

1.2 放射性ヨウ素の環境移行パラメータに関する調査研究

1.2.1 牧草におけるヨウ素のウェザリング係数

Weathering of Iodine Deposited on Grass Leaf Surfaces

川端 一史, 箭内 真寿美, 高久 雄一, 久松 俊一

環境影響研究部

Hitoshi KAWABATA, 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. Part 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 in crops, parameters to describe those processes for ^{129}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 (I) on the surface of grasses was launched in FY 2011. In FY 2015, we studied the following subjects: 1) the effect of the growth stage of grasses on the foliar uptake and volatilization of I applied as inorganic vapor (I_2) onto leaf surfaces, and 2) the weathering of I deposited on leaf surfaces as I_2 , dry aerosol or solution by simultaneous exposure to fog and wind.

After exposing Orchard grass (*Dactylis glomerata* L. var. Akimidori II) to I_2 vapor at 39 d or 49 d after sowing, the plants were cultivated for 7 d in an 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 leaves and the solution samples obtained by washing the surfaces. The I volatilized from the plant was collected on activated carbon paper filters. Immediately after exposing to I_2 , more than 98% of the I in the plants was found in the leaves, then I in the leaves gradually decreased with increasing volatilized I. The behavior of I was almost the same at the two growth stages of the plant.

After applying 1) I_2 vapor, 2) liquid droplets containing NaI or NaIO_3 , or 3) dry aerosol containing NaI or NaIO_3 , onto the leaf surfaces of Orchard grass, the plants were simultaneously exposed to fog and wind. The exposure was carried out in a combination of fog with several atmospheric liquid water contents and wind of different wind speeds. The exposed plant leaves were collected and treated in the same manner as mentioned for the first study. For I applied as liquid droplets or dry aerosol, I retention in and on leaves in a fog with 47 mg m^{-3} liquid water content for 2 h exponentially decreased with wind speed. The I applied as I_2 was removed from the plants by the exposure to the fog and wind of 2 m s^{-1} for 24 h in contrast to the previous result showing no removal under the same fog condition without wind.

To summarize the weathering of I applied as iodate in liquid droplets by rainfall in the previous studies, compartment models of the I were constructed for describing foliar uptake, volatilization and weathering, and

typical weathering half-life was obtained. A unit amount of radionuclide was assumed to deposit onto the leaf surface at noon of a given date, and then the behavior of the radionuclide was simulated with the model and actual weather condition during 60 d after the date. A half-life was calculated from the remaining proportion in the plant and on the leaf surface on the assumption of exponential decrease. The half-lives were obtained for each day from May to October in 2014 and from May to October in 2015. The median values of 250 half-lives obtained for iodate of liquid droplets was 38 d. The half-life in this study was longer than the weathering half-life (14 d) used in the safety review of the reprocessing plant.

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。

これまで、各種物理・化学形態のヨウ素を対象に風、降雨及び霧によるウェザリング除去率を年次的に求めており、平成 27 年度は、①無降水条件下における無機ガス状ヨウ素 (I_2) 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牧草葉面に負荷したヨウ素の霧によるウェザリングに与える風の効果を明らかにすること、及び③本調査の 5 ヶ年計画で得られた成果を用い地域特性を考慮した降雨によるウェザリング半減期を試算す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、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無機ガス状 I_2 の葉面吸収及び揮散に与える生長段階の影響

芽出し後 39 又は 49 日の牧草葉面に I_2 を負荷した後、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、葉面上、葉部中及び揮散したヨウ素量の経時変化を求めた。採取した牧草の葉面上に残存するヨウ素を葉面洗浄液に回収した後、葉部は乾燥粉碎し、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、ICP 質量分析装置を使用して測定した。

2.2 葉面上ヨウ素の霧によるウェザリングに与える風の効果

粒子状、液状又は無機ガス状ヨウ素を負荷した芽出し後 40 から 45 日の牧草を、霧水密度（単位空気体積当たりの霧粒として含まれる水分量）、風速又はばく露時間を変えて霧と同時に風にばく露し、ばく露直後に回収した牧草に残存するヨウ素量を求めた。植物の処理は、①と同じ方法で行い、1 つの組み合わせの実験で 3 個体ずつ採取した。

2.3 降雨によるウェザリング半減期の試算

平成 25 年度に実施した降雨によるウェザリング実験より求めた複数の降雨強度と雨ばく露時間の組み合わせにおけるヨウ素の葉面上残存率（初期負荷量に対する葉面上存在量の比）を用いて非線形最小二乗法により、葉面上残存率を降雨強度と雨ばく露時間で表す関数を導いた。得られた関数と無降水条件下での吸収及び揮散の速度を合わせたコンパートメ

ントモデルを作製し、六ヶ所村で実測した降雨量を用いてウェザリング半減期を求めた。

3. 成果の概要

3.1 無降水条件下における無機ガス状 I_2 の葉面吸収及び揮散に与える生長段階の影響

芽出し後 39 及び 49 日の牧草葉面に負荷した無機ガス状 I_2 の葉面上、葉部中及び揮散したヨウ素量を負荷後 7 日まで求めた。その結果、生長段階に依らず、負荷直後で負荷したヨウ素の 98% 以上が葉部に存在しており、時間の経過に対し、葉部中ヨウ素の存在割合が減少するのに応じ、揮散するヨウ素の割合が増大した。このことから、葉部中ヨウ素が大気へ揮散したと考えられる。また、負荷後 7 日までにおける葉面上及び葉部中ヨウ素の存在割合並びに揮散したヨウ素の割合には、生長段階による差異は見られなかった。

3.2 葉面上ヨウ素の霧によるウェザリングに与える風の効果

霧と同時に風にばく露した試料について、ばく露後における葉面上及び葉部中に残存するヨウ素量を求めた。その結果、 I^- 又は IO_3^- を液状又は粒子状で負荷し、霧水密度が 47 mg m^{-3} の霧に風速を変えて 2 時間ばく露した場合、葉面上のヨウ素は、ヨウ素の物理、化学形態に依らず、風速の増大に対して、概ね指数関数的に除去された。また、 I_2 で負荷したヨウ素は、霧水密度が 47 mg m^{-3} の条件で霧だけに 24 時間ばく露しても植物から除去されなかったが、同じ霧水密度の霧と同時に風速 2 m s^{-1} の風を加えて 24 時間ばく露した場合には、植物から除去されることが分かった。

3.3 降雨によるウェザリング半減期の試算

葉面上残存率に与える降雨の影響について、実験で得られた全ての降雨強度と雨ばく露時間の組み合

わせにおける葉面上残存率を用い、式(1)を導いた。

$$z = 1 - \left[(1 - 0.26 e^{-0.39R}) e^{-0.82R \cdot t} + 0.26 e^{-0.39R} e^{-4.2 \times 10^{-2} t} \right] \quad (1)$$

z : 除去率 (1 から葉面上残存率を減じた値)

R : 降雨強度 (mm h^{-1})

t : 雨ばく露時間 (h)

液状 IO_3^- の場合、沈着直後の分配率は、葉面上が 0.993、葉部が 0.007 であり、その後、無降水条件下では、葉部への移行及び大気への揮散はない。そこで、式(1)を用い、葉面上残存率をシミュレーションした。即ち、与えられた日の正午に沈着したヨウ素の挙動を以後の実際の降雨強度及び降雨時間に応じて計算し、60 日後の収穫時に植物に残存している割合から半減期を求めた。降雨強度は、転倒ます式降水量計で得られた 10 分間隔の降水量から換算した。これを平成 26~27 年の各年の 5 月 1 日から 9 月 2 日までの毎日について求め、得られた 250 の半減期の統計量を Table 1 に示した。得られた半減期は、正規分布にも対数正規分布にも従わなかったため、代表値は中央値とした。その結果、半減期は 38.0 日となり、大型再処理施設の安全審査で用いられているウェザリング除去率から計算された半減期 (14 日) の約 2.7 倍であった。

Table 1 Statistics of half-lives calculated for IO_3^- using the compartment model

Statistic	Half life (d)
Arithmetic mean	36.9
Standard deviation	3.2
Geometric mean	36.7
Median	38.0
Minimum	17.3
Maximum	38.1
n=	250