# 2.3.1.2 土壌に添加された Cs 及び | の形態変化と植物吸収

Aging Effect on Speciation and Soil-to-Plant Transfer of Cs and I in Soil

## 武田 晃, 塚田 祥文, 高久 雄一, 久松 俊一 環境動態研究部 Akira TAKEDA, Hirofumi TSUKADA, Yuichi TAKAKU, Shun'ichi HISAMATSU Department of Radioecology

#### Abstract

Aging effect of radionuclides in soil after deposition is an important factor for their speciation and soil-to-plant transfer. Laboratory experiments for the aging effect of Cs and I using stable nuclides were carried out for periods of 7 - 20 months and 0 - 7 months, respectively. The stable Cs or I were added to a soil sample, which was collected from a grassland area in Rokkasho where the first commercial spent nuclear fuel reprocessing plant in Japan is located. Iodine was added to the soil as  $\Gamma$  or  $IO_3^-$  to examine the effect of chemical form on the behavior in soil. The soil sample was put into cultivation pots, and the soil-filled pots were stored in an artificial climate chamber. Orchardgrass or red clover plants were cultivated in the pots for 28 d several times during the experiments, and the soil-to-plant transfer factors of Cs and I were determined. Extractability of Cs and I in the soil sample was occasionally determined by pure water or 1 M ammonium acetate solution for Cs, and only pure water for I. Decreasing patterns of their extractabilities were compared with the transfer factors.

We have already reported that the soil-to-plant transfer factor and the extraction yield of Cs in the soil decreased with time up to 7 months after its addition. Their further decreases were not observed from 7 to 20 months after the addition. Both the soil-to-plant transfer factor and the extraction yield of I decreased with time during 7 months after its addition as  $\Gamma$  or  $IO_3^-$ . The transfer factors of  $IO_3^-$  were higher than those of  $\Gamma$  up to 86 d after the addition, however, those at 177 d after the addition were similar to each other. Higher extractability of  $IO_3^-$  than  $\Gamma$  was also observed during a similar period after the addition. The decreasing pattern of the extraction yield of Cs with pure water agreed with that of its transfer factor. Although the extraction yield of I with pure water showed a fairly similar pattern to that of its transfer factor, its similarity was less than that shown by Cs.

When the soil-to-grass transfer factors of Cs and I in the present study were compared to those which were used for the safety review of the spent nuclear fuel reprocessing plant in Rokkasho, the latter were found to overestimate the transfer beginning at 4 months after their addition to the soil.

#### 1. 目的

土壌に沈着した放射性核種は多様な形態を取って 存在し、その存在形態によって、土壌中における挙 動、土壌から植物への移行が大きく異なる。一般的 には沈着直後が最も植物等に取り込まれ易く、その 後、土壌中で物理的・化学的変化を受け、植物等に 吸収されにくい形態を取る。このため、沈着後の植物への移行性の変化及び各形態間の移行速度を明らかにすることは、現実的な被ばく線量評価のために必要となる。そこで、本調査では放射性 Cs 及び I の土壌中存在形態変化及び植物による経根吸収率の経時的変化を明らかにすることを目的として、安定

元素を用いた実験を行う。平成 20 年度は、Cs を添加した土壌については添加後7ヶ月から20ヶ月まで、また、I を添加した土壌については添加後7ヶ月まで、土壌中における Cs 及びIの存在形態割合と経根吸収率の時間変化を求めた。

### 2. 方法

六ヶ所村内の牧草地から採取した土壌をポットに 200 g充填し、Cs又はI(I 又はIO<sub>3</sub>)を添加した。比放射 能を変えて行った放射性トレーサーの短期間の実験 結果を考慮し、本実験における安定Cs及びIの添加濃 度をそれぞれ 1 mg kg<sup>-1</sup> soil 及び 20 mg kg<sup>-1</sup> soilとし た。元素添加後の土壌は人工気象チャンバー内で保 管した。

Cs 添加土壌にオーチャードグラス (Dactylis glomerata L.)とアカクローバー (Trifolium pretense L.)を添加後 331 日及び 569 日後に播種し、それぞれ 28 日間栽培し、植物への移行係数を求めた。また、 358 日及び 596 日後に土壌を採取し、純水と酢酸ア ンモニウム溶液による抽出を行い、土壌中の Cs 存 在形態を調べた。I 添加土壌の場合も同様に、添加 後 2 日、37 日、86 日及び 177 日後に植物を栽培して 移行係数を求め、添加後 0 日、2 日、9 日、29 日、 64 日、113 日及び 204 日後に土壌を採取し、純水に よる抽出を行った。

対照土壌との目的元素濃度の差によって、土壌中、 抽出画分中の添加元素濃度を求めた。また、添加元 素の土壌中濃度に対する植物地上部中濃度の比とし て移行係数を算出した。

#### 3. 成果の概要

Fig. 1 及び Fig. 2 に土壌に添加した Cs の水と酢酸 アンモニウムによる抽出率及び移行係数をそれぞれ 示した。図には平成 19 年度に行った 204 日目までの 結果も示してある。これに見られるように、抽出率 及び移行係数は、添加後 7 ヶ月以降は大きな変化は 認められず、20 ヶ月までほぼ一定の値であった。移 行係数の減少パターンは土壌中 Cs の水による抽出 率の減少パターンと良い一致を示した。

土壌に添加したIは、添加時の化学形に係らず時間

経過とともに水による抽出率が減少したが、IO<sub>3</sub>として添加した場合、9日から64日までの抽出率は Fとして添加した場合よりも大きかった(Fig. 3)。添加後7ヶ月までの移行係数は時間経過とともに減少した(Fig. 4)。添加後約86日後までは、IO<sub>3</sub>として添加した場合の移行係数はI<sup>-</sup>よりも大きいが、添加後177日後にはほぼ同様の値となった。移行係数の減少パターンは土壌中Iの水抽出率の減少パターンと比較的良い一致を示すが、Csの場合よりも一致性は良くなかった。

本調査で得られた Cs 及び I の移行係数を、大型再 処理施設の安全審査に用いられた土壌-牧草間移行 係数と比較したところ、後者を土壌に沈着後の経過 時間を考慮せずに用いた場合、4 ヶ月後以降では過 大評価となることが分かった(Fig. 2、Fig. 4)。本調 査において得られた、添加後の経過時間と移行係数 との関係を用いることにより、経過時間に応じた移 行係数を与えることが可能となり、土壌-植物間移 行予測の高精度化に寄与できると考えられる。



Fig. 1 Extraction yield of Cs added to the soil.
 o, water extraction; Δ, ammonium acetate extraction. A standard deviation (n=3) is within the range of each symbol.



Fig. 3 Extraction yield of I added to the soil by water extraction. Δ, I added to soil as I<sup>-</sup>;
□, I added to soil as IO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Error bars indicate 1 standard deviation (n=3).



Fig. 2 Soil-to-plant transfer factor of Cs determined by pot experiments. ♦, Orchardgrass; □, Red clover. Error bars indicate a standard deviation (n=3).The arrow indicates the soil-to-grass transfer factor of Cs which was adopted for the safety review of the spent nuclear fuel reprocessing plant in Rokkasho. Data are shown as dry weight basis,



Fig. 4 Soil-to-plant transfer factor of I determined by pot experiments (Orchardgrass). Δ, I added to soil as I<sup>•</sup>; □, I added to soil as IO<sub>3</sub><sup>-</sup>. Error bars indicate 1 standard deviation (n=3). The arrow indicates the soil-to-grass transfer factor of I which was adopted for the safety review of the spent nuclear fuel reprocessing plant. Data are shown as dry weight basis, assuming 10% water content in grass.