## 第2章 放射性ヨウ素の環境移行パラメータに関する調査研究

## 2.1 牧草についてのウェザリング係数

Weathering of Iodine Deposited on Grass Leaf Surfaces

川端 一史,塚田 祥文,箭内 真寿美,高久 雄一,久松 俊一環境影響研究部

Hitoshi KAWABATA, Hirofumi TSUKADA, Masumi YANAI, Yuichi TAKAKU, Shun'ichi HISAMATSU Department of Radioecology

#### **Abstract**

Radionuclides released into the atmosphere are deposited on the leaf surfaces of crop plants, taken up by the plants, and translocated from the leaves to other parts. Some amount of the radionuclides deposited onto the leaves is removed from the surface by the environmental process called weathering, i.e. removal by rain, wind, etc. Although weathering, foliar uptake and translocation are important processes involved in the radiation dose assessment of radionuclides from crops, parameters to describe those processes for <sup>129</sup>I, which is an important radionuclide for the safety assessment of the nuclear fuel reprocessing plant in Rokkasho, have not yet been elucidated. Since grasses are cultivated for livestock farming which is one of the important industries in Rokkasho, a research project to determine the behavior of iodine on the surface of grasses was launched in FY 2011. In FY 2013, we studied the following subjects: 1) the effect of the growth stage of grasses on the foliar uptake and volatilization of iodide applied as liquid droplets onto leaf surfaces, 2) the effect of light intensity on the volatilization of iodide applied as liquid droplets onto leaf surfaces, and 3) the effect of rainfall on the weathering of iodine deposited on leaf surfaces as dry aerosol, solution or inorganic I vapor (I<sub>2</sub>).

After applying droplets of iodide solution onto the leaf surfaces of Orchard grass (*Dactylis glomerata* L. var. Akimidori II) at different growth stages, we placed each plant within an acrylic chamber and cultivated them for 7 d in the artificial climate chamber. The plant leaves were periodically collected, and the leaf surfaces were washed with solution containing detergent. The foliar uptake of I was measured by analyzing the plant leaf and the solution samples obtained by washing the surface. The I volatilized from the leaf surface was calculated by subtracting the sum of the I amounts in the plants and the washing solution from the amount of I initially applied on the leaf surface. At all growth stages, 32 d, 39 d, and 49 d after sowing, the amounts of I on the leaf surface of plants removable by washing decreased with time after the loading, while the amount of the volatilized fraction increased. The I content in the plant reached a maximum around 3 d after applying and then decreased. The behavior of I applied on the leaf surface was almost the same at all growth stages of the plant.

After applying droplets of iodide solution onto the leaf surfaces of Orchard grass at 32 d after sowing, each plant was placed within an acrylic chamber and cultivated for 3 d at different light intensities. The volatilized fraction of applied I was almost constant and had no dependence on the light intensities of 5, 10

and 30 klx.

After applying 1) gaseous I<sub>2</sub>, 2) liquid droplets containing NaI or NaIO<sub>3</sub>, or 3) dry aerosol containing NaI or NaIO<sub>3</sub>, onto the leaf surfaces of Orchard grass, the plants were exposed at different rainfall intensities and rainfall durations using a rain simulator. These plant leaves were collected and treated after the rain exposure in the same manner as mentioned above. More I was removed from the leaf surfaces as the rainfall intensity increased. However, the increase rate of the I proportion removed from the leaf surfaces decreased as the rainfall intensity increased. In an experiment with the rainfall intensity of 1.2 mm h<sup>-1</sup>, the decrease in the proportion of I remaining was approximated by a function with two exponential terms for rainfall duration.

#### 1. 目的

放射性ヨウ素の作物葉面からのウェザリングによる除去率は、作物を介した線量評価に大きな影響を与えるパラメータであり、作物葉面に沈着した放射性核種の挙動を把握することは被ばく線量評価上必要である。大型再処理施設の安全審査におけるウェザリングによる除去率は、気象条件に依らず一定な値である。しかし、ハツカダイコンを対象とした調査により、除去率は気象条件に依存することが明らかとなり、六ヶ所村の地域特性に即したパラメータを求める必要性が確認された。

そこで、本調査では、大型再処理施設から排出される放射性核種による被ばく線量への核種毎の寄与、 六ヶ所村における農畜産業の実態等を考慮し、牧草 を対象にヨウ素の葉面吸収、ウェザリング及び揮散 の速度を、葉面へのヨウ素の負荷形態(粒子状、液 状及び無機ガス状)別に求め、現実的な被ばく線量 計算に反映することを目的とする。

平成 25 年度は、①無降水条件下における液状ョウ素 (I) の葉面吸収及び揮散の速度を牧草の生長段階別に求めること、②葉面上に負荷した液状ョウ素 (I) の揮散の速度を照度別に求めること、及び③牧草葉面に負荷したョウ素の降雨によるウェザリング速度を負荷形態(粒子状、液状、無機ガス状)別に求めることを目標とした。

### 2. 方法

六ヶ所村における牧草栽培の実態を考慮し、イネ 科牧草のオーチャードグラス(Dactylis glomerata L. var.アキミドリⅡ)を調査対象として選択した。植物の栽培は、ヨウ素の経根吸収量を低減するために、 土壌の代わりにポリカーボネート製樹脂ペレットを 用いた固形培地耕で行った。

## 2.1 無降水条件下における液状ョウ素 (I<sup>-</sup>) の葉面 吸収及び揮散に与える生長段階の影響

液状でヨウ素を葉面に負荷した後の葉面上、葉部中及び揮散したヨウ素量の経時変化を求めるため、人工雨水に NaI を添加し、I 濃度が 250 μg g<sup>-1</sup>になるように調整した溶液を、マイクロピペットを使用して 1 μl の液滴で牧草に負荷した後、個体別に気密容器内で栽培し、負荷後 1、3 及び 7 日に 3 個体ずつ採取した。実験は、芽出し後 32、39 又は 49 日の牧草を対象とし、芽出し後 32 日の牧草には液滴を 60 点、芽出し後 39 及び 49 日の牧草には 80 点添着した。採取した牧草の葉面に残存するヨウ素を葉面洗浄液に回収した後、葉部は乾燥粉砕し、ヨウ素を 25%水酸化テトラメチルアンモニウム溶液で抽出した。葉面洗浄液及び抽出溶液中のヨウ素濃度は、HPLC 装置又は ICP 質量分析装置を使用して測定した。

#### 2.2 液状ヨウ素 (I<sup>-</sup>) の揮散に与える照度の影響

2.1 の実験と同じ方法で、芽出し後 32 日の牧草に 液状ヨウ素 (I) を負荷した後、負荷後の照度を 5、 10 及び 30 klx に変えて栽培し、負荷後 3 日に 3 個体 を採取した。牧草試料の処理は、2.1 と同じ方法で 行った。

## 2.3 葉面上ヨウ素の降雨によるウェザリングに与える降雨強度及び雨ばく露時間の影響

粒子状、液状又は無機ガス状ヨウ素を負荷した牧

草を、降雨強度又は雨ばく露時間を変えて雨にばく露し、雨ばく露直後に牧草を回収し、2.1 と同じ方法で処理した。粒子状及び液状ョウ素( $\Gamma$ 及び  $IO^3$ )並びに無機ガス状ョウ素( $I_2$ )の負荷は、平成 24 年度に実施した風によるウェザリング実験と同じ方法で行った。実験は、芽出し後 40 から 45 日の牧草を対象に行った。また、雨ばく露時間を変えた実験は、液状ョウ素( $\Gamma$ 及び  $IO_3$ )についてのみ行った。

### 3. 成果の概要

## 3.1 無降水条件下における液状ョウ素 (I<sup>-</sup>) の葉面 吸収及び揮散に与える生長段階の影響

液状ョウ素を葉面に負荷後7日までの葉面上及び 葉部中ョウ素の存在割合並びに揮散したョウ素の割 合を生長段階別に求めた。その結果、生長段階に依 らず、葉面上ョウ素の存在割合は、負荷後1日で約 1割となり、その後時間の経過とともに指数関数的 に減少し、葉部中ョウ素の存在割合は、負荷後1日 で約7割となり、3日以降に減少する傾向を示した。 また、揮散したョウ素の割合は、時間の経過ととも に指数関数的に増大した。これらのことから、葉面 から一度葉部に移行したョウ素が再び大気へ揮散す ることが分かった。

### 3.2 液状ヨウ素(I⁻)の揮散に与える照度の影響

照度が 5、10 又は 30 klx におけるヨウ素の揮散率は、負荷後 3 日間で各々0.31、0.35、0.18 となり、30 klx での揮散率が少なかったが、統計的な有意差は見られなかった(p>0.05)。したがって、照度が 5~30 klx の範囲では、負荷後 3 日間のヨウ素の揮散率は照度によって変化しないことが分かった。

# 3.3 葉面上ヨウ素の降雨によるウェザリングに与える降雨強度及び雨ばく露時間の影響

粒子状又は液状ョウ素 (IO<sub>3</sub>) を葉面に負荷した 牧草を雨に1時間ばく露した後の植物残存率と降雨 強度との関係をFig. 1に示した。植物残存率とは、 葉面に負荷したョウ素量に対する葉面上及び葉部中 に残存していたョウ素量の比である。

粒子状、液状ともに、植物残存率は、降雨強度が

増大するにしたがい減少し、その降雨量当たりの除 去率が小さくなる傾向を示した。そこで、降雨強度 に対する植物残存率の減少を二つの指数項を持つ変 化と仮定し、非線形最小二乗法により、回帰式の各 係数を求めた。その結果、粒子状ヨウ素では、除去 率の異なる二つの成分があり、その割合はほぼ同じ であった。また、液状ヨウ素で負荷したヨウ素の約 3%は、降雨強度に依らず葉面から除去されないが、 残りは降雨強度の増大とともに指数関数的に一定の 効率で除去される傾向を示した。したがって、葉面 からの降雨による除去は負荷したヨウ素の物理形態 で異なる傾向が見られた。この原因として、負荷し たヨウ素の物理形態の違いの他に、負荷状態の違い が挙げられる。即ち、雨に当たりにくい面に負荷さ れたヨウ素の比率が異なり、それにより、降雨によ る除去に違いが見られたことが考えられる。

また、液状ョウ素( $\Gamma$ 又は  $IO_3$ )を葉面に負荷した 牧草を降雨強度  $1.2~\rm mm~h^{-1}$ の雨に時間を変えてばく 露したところ、葉面上ョウ素の降雨によるウェザリ ング速度は降り始めに速く、その後遅くなることが 分かった。

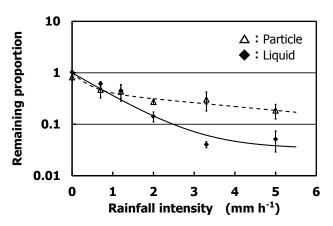


Fig. 1 Remaining proportion of I and rainfall intensity.

Remaining proportion of I was defined as the ratio of the sum of amounts on leaf surfaces and in plants to that loaded initially on the leaf surfaces. Vertical bars indicate a standard deviation of 3 samples. The lines show least square approximation by a function with two exponential terms of rainfall intensity.