

令和 6 年 11 月 13 日

阿武隈川を流れるヨウ素 129 の動きを解析

福島大学環境放射能研究所 脇山義史准教授を代表とする研究グループが阿武隈川を流れるヨウ素 129 の動きに関する論文を公表しました。ヨウ素 129 は福島第一原発事故により放出された放射性核種の一つですが、河川における濃度や流出量を調べた研究が極めて少ないという状況です。本研究では、2018 年に阿武隈川中流の黒岩地点で採取した水試料を分析し、ヨウ素 129 濃度を測定しました。その結果、阿武隈川のヨウ素 129 濃度は事故前のレベルと同等であること、セシウム 137 に比べてヨウ素 129 が水に溶けた状態で移動しやすいことがわかりました。

本研究は、「放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点 (ERAN)」^{注 1} 事業の一部として、筑波大学・金沢大学に所属する研究者との協働で行われました。この研究成果は国際学術誌「Applied Geochemistry (アプライド・ジオケミストリー)」に掲載されています。

◎研究の背景

福島第一原子力発電所の事故により、放射性セシウムを初めとしてさまざまな放射性核種が放出されました。本研究で対象としたヨウ素 129 は 1570 万年という長い半減期を持ち、事故により放出されたヨウ素 129 の量は 5.2~7.3 GBq であり、そのうち 2.7 GBq が陸地に沈着したと推定されています。同じく放射性ヨウ素であるヨウ素 131 (半減期 8 日) が無視できる量になっているのに対して、その多くが環境中に残っていると考えられます。原発事故以降、土壌、雨水、海水などに含まれるヨウ素 129 の量や動きに関する調査が行われてきました。しかし、河川水を対象としたものは数例しかなく (Matsunaka et al., 2016^{注 2})、どのくらい濃度レベルでどれくらい流れていくのか、その動きに関する知見が少ないという状況です。

◎研究の方法

阿武隈川中流に位置する黒岩地点 (図 1) において、2018 年 7 月 5~7 日および 10 月 1~4 日の増水時に採取した水試料を分析しました。ろ過により懸濁物質とろ液に分けた後、それぞれ前処理を行い、筑波大学が保有する加速器質量分

析装置^{注3}を用いて分析を行い、懸濁物質のヨウ素129濃度(mBq/kg)と溶存態ヨウ素129濃度(μ Bq/L)を求めました。得られたデータをもとに、増水時における濃度レベルとその変化、河川を通じて流れていく量を記述しました。さらにWakiyama et al. (2022)^{注4}においてすでに公表されている同地点・同期間におけるセシウム137のデータと比較することにより、ヨウ素129の環境中での動きの明らかにしました。

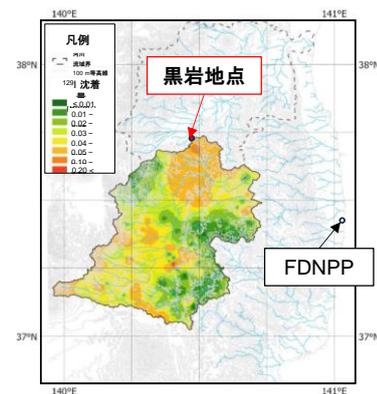


図1.研究対象地と集水域内のヨウ素137沈着量分布

◎研究の結果

ヨウ素129濃度とその時間変化

2018年7月と10月に採取した12試料の溶存態ヨウ素129濃度の平均値は0.11 μ Bq/L、懸濁物質のヨウ素129濃度の平均値は0.67 mBq/kgでした。これらの値は原発事故前の日本における既往文献の値とほぼ同等の値でした。見かけの分配係数^{注5}の平均値は、セシウム137で、 4.3×10^5 L/kgであったのに対して、ヨウ素129は 5.5×10^3 L/kgであり、2桁小さい値となりました。このことはヨウ素129が水に溶けやすいことを示しています。

増水時の濃度時間変化を見ると(図2)、溶存態の濃度はどちらの核種も時間とともに低下する傾向が見られました。一方、懸濁物質中の濃度では、セシウム137が増水のピーク時に高くなるに対して、ヨウ素129は変動しながら低下する傾向を示しました。この違いは、セシウムが懸濁物質に含まれる粘土鉱物に強く保持されるのに対して、ヨウ素が有機物に保持されやすいという、物理化学的な性質の違いに起因するものと考えられます。

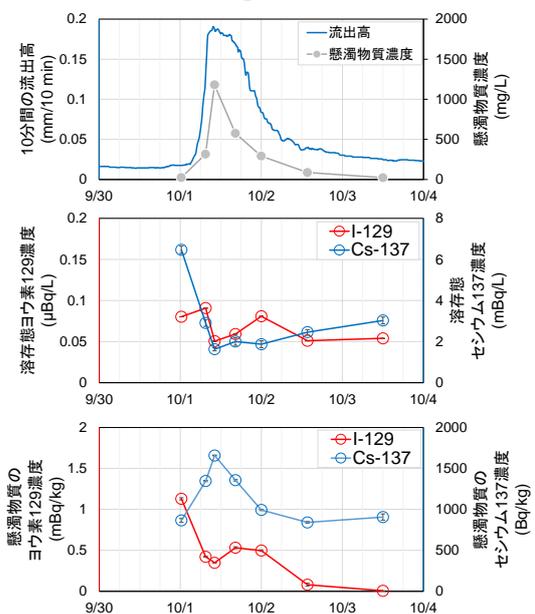


図2.2018年10月の増水時における時間変化。上段が10分間の流出高と懸濁物質濃度、中段が溶存態の濃度、下段が懸濁物質中の濃度の時間変化を示す。

ヨウ素129流出量とその時間変化

得られたヨウ素129濃度の値をもとに、黒岩地点におけるヨウ素129流出量を推定しました。2018年7月4~7日には9900 Bq、9月30日~10月3日には

22000 Bq であり、このうち 83%と 27%が溶存態でした。ほとんどの時間帯は主に溶存態として流れていましたが、増水ともなって懸濁物質濃度が高くなる時間帯には、懸濁態として流れる量が優勢となりました（図 3）。セシウム 137 と比べると、流出量は 4~5 桁小さく、溶存態の寄与が大きいことがわかりました。

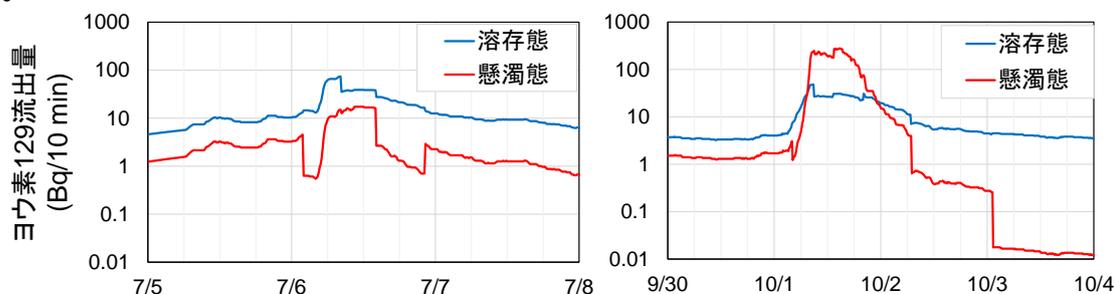


図3.10分間当たりのヨウ素129流出量の時間変化。右が2018年7月5~7日、左が同9月30~10月3日の増水時の結果。青線が溶存態、赤線が懸濁態を示す。

◎成果の意義

これまでにあまり情報がなかった、原発事故以降の河川におけるヨウ素 129 の動きについて定量的な評価を行うことができました。ヨウ素 129 は ALPS 処理水にも含まれていますが、本研究で示した陸域での移動量は海での動きを考える上で重要な基礎情報となります。また、水の溶存態・懸濁態のヨウ素 129 を同時に測定した例は国際的にも少ないことから、福島原発事故に限らずヨウ素 129 の世界的な循環を考える上でも貴重な知見であると言えます。

◎掲載論文情報

掲載誌：Applied Geochemistry

掲載日（オンライン）：2024年8月10日

DOI：<https://doi.org/10.1016/j.apgeochem.2024.106134>

タイトル：“Riverine ^{129}I dynamics during high-flow events on the Abukuma River in Fukushima (福島のア武隈川における増水時の河川ヨウ素 129 動態)”

・著者：脇山義史¹、松村万寿美²、松中哲也³、平尾茂一¹、笹公和²

¹福島大学 環境放射能研究所

²筑波大学 放射線・アイソトープ地球システム研究センター

³金沢大学 環日本海域環境研究センター

(研究に関するお問い合わせ先)

福島大学環境放射能研究所准教授 脇山義史

電話 : 024-548-2978

メール : wakiyama@ipc.fukushima-u.ac.jp

(取材に関するお問い合わせ先)

福島大学総務課広報係

電話 : 024-548-5190

メール : kouho@adb.fukushima-u.ac.jp

筑波大学広報局

電話 : 029-853-2040

メール : kohositu@un.tsukuba.ac.jp

金沢大学理工系事務部総務課総務係

電話 : 076-234-6826

メール : s-somu@adm.kanazawa-u.ac.jp

注 1 「放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点(ERAN)」

文部科学大臣の認定を受け、2019年4月1日から活動を開始した本共同利用・共同研究拠点（※現 放射能環境動態・影響評価ネットワーク共同研究拠点）は、国立大学法人筑波大学 アイソトープ環境動態研究センター(CRiED)（※現 筑波大学 放射線・アイソトープ地球システム研究センター(CRiES)）、福島大学 環境放射能研究所(IER)、弘前大学被ばく医療総合研究所(IREM)をネットワーク拠点として、また、国立研究開発法人日本原子力研究開発機構 福島研究開発拠点 廃炉環境国際共同研究センター(JAEA 福島)、国立環境研究所 福島地域協働研究拠点(国環研福島)そして新たに加わった環境科学技術研究所 (IES)を連携ネットワーク拠点として位置づけることにより、放射性物質の陸域及び海域、生態系における拡散・輸送・沈着・移行メカニズムの解明及びそれらに基づいて長期的な汚染状況の予測と被ばく線量に及ぼす影響の解明、移行モデリングを通じて、長期的な汚染状況の予測と被ばく線量低減に資することを目的としています。

参考：<https://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/>

注 2 「Matsunaka et al., 2016」

Matsunaka, T., Sasa, K., Sueki, K., Onda, Y., Taniguchi, K., Wakiyama, Y., Takahashi, T., Matsumura, M., Matsuzaki, H. 2016. Migration behavior of particulate ^{129}I in the Niida River system. In: Takahashi, T. (eds) *Radiological Issues for Fukushima's Revitalized Future*. Springer, Singapore. 57-63.

注 3 「加速器質量分析装置」

加速器質量分析装置は、加速器と質量分析計を組み合わせた分析装置であり、これを用いることで試料に含まれる極微量の同位体を正確に数えて同位体比を測定することが可能です。試料中の測定対象核種をイオン化し、加速器の中で電位差により高エネルギーになるまで加速し、電磁石などの電磁場で質量やエネルギーの異なる粒子を選別し、最終的に検出器で測定対象核種の粒子数を計測します。本研究では、この加速器質量分析法 (AMS: Accelerator Mass Spectrometry) で $^{129}\text{I}/^{127}\text{I}$ の比を求め、別途試料中の ^{127}I 濃度を ICP-MS による分析で測定し、両者を乗じることで ^{129}I 濃度を求めました。本研究に先立ち、福島大学環境放射能研究所学際共同研究の一環として、福島大学・筑波大学・金沢大学の3機関において、 ^{129}I 前処理方法の比較実験と実験室内 ^{129}I 降下量調査を実施し、分析法向上の取り組みを行ってきました。

参考：<https://www.tac.tsukuba.ac.jp/>

注 4 「Wakiyama et al. (2022)」

Wakiyama, Y., Konoplev, A., Thoa, N., Niida, T., Tsukada, H., Takase, T., Nanba, K.,

Golosov, V., Zheleznyak, M. 2022. Temporal Variations in Particulate and Dissolved ^{137}Cs Activity Concentrations in the Abukuma River During Two High-Flow Events in 2018. In: Nanba, K., Konoplev, A., Wada, T. (eds) *Behavior of Radionuclides in the Environment III*. Springer, Singapore. 153-175.

注 5 「見かけの分配係数」

懸濁物質中の核種濃度 (Bq/kg) を溶存態の核種濃度 (Bq/L) で割った値。高いほど懸濁物質中に核種が保持されやすいことを示しています。

阿武隈川を流れる ヨウ素129の動きを解析

環境放射能研究所 脇山義史

Wakiyama, Y., Matsumura, M., Matsunaka, T., Hirao, S., Sasa, K. 2024.
Riverine ^{129}I dynamics during high-flow events on the Abukuma River
in Fukushima. *Applied Geochemistry*, **173**, 106134.

Applied Geochemistry 173 (2024) 106134

Contents lists available at ScienceDirect

Applied Geochemistry

journal homepage: www.elsevier.com/locate/apgeochem



Riverine ^{129}I dynamics during high-flow events on the Abukuma River
in Fukushima

Yoshifumi Wakiyama^{a,*}, Masumi Matsumura^b, Tetsuya Matsunaka^c, Shigekazu Hirao^a,
Kimikazu Sasa^a

^a Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima University, Japan
^b National Institute of Advanced Industrial Science and Technology, Tsukuba, Japan
^c Institute of Space and Environmental Technology, Kyushu University, Japan

ARTICLE INFO

Editorial handling by Dr. Haruhiko Iwano

Keywords:
Iodine-129
Cesium-137
Fukushima
Nuclear waste management

ABSTRACT

This study presents the riverine ^{129}I concentrations and fluxes during high-flow events. The river water samples obtained by a previous study were subjected to ^{129}I analyses. River water samples were collected at the midstream of the Abukuma River for five and seven times during high-flow events in July 2018 and October 2018, respectively. Suspended solids and filtered water samples were measured for ^{129}I radioactivity using an accelerator mass spectrometer system and for ^{137}Cs concentration using β -SAS. Aggregated mean values of dissolved ^{129}I concentration and ^{137}Cs concentration in suspended solids were 6.11 ± 0.73 ($n = 12$) and 0.00 ng/kg ($n = 12$), respectively. Corresponding values of ^{129}I ratio were 2.2×10^3 , 1.9×10^3 and 8.7×10^3 to 1.2×10^4 , respectively. These concentrations and ratios were comparable to those at the background level before the Fukushima Daiichi nuclear power plant accident. Positive correlations with dissolved ^{137}Cs and ^{137}Cs concentrations suggested that the dissolved ^{129}I concentration decreased due to dilution of the river water during the event. A positive correlation with total radionuclide content suggested that specific water content determines ^{129}I concentrations in suspended solids. The total ^{129}I fluxes during 2018 and 2018 were 8.9×10^3 and 2.2×10^4 Bq, respectively, although dissolved ^{129}I was predominant under low-flow conditions, the particulate ^{129}I flux increased by one or two orders of magnitude during the peak water discharge phases. These results underline the importance of particulate ^{129}I fluxes during high-flow events for quantitative evaluation of the ^{129}I cycle.

1. Introduction

^{129}I is a long-lived radionuclide (half-life of 15.7 Ma) of great interest in geosciences. It is naturally produced by cosmic-ray-induced spallation of xenon in the atmosphere and spontaneous fission of uranium in the lithosphere. Natural ^{129}I has been used as a tracer for discussing geochemical processes, such as terrestrial surface water and ground-water interactions (e.g., Sano et al., 1989; Schwab et al., 2000) and origin of hydrothermal fluids (e.g., Tominaga et al., 2009; Chen et al., 2016). In the nuclear era since the 1940s, anthropogenic ^{129}I has been produced by nuclear industries, and its increase has been demonstrated (e.g., Schwab et al., 2001; Wakiyama et al., 2002; Hsu et al., 2009; Taylor et al., 2013; Ueda et al., 2013; Sakaguchi et al., 2015) revealed that ratio of ^{129}I to total iodine in the island in the Japan was observed increasing trend since 1950's. Taylor et al. (2015) demonstrated the long-term fate of global ^{129}I with scenario-based simulation. In areas

affected by nuclear disasters, ^{129}I in the soil was measured to reconstruct the spatial distribution of ^{129}I deposition (e.g., Wakiyama et al., 2002; Matsumura et al., 2013). Understanding the global cycle of ^{129}I would advance state-of-the-art of geoscience as well as radiological risk management.

Riverine transport is an important pathway of the global ^{129}I cycle. Riverine ^{129}I levels have been investigated in some parts of the world (e.g., Moran et al., 2002; Alshabir et al., 2005; Shepard and Herod, 2012). For example, Moran et al. (2002) demonstrated ^{129}I concentrations in major rivers in the US, Canada, and Europe and summarized the annual ^{129}I fluxes as 0.3–1.6 Gkg/year. However, most of these studies have mainly focused on dissolved ^{129}I concentrations under low-flow conditions to estimate its fluxes. On the other hand, little attention has been paid to particulate ^{129}I despite the expected increase in its contribution under high-flow conditions. Matsunaka et al. (2016) quantified ^{129}I flux in particulate form as 0.3–9.0 Gkg/month, depending on magnitude

掲載誌: Applied Geochemistry

掲載日(オンライン): 2024年8月13日

タイトル: “ Riverine ^{129}I dynamics during high-flow events on the

Abukuma River in Fukushima

(福島のア武隈川における増水時の河川のヨウ素129動態)”

著者: 脇山義史¹, 松村万寿美², 松中哲也³, 平尾茂一¹, 笹公和²

¹福島大学環境放射能研究所

²筑波大学放射線・アイソトープ地球システム研究センター

³金沢大学環日本海域環境研究センター

* Corresponding author. Institute of Environmental Radioactivity, Fukushima University, 1 Kawaagawa, Fukushima city, 960-1296, Japan.
E-mail address: wakiyama@ipc.fukushima-u.ac.jp (Y. Wakiyama).

阿武隈川を流れるヨウ素129の動きを解析

文部科学省 共同利用・共同研究拠点

https://www.mext.go.jp/a_menu/kyoten/index.htm

放射能環境動態・影響評価
ネットワーク共同研究拠点

<https://www.ied.tsukuba.ac.jp/ernc/>

通称：**ERAN**
Environmental
Radioactivity
Research
Network
Center



◎6機関の研究者が受け入れる共同研究を実施

若手・重点・海外・拠点間 毎年度100件超 10～20万円/件

◎年2回の研究集会(キックオフミーティング・年次報告会)

◎データベース・試料アーカイブ・国際連携など

阿武隈川を流れるヨウ素129の動きを解析

	ヨウ素129 (¹²⁹ I)	セシウム137 (¹³⁷ Cs)
半減期	約1570万年	30.1年
主な放射線	ベータ線	ガンマ線
起源	天然+人工	人工
原発事故による放出量	5.2~7.3 GBq	16~21 PBq
陸域への沈着量	2.7 GBq	3~6 PBq

セシウムはアルカリ金属元素

ヨウ素はハロゲン元素

	1	2	...	16	17	18
1	H					He
2	Li	Be		O	F	Ne
3	Na	Mg		S	Cl	Ar
4	K	Ca	...	Se	Br	Kr
5	Rb	Sr	...	Te	I	Xe
6	Cs	Ba	...	Po	At	Rn
7	Fr	Ra	...	Lv	Ts	Og

原発事故後...

◎土壌・雨水・海水の調査例あり。

◎河川での研究例が少ない。

・どのくらいの濃度か？

・どれくらい流れていくか？

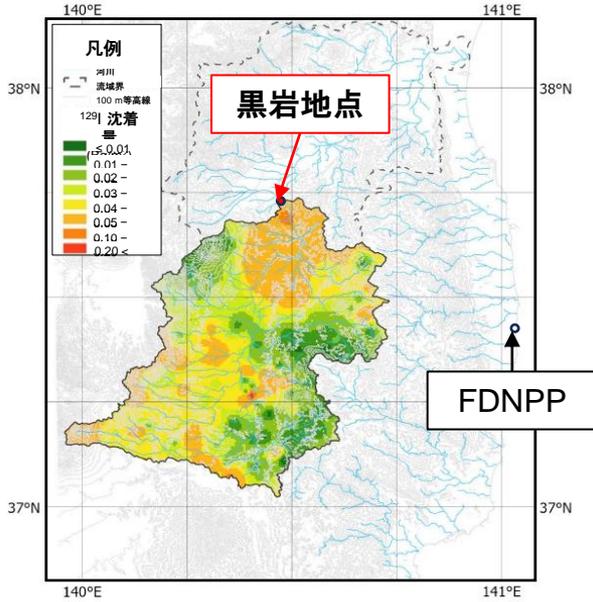
阿武隈川を流れるヨウ素129の動きを解析

黒岩地点(阿武隈川中流)

増水時

2018年7月5~7日(5回採水)

2018年9月30日~10月3日(7回採水)



懸濁物質中の濃度

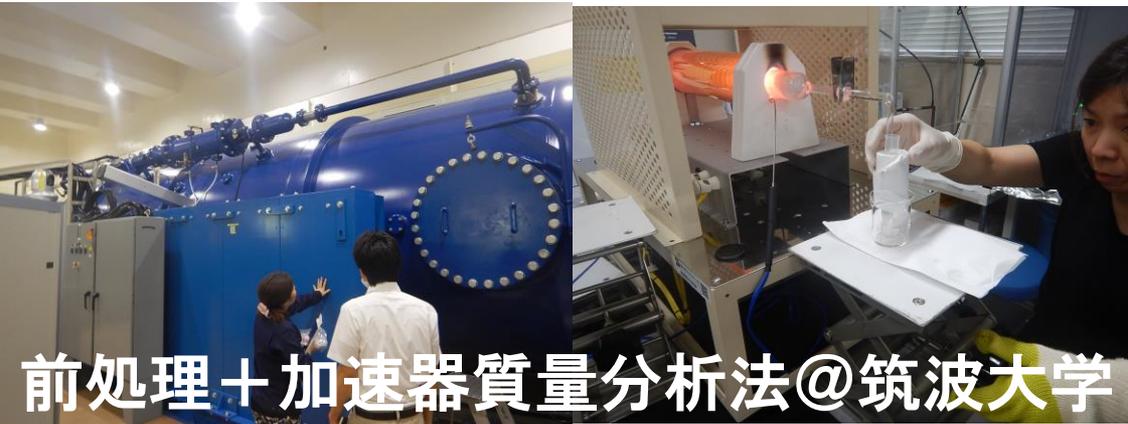


ろ過

Ge検出器

セシウム137

(Wakiyama et al, 2022)



前処理+加速器質量分析法@筑波大学

ヨウ素129

比較

濃度変化・流出量

阿武隈川を流れるヨウ素129の動きを解析

濃度平均値($n=12$)

	ヨウ素129	セシウム137
溶存態の濃度 (mBq/L)	0.00011	3.9
懸濁物質の 濃度 (Bq/kg)	0.00067	1300
見かけの 分配係数 (L/Kg)	5500	430000

◎どちらのヨウ素129濃度も

原発事故前と大きな違いはない

◎セシウム137より水に溶けやすい

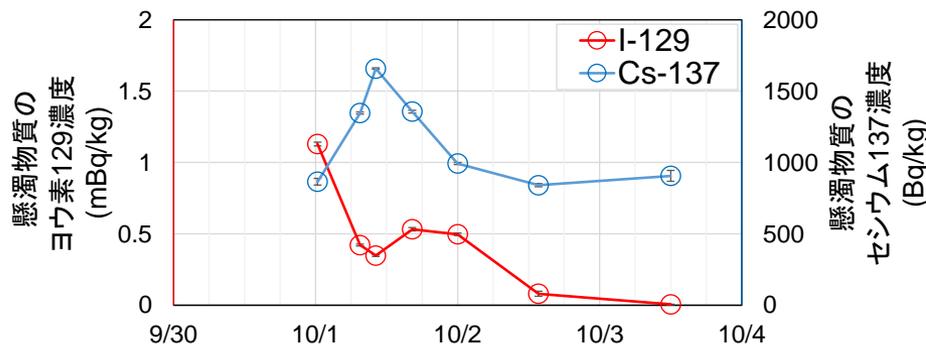
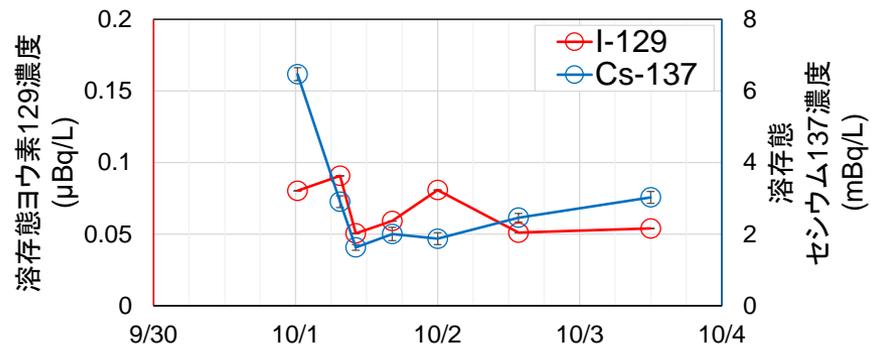
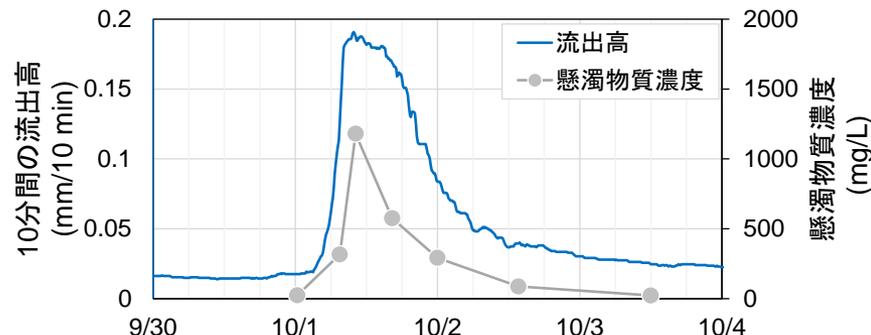
◎溶存態の濃度の変化:

セシウム137と同様⇒希釈のような変化

◎懸濁物質中の濃度の変化:

セシウム137と違う⇒セシウムは粘土鉱物に、ヨウ素は有機物に保持されやすい

時間変化(2018/10)



阿武隈川を流れるヨウ素129の動きを解析

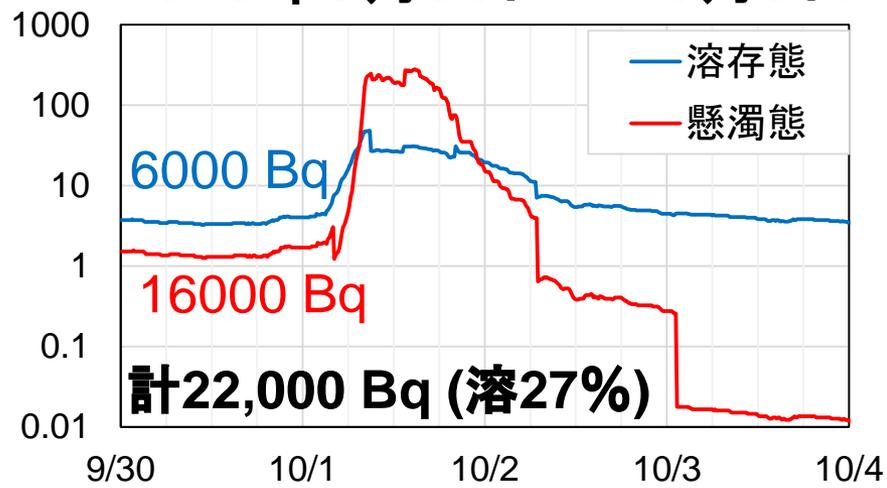
流出量の推定

2018年7月5～7日



参考:セシウム137流出量
9.6 GBq (溶2.9%)

2018年9月30日～10月3日



参考:セシウム137流出量
47 GBq (溶0.53%)

主に溶存態として流出。ただし、懸濁物質の量が多い増水ピーク時には懸濁態が優勢となる。

[成果の意義]

- ◎原発事故後の河川のヨウ素129の濃度・流出量を定量化
- ◎ヨウ素129の世界的な循環を考える上で重要な知見