

2.3 土壌におけるヨウ素の浸透性に関するパラメータ

Parameters on Iodine Leaching in Soil

塚田 祥文, 山上 睦, 武田 晃, 高久 雄一, 久松 俊一
環境影響研究部

Hirofumi TSUKADA, Mutsumi YAMAGAMI, Akira TAKEDA,
Yuichi TAKAKU, Shun'ichi HISAMATSU
Department of Radioecology

Abstract

Iodine-129 (half-life, 1.6×10^7 y) is one of the important radionuclides discharged from the first commercial nuclear fuel reprocessing plant in Rokkasho, Japan that must be considered for the assessment of radiation dose to the public. Part of the ^{129}I discharged to the atmosphere from the plant is deposited on the land surface and retained in surface soil. Downward migration of ^{129}I in soil is important for the prediction of its concentration in both ground water and surface soil during and after long-term operation of the reprocessing plant. The aims of this study are to evaluate the rate of downward migration of ^{129}I in soil around the reprocessing plant and to clarify physico-chemical and biological factors affecting the migration rate. Since the behavior of iodine in the environment strongly depends on its chemical form, developing and applying speciation analysis methods of each chemical form of iodine in soil environment are also an aim of this study.

In FY 2011, preliminary experiments were conducted for establishment of experimental methods, and the following results were obtained.

- (1) Speciation analysis methods of both ^{125}I and stable iodine in soil solution were examined. Separately, a determination method of $^{125}\text{I}^-$ and $^{125}\text{IO}_3^-$ in soil solution by using an anion exchange disk was developed. A method for routine analysis of stable I^- was established by combining a high performance liquid chromatograph (HPLC) and an electrochemical detector (ECD). Concentration of total iodine in soil solution was also successfully determined by the HPLC-ECD analysis combined with the UV irradiation technique to decompose dissolved organic iodine.
- (2) Two undisturbed soil core samples were collected in Rokkasho by which laboratory soil column experimental conditions for measurement of downward migration rate using ^{125}I were examined. The experimental conditions, such as the preparation method of the soil column and chemical components and flow rate of simulated rain, were established.
- (3) To investigate the physico-chemical effect on speciation of stable iodine in soil, a sampling method of soil solution by high-speed centrifugation was developed. Effect of drying treatment of soil sample on leachability of stable iodine was also investigated. Drying treatment of soil drastically increased the leachability.
- (4) To investigate the effect of a specific type of plant on iodine speciation and downward migration rate in surface soil, rice plant cultivars were cultivated. The oxidation and reduction activity of the cultivars were measured by the 1-naphthylamine oxidization and triphenyltetrazolium chloride reduction method,

and cultivars using for the experiment on the effect of the specific plant type on the iodine speciation were selected based on the measurement results.

1. 目的

大型再処理施設の稼動に伴い放射性ヨウ素が大気中に排出され、周辺土壤に沈着する。これまでの調査によって、土壤に沈着した放射性ヨウ素の一部は植物に吸収されるが、大部分は土壤内に残留することが分かった。更に、大気圏核実験等に由来する¹²⁹Iの土壤深度分布から、¹²⁹Iは表層土壤に残留する画分や、表層から下方へ移行する画分のあることが確認されている。表層土壤におけるヨウ素の浸透性はヨウ素の存在形態に依存し、存在形態は多様な環境因子により影響を受ける。浸透した放射性ヨウ素はやがて地下水に達すると考えられるため、下方へ移動する放射性ヨウ素の浸透速度を求めることは被ばく線量評価上重要である。

本調査では、表層土壤から地下浸透するヨウ素の下方浸透速度を求めることを目的とし、更に、土壤表層での物理・化学的要因（温度、水分、土壤種）や生物学的要因（植物の有無、植物根による酸化還元等）が、土壤中ヨウ素の存在形態及び浸透性に与える影響を明らかにする。平成 23 年度は、それぞれの実験手法を確立するために、以下の 5 項目について調査を実施した

- 1) 土壤浸透液中ヨウ素形態分析法の確立
- 2) 土壤カラムを用いたヨウ素の下方浸透速度測定手法の確立
- 3) 物理・化学的要因による表層土壤中ヨウ素存在形態変化を調査するための実験手法の確立
- 4) 生物学的要因調査のためのイネ品種選定及び栽培条件の確立
- 5) 植物根の酸化還元力測定法の確立

2. 方法

2.1 土壤浸透液中ヨウ素形態分析法の確立

溶液試料中¹²⁵Iの存在形態別濃度を定量する手法を確立するため、陰イオン交換ディスク（Empore-SR、3M）による分離法を検討した。I⁻、IO₃⁻及び腐植酸結合態ヨウ素として陰イオン交換ディスクに吸着さ

せた後、種々の溶離液による溶出率を求めた。また、安定ヨウ素については、高速液体クロマトグラフィー・電気化学検出法（HPLC-ECD）によるI⁻の分析条件の最適化を行い、イオンクロマトグラフィー・ICP質量分析法（IC-ICP-MS）による測定結果との比較を行った。更に、紫外線照射処理による有機態ヨウ素の分解を組み合わせ、HPLC-ECDにより溶液中全ヨウ素濃度を定量する方法を検討した。

2.2 土壤カラムを用いたヨウ素の下方浸透速度測定手法の確立

六ヶ所村内 2 地点から採取した土壤コア試料を用いて、ヨウ素の下方浸透速度を測定するためのカラム試験方法を検討した。更に、六ヶ所村における降水の組成と降水強度のデータを基に、実験に用いる人工降水の組成・流量等を検討した。

2.3 物理・化学的要因による表層土壤中ヨウ素存在形態変化を調査するための実験手法の確立

高速遠心分離法、水抽出法及び吸引法による土壤溶液の採取法を検討した。更に、土壤の乾燥処理が水抽出液中ヨウ素濃度に与える影響を調べた。

2.4 生物学的要因調査のためのイネ品種選定及び栽培条件の確立

文献調査に基づき、根の酸化還元活性が異なる品種を農業生物試験研究所・遺伝資源センター等から収集し増殖した。

土壤表層でのヨウ素存在形態に及ぼす植物の影響を調査するため、イネをモデル植物として、根の酸化還元活性と砂耕及び土耕栽培（陸稲の栽培条件）下でのヨウ素の存在形態との関連を調べ、実際に関連することが明らかになった場合は、根の酸化還元活性を指標として野生植物を選択し、野生植物によるヨウ素存在形態変化を調査する。平成 23 年度は栽培条件の確立を目的に、比較的土壤環境を均一にできる砂耕について栽培容器の容量、栽培基材、栽植密度について調査した。また、根圏の酸化還元電位に及ぼす栽植密度、硅砂粒径、イネ品種の影響についても調査した。

2.5 植物根の酸化還元力測定法の確立

植物根の酸化還元活性 (α -ナフチルアミン酸化力及びTTC還元力)を安定して測定できる実験系を確立した。上記(4)で得られたイネの品種の切断根を用い、 α -ナフチルアミン (NA) 酸化力、TTC還元力の品種間差を求めた。

3. 成果の概要

3.1 土壌浸透液中ヨウ素形態分析法の確立

^{125}I を用いて陰イオン交換ディスクによる I^- 、 IO_3^- 及び有機態ヨウ素の分離法を検討した結果、 I^- 及び IO_3^- は分離可能であったが、有機態ヨウ素の分離には更なる検討が必要であった。また、安定ヨウ素については、HPLC-ECDにより土壌溶液中の I^- を高感度に検出することが可能であり、測定値はIC-ICP-MSとほぼ一致していた。更に、紫外線照射処理による有機態ヨウ素の分解を組み合わせることで、HPLC-ECDを用いて溶液中全ヨウ素濃度を定量することができた。

3.2 土壌カラムを用いたヨウ素の下方浸透速度測定手法の確立

ヨウ素の下方浸透速度を測定するためのカラム試験には、直径 6.4 cm の土壌コア試料を長さ 20 cm ずつ切断した試料をアクリル製カラムに固定して用いることとした。六ヶ所村における降水の組成を模擬した人工雨水をポンプで土壌カラムに供給し、フラクションコレクターを用いて浸透水を一定量採取する方法を確立した。

3.3 物理・化学的要因による表層土壌中ヨウ素存在形態変化を調査するための実験手法の確立

表層土壌における土壌溶液ヨウ素存在形態変化を調査するため、遠心分離法による土壌溶液採取法を確立した。また、土壌採取後の乾燥処理が、土壌溶液中ヨウ素の濃度及び存在形態に大きな影響を与えることが明らかになった。

3.4 生物学的要因調査のためのイネ品種選定及び栽培条件の確立

文献調査に基づき、根の酸化還元活性が異なる品種を遺伝資源センター等から収集し増殖した。実験可能な種子重量である 10 g 以上の採種ができたのは 26 品種であった。イネの栽培のため、250 ml の砂耕

容器に、2 mm 径の珪砂又はガラスビーズを充填して用いたところ、植物体の生育が良く、生育のばらつきも少なかった。イネの栽植密度 (5、10、15 本/ポット)、珪砂粒径 (1、2、3 mm 径) 及び品種 (早期に種子が収穫できた品種) による根圏間隙水の酸化還元電位の差異は認められなかったが、ガラスビーズと珪砂間では差異があった。

3.5 植物根の酸化還元力測定法の確立

植物根の酸化還元活性 (α -NA酸化力及びTTC還元力)を安定して測定できる実験系を確立できた。増殖したイネの品種の切断根の酸化還元活性を測定した結果、 α -NA酸化力では 0.3 から 12 $\mu\text{g mg}^{-1}\text{h}^{-1}$ の品種間差があり、TTC還元力では 0.03 から 0.53 $\text{mg mg}^{-1}\text{h}^{-1}$ の品種間差が認められた。これらの結果を基に、生物学的要因調査のためのイネ品種として、BAROGGIA、亀の尾、岩手胡桃、関取、キヨハタモチ、トヨハタモチを選定した。