



4. 環境監視に係わる技術小論

(3) 環境中ヨウ素の挙動に関する研究

清水 武彦 吉田 美香
園尾 好宏 篠原 邦彦

東海事業所安全管理部

資料番号：81-20

4. Development of Technology on Environmental Monitoring
(3) Study on the Behavior of Iodine Isotopes in the Environment

Takehiko Shimizu Mika Yoshida
Yoshihiro Maruo Kunihiko Shinohara
(Health and Safety Division, Tokai Works)

原子力施設から環境へ放出される放射性核種の中で ^{129}I は、その半減期が1600万年と長く長期的影響評価の観点から重要な核種の一つである。このため、 ^{129}I の環境中における挙動（動態）を把握することが、原子力施設に係わる環境安全評価上必要である。

本稿では、 ^{129}I の陸上環境評価に用いる移行パラメータとして、沈着速度、土壌経路による移行割合、大気経路による植物可食部への移行率等をフィールドデータを基に算出した。この結果、大気経路による植物可食部への移行率は、精米については0.0088未満、葉菜については0.21および牧草について0.090が得られた。

1. はじめに

^{129}I は、天然には上層大気中における宇宙線とキセノンとの相互作用等により生成する他、人工的には核実験、原子力施設等で生成する。

環境中の ^{129}I の主な移行経路としては、図-1に示すような大気→人（呼吸）、大気→葉菜・米→人および大気→牧草→乳牛→人が挙げられる¹⁾。また、 ^{129}I の半減期が長いことから環境安全評価においては、土壌から植物への移行経路についても無視

できない。

現在の環境中 ^{129}I 濃度はきわめて低く、通常の放射化学分析法では分析できない。このため、環境中の ^{129}I の濃度を把握するために、燃焼することにより試料からヨウ素を分離した後、中性子照射を行い、 $^{129}\text{I} (n, \gamma) ^{130}\text{I}$ の反応で生成する ^{130}I （半減期：12.4時間）を測定することにより、 ^{129}I を定量する放射化分析法を開発した^{2),3)}。また、この方法では、 $^{127}\text{I} (n, 2n) ^{126}\text{I}$ で生成される ^{126}I （半減期：13日）を測定することにより ^{127}I （安定ヨウ素）も同時に定量できる。

原子力施設に係わる環境安全評価においては、解析モデルを用いるが、その中で用いるパラメータを施設が立地する地点における環境条件を考慮して適切に設定することが、評価上重要である。本稿では、 ^{129}I の環境安全評価上、重要度の高い移行パラメータ等について、東海事業所周辺において収集したフィールドデータを基に算出した結果を報告する。

2. 評価モデル

原子力施設の運転に伴って環境へ放出される ^{129}I から周辺公衆が受ける線量当量については、施設か

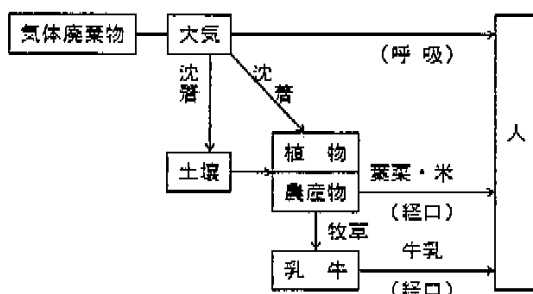


図-1 気体廃棄物中放射性ヨウ素に係わる主要被ばく経路

らの放出量、環境中での挙動等を考慮した線量当量評価モデルによって計算する。評価モデルのうち、大気から植物への移行については、図-2および(1)式に示すように大気中から直接植物体葉茎部、開花中の花部、成熟途上の子実部等に付着し捕捉されて可食部へ取り込まれる経路および大気から一旦土壤に沈着した放射性物質が根部から吸収されて可食部へ取り込まれる経路の二つの経路を考慮している^{4,5)}。

$$C = x \cdot Vg \left(\frac{r (1 - \exp(-\lambda E \cdot te))}{Y \cdot \lambda E} + \frac{B (1 - \exp(-\lambda \cdot tb))}{P \cdot \lambda} \right) \quad (1)$$

ここで、

C : 植物中¹²⁹I濃度 (Bq/g・生)

x : 大気中¹²⁹I濃度 (Bq/cm³)

Vg : 沈着速度(cm/s)

r : 植物上に直接沈着した¹²⁹Iの可食部への移行率

B : 土壤中の¹²⁹Iが根を通して植物可食部へ移行する割合 (Bq/g・生/Bq/g・乾)

Y : 植物の栽培密度 (g/cm²)

P : 植物を栽培する土壤の実効面密度 (g・乾/cm²)

λE : ¹²⁹Iの有効除去係数 (1/s)

λ : ¹²⁹Iの放射性崩壊定数 (1/s)

tb : ¹²⁹Iの地表面への沈着継続時間 (s)

te : 植物表面への沈着期間 (s)

(1)式において、特にVg、rおよびBは、評価結果を大きく左右する重要度の高いパラメータであることからフィールドデータを基にした現実的な値を用い

る必要がある。

3. 各種パラメータの算出

(1) 大気中濃度の算出

大気から植物可食部へ移行する割合を評価するに当たっては、大気中濃度を知る必要がある。しかし、葉菜、精米等の採取地点にサンプラーを設置して大気中濃度を求める方法は、設置場所におけるサンプラーの電源等の確保の問題があるため現実的ではない。したがって、大気中濃度については、放出源情報および気象観測データ（風向、風速、大気安定度等）を考慮した計算値を用いるものとし、拡散計算値の妥当性を調査するため、約3ヵ月間採取して得た実測値とその期間における計算値との比較を行い、図-3の結果を得た。この結果から、計算値は、拡散計算の精度等を考慮すると実測値とよく一致していると考えられ、パラメータを算出するための大気中濃度については、拡散計算から算出したデータを用いるものとした。

(2) 沈着速度(Vg)の算出

フィールドデータから乾性沈着速度と湿性沈着速度を弁別して求めることは困難なため、土壤中の¹²⁹I濃度（実測値）および放出情報、気象観測データを考慮した拡散計算による土壤中濃度（計算値）を基に¹²⁹Iの沈着速度を求めた。

ここで求めた沈着速度は、フィールドでの採取試料を基に評価した値であり、乾性沈着および湿性沈着の両方を含むものである。算出方法を以下に示す。

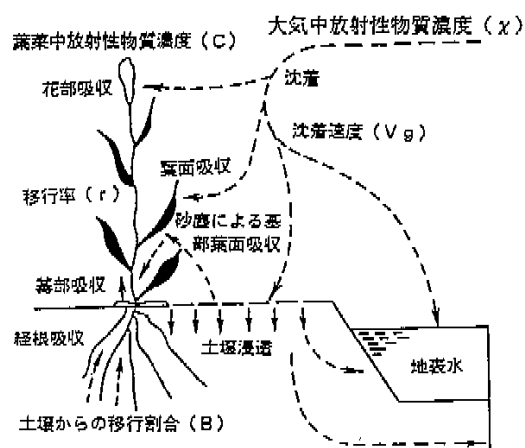


図-2 大気から土壌・植物への移行経路

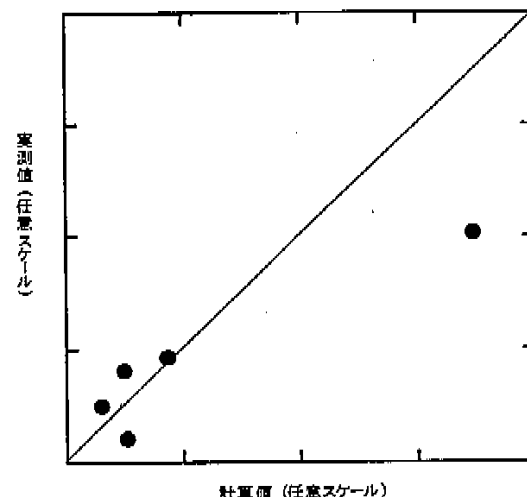


図-3 大気中ヨウ素-129濃度の実測値と計算値の比較

① 土壤中 ^{129}I 濃度の測定 (実測値)

4地点の畑土を採取し、放射化分析法により ^{129}I 濃度を定量した。

② 計算による土壤中 ^{129}I 濃度の推定 (計算値)

気象観測データを用い、上記4地点における測定値に相当する土壤中 ^{129}I 濃度を計算により求めた。土壤中の ^{129}I 濃度は、(2)式で計算できる。

$$C_c = x \cdot Vg \cdot \{1 - \exp(-\lambda \cdot t)\} / \lambda \cdot P \quad (2)$$

ここで、

C_c : 土壤中 ^{129}I 濃度 (Bq/g)

x : 地表面の空気中 ^{129}I 濃度 (Bq/cm³)

Vg : 沈着速度(cm/s)

P : 土壤の実効面密度 (g/cm²)

t : ^{129}I の地表面への沈着継続時間(s)

λ : ^{129}I の有効除去係数 (1/s)、ここでは

放射性半減期のみを考慮

^{129}I は、長半減期核種であるため、(2)式は(3)

式で近似できる。

$$C_c = x \cdot Vg \cdot t / P \quad (3)$$

③ 沈着速度の評価

実測による土壤中 ^{129}I 濃度 (C_s とする)は、沈着速度(Vg)を除き計算と同条件であると仮定すると、実測値に対応する計算値との比較により沈着速度を評価することができる。計算では沈着速度を1 cm/sとしているため、(4)式により実測値から見かけの沈着速度を評価できる。

$$C_s(\text{測定値}) / C_c(\text{計算値}) = Vg \quad (4)$$

各地点毎および全体の沈着速度は、表-1のように求められ、平均値は $0.76 \pm 0.19 \text{ cm/s}$ であり、各地点での沈着速度はほぼ一定であることが分かった。

また、昭和61年4月のチェルノブイル原子力発電所事故の際に実施した特別モニタリングにおいて、降水期間も含む ^{131}I の沈着速度として $0.69 \pm 0.58 \text{ cm/s}$ を得ている⁶⁾。

(3) 土壤経路の移行割合(B)の算出

植物可食部の ^{129}I 濃度および土壤中の ^{129}I 濃度等のフィールドデータから、 ^{129}I の直接沈着経路および土壤経路からの移行を弁別することは困難である。

表-1 土壤中ヨウ素-129濃度から求めた沈着速度

採取地点	沈着速度 (cm/s)
地点1	0.69 ± 0.25
地点2	0.77 ± 0.08
地点3	0.87 ± 0.17
地点4	0.72 ± 0.17
全 体	0.76 ± 0.19

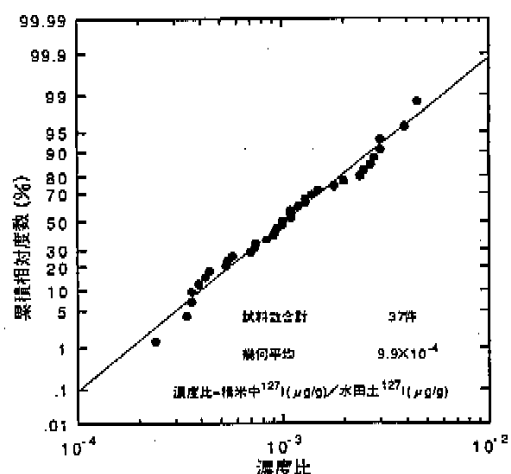


図-4 精米および水田土中安定ヨウ素の濃度比の対数正規確率分布

このため、大気中に含まれる安定ヨウ素 (^{127}I)の濃度が、 $10 \sim 20 \text{ ng/m}^3$ と低く大気から直接沈着した安定ヨウ素の植物可食部への移行が無視できることに着目し、安定ヨウ素の測定結果を用いて土壤から植物への移行割合を求めた。植物中に含まれる安定ヨウ素の全量が土壤から移行したものと仮定して移行割合(B)を(5)式から算出した。

$$\text{土壤経路の移行割合(B)} = \frac{\text{植物中安定ヨウ素} (^{127}\text{I}) \text{濃度}}{\text{土壤中安定ヨウ素} (^{127}\text{I}) \text{濃度}} \quad (5)$$

図-4に精米中安定ヨウ素と水田土中安定ヨウ素との濃度比の対数正規確率分布を示す。また図-5に葉菜中安定ヨウ素と畑土中安定ヨウ素の濃度比の対数正規確率分布を示す。

これらの図から、精米試料37件の移行割合 (濃度比)の幾何平均値として、 9.9×10^{-4} ($\mu\text{g/g} \cdot \text{生} / \mu\text{g/g} \cdot \text{乾}$)が得られた。これらのうち14件の水田土中の可給態ヨウ素 (水溶性)について調査した結果では、可給態ヨウ素移行割合の幾何平均値として、 9.6×10^{-3} ($\mu\text{g/g} \cdot \text{生} / \mu\text{g/g} \cdot \text{乾}$)が得られた。

葉菜については、ホウレン草14件の移行割合の幾何平均値は、 6.2×10^{-3} ($\mu\text{g/g} \cdot \text{生} / \mu\text{g/g} \cdot \text{乾}$)、白菜12件の移行割合の幾何平均値 3.2×10^{-3} ($\mu\text{g/g} \cdot \text{生} / \mu\text{g/g} \cdot \text{乾}$)が得られた。この値は、米国NRCのRegulatory Guide 1.109に示されている土壤経路の移行割合 2×10^{-2} ($\mu\text{g/g} \cdot \text{生} / \mu\text{g/g} \cdot \text{乾}$)に比べ、約1桁程度低いことが分かった⁸⁾。

(8) 植物上に直接沈着した放射性核種の可食部への移行率(r)

大気中から植物へ移行する割合は、(6)式に基づい

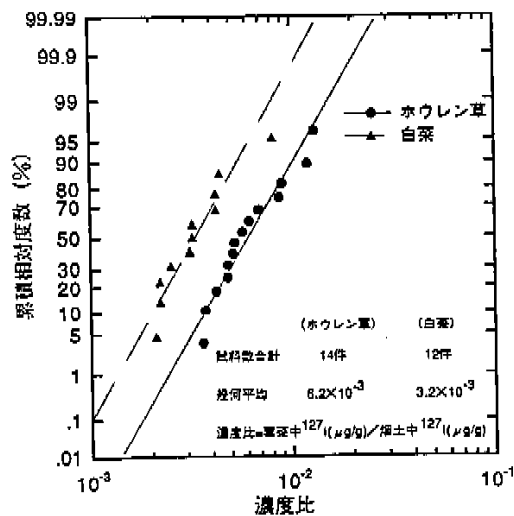


図-5 葉菜および畑土中安定ヨウ素の濃度比の対数正規確率分布

で計算した。

$$\text{大気中から植物へ移行する割合} = \frac{\text{植物中の}^{129}\text{I濃度}(C)}{\text{大気中}^{129}\text{I濃度}(X)} \quad (6)$$

フィールドデータを基にしていることから、直接沈着経路および土壌経路からの移行を弁別することは困難である。したがって、大気からの直接沈着による可食部への移行率の算出に当たっては、植物等の ^{129}I は全量が大气から移行したと仮定した。この理由としては、(3)に示したとおり安定ヨウ素の濃度比から求めた土壌経路の移行割合が低いこと、計算モデルによる評価上は、直接沈着経路が可食部へ移行する ^{129}I の90%以上を占めることがわかっていることが挙げられる。また、大気中濃度については、実測値と大気試料の採取期間における気象観測データを考慮した拡散計算によって得られた結果がよく一致することから、各々の対象試料に応じた栽培期間について拡散計算から算出した値を用いた。

この植物等への移行割合を基に、大気からの直接沈着による可食部への移行率(r)を算出した。表-2に葉菜および精米についての大気中から食物への移行割合を示す。なお、精米については、現在の分

表-2 大気から食物等への移行割合の試算結果

試料	範 囲	データ数	単位: (Bq/g)
			平均値
葉菜	$7.9 \times 10^{-4} \sim 6.9 \times 10^{-3}$	14	1.5×10^{-3}
精米	$< 4.1 \times 10^{-4} \sim < 2.0 \times 10^{-3}$	6	$< 3.9 \times 10^{-3}$

表-3 植物上に直接沈着したヨウ素-129の可食部への移行率

フィールドデータおよび文献値	移行率(r)
東海フィールドデータ	牧草: 0.090 葉菜: 0.21 米: < 0.0088
US. NRC Regulatory Guide 1.109	牧草: 1.0 葉菜: 1.0

析法では測定上有意な値が検出されていないことから検出下限値を用いて算出した。また、これらの移行割合から算出した直接沈着による可食部への移行率(r)を表-3に示す。植物上に直接沈着した放射性核種のうち、可食部へ移行する割合についての実験データは少なく、特に、わが国の主食である米についてのデータは非常に少ない。米国NRCのRegulatory Guide 1.109を参考とすると、葉菜および牧草について、沈着した放射性核種がすべて植物上に保持されるという安全側の仮定とした場合、放射性ヨウ素の r は、1.0が報告されている⁸⁾。

東海事業所周辺におけるフィールドデータとしては、植物可食部中と空気中の ^{129}I 濃度から、米については、0.0088未満、葉菜について0.21および牧草について0.090という結果が得られた。

4. まとめ

本稿は、国の環境放射能安全研究に基づき東海事業所安全管理部において実施した「環境中ヨウ素の挙動に関する研究」結果を取りまとめたものであり、 ^{129}I に関する陸上環境評価に用いる各種パラメータのフィールドデータからの算出例を示している。ここで、得られた各種パラメータ値は、東海事業所周辺のフィールドデータから求めた値であり、より現実的な環境評価を行う意味で貴重なデータとなっている。

今後は、データの蓄積を図るとともに、さらに乾性沈着時および湿性沈着時の沈着速度等種々のパラメータについて検討し、環境中ヨウ素の挙動を解明していく必要がある。

参考文献

- 1) 最近の環境における放射性ヨウ素の問題: 放射線環境セミナーシリーズ (1981)
- 2) 武石 隆、池本 茂、石田順一郎、若井 誠: 環境試料中の ^{127}I および ^{129}I の中性子放射化分析法: 保健物理, 22, 39-45 (1987)
- 3) H.KATAGIRI, O.NARITA, A.YAMATO, M.KINOSHITA: LOW LEVEL MEASUREMENTS OF ^{129}I IN ENVIRONMENTAL SAMPLES: Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, Articles, Vol.138, No.1, 187-192 (1990)
- 4) 藤原邦彦: 環境放射能評価に用いる環境パラメータ設定の一例について、動燃技報No.77, 118-121 (1991, 3)
- 5) 植原邦彦、浅野智宏、成田 博: ORION-II: 原子力施設からの放射

- 性物質の大気放出に起因する環境中濃度および被ばく線量当量を評価するための計算コード、PNCT N8410 87-17 (1987)
- 6) 木下 邦 他：ソ連チェルノブイル原子力発電所事故時に伴う特別環境放射能調査、PNCT N8420 86-10 (1989)
- 7) 高城裕之、木村敏正、小林圭司、岩島 静、山根 晃：水田土壌から米への安定ヨウ素の移行について；保健物理、20、251-257 (1985)
- 8) U.S.NRC: Calculation of annual doses to man from routine releases of reactor effluents for the purpose of evaluating compliance with 10 CFR 50, Appendix I, Regulatory Guide 1.108 (1977)