出実験の例

図には 1 件の例を示したが、他の家庭についても、同様の実験を行っている。ダストの可溶性は 5~70% (平均 23%) と大きな幅を持っていたが、土壌にくらべて可溶性が高いことが特徴的であった。土壌試料の場合、250 μm 以下の画分の水に抽出される割合は、除染の進んだ村役場を除き、すべて 1% 以下であった。土壌にいったん沈着した放射性セシウ

ムは、雨水などを通じて土壤中の粘土鉱物粒子の層間など、セシウムに親和性のあるサイトに強く結合した結果、水に抽出されにくくなっている。両媒体の抽出特性に際違った違いがあり、ダスト中の可溶性放射性セシウムが土壌由来でないことを示している。

フィルターに捕集された大気粉じんの起源が、土壌の再巻き上げによる場合、放射性セシウムの可溶性が低いことが予想される。実際には、大気粉じん中の可溶性放射性 Cs の割合は、変動しているが 0 ではなかった。大気粉じん中の可溶性放射性 Cs の割合が高くなる時期は、土壌粒子以外の可溶性の高い放射性 Cs を含む粒子が大気中を輸送されていることになる。

元素組成の解析からは、ダスト中の不溶性の粒子と大気粉じんや周辺土壌が似かよっているという結果は得られなかった。また、土壌や大気粉じんに特異的に濃集している元素（土壌では Al、Ti、Sc など。大気粉じんでは Sb、Pb、Cd など）と放射性 Cs 濃度とは、全く相関が認められず、放射性 Cs は他の元素と独立した挙動を示すように見受けられた。

事故直後の大気中の放射性セシウム濃度は、現在の 10 万倍程度高濃度であった。言い換えれば、最高濃度時の 1 日の通気は、現在では 300 年分の通気に匹敵する。この時期に室内に侵入した放射性セシウムが、現在も室内に残留している可能性もある。室内汚染濃度が単調に減少せず、時にスパイク状に濃度が上がることは、室内に偏在している高濃度の放射性セシウムを含む粒子を、大掃除などで掻き出している可能性も考えられる。

### 3-1-2 模擬ダスト試料による除染試験

屋内ダストを摸した粒子状物質の回収実験により、ダストの除染試験を行った。使用した掃除機はサイクロン式及びロボット型の 2 種で、以下の 2 種類の粒子状試薬を、模擬ダストとして用いた。無機粒子としてアルミナ、有機粒子としてセルロースパウダーを選び、それぞれの一部に蛍光試薬を浸漬、乾燥して蛍光剤塗布模擬ダストとした。図 3-1-2 に紫外線照射下で撮影した実体顕微鏡画像を示す。緑色に輝いている粒子は蛍光剤が付着したもので、青色に見える粒子は、蛍光剤が付着していないもしくは付着量が少ないものである。アルミナ粒子がやや角張っているのに対して、セルロース粒子は不定形もしくは繊維状をしていることが見てとられる。

この蛍光ラベル粒子を、一定面積（176 cm×176 cm）の 3 種の床材（フローリング、畳を摸したイ草シート、化学繊維性カーペット）に散布し、一定時間（ロボット型は 7 分間×2 回、サイクロン式掃除機は 5 分間）・一定強度の清掃を行い、粒子状物質の除染割合を確認した。除染割合は、床材に残った蛍光粒子の蛍光観察、回収された粒子の重量、回収された粒子の粉末 X 線回折測定による回折ピーク強度によった。

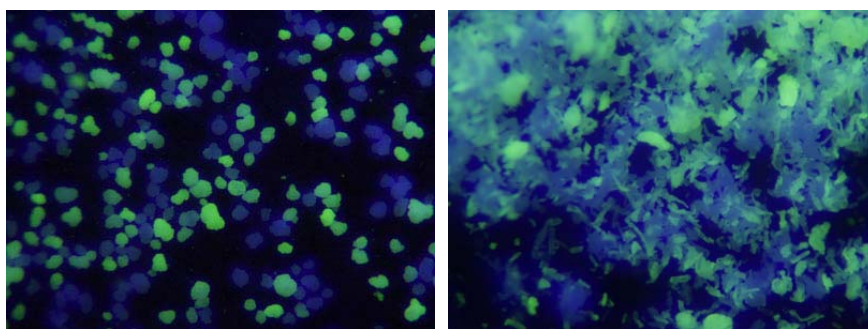


図 3-1-2 蛍光剤付着模擬ダストの紫外線照射下での実体顕微鏡像

(左：アルミナ粒子、平均粒径約 100 μm、右：セルロース粒子、平均粒径約 40 μm)

掃除機に捕集される実際の室内ダストは、毛髪・綿ぼこりのような繊維状の粒子、紙片・プラスチック片・金属片のような粗大粒子、土壌等の種々の微細粒子など、さまざまな形状や比重などの物理的特性、成分などの化学的特性を持つ、複雑な混合物といえる(図 3-1-1)。全体に占める重量として 2 mm フルイ目を通過しない繊維状粒子の割合が高く、放射能濃度は 250 μm フルイ目を通過する微細粒子に高い傾向がある。綿状のダストは比重が小さく、比較的掃除機に吸引されやすいが、微細粒子状のもの、特に比重の大きい鉍物質のものは吸引されにくいと予想される。したがって、今回実験に用いた鉍物質(γアルミナ、真比重 4)と有機物(セルロース、真比重 1.5 程度)とが清掃の際に分別されるか、また、床材や清掃法によって捕集割合が異なるかという観点でデータをまとめた。

回収されたダスト重量から求めた回収率、X線回折ピークから求めた回収ダストの成分割合などを表 3-1-1 に示した。また、模擬ダストの掃除後の蛍光物質の残留状況として、イ草シートの例を示す(図 3-1-3)。フローリングでは蛍光物質の残留が目立ったが、回収率は 80%であった。一方、写真からは蛍光物質の残留が顕著でなかったイ草シートの回収率は 60%、カーペットでは 10%と低かった。イ草シートでは、畳の目の隙間から内部に粒子状物質が入り込んでいた。カーペットでは、蛍光粒子は表面には目立たず、毛足の奥の方に粒子状物質が入り込んでいた。なお、ロボット型掃除機のカタログスペックとして、2 mm 以上の毛足の清掃には不適であると書かれている。サイクロン式掃除機の場合、3 種の床材すべてでロボット型掃除機よりも回収率が高く、最低でも 86%の粒子が回収されていた。実際の清掃では、3 m<sup>3</sup>程度の床面に対して 5 分間掃除機をかけることはまれであり、かつ、蛍光物質が目視によって判別されやすいため、人力による清掃が有利な点もある。一方、ロボット型掃除機の場合は、時間予約に基づく清掃動作を無人で行いながら、線量の高い場所においても放射性物質を含むダストを回収できるメリットがある。

アルミナとセルロースに密度やサイズの差があるものの、X線回折法によって求めた粒子割合はほぼ等しく、両者の捕集率に大きな差は認められなかった。カーペットから回収したダストにはカーペット繊維が相当量含まれており、X線回折ピークの絶対値が小さくなっていった。繊維状粒子が微細粒子を絡め取るプロセスが起きていることを示唆している。微細粒子が放射性セシウムを含んでいる場合、もともとの繊維状粒子に放射能がない場合



でも、結果として繊維状粒子が放射能を持つことになる。粒径の比較的大きな繊維状粒子は、経気道もしくは経口によって体内に取り込まれる割合は小さい。先に述べたように、微細な粒子の放射能濃度は高いため、繊維状粒子が放射能をもつ微細な粒子を捕捉することは、室内の放射性物質の除染に相当することになる。今回の実験では、粒子状物質の捕集のみを検討しているが、さらには、実際に放射性物質の捕捉に寄与しているか、いったん捕捉された粒子の脱離が起きているか、捕捉される粒子中の放射性セシウムの物性など、検討すべき点はまだ多い。

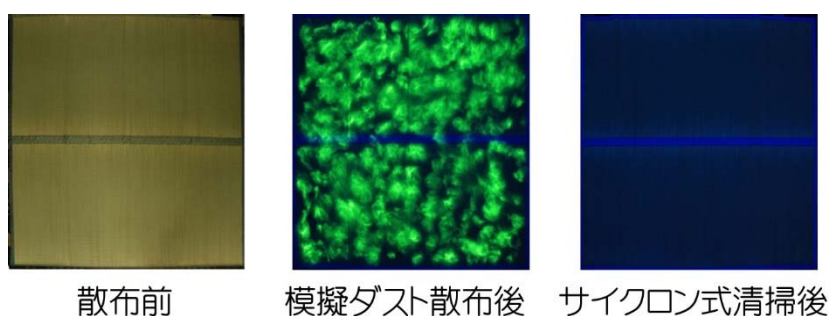


図 3-1-3 模擬ダスト捕集実験の一例（イ草シート）

表 3-1-1 各種床材を用いた蛍光剤塗布模擬ダストの清掃実験

掃除機	床材	回収率 (%)	回収割合	
			A (%)	C (%)
ロボット型	フローリング	80	58	42
ロボット型	イ草	60	58	42
ロボット型	カーペット	10	48	52
サイクロン	フローリング	95	54	46
サイクロン	イ草	97	54	46
サイクロン	カーペット	86	54	46

### 3-2 加速器質量分析法による大気粉じん試料からの I-129 の捕集と定量

東日本大震災の直後におきた福島第一原発の事故により、環境中に放出された放射性同位体の中で、I-131 等の放射性ヨウ素による人や野生生物への健康被害が懸念されている。ヨウ素は甲状腺ホルモンの構成元素であることから放射性ヨウ素は甲状腺に蓄積しやすく、周囲の細胞に放射線を照射して甲状腺腫等を引き起こす恐れがある。しかしながら、I-131 は半減期が 8 日と短く事故直後に十分な環境測定ができなかったため、環境中への放出量、存在量を十分な精度で把握できていない。対策をいち早く進めるためには曝露量をできるだけ精度よく推測することが必要である。そのため、本課題では原子炉から放出されてまだ環境中に残っている寿命の長い放射性ヨウ素、I-129 の測定法を開発し、これを I-131 の代替としてその存在量や曝露量の空間分布などの推定に生かすことを目的とする。

環境試料から I-129 を回収して加速器質量分析法で測定できるよう試料を調製するシステムの構築を震災後に行った。それらを用いて I-129 分析のための試料調製条件をさらに検討、最適化するとともに、事故後に採取した大気フィルター試料中の I-129 を測定して I-131 との比率を推測する作業を行った。フィルターから得られた I-129/I-131 比が他の報告値よりも低い値であることと、フィルター上の放射性核種の分布が不均質であることから、石英フィルターの後段に置いた活性炭素フィルターを利用した放射性ヨウ素の回収システムを確立した。

### 3-2-1 石英フィルターからの I-129 の捕集と定量

前処理作業の概要は以下の通りである。試料を電気炉で 1000℃に加熱してヨウ素を揮発させ、酸素気流にのせて捕集溶液に吸収させ、回収する。その際、あらかじめ 1000℃に加熱した石英綿を通過させて有機物を完全に燃焼除去し、また捕集溶液に還元剤を加えて捕集されたヨウ素をヨウ化物イオン (I<sup>-</sup>) にそろえる作業を行った。捕集したヨウ素を酸化して I<sub>2</sub> とした後、有機溶媒に抽出し、それを I<sup>-</sup>に還元してから水で逆抽出して夾雑物をのぞく操作としている。その後、硝酸銀を加えてヨウ化銀として沈殿させ、回収する。乾燥後、ヨウ化銀を銀粉とよく混合・均質化し、アルミニウム製のカソードホルダーに圧力をかけて充填し、加速器質量分析装置で測定を行った。加速器質量分析装置による測定は、国立環境研究所の施設 NIES-TERRA を用いたほか、データの検証を含めてスコットランド大学連合環境研究センターSUERC の加速器質量分析装置による測定も並行して実施した。

#### ・結果

酸素ガス流量の最適化や、異なる化学形態（ヨウ化物 I<sup>-</sup>ならびにヨウ素酸 IO<sub>3</sub><sup>-</sup>、過ヨウ素酸塩 IO<sub>4</sub><sup>-</sup>の 3 種類）での反応条件、回収率、回収化学形態についてイオンクロマトグラフを用いた確認作業を行い、いずれに対しても 8 割以上の効率でヨウ化物として回収できていることを確認した（図 3-2-1；縦軸は回収率、各棒グラフのエラーバーは 3 回の実験の標準偏差）。さらに、試料に通常の市販試薬を添加して捕集実験を行った後、何も添加せずに再度加熱・捕集を繰り返し、残留するヨウ素の量を測定して、いずれの場合も検出可能なレベルでヨウ素が残っていないことを確認した。

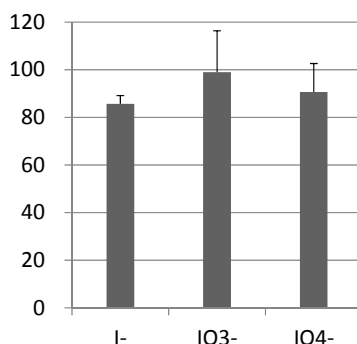
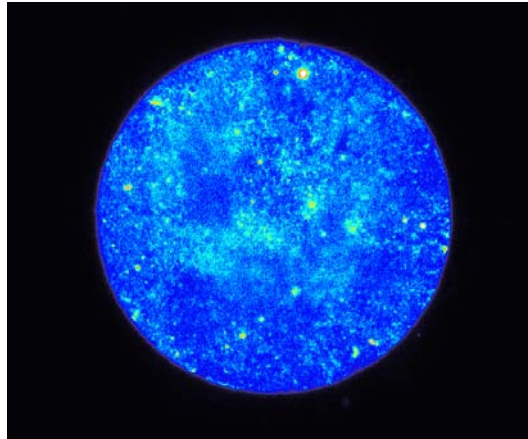


図 3-2-1 化学形態ごとの捕集率 (%) と標準偏差





**図 3-2-2 イメージングプレートによる石英フィルター表面の放射性物質の分布の観察**  
(事故後 7 回目に採取したフィルターの拡大図)

フィルター表面のイメージングプレートによる放射能の可視化により、放射性物質（主に Cs-134 と Cs-137 を検出）の分布にむらがあり、ヨウ素についても不均質にフィルターに付着していた可能性が推測された（図 3-2-2）。I-129 は石英フィルターの一部分だけを対象として前処理をしており、フィルターの一部のみを切り出した結果の代表性に疑問が残る。なお、I-129 の測定にあたり、標準としては米国 NIST が出している I-129 の標準溶液を適宜希釈して  $5 \times 10^{-11}$ 、並びに  $5 \times 10^{-12}$  の二次スタンダードを作成し、これを基準として定量を行った。

国立環境研究所及び SUERC 両機関のデータをそれぞれ縦軸、横軸にプロットした結果を図 3-3-3 に示す。測定のバックグラウンドを調べるための試料は市販の I-129 をもたないヨウ素試薬を国立環境研究所で処理して作成したものであるが、国立環境研究所でも SUERC でもほぼ同じ数値になっており、加速器質量分析装置の測定条件としてはほぼ同等のレベルまで調整できていることがわかった。また、国立環境研究所で作成した標準と SUERC で使用している標準は絶対値で比較して互いによく一致しており、相互のデータの比較体制が基本的に整ったことが示された。実際の試料の測定結果も図で示されたように相互によい一致を示しており、基本的には国立環境研究所の I-129 測定体制が整ったことを示すと考えられる。

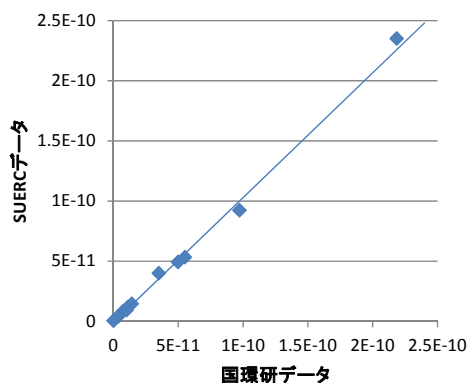


図 3-2-3 標準、バックグラウンド試料及びフィルター試料の I-129 測定結果比較  
(横軸は国立環境研究所、縦軸は SUERC での測定結果)

震災後 4 日目の 3 月 15 日に採取した 2 枚のフィルターの平均値は、 $I-129/I-131=8.7$  となった。今回の事故で放出された  $I-129/I-131$  比については、東京大学と学習院大学の共同研究による土壌試料の測定結果 (22.3) が報告されている。その値と比較してほぼ  $1/2.5$  と低めの値となった。東大・学習院大グループのデータは 4 月 20 日に採取した表層土壌の測定結果であり、事故後 1 か月半の土壌蓄積分を平均化した値となっている (いずれも地震直後の時間に戻して原子数比を推定している)。また、彼らのデータを個別にみていくと、試料によりかなり大きなばらつきのあることもわかる。以上の結果はそれぞれの値の測定精度にばらつきがあってデータの信頼性が低いことを示すものか、あるいは時間とともに同位体比が変化するなんらかの変化のメカニズムがあることを示す可能性が考えられる。

$I-131$  は半減期が 8 日と短いため、核分裂を始めてからしばらくすると生成速度と分解速度が釣り合って燃料棒内の濃度はほぼ一定になっていくのに対して、極めて半減期の長い  $I-129$  は燃焼時間が長くなればなるほど増えていく。そのため、 $I-129/I-131$  比は燃料棒を装着して核分裂を開始してからの経過時間により変化すると考えられ、事故を起こした 3 基の原子炉の間で、あるいはそれぞれの原子炉の中の燃料棒の交換時期によって違いがあって、その違いがフィルター中の濃度の変動として検出された可能性も考えられる。ただし、同じ石英フィルターから切り取った 3 枚の切片の  $I-129/I-131$  比がかなりばらつく傾向が認められ、先述のように粒子状で飛んできた放射性ヨウ素がフィルター上に均質に分布していないためではないかと考えられたことから、より均質性の高いと考えられるガス状のヨウ素についてあらためて  $I-129$  の測定を試みることにした。

### 3-2-2 活性炭素繊維フィルターからの I-129 の捕集と定量

ガス状ヨウ素を捕集する活性炭の場合は、石英フィルターと異なり、活性炭自身が燃焼してしまい、大量の有機物やススが発生してその後のヨウ素回収操作を妨害する恐れがあって、電気炉での燃焼方法は採用できない。そこで、アルカリで活性炭素繊維フィルター

から直接抽出する新たな方法を採用し、条件検討を進めた。有機強アルカリである水酸化テトラメチルアンモニウム 25%溶液を加えて加温し、加温温度、抽出時間、抽出回数をヨウ素添加による予備実験で検討した結果、イオンクロマトグラフでヨウ素が検出できなくなる 80°C 一晚抽出を 3 回繰り返す条件を選択した。水酸化テトラメチルアンモニウム抽出液をガラス繊維フィルターで濾過し、一部を取り出し、キャリアーとして安定同位体ヨウ素を適量添加した後、キシレン及び硝酸を加え、さらに亜硝酸カリウム溶液 (1% w/v) を徐々に加え、約 2 分間振り混ぜて I を I<sub>2</sub> へ酸化させ、溶媒抽出を行った。静置後、有機相を採取し、水相に再びキシレンを加えた後、亜硝酸カリウム溶液を徐々に加え、約 2 分間振り混ぜた。有機相を採取してあわせた後、水及び亜硫酸カリウム溶液で I<sub>2</sub> を I に還元させて逆抽出を行った。水相に硝酸銀を加え、生じた沈殿をよく水洗し、オーブンで乾燥させた。AMS 測定前に銀粉 (重量比で 1:5 程度) とよく混合して測定試料とした。これまでに検討、作成した試料調製方法の概要を図 3-3-4 にまとめる。

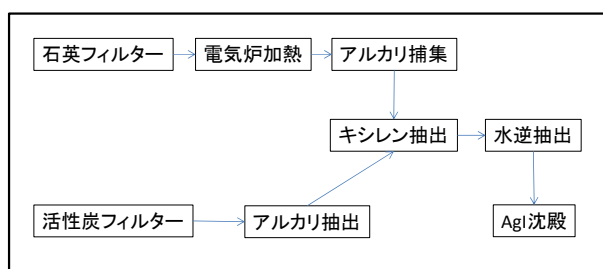


図 3-2-4 I-129 測定用フィルター試料の調製方法概要

これまでに I-131 を捕集後すぐに測定済の 10 枚の活性炭フィルターについて上記の方法で試料を調製し、I-129 の測定を加速器 MS により実施した。今回のガス状ヨウ素の測定結果から、平均値として事故時に放出された I-129/I-131=23 という結果が得られた。この結果は、石英フィルターからの測定結果と比較すると 2 倍以上の値となった一方、東大や学習院大が事故後 1 か月半ほどして各地の表層土壌を採取から求めた原子炉停止時の推定値 I-129/I-131=22.3 とよく整合する値になっている。国環研で捕集された 2 種類のフィルターの測定結果に大きな違いが認められた理由ははっきりしないが、原理的にはガス状と粒子状で I-129/I-131 比が異なることは考えにくい。石英フィルターには粒子状物質に吸着した形のヨウ素が載っている状態なのに対して、活性炭フィルターの場合はガス状のヨウ素が活性炭に強固に吸着されているものと想定される。一度活性炭に吸着したガス状ヨウ素は簡単には再揮発しないと考えられるのに対し、石英フィルター上のヨウ素の化学形態が保存中に変化して揮発性の高い状態に変わると石英フィルターでは捕集できなくなり、揮発して失われる可能性が考えられ、その結果として石英フィルターの方が見かけの比が小さくなった可能性も考えられる。そのため、今後は活性炭フィルターの測定に集中してさらに測定フィルターの数を増やすとともに、同じフィルターからの測定数を増やして変動の幅を確認し、信頼性の高い I-129/I-131 比のデータを提出する予定である。

## 謝辞

スコットランド大学連合環境研究センターSUERCのS. Freeman教授ならびにS. Xu博士には、昨年度に引き続き加速器質量分析装置によるI-129の測定にご協力いただいた。また、同センターのD. Sanderson教授には人的交流や情報交換の推進などでいろいろお世話になった。さらに、東京大学の松崎浩之教授、学習院大学の村松康行教授にはヨウ素測定に際していろいろご助言をいただいた。この場を借りて感謝する。

## 参考文献 (なお、webは2014年11月10日にチェックした。)

1. IAEA (2000) IAEA-TECDOC 1162
2. ICRP (1996) Annals of the ICRP Volume 26/1, Elsevier, pp.94
3. Doi et al. (2013) J. Environ. Radioact. 122, 55-62.
4. Miyake et al. (2012) Geochem. J., 46, 327.
5. Nuclear Energy Agency, OECD (2007) NEA/CSNI/R (2007)1, p.60.
6. Soffer et al. (1995) NUREG-1465.
7. Tsumune et al. (2012) J. Environ. Radioact. 111, 100-108.
8. UNSCEAR (2008) *Sources and effects of ionizing radiation*, Vol 1,  
[http://www.unscear.org/docs/reports/2008/09-86753\\_Report\\_2008\\_Annex\\_A.pdf](http://www.unscear.org/docs/reports/2008/09-86753_Report_2008_Annex_A.pdf)
9. Xu et al. (2013) Environ. Sci. Technol., 47, 10851.
10. 飯舘村 (2012) 広報いいたてお知らせ版 第42号
11. 東京電力 (2012) 福島第一蒸発濃縮装置からの漏えい (平成23年12月4日) に係る核種分析結果. [http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts\\_120116\\_07-j.pdf](http://www.tepco.co.jp/nu/fukushima-np/images/handouts_120116_07-j.pdf)
12. 統計局,平成20年住宅・土地統計調査,  
<http://www.stat.go.jp/data/jyutaku/2008/>
13. 成富 (1987) 保健物理, 22, 189.
14. 大原ら (2011) 保健医療科学,60,292-299.
15. 土井 (2012) 大気環境学会誌,47,A20-36.
16. 土井ら (2013) Proceedings of the 14th Workshop on Environmental Radioactivity, KEK, Tsukuba, Japan February 26-28, KEK Proceedings 2013-7 November 2013 R, p47-56.