

# **生物と環境におけるヨウ素 2011**

- ヨウ素発見 200 年記念 サテライトシンポジウム -

**Iodine Studies in Biology and Environmental Sciences**

**2011**

**- Commemorating the bicentennial of the discovery of iodine -**

2011 年 11 月 19 日 学習院大学

November 19, 2011; Gakushuin University

Organizers:

村松康行 (学習院大学)、天知誠吾 (千葉大学)

Yasuyuki Muramatsu (Gakushuin Univ.) & Seigo Amachi (Chiba Univ.)

# 生物と環境におけるヨウ素 2011

## － ヨウ素発見 200 年記念 シンポジウム －

**開催日： 2011 年 11 月 19 日（土） 午前 9 時 30 分～18 時**

**開催場所： 学習院大学理学部 南 7 号館 101 教室**

**参加費： 無料**

ヨウ素は今から丁度 200 年前の 1811 年にフランスにおいて海藻から発見されました。ヨウ素の重要な産地はチリと日本であり、2ヶ国で世界の産出量の約 9 割を占めています。しかし、生態系、海洋、大気、土壌などにおけるヨウ素の循環に関しては謎が一杯です。3 月に起きた福島第 1 原子力発電所の事故では大量の I-131 が環境に放出されました。

ここでは、ヨウ素と生物および環境との関係に焦点を当て、研究を紹介致します。また、福島原発事故により放出された 放射性ヨウ素の汚染や I-129 を用いた復元についての最新の話題も含まれます。

化学科 村松康行

生物とヨウ素		予定時間	
近藤洋一	群馬大学名誉教授	9:30-10:00	生物に於けるヨウ素利用の進化に関する考察
天知誠吾	千葉大学	10:00-10:30	微生物によるヨウ素の化学形態変化
長瀧重信	長崎大学名誉教授	10:30-11:00	過剰ヨウ素摂取と甲状腺：福島原発事故の影響を考える基礎として
地球環境とヨウ素			
Martin Reich	Chile 大学（チリ）	11:10-11:50	Sources and sinks of iodine in the Atacama Desert of northern Chile: geochemical and climatic implications
Glen Snyder	Rice 大学（米国）	11:50-12:30	I-129 in surface reservoirs: present and future trends
		昼休み	
横内陽子	国立環境研究所	13:30-13:50	大気中における有機ヨウ素化合物の動態
村松康行	学習院大学	13:50-14:10	日本周辺における高濃度のヨウ素を含んだ鹹水の産出とその起源
東郷洋子	産業総合研究所	14:10-14:30	化学形態とヨウ素同位体比に基づく幌延地域でのヨウ素の挙動解明
環境中のヨウ素-129			
Rolf Michel	Hannover 大学（独）	14:30-15:10	I-129 in the European environment
松崎浩之	東京大学	15:20-15:40	Iodine isotope systems in the environment:
遠山知亜紀	学習院大学	15:40-16:00	大気降下物中の I-129 の経年変化
末木啓介	筑波大学	16:00-16:20	福島県東部地域における土壌中の放射性ヨウ素 I-129 の分布：原発事故の前と後
福島原発で放出された放射性ヨウ素			
鶴田治雄	東京大学	16:30-16:50	福島原発事故による放射性セシウムと放射性ヨウ素の広域環境汚染
木下哲一	清水建設	16:50-17:10	福島県及び関東地方におけるヨウ素-131 の降下量
茅野政道	原子力機構	17:10-17:30	福島第一原子力発電所事故で放出された放射性ヨウ素の大気拡散解析
総合討論		17:30-18:00	・放射性ヨウ素による甲状腺への影響（長瀧） ・ヨウ素 129 を用いた原発起源のヨウ素 131 の推定（村松） ・今後のヨウ素研究について（天知）

# Iodine studies in Biology and Environmental Sciences – 2011

(生物と環境におけるヨウ素 – 2011)

November 19, 2011 Gakushuin University, Building Minami 7-101 (南7-101)

<b>Iodine and Biology</b>		
Yoichi Kondo	9:30–10:00	Evolutionary aspects of Iodine as an essential element for bio-organisms
Seigo Amachi	10:00–10:30	Microbial influences on the chemical forms of iodine in the environment: Ecology, biochemistry and application of iodide-oxidizing bacteria
Shigenobu Nagataki	10:30–11:00	Iodine intake in Japan in relation to radiation effects on thyroids at the Fukushima accident.
	Break	
<b>Geochemical behavior of iodine</b>		
Martin Reich	11:10–11:50	Sources and sinks of iodine in the Atacama Desert of Northern Chile: geochemical and climatic implications
Glen Snyder	11:50–12:30	I-129 in surface reservoirs: Present and future trends
	Lunch	
Yoko Yokouchi	13:30–13:50	Temporal and Spatial Distribution of Organic Iodine Compounds in the Atmosphere
Yasuyuki Muramatsu	13:50–14:10	Origin of iodine associated with methane hydrate
Yoko Togo	14:10–14:30	Behavior of iodine in Horonobe area based on iodine speciation and $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio
<b>Iodine-129 in the environment</b>		
Rolf Michel	14:30–15:10	I-129 in the European environment
	Break	
HiroYuki Matsuzaki	15:20–15:40	Iodine isotope systems in the environment:
Chiaki Toyama	15:40–16:00	The secular variation of $^{129}\text{I}$ in atmospheric fallout
Keisuke Sueki	16:00–16:20	Distributions of I-129 in surface soils at the eastern Fukushima. –Before or after the nuclear plants accident–
	Break	
<b>Radiiodine released from the nuclear accident</b>		
Haruo Tsuruta	16:30–16:50	Regional Deposition of Radioactive Cs and I by the Accident of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant
Norikazu Kinoshita	16:50–17:10	Deposition of Iodine-131 in Fukushima and eastern Kanto
Masamichi Chino	17:10–17:30	Numerical Analysis on atmospheric dispersion of radioactive iodine discharged during the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident
Discussion	17:30–18:00	<ul style="list-style-type: none"> <li>•Effect of radioiodine on thyroid gland (Commentator: S. Nagataki)</li> <li>•Reconstruction of I-131 from the measurement of I-129 (Y. Muramatsu)</li> <li>•Future iodine studies (S. Amachi)</li> <li>•etc</li> </ul>

Evening: get-together

Organizers: Yasuyuki Muramatsu <yasuyuki.muramatsu@gakushuin.ac.jp>  
Seigo Amachi <amachi@faculty.chiba-u.jp>

## 生物に於けるヨウ素利用の進化に関する考察

### Evolutionary aspects of Iodine as an essential element for bio-organisms

近藤洋一（群馬大学）（Yoichi Kondo (Gunma University)）

Iodine is an essential component of the thyroid hormone (TH) that makes the human beings to normally grow up and to act as a thinker with one's developed CNS. I will describe some of the evolutionary processes up to the hormone production in the human thyroid, with some discussions on further developments of the study.

For further development of the study: The history of the iodine coexistence with bio-organisms is so long, while our knowledge of its physiological significance is so poor. To get insight on it, I suggest a few subjects to be considered in relation to the TH evolution. (1) In relation to the iodine action as an antioxidant, the origin of innate and adaptive immunity. (2) In relation to the body localization of TH production sites, the TH actions on feeding machineries and local and/or CNS. (3) Relation between ecology and TH producing machineries, especially the structure of TH-mother-molecule on that its TH production efficiency may depend. In relation to (3), I am now working, on the TH-mother-molecule of hagfish thyroid to get insight to the physiological significance of the molecular differences among higher, lower vertebrates, and invertebrates.

ヒトの TH 生産と利用: TH を作る臓器は甲状腺であるが、その実態は甲状腺濾胞 (F) と呼ばれる、一層のホルモン合成細胞 (HSC) が作る袋状組織の集合体である。ヨウ素を利用した TH 合成は濾胞腔(細胞で囲まれた内部)で行われる。ヨウ素イオンは甲状腺ペルオキシダーゼ (TPO) により酸化、活性化され、HSC の合成した蛋白質サイログロブリン (Tg) 分子内チロシン残基をヨウ素化する。同じ TPO により、ヨードチロシン 2 残基の縮合がおこり、サイロキシン (T<sub>4</sub>) 残基が合成される。水解により T<sub>4</sub> が遊離し、脱ヨウ素酵素により生じたトリヨードサイロニン T<sub>3</sub> を含めた甲状腺ホルモン (TH) が生産される。

TH は全身の細胞へ輸送され、核受容体 (TR) により直接的に、あるいは膜受容体 (MTR) を介し間接的に遺伝子読み取りを誘導し、細胞質酵素系を制御する。

TH 生産の量的及び時間的制御は脳の視床下部及び下垂体と甲状腺間で相互にそれぞれの生産ホルモン (TRH, TSH, TH) を使った情報フィードバックによって行われる。

ヒト以外の脊椎動物の TH 生産: 最下等の円口類ヤツメウナギ成体以上の動物ではヒトと同じヨウ素利用機構がある。TH 作用の表現型は異なる。ヤツメウナギ幼生には F はない。TH 合成機構を持った細胞群が内柱に偏在し、変態近くまで Tg と異なる未同定蛋白質のヨウ素化が観察されるが TH の生産は少ない。淡水生活が出来ないヌタウナギには F はあるが Tg と異なる高ヨード・高 TH 蛋白質が細胞内に集積する。多量の TH が血中へ分泌される。

無脊椎脊索動物: F はないが、鰓付近の内柱の一部細胞ではヒト TPO 相同ペルオキシダーゼにより未同定蛋白質がヨウ素化され、TH も生産する。

その他の無脊椎海棲動物: 棘皮動物、軟体動物にはヒト TPO 相同ペルオキシダーゼが存在し、TH が生産される。進化度の低い刺胞動物、サンゴやクラゲでも TH 生産が報告されている。また、実験飼育で投与した TH への発生促進レスポンスの報告は少なくない。

バクテリア・植物: 複数の植物性プランクトンで多量の TH が生産される。食餌性 TH に対するレスポンス機構の先行、飢餓時の対策としての TH 生産系出現の可能性もある。微生物では天知らがヨウ素を取り込む微生物による有機ヨウ素化合物生産を発見し、地球圏におけるヨウ素サイクルへの関与を論じている。藻類コンブには基質特異性の低いハロペルオキシダーゼが存在し、ヨウ素イオンによる環境由来酸化ストレスへの対応が論じられている。

## 微生物によるヨウ素の化学形態変化～ヨウ素酸化細菌を中心に～

Microbial influences on the chemical forms of iodine in the environment: Ecology, biochemistry and application of iodide-oxidizing bacteria

天知誠吾（千葉大学大学院園芸学研究科・応用生命化学）

Seigo Amachi (Graduate School of Horticulture, Chiba University)

微生物は揮発、酸化、還元、濃縮反応などを通じてヨウ素の化学形態変化や動態に影響し、ひいては地球化学的ヨウ素循環に貢献している。

ヨウ素酸化細菌はヨウ化物イオン ( $I^-$ ) を分子状ヨウ素 ( $I_2$ ) に酸化する反応を触媒する海洋細菌で、 $I_2$  以外にもジヨードメタン ( $CH_2I_2$ ) やクロロヨードメタン ( $CH_2ClI$ ) の生産能も有する。ヨウ素酸化細菌は、ヨウ化物イオン濃度の高い天然ガス鹹水とこれに関連する施設から高い頻度で分離される。また海水に鹹水と同程度のヨウ化物イオンを添加することで、ヨウ素酸化細菌を集積できる。我々は分子生物学的な手法 (PCR-DGGE、qPCR) を用いて、高ヨウ素条件下でヨウ素酸化細菌が他の菌種と比較して優占化すること (全細菌の 6~76%)、また自然海水に純粋菌株を接種した実験からこの優占化には  $I_2$  の存在が重要であることを明らかにした。ヨウ素酸化細菌は数  $\mu M$  程度の  $I_2$  に対して耐性を持ち、これにより  $I_2$  感受性の細菌よりも生態的に有利な地位を獲得すると考えられる。

ヨウ素酸化細菌 Q-1 株よりヨウ素酸化酵素 (IOE) を精製し、その性質を明らかにした。また次世代シーケンサーで Q-1 株のドラフトゲノムを決定し、LC-MS/MS 解析より得られたアミノ酸配列情報から IOE の構造遺伝子の推定を行った。IOE はマルチ銅オキシダーゼと呼ばれる酵素の 1 種と考えられ、ヨウ化物イオン以外に種々のフェノール性化合物の酸化能も有していた。IOE のアミノ酸配列を元に系統樹を作成したところ、既知のバクテリアのマルチ銅オキシダーゼからは独立しており、新規なグループを形成すると考えられた。これまで糸状菌のマルチ銅オキシダーゼでヨウ素酸化能を有するものが 2 例報告されているが、反応速度論的解析により IOE のヨウ素酸化能の方が顕著に優れていることが明らかになった。IOE は酵素殺菌剤などとしての応用も期待できる。

土壌へのヨウ化物イオンの吸着に、微生物が関与する可能性は以前より指摘されている。我々は  $^{125}I$  を用いたトレーサ実験より、土壌中マルチ銅オキシダーゼ活性と、土壌のヨウ素吸着速度に強い相関性があることを見いだした。また、滅菌土壌に IOE を添加することでヨウ素吸着能が回復することもわかった。おそらく土壌環境にもヨウ素酸化細菌に類似した微生物が存在し、IOE 様酵素によってヨウ化物イオンを酸化し、生成した  $I_2$  が土壌有機物に取り込まれ蓄積していくものと推察される。

## **過剰ヨウ素摂取と甲状腺：福島原発事故の影響を考える基礎として** **Iodine intake in Japan in relation to radiation effects on thyroids at the Fukushima accident.**

長瀧重信、長崎大学名誉教授、放射線影響研究所元理事長

Shigenobu Nagataki, MD, PhD.

Professor emeritus, Nagasaki University, Past Chairman, Radiation Effect Research Foundation

### **日本人のヨウ素摂取量 Iodine Intake in Japan:**

#### **(1－3ミリグラム/日、1-3mg/day)**

世界で10億人以上のヒトがヨウ素不足に悩んでいるのに対し、日本のようにヨウ素を過剰に摂取している国もある。ヨウ素は一日100マイクログラムが必要であるが、日本では昆布を摂取すると簡単に10ミリグラムを超えてしまう。一日必要量の100倍である。過剰ヨウ素摂取の原因は昆布であるが、昆布の摂取量は個人の好みにより一度に摂取する量だけではなく頻度も異なる。したがってヨウ素摂取に関する報告にも大きな幅がある(0.1-30mg/day)。昆布の日本における消費量、全国生活調査の昆布摂取量から求めると平均は1.2mg/dayとなり、多くの報告で1-3mg/dayと記載されている。

### **過剰ヨウ素摂取と甲状腺 Excess Iodine Intake and Thyroid Function:**

#### **(過剰ヨウ素摂取への適応 Adaptation to Excess Iodine Intake)**

一日必要量の10－30倍、時に100倍以上もヨウ素を摂取していると、ヨウ素を材料として甲状腺ホルモンを作っている甲状腺に対する影響が問題となるが、過剰のヨウ素を摂取していても、日本人の甲状腺は正常の甲状腺ホルモンを分泌している。自ら調節をして正常の甲状腺機能を保っていることになる。この調節機序は、ひとつは血液からヨウ素を摂取するときの調節、もうひとつは甲状腺の中に摂取してもホルモンまでは合成せず、無機のヨウ素として血液中に放出することにある。

### **原発事故とヨウ素摂取 Accident of Nuclear Power Plants and Iodine Intake**

#### **(長期間の放射性ヨウ素放出に対する甲状腺の防護 Protection of Thyroids from Prolonged Release of Radioactive Iodine)**

福島原発事故の前には、事故によって放出された放射性ヨウ素が甲状腺に摂取されるのを防ぐために、放射線ヨウ素を含む雲(plume)が来る前に100mgの安定ヨウ素を一度だけ服用し、plumeのこない安全な場所に避難するのが原則となっていた。大量の安定ヨウ素の服用は、甲状腺の調節機序として甲状腺に摂取されるよう放射性ヨウ素の量を1%以下にまで減少させること、しかし効果は24時間しか継続しないのでその時間内に安全な場所に避難することと記載されている。繰り返す大量の安定ヨウ素投与の副作用が心配されたからである。ところが、福島原発事故では、plumeの放出は継続し、広い範囲に放射性ヨウ素が降下するため、一度だけ安定ヨウ素剤を服用して安全な場所に避難することは不可能があることが明らかとなった。継続するplumeに対しての新しい対策を考える上で、過剰のヨウ素を摂取している日本人の経験は有用である。

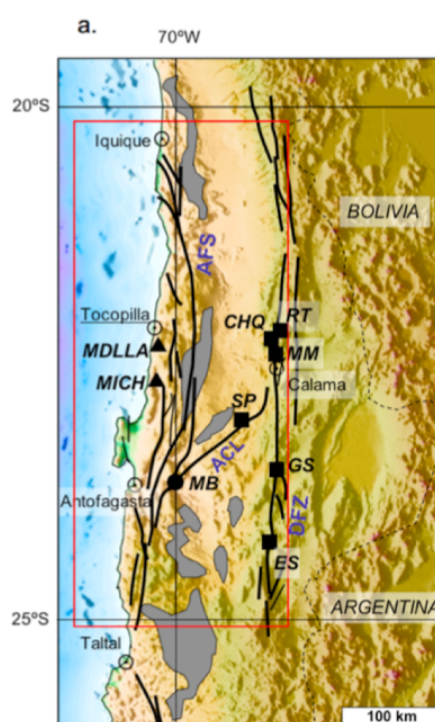
## Sources and sinks of iodine in the Atacama Desert of Northern Chile: geochemical and climatic implications

Martin Reich – Department of Geology and Andean Geothermal Center of Excellence (CEGA),  
University of Chile, Santiago, Chile  
[mreich@ing.uchile.cl](mailto:mreich@ing.uchile.cl)

Iodine is a strongly biophilic element and its global distribution is dominated by the marine system, in particular marine sediments, which hold about 70 percent of the total iodine in the crust. Because of its large ionic radius, iodine is rarely incorporated into minerals and remains in the aqueous phase much longer than other halogens. Therefore, the occurrence of iodine minerals in continental settings is rare, with the exception of hyperarid areas such as the Atacama Desert of northern Chile. Currently, the Atacama region is the world's premier iodine production province, where the occurrence of iodine minerals is exclusively restricted to: (a) The extensive nitrate-iodine deposits located along the eastern side of the Coastal Range, and (b) The supergene zones of copper deposits (Fig. 1).

The presence of iodine in copper and nitrate deposits is enigmatic and has been seriously overlooked over the years. Little information is available about the source(s) of iodine in the Atacama region, and only a few studies have reported data on the mineralogy, geochemistry and isotopic composition of iodine in these deposits. Preliminary I-129 ( $^{129}\text{I}$ ) data of nitrate ores of the Atacama Desert show that the isotopic signature of this element in the nitrates is not consistent with a marine fog origin, as previously thought. These low  $^{129}\text{I}/\text{I}$  ratios, comprised between  $\sim 150$  and  $400 \times 10^{-15}$ , are similar to previously reported ratios of forearc fluids, suggesting that the iodine component of nitrate deposits may have a different origin than atmospheric or marine (e.g. deep source). Moreover, recent reports of iodine minerals occurring in supergene zones of copper deposits nearby (e.g. the giant copper deposit Chuquibambilla) indicate that reducing iodine-rich waters were involved in supergene enrichment of copper.

In the light of these new evidences, alternative source(s) for the iodine that is contained in copper and nitrate deposits in the Atacama Desert must be evaluated. This information is of utmost importance to better understand the processes that have led to iodine enrichment in northern Chile, and its relation with the tectonic/seismic/metallogenic history of the area and changes in climate, particularly the desiccation of the Atacama region.



**Fig. 1. (a)** Distribution of nitrate ore fields (shaded in grey) and Cu deposits (symbols) in the Atacama Desert. Triangles: stratabound Cu (Mantos de la Luna, MDLLA; Michilla, MICH). Circles: porphyry-like Cu (Mantos Blancos, MB). Squares: porphyry-Cu (Spence, SP; Chuquibambilla, CHQ; Radomiro Tomic, RT; Mansa Mina, MM; Gaby Sur, GS; Escondida, ES). The major structural features shown are the Atacama Fault System (AFS), the Antofagasta-Calama Lineament (ACL), and the Domeyko Fault System (DFS).

## I-129 in surface reservoirs: Present and future trends

Glen.T. Snyder

Dept. Earth Science, MS-126, Rice University, 6100 Main St., Houston, TX 77005-1892, U.S.A.

Iodine-129 in the environment comes from several sources, including cosmogenic, fissiogenic, and anthropogenic. In surface reservoirs, however, the naturally-formed cosmogenic and fissiogenic components are strongly overprinted by the anthropogenic source. Presented in this talk are the results of over 400 river and lake samples as well as more than 250 shallow seawater samples (<2m). samples (Figure 1), comprising nearly all of the published iodine-129 data over the past 25 years.. The distribution of high  $^{129}\text{I}/\text{I}$  ratios and high  $^{129}\text{I}$  ratios indicates that the major point sources for this isotope are from routine operations at nuclear reprocessing centers. Unlike other isotopes released during reprocessing, such as  $^{85}\text{Kr}$ ,  $^{129}\text{I}$  is at present distributed mainly in the Northern hemisphere, although concentrations of this isotope in the southern hemisphere are also exceed pre-anthropogenic levels. Circulation of ocean deep-waters will eventually distribute this isotope around the globe, to areas far distant from present nuclear reprocessing activities. The long-term fate of this isotope is therefore of concern, particularly given the long half-life of 15.6 Myr. Mean shallow ocean concentrations, projected over the next 13Kyr (Figure 2) indicate that, although levels are projected to be well below guideline limits proposed by the WHO and the USEPA, concentrations will likely increase by several orders of magnitude over the next few thousand years. Deposition on the sea floor of iodine bound to particulate matter is low when compared to production rates and other processes such as marine downwelling. Given that the present distribution over the ocean is not uniform, and that iodine tends to accumulate in fish and other marine organisms, further work must be done to project the long-term fate of iodine-129 on local and regional scales.

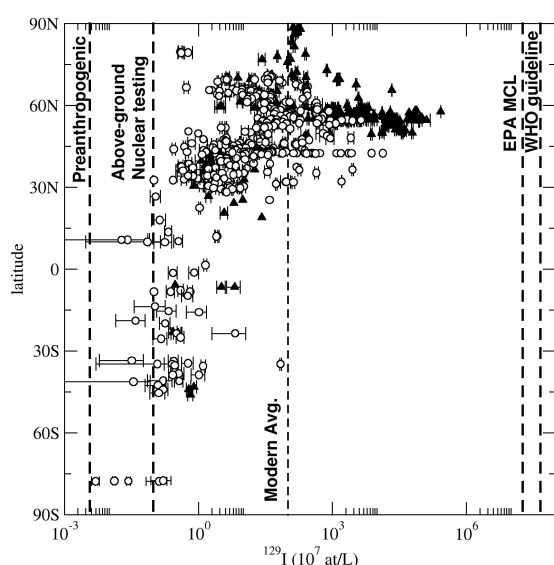


Figure 1: Latitudinal range of observed  $^{129}\text{I}$  concentrations. Closed triangles = shallow seawater, Open circles=rivers and lakes. All samples are presently below the EPA maximum control level and the WHO guidelines for drinking water.

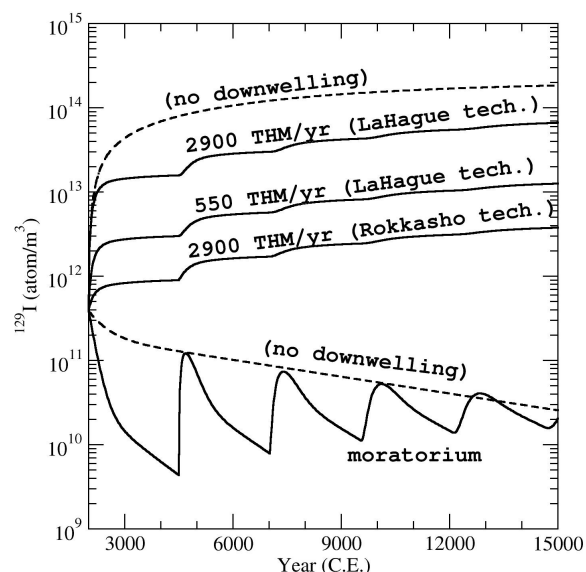


Figure 2: Projected increases in  $^{129}\text{I}$  content, depending on whether La Hague technology or Rokkasho technology is used. Oscillations occur due to upwelling of anthropogenic iodine due to downwelling. The decrease in the case of a moratorium without downwelling is due to sedimentation.



# 大気中における有機ヨウ素化合物の動態 Temporal and Spatial Distribution of Organic Iodine Compounds in the Atmosphere

横内陽子 (国立環境研究所)

Yoko Yokouchi (National Institute for Environmental Studies)

大気中の主な有機ヨウ素化合物であるヨウ化メチル( $\text{CH}_3\text{I}$ )、ヨウ化エチル( $\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$ )、クロロヨードメタン( $\text{CH}_2\text{ClI}$ )、ジヨードメタン( $\text{CH}_2\text{I}_2$ )は、大部分が海洋起源であると考えられている。これらの化合物は大気中の光分解によってヨウ素原子を放出し、これがオゾンの破壊とエアロゾルの生成に關与する。我々は、このような大気中有機ヨウ素化合物の全体像を理解するために、空間分布と時間変動の測定を進めている。

## (1) 大気中 $\text{CH}_3\text{I}$ 濃度の緯度分布と季節変動

協力機関による大気サンプリングを定期的に行い、大気中ハロカーボンの測定を行った。アラート (北極)、落石岬 (北海道)、八方尾根 (長野県)、波照間島 (沖縄県)、ケープ・グリム (タスマニア) および西太平洋と北太平洋の数地点における 2003~2005 年のデータおよびサンクリストバル島 (ガラパゴス) と昭和基地における 2004 年のデータから得られた大気中  $\text{CH}_3\text{I}$  濃度の緯度分布と季節変動を Fig. 1 に示す。 $\text{CH}_3\text{I}$  濃度は、高緯度より低緯度で高く、中緯度域における季節変化は周辺海域の海水温と正の相関を示し、極域では日射と負の相関を示した。日本~チリ間 (MR08-09 航海) においても同様の緯度分布が観測された。また、チリ~豪間 (MR09-1 航海) の 17°S における  $\text{CH}_3\text{I}$  濃度は  $0.76 \pm 0.16 \text{ ppt}$  と、経度方向の変動が小さいことを示した。これらの結果は、外洋における  $\text{CH}_3\text{I}$  生成には生物よりも海水中の光化学反応のような非生物的生産の寄与が大きいことを示唆した。

## (2) 大気中有機ヨウ素化合物の詳細な時間変動

国立環境研究所のハロカーボンモニタリングの一環として波照間島と落石岬において、有機ヨウ素化合物の毎時間測定を実施した。波照間島における観測結果の一部を Fig. 2 に示す。 $\text{CH}_3\text{I}$  と  $\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$  はよく似た変動を示し ( $R \approx 0.6$ )、共通の発生源を持つことが示唆された。光分解性の高い  $\text{CH}_2\text{I}_2$  と  $\text{CH}_2\text{ClI}$  は顕著な日変化を示し、 $\text{CH}_2\text{I}_2$  は日中にはほとんど検出されなかった (検出限界は  $\sim 0.02 \text{ ppt}$ )。  $\text{CH}_2\text{ClI}$  濃度は年間を通して風速とよい相関を示した ( $R \approx 0.5$ )。海洋から大気への放出量は海水中濃度と風速に依存することを考えると、この結果は周辺海域における海水中  $\text{CH}_2\text{ClI}$  濃度が季節によって余り大きく変動しないことを示唆している。また、冬季には  $\text{CH}_3\text{I}$  と  $\text{C}_2\text{H}_5\text{I}$  の大気中濃度は中国から輸送される人為汚染成分濃度と似た変動を示すことが分かった。

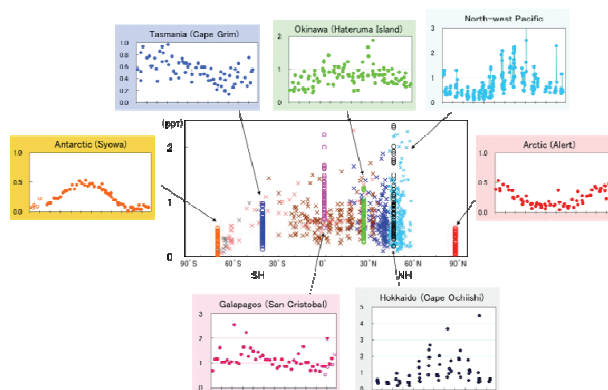


Fig.1 Latitudinal and seasonal variation of atmospheric  $\text{CH}_3\text{I}$  concentration (Yokouchi et al., JGR, 2008)

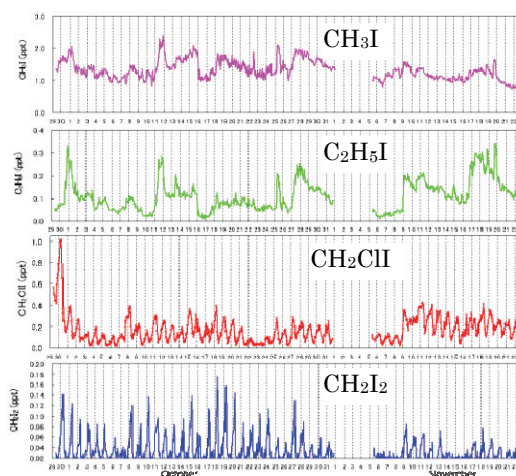


Fig.2 Variations of the atmospheric iodocarbons measured at Hateruma Island between 15 September and 22 November 2009 (Yokouchi et al., JGR, 2011)

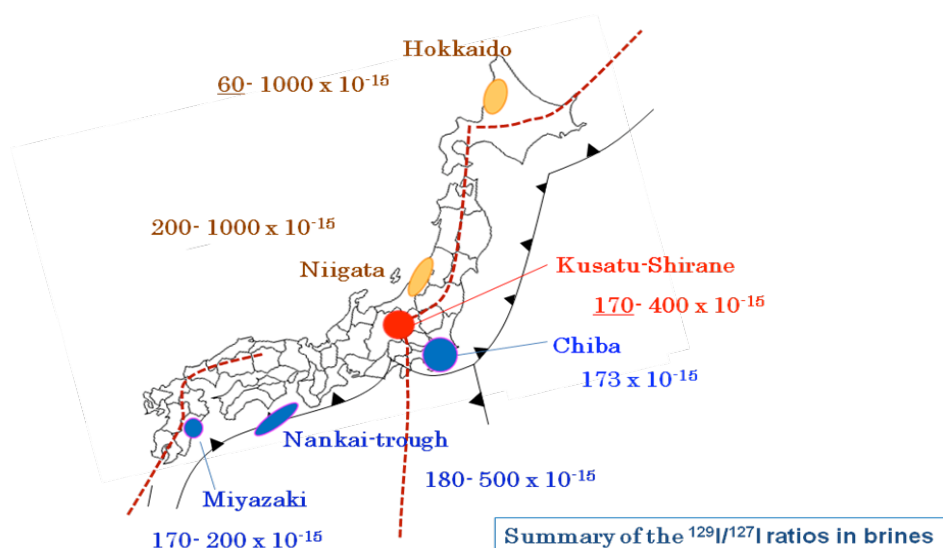
## 日本周辺における高濃度のヨウ素を含んだ鹹水の産出とその起源 Occurrence and origin of iodine rich brines in Japan

学習院大学理学部 村松 康行 (Yasuyuki Muramatsu, Gakushuin University)

Concentrations of iodine in brines and hot spring water samples from different locations in Japan (e.g. Pacific side, volcanic front areas and Japan Sea side) have been studied.  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios were also determined in a subset of the samples. The iodine levels varied very widely from  $<0.01$  to  $140\text{ppm}$ . Samples collected from Chiba Prefecture showed the highest iodine concentrations and low  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratios of around  $170 \times 10^{-15}$ , which corresponds to the iodine age of 49 Ma. This indicates that iodine was released from the subducting marine sediments into the shallow areas. High iodine concentrations were also found in the samples collected from Miyazaki and Japan Sea area (incl. methane hydrate brine). Volcanic fluids from Kusatsu-Shirane showed a relatively high iodine concentration. Origin of iodine rich brines and volcanic fluids will be discussed.

日本列島の様々な地域において塩分濃度が濃い地下流体が産出する。それらは化石海水とも呼ばれることがあるが、起源については良く分かっていない。興味深いことには、それらのヨウ素濃度は海水の値 ( $0.06\text{ppm}$ ) よりも2桁から3桁高いものもある。特に、千葉県房総半島においては、上総層群の深さ  $1000\text{m}$  から  $2000\text{m}$  からヨウ素濃度が  $100\text{ppm}$  を超える塩水(鹹水)が産出しており、興味深いことにはその中にはメタンも溶存している。ヨウ素に富んだ地下流体は塩素にも富んでいるが、塩素濃度が高いものがヨウ素を多く含むとは限らない。日本列島では上述した上総層群以外にも、数十 ppm 以上と高いヨウ素を含んだ流体が宮崎県、沖縄県、新潟県、秋田県、北海道で産出される。また、群馬県の草津白根周辺で採取した温泉水中のヨウ素濃度を測定したところ、 $5\text{ppm}$  と海水より約100倍高い値を示した。(温泉水中のヨウ素濃度は、多くの地域で  $0.1\text{ppm}$  前後であることを考えても草津の値は高い。) 太平洋側でのヨウ素濃度が高い地下水中のヨウ素の起源については前孤域における海洋プレートの沈み込みとの関係である程度説明できると考えられるが、太平洋側以外の地域におけるヨウ素の起源は良く分かっていない。日本海の海底にはメタンハイドレートを含む堆積物が存在する地域があるが、その堆積物中の間隙水にも高濃度のヨウ素が含まれている。日本海側の試料は日本海の誕生やグリーンタフのイベントと関連して濃縮したと考える。草津白根周辺の試料はマグマからの脱ガスなどのメカニズムを解明する上でも役立つであろう。

本研究では、日本列島の、前孤域、火山フロント、後孤域で採取された塩分濃度の高い地下流体(温泉水など)中のハロゲン元素やその他の溶存成分を分析し、それらの化学的な特徴を求めた。特に、ヨウ素とヨウ素-129に注目し研究を進めた。



## 化学形態とヨウ素同位体比に基づく幌延地域でのヨウ素の挙動解明

### Behavior of iodine in Horonobe area based on iodine speciation and $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ratio

○東郷 洋子<sup>1</sup>, 高橋 嘉夫<sup>2</sup>, 天野 由記<sup>3</sup>, 松崎 浩之<sup>4</sup>, 鈴木 庸平<sup>4</sup>, 村松 康行<sup>5</sup>, 岩月 輝希<sup>3</sup>  
(産業技術総合研究所<sup>1</sup>, 広島大学<sup>2</sup>, 日本原子力研究開発機構<sup>3</sup>, 東京大学<sup>4</sup>, 学習院大学<sup>5</sup>)

【はじめに】放射性ヨウ素  $^{129}\text{I}$  は易動性が高く、長半減期（1570 万年）であることから、放射性廃棄物の地層処分の安全評価の際には重要な核種の一つである。そのため、地下岩石圏でのヨウ素の挙動を理解することが急務となっている。しかし、ヨウ素は環境中で様々な化学形態 ( $\text{IO}_3^-$ ,  $\text{I}^-$ ,  $\text{I}_2$ , 有機ヨウ素など) をとり、それぞれ易動性が大きく異なるため、環境中での挙動理解は容易ではない。そこで、本研究では北海道幌延地域を対象に、固液両相のヨウ素の濃度分布、化学形態、ヨウ素同位体比 ( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ) を調べ、長期・広域での地下環境中でのヨウ素の挙動解明を試みた。

【方法】日本原子力研究開発機構幌延深地層研究センターで掘削されたボーリング孔から採取された地下水および岩石を用いて以下の分析を行った。主な岩相は珪藻質泥岩（声間層）および珪質泥岩（稚内層）である。岩石試料中（HDB-11 孔、深度 302 m および 1008 m）のヨウ素の化学形態は、K 吸収端 XANES により決定した（SPring-8, BL01B1）。さらに、岩石を両面研磨した薄片を作成し、micro-XRF を用いた岩石中のヨウ素のマッピングを行った（SPring-8, BL37XU）。地下水中のヨウ素の化学形態分析は高速液体クロマトグラフィー接続 ICP-MS を用いて、 $\text{I}^-$ 、 $\text{IO}_3^-$ 、有機ヨウ素の分離検出を行った。また、地下水および岩石から抽出したヨウ素の同位体比 ( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ) を東京大学タンデム加速器にて測定した。岩石中のヨウ素は、加熱分離法（全ヨウ素）と水抽出法（主に  $\text{I}^-$ ）を用いて抽出した。

【結果・考察】岩石中のヨウ素の XANES から、ヨウ素は岩石中では有機ヨウ素と  $\text{I}^-$  の混合であることが分かった（Fig. 1）。また、岩石薄片のヨウ素のマッピングを行ったところ、声間層および稚内層において数~数十  $\mu\text{m}$  のヨウ素の濃集域が確認された。ヨウ素濃集域では炭素濃度が高く、有機ヨウ素である可能性が高い。一方、地下水中のヨウ素濃度は地下深部で高く（最大で海水の 600 倍）、塩化物イオン濃度と非常によく相関した。また、地下水中のヨウ素の化学形態は  $\text{I}^-$  であった。これらのことから、堆積時に海底堆積物中の有機物に濃縮したヨウ素は続成作用などにより固相から  $\text{I}^-$  として溶出し、その後一部は  $\text{I}^-$  として岩石へ吸着したと考えられる。また、地下水のヨウ素同位体比は岩石から加熱分離および水抽出したヨウ素の同位体比よりも低かった。このことから、圧密・続成過程において、地下水中のヨウ素は稚内層よりもさらに深い層から溶出し、移動してきた可能性が高い。しかし、岩石のヨウ素同位体比は値がばらつく傾向があるため、今後は再現性の確認を行う必要がある。

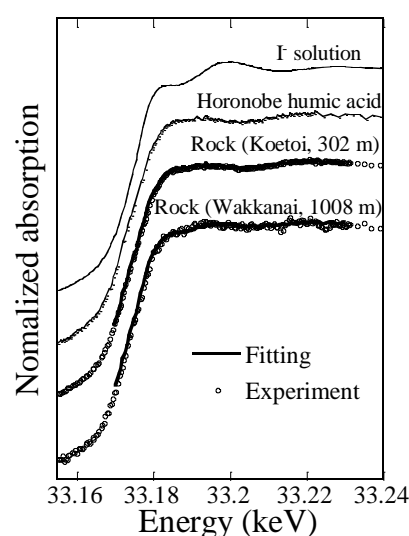


Figure 1. Iodine K-edge XANES spectra of standard materials and rock samples. Fitting curves show the spectra fitted by the linear combination of Horonobe humic acid and  $\text{I}^-$  solution. Horonobe humic acid :  $\text{I}^-$  solution = 92 : 8 (302 m), 65 : 35 (1008 m).

# Iodine-129 and Iodine-127 in the European Environment

R. Michel<sup>a</sup>, A. Daraoui<sup>a</sup>, M. Gorny<sup>a</sup>, D. Jakob<sup>a</sup>, R. Sachse<sup>a</sup>, L. Tosch<sup>a</sup>, V. Alfimov<sup>b</sup>, H.-A. Synal<sup>b</sup>,  
H. Nies<sup>c</sup>, J. Herrmann<sup>c</sup>, I. Goroncy<sup>c</sup>

<sup>a</sup> Institut für Radioökologie und Strahlenschutz, Leibniz Universität Hannover, Germany

<sup>a</sup> Labor für Ionenstrahlphysik, ETH Hönggerberg, Zürich, Switzerland

<sup>a</sup> Bundesamt für Seeschifffahrt und Hydrographie, Hamburg, Germany

Due to former atmospheric nuclear weapon tests, accidents in nuclear facilities and emissions from nuclear reprocessing plants the natural occurrence of the radionuclide I-129 has been affected on a long term scale by human activities. Particularly in Western Europe, these changes are continuing due to discharges from the nuclear reprocessing plants La Hague and Sellafield.

A survey is given on the environmental abundances of I-129 and I-127 in surface waters of the North Sea and the Northeast Atlantic. The distribution of I-129 and I-127 was studied using accelerator mass spectrometry for I-129 and ICP-MS for I-127. Samples of seawater were taken during cruises of the BSH research vessel „Gauß“ in the German Bight in May, September, and November 2005. In a cruise of the „Gauß“ the entire North Sea and the English Channel samples were also collected in August 2005. Further samples were obtained from the Irish Sea in June and August 2006 and from Arctic waters between Spitsbergen and Southern Norway in September 2005.

I-129 is a conservative tracer in seawater. The concentrations of I-127 are relatively constant with exceptions of coastal areas with high biological activity and of areas influenced by influx from rivers and the Baltic Sea. The variability of the I-129/I-127 isotopic ratios is exclusively determined by admixture of I-129 released from the reprocessing facilities Sellafield and La Hague. The observed I-129/I-127 ratios were between  $4 \times 10^{-9}$  and  $3 \times 10^{-6}$ ; at least 3 orders of magnitude higher than the natural equilibrium isotopic ratio in the marine hydrosphere of  $1.5 \times 10^{-12}$ . Low I-129/I-127 ratios of a few times  $10^{-10}$  were only found in seawater from the Indian Ocean and from the Pacific at Hawaii. Strong gradients were found in the North Sea due to the prevailing water current system and the transport of I-129 along the European Coastline from English Channel. Together with time series of the iodine isotopes in precipitation in Northern Germany, the results demonstrate the dominating role of the liquid releases for the atmospheric fallout of I-129 in Western Europe.

The transport of the iodine isotopes from the sea via the atmosphere to the continent and their pathways to animals and man was studied by investigating the actual situation in Lower Saxony, Germany. For exemplary regions near to and far from the coast of the North Sea, I-129 and I-127 were analysed in air, precipitation, surface and ground waters, soils, plants, animals, foodstuffs, total diet, and human and animal thyroid glands. For air-borne iodine, the speciation as well as the particle size distribution of aerosols was determined. Soil depth profiles were investigated down to depths of 2.5 m in order to study the iodine migration as well as individual surface soil samples to allow for the determination of transfer factors of the iodine isotopes into plants. From the analytical results radioecological parameters for the long-term behaviour of I-129 in the pedo- and biosphere were derived.

The iodine isotopes are in severe disequilibrium in the different environmental compartments. The pre-nuclear equilibrium I-129/I-127 ratio in the biosphere was determined to be  $2.0 \times 10^{-13}$  with a geometric standard deviation of 1.39. Today, the environmental isotopic ratios in Northern Germany range from  $10^{-6}$  to  $10^{-10}$ . The highest ratios are found in North Sea water, the lowest in deep soil samples and ground water. The North Sea appears as the dominant source of air-borne iodine in Northern Germany due to the emissions of European reprocessing plants. The results are discussed with respect to their radiological relevance and in view of the general protection of the environment, i.e. air, water, soil and the biosphere.

Finally, we report on the retrospective dosimetry of I-131 exposure after the Chernobyl reactor accident using AMS investigations of I-129 in soils. An intense increase of thyroid cancer was observed in Belarus, Russia and Ukraine in persons who were children at the time of the Chernobyl accident. This increase is attributed to high exposures to I-131. Since there were too few direct measurements of thyroid I-131 activities in 1986, retrospective dosimetry is of importance. We report on such a study in the highly contaminated regions of Northern Ukraine. 62 villages were investigated and the I-129 inventories in the soils were determined. From the I-129 inventories I-131 thyroid doses were estimated using aggregated dose coefficients for I-131. The results are compared with those from direct measurements of thyroid activities.

## **Iodine isotope system in environment:**

### **- Natural system, anthropogenic system and influence from NPP accident -**

Hiroiyuki MATSUZAKI<sup>1,2</sup>, Naoya MIYAJIMA<sup>2</sup>, Hironori TOKUYAMA<sup>2</sup>, Yasuto MIYAKE<sup>2</sup>,  
Maki HONDA<sup>3</sup>, Takeyasu YAMAGATA<sup>1,3</sup>, Yasuyuki MURAMATSU<sup>4</sup>

<sup>1</sup>Department of Nuclear Engineering and Management, School of Engineering, The University of Tokyo,

<sup>2</sup>Department of Systems Innovation, Faculty of Engineering, The University of Tokyo

<sup>3</sup>Nihon University,

<sup>4</sup>Gakushuin University

Iodine isotope system, concerning with wide ranges of isotopic ratio ( $10^{-14}$  to  $10^{-6}$  as  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ ) has great potential to investigate various aspects of earth environmental systems. Before 1950's there had exist only "natural iodine isotope system" where  $^{129}\text{I}$  had been provided by two sources, cosmogenic and fissiogenic. The half-life of the  $^{129}\text{I}$  is  $1.57 \times 10^7$  yr which is negligibly short compared to the earth history but longer enough than ordinary material circulation in the earth system such as marine circulation. Thus the isotopic ratio of iodine in a certain compartment is determined by the balance between the turnover time and the production rate. Generally this balance is different with site to site. But if the circulation is well quick between different sites, the isotopic ratio is identical everywhere. If this hypothesis is true, or within the region this is true, the dating of the closed system should be possible from the isotopic ratio. The earth surface environment (marine and atmosphere) seems to be the case. In 1998, J. Moran proposed  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 1.5 \times 10^{-12}$  as the initial value for dating. Using this initial ratio, U. Fehn determined the age of the methane hydrate (2000). Afterwards the ages of many geologic samples especially iodine containing fluids and sedimentary rocks have been determined. However some samples showed discrepancy between the iodine isotopic age and geological determined age.

To examine whether the natural iodine is fully mixed in the ocean and whether the initial value previously proposed ( $^{129}\text{I}/^{127}\text{I} = 1.5 \times 10^{-12}$  by Moran et al., 1998) is valid enough, we measured depth profiles from surface to bottom of  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratio for seawater samples collected from several points in the Indian ocean. The results showed significantly low  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ratio (around  $2 \times 10^{-13}$ ) in the middle to deep layer. According to our results, the initial value should be one order lower than that proposed by Moran. Serious difficulty arises for the interpretation of samples having isotopic ratio higher than  $2 \times 10^{-13}$  but lower than  $1.5 \times 10^{-12}$ . Proper age can be determined with previous initial ratio, but it should be interpreted as the anthropogenic contamination with our proposing initial ratio.

The compromising interpretation is that the iodine is not mixed enough between different sites. To examine this issue, observations and knowledge about the iodine movement in every site should be accumulated. In this context, anthropogenic  $^{129}\text{I}$  acts as the tracer of the iodine dynamics. After human began to utilize the nuclear power,  $^{129}\text{I}$  as a byproduct of the fission nuclear reaction entered to the earth surface environment overwhelming the naturally produce  $^{129}\text{I}$ . As a result, the isotopic ratio of the surface environment increased by several order. The spatial distribution of  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  tell us the iodine dynamics in the environment. As one of important sites for iodine reservoirs we have been focusing on the soil. The depth profile of  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  ration in the soil indicates there are at least two different modes of moving way, quick diffusion and slow movement. The accident at Fukushima Dai-ichi nuclear power plant made a spike of  $^{129}\text{I}$  onto the land surface, which would provide an useful tracer for observation of the iodine diffusion process. We will introduce some of the observation results so far obtained.

# 大気降下物中の $^{129}\text{I}$ の経年変化

## The secular variation of $^{129}\text{I}$ in atmospheric fallout

遠山知亜紀<sup>1</sup>, 内田悠香<sup>1</sup>, 村松康行<sup>1</sup>, 五十嵐康人<sup>2</sup>, 青山道夫<sup>2</sup>, 松崎浩之<sup>3</sup>

<sup>1</sup>学習院大・理 <sup>2</sup>気象研 <sup>3</sup>東大

【序論】 放射性ヨウ素は、核実験や原子力事故、再処理施設から環境中に放出される。そのうち、 $^{129}\text{I}$  は生成量が少なくても半減期（1570 万年）が極めて長いため、環境中における濃度や挙動を調べる必要がある。そこで、本研究では 1963 年から 2003 年までに秋田、東京、石垣で採取された大気降下物中の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比（ $^{127}\text{I}$  は安定ヨウ素）を AMS（加速器質量分析法）により測定し、そこから  $^{129}\text{I}$  の降下量を算出した。そして、核実験が盛んな頃から現在までの  $^{129}\text{I}$  の経年変化とその起源の推定を行った。

【試料及び実験方法】 本研究で用いた大気降下物試料は、気象研究所によって秋田・東京・石垣で採取されたもので、それぞれひと月分の降水と降下塵を含む。試料は月ごとに採取されているが、今回は 5 月の試料を選び分析に供した。また、東京のみ、9 月に採取された試料も分析した。尚、秋田・東京は、1963～2003 年、石垣は 1979～2003 年の試料を使用した。

試料からのヨウ素の分離には加熱分離法を用い、揮発してきたヨウ素をアルカリ溶液で捕集した。この溶液から 1ml を別途取り分け、適宜希釈し、ICP-MS でヨウ素濃度を測定した。残りの溶液は溶媒抽出・逆抽出を行ってヨウ素を精製し、濃縮後、硝酸銀を加えてヨウ化銀の沈澱を作り、乾燥させた。それを東京大学の AMS を用いて  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比を測定した。

【結果及び考察】 測定の結果、核実験が盛んに行われていた 1960 年代の秋田・東京における  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比の平均値は、 $1\cdot2\times10^{-8}$  であった。核実験が行われる前の自然界の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比は  $1.5\times10^{-12}$  であることから、大気降下物中の  $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$  比は核実験の影響により 4 桁も高くなっていることが分かった。しかし、どの地域も核実験によって放出された  $^{90}\text{Sr}$  や  $^{137}\text{Cs}$  の降下量の経年変化とは異なり、さらにチェルノブイリ原発事故の影響も見られなかったことから、核実験や原発事故以外の放出源である核燃料再処理施設からの影響が主であると考えられる。

東京と秋田の  $^{129}\text{I}$  降下量の経年変化を比較すると、東京は 1978 年までは平均  $1.0\times10^{-3}$  を示し、1978 年以降に急激に上昇して  $1.0\times10^{-1}$  を超える年も見られた。それに対し、秋田は 1963 年から東京よりも数倍高い降下量を示し、さらに 1980 年頃から上昇が見られた。このことから、東京と秋田の大気降下物は異なる放出源からの影響を受けていると考えられる。東京の  $^{129}\text{I}$  降下量の上昇原因としては、東海村の核燃料再処理施設の稼働が考えられ、施設から大気への  $^{129}\text{I}$  量年間放出量と比較を行ったところ、1978 年の上昇傾向などが一致した。一方、秋田は施設からの放出量との一致は見られず、秋田における  $^{129}\text{I}$  降下量の変動の主な原因は国内の再処理施設からの放出ではないと考えられる。また、石垣における  $^{129}\text{I}$  降下量は東京・秋田に比べて一桁低く、大きな変動が見られなかった。石垣は大陸から来る気団の影響が比較的少なく、また、国内の再処理施設からも遠く離れているので、あまり再処理施設からの影響を受けていないと考えられる。

福島県東部地域における土壌中の放射性ヨウ素 I-129 の分布  
—原発事故の前と後—

Distributions of I-129 in surface soils at the eastern Fukushima.

—Before and/or after the nuclear plants accident—

(筑波大学数理物質系<sup>1</sup>、筑波大院数理物質科学<sup>2</sup>、筑波大 AMS<sup>3</sup>、清水建設技術研究所<sup>4</sup>、京大防災研<sup>5</sup>、東大工<sup>6</sup>、日大<sup>7</sup>)

○末木啓介<sup>1,3</sup>、北川潤一<sup>2,3</sup>、笹 公和<sup>1,3</sup>、高橋 努<sup>3</sup>、沈 洪涛<sup>3</sup>、松村万寿美<sup>3</sup>、木下哲一<sup>4</sup>、松四雄騎<sup>5</sup>、松崎浩之<sup>6</sup>、山形武靖<sup>7</sup>

【緒言】ヨウ素の放射性同位体  $^{129}\text{I}$  (半減期約 1570 万年) は、宇宙放射線由来の天然核種及び核実験や原子力施設事故などによる人為的な核種として存在する。大気に放出された  $^{129}\text{I}$  の大半は地表面や海水面に降下したと考えられる。これらの核種は原発事故による被害を推定するのに重要な核種であり、3 月 11 日に起こった東日本大震災による福島第一原子力発電所の炉心溶融事故による影響を調査するため、震災以前と以後における放射性ヨウ素濃度の変化を比較する必要がある。また、事故によって放出された  $^{131}\text{I}$  は甲状腺癌の原因となりその降下量を正確に求めて評価する必要がある。しかし、半減期 8 日と短く個人ごとの被曝評価をするための詳細なデータを入手するのは困難となる。そこで  $^{129}\text{I}$  の降下量が推定に利用されている[1]。今回の事故でも  $^{129}\text{I}$  による  $^{131}\text{I}$  の評価方法の検証を行う。

【実験】炉心溶融事故以前に採取した福島県東部地域における 19 地点の土壌中の  $^{129}\text{I}$  量と事故後に原発から 20km 圏外の 22 地点で採取した土壌中の  $^{131}\text{I}$  と  $^{129}\text{I}$  量を調査した[2]。 $^{129}\text{I}$  の測定には、東京大学 MALT の AMS システムで行なった。また、ICP-MS により安定ヨウ素( $^{127}\text{I}$ ) の測定を行い、 $^{129}\text{I}$  (mBq/kg) を算出した。原発事故後の試料は、Ge 半導体検出器を用いて  $\gamma$  線測定することによって  $^{131}\text{I}$  の放射線量を求めた。

【結果・考察】事故前は 18 地点で土壌の採取を行い、そのうち 4 地点においては約 1 m までの深さまで測定し、深度により濃度が求められた。表層 10 cm までの深さの土壌について、 $^{129}\text{I}$  の放射能濃度は 0.16 ~ 0.65 (mBq/kg) であり、これは過去における日本の測定例と比較して標準的な値である [3]。原発事故後に採取した土壌について  $^{129}\text{I}$  と  $^{131}\text{I}$  の土壌中濃度の相関を求めた。いくつかのデータが外れているが正の相関は見られる。ただし、完全に一致していない。これは試料調整における均一化とサンプリングの仕方に問題がある可能性と  $^{129}\text{I}$  については事故以前の値の評価を検討する必要がある。今までに得られているデータと明らかにした検討課題を報告したい。

[参考文献]

[1] V. Mironov et al., *Journal of Environmental Radioactivity* **59** (2002) 293–307

[2] N. Kinoshita et al., in press *PNAS*

[3] Y. Muramatsu et al., *Quaternary Geochronology*, **3** (2008) 291–297



## **Regional Deposition of Radioactive Cs and I by the Accident of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant**

\*Haruo TSURUTA, Toshiaki ARAI, Kaoru SHIBA, Yousuke SATO,  
Makiko HASHIMOTO, Hiroko YAMADA, and Teruyuki NAKAJIMA  
Atmosphere and Ocean Research Institute, The University of Tokyo, Japan  
5-1-5 Kashiwanoha, Kashiwa, Chiba 277-858, Japan.

\*E-mail: [haru2004@aori.u-tokyo.ac.jp](mailto:haru2004@aori.u-tokyo.ac.jp)

The purpose of this study is to clarify the deposition of radioactive substances on land by the accident of the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant, by collecting the already released data on atmospheric concentration and fallout of radioactive substances in regional scale. In several sites located in the Kanto area, the atmospheric concentration of radioactive substances was measured every day from 15 March 2011. The data at all the stations clearly showed that  $^{131}\text{I}$  was much higher than  $^{(134+137)}\text{Cs}$  on 15 March and during 21-23 March, while  $^{131}\text{I}$  was almost equal to  $^{(134+137)}\text{Cs}$  on 20 March. The emission rate of radioactive substances from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant could be different among those days because the Kanto area had almost no precipitation on 15 and 20 March with much precipitation during 21-23 March. The fallout measurement at the monitoring stations in the network organized by the Ministry of Education, Culture, Sports, Science and Technology (MEXT) started from 18 March 2011, and which means that at stations with precipitation on 15-16 March, especially in the Tohoku area including Fukushima area, the fallout amount of radioactive substances on 15-16 March could not be measured. Although the fallout amount of radioactive substances depended on the precipitation amount, the pattern of  $^{131}\text{I}/^{(134+137)}\text{Cs}$  in the fallout was similar to that in the atmospheric concentration between 20-21 March and 22-23 March in south Kanto area. The MEXT performed an intensive field survey in June and early July 2011, for the mapping of the deposition rate of radioactive substances on surface soils in east Fukushima area where the soil sampling was made every grid point (2km x 2km). The deposition rate of  $^{134}\text{Cs}$ ,  $^{137}\text{Cs}$ , and  $^{131}\text{I}$  was already open, and the spatial pattern was very similar to that of radiation dose measured at the 1m height from the ground by local authorities and the MEXT survey, while the ratio of  $^{131}\text{I}/^{(134+137)}\text{Cs}$  was different between northwestern part and southern part from the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant. The major factors controlling these atmospheric concentrations and deposition rates will be discussed in detail, analyzing all these data with meteorological data by the Japan Meteorological Agency.



## 福島県及び関東地方におけるヨウ素-131 の降下量 Deposition of Iodine-131 in Fukushima and eastern Kanto

(清水建設技術研究所<sup>1</sup>、筑波大数理物質<sup>2</sup>、筑波大生命環境<sup>3</sup>、筑波大理工<sup>4</sup>、筑波大研究基盤総合セ<sup>5</sup>、日大文理<sup>6</sup>) ○木下哲一<sup>1</sup>、末木啓介<sup>2</sup>、北川潤一<sup>2</sup>、五十嵐訓<sup>2</sup>、西村朋紘<sup>3</sup>、黄穎斯<sup>3</sup>、佐藤志彦<sup>3</sup>、半田晃士<sup>4</sup>、高橋努<sup>5</sup>、笹公和<sup>5</sup>、佐藤正教<sup>6</sup>、山形武靖<sup>6</sup>

【諸言】2011 年 3 月 11 日に起こった東北地方太平洋沖地震による被害により、福島第一原発の原子炉の冷却システムが損なわれた。格納容器内の圧力を下げるため排気が行われ、その結果として、おびただしい量の揮発性の高いヨウ素やセシウムなどの核分裂生成物が環境中にばらまかれることになった。それらの生成物は大気の流れに乗って拡散し、降雨により地表に大量に降下する。特にヨウ素は様々核分裂生成物の中で沸点が低く、 $I$  や  $IO_3^-$  など様々な化学状態をとるので、ガス状のヨウ素と粒子状態のヨウ素が混在する。体内に取り込まれると甲状腺にたまる性質がある。ヨウ素による内部被ばくを検討するうえでも、降下量の分布を調査しておくことは今後の気象モデルを組み合わせた移流拡散に貴重なデータとなる。我々のグループは広域にわたり放射性同位体の降下量分布の調査を行った。

【実験】3 月下旬に茨城県、4 月上旬から 5 月上旬にかけて福島県、栃木県東部、埼玉県東部、千葉県北部にて 108 地点で表面土壌を採取した。茨城県では 10 cm 四方・1 cm 厚の土壌を採取し、他では 5 cmφ・5 cm 厚の土壌を採取した。降雨量や採取した土壌の厚みより 90% 以上の  $^{131}I$  や  $^{137}Cs$  を回収したと考えられる<sup>1</sup>。ガンマ線測定により各試料中の  $^{131}I$  や  $^{137}Cs$  などの定量を行い、降下量に換算した。

【結果と考察】2011 年 3 月 29 日に放射能を補正した  $^{131}I$  の降下量の分布を図 1 に示す。 $^{131}I$  は福島県飯舘村や浪江町、中通りで降下量が多い。福島県以外ではほぼ均一な降下量が見られる。アメダスによると 3 月 15–16 日に福島県で、3 月 21–24 日に茨城県・栃木県・千葉県・埼玉県で降雨があり、その時に降下があったと考えられる。しかしながら、 $^{137}Cs$  など他の同位体とは異なる分布が見られた<sup>2</sup>。 $I$  や  $Cs$  の間の沸点の違いによる異なる放出量の変化や、地形の影響が気象条件と結びつき異なる降下量が観測されたものと考えられる。

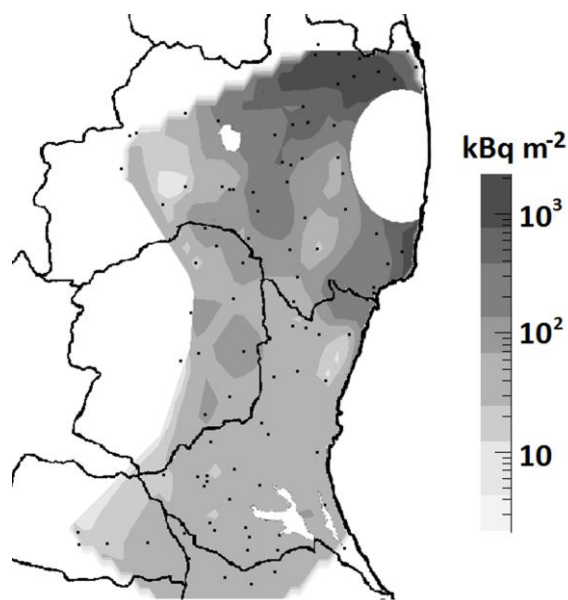


Fig. 1 Contour maps of depositions for  $^{131}I$ . Dot indicates position of sampling point.

### 参考文献

- [1] Gil-Garcia et al., J. Environ. Radioact. (2009) **100** 704–715.
- [2] Kinoshita et al., Proc. Natl. Acad. Sci. (in press).

福島第一原子力発電所事故で放出された放射性ヨウ素の大気拡散解析  
Numerical Analysis on atmospheric dispersion of radioactive iodine discharged during  
the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident

(独) 日本原子力研究開発機構 原子力基礎工学研究部門

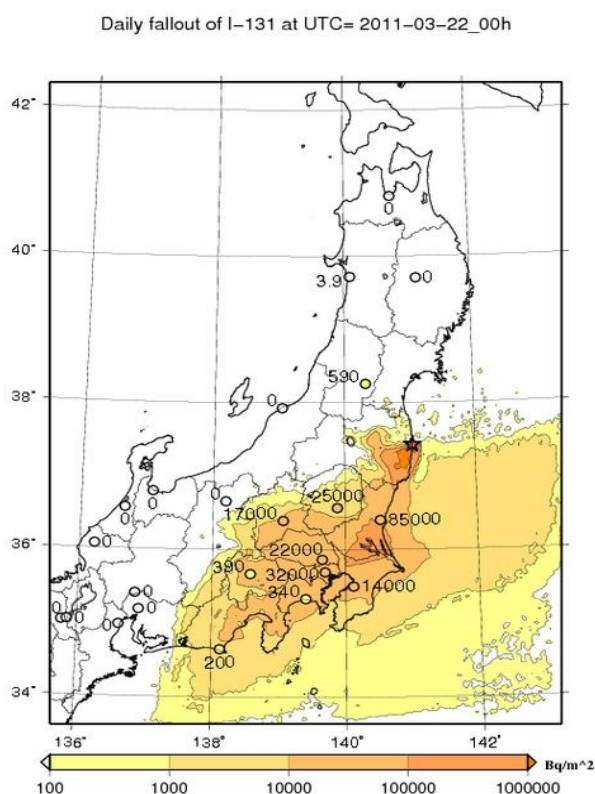
茅野 政道

2011年3月11日に発生した東日本大震災により引き起こされた東京電力の福島第一原子力発電所事故では、大量の放射性物質が大気中に放出され東日本の各地で放射性ヨウ素やセシウムが検出されている。

事故当初、放射性物質の大気放出量が不明な状態が継続し、事故の規模や被ばく線量評価を行う上で、放出量の推定が喫緊の課題となった。そのため、(独) 日本原子力研究開発機構では、内閣府原子力安全委員会に協力して、I-131とCs-137の約1か月にわたる放出量の変化を、環境モニタリングデータと大気拡散シミュレーションから推定した。その結果、3月12日の1号機での水素爆発の頃及び3月15日の日中にI-131やCs-137の大規模放出があり、3月24日頃まで比較的高い放出率が継続した後、徐々に大気放出が低下したことが明らかになった。

さらに、推定した放出量変化を入力として、大気拡散シミュレーションを行い、福島県での空間線量率分布、東日本域での大気降下量分布、日本全体での被ばく線量予測を行った。シミュレーションの結果、福島県内では3月15日に放出された放射性物質が時間とともに南から時計回りに北西に向きを変え、降雨帯と重なった地域でヨウ素やセシウムの地表沈着を形成したことが明らかになった。地表沈着核種による空気吸収線量率のうち、沈着当初はTe-132の子孫核種であるI-132の寄与が大きいという特徴があった。

東日本域の拡散シミュレーションでは、関東地方での放射性物質の地表沈着は、3月15～16日の乾性沈着と3月21日の湿性沈着の寄与が大きく、湿性沈着が現在、航空機モニタリング等で見られる不均一な分布を形成していることが明らかになった。航空機モニタリングでは、Cs-137とI-131の存在比が事故サイトの北西地域と南部で異なるが、これらは沈着形態や炉内状況によっても変わるものと考えられる。



Example of simulated I-131 fallout distribution on March 21. Color paint: simulation  
Circle: observed values