

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 of Iodine Migration 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. A 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. In FY 2012, we studied: 1) the downward migration rate of $^{125}\text{I}^-$ and $^{125}\text{IO}_3^-$ in core samples of surface soil; 2) the effect of soil temperature on the chemical form of stable I in soil solution; and 3) the effect of rice plant root activity on the chemical form of stable I in cultivation solution.

Undisturbed soil core samples were collected from a grassland area in Rokkasho to study the downward migration rate of I. The distribution coefficient (K_d) values of $^{125}\text{I}^-$ and $^{125}\text{IO}_3^-$, as well as ^{85}Sr and ^{137}Cs , in the soil samples fractionated from different depths (0 – 50 cm) of the soil core samples were measured by the batch sorption method. Downward migration rate of the nuclides in the soil was estimated by using a retardation factor that was obtained from the measured K_d value. The downward migration rate of ^{125}I in the two forms examined ranged from 0.3 to 2.3 mm y^{-1} , which was lower than the rate for ^{85}Sr and higher than that for ^{137}Cs . Undistributed soil columns were prepared from the core samples, and the solution of ^{125}I ($^{125}\text{I}^-$ or $^{125}\text{IO}_3^-$), ^{85}Sr or ^{137}Cs was added onto the surface of each column. The vertical distribution of the nuclides in the column was investigated after passing the artificial rainwater through it. Since the fraction of $^{125}\text{IO}_3^-$ at a depth to 20 cm was larger than that of $^{125}\text{I}^-$, it was suggested that the downward migration rate of $^{125}\text{IO}_3^-$ was higher than that of $^{125}\text{I}^-$.

Surface soil samples collected from three sites in Rokkasho were used in the soil incubation experiment under different temperatures: 4, 15, 30 and 45°C. Soil solution samples were obtained by high-speed centrifugation after the incubation within 18 d, and concentrations of I^- , IO_3^- and total I in the samples were analyzed. The IO_3^- concentrations in all soil solution samples were under the detection limit. While the concentrations of total I and I^- did not change in the samples incubated at 4, 15 and 30°C, the total I concentration for the 45°C incubation was significantly higher than that in the lower temperatures. Dissolved organic iodine was the main form of iodine solubilized under the highest temperature, though the I^- concentration in the soil solutions was also increased.

To investigate the effect of plant root activity on iodine speciation, rice plant cultivars were cultivated by sand-hydroponics using the cultivation solution with added I^- and IO_3^- . The concentrations of both I^- and IO_3^- in the solution decreased in the cultivation period. The I^- concentration depended on the rice plant cultivars, while the IO_3^- concentration did not.

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 ^{129}I の土壤深度分布から、 ^{129}I 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 24 年度は、以下の項目について調査を実施した。

- 1) 土壤カラムを用いたヨウ素の化学形態別下方浸透速度調査（表層 0～50 cm）
- 2) 物理・化学的要因による表層土壤中ヨウ素の化学形態変化調査（温度）
- 3) 生物学的要因によるイネ根圏中ヨウ素の化学形態変化調査（砂耕栽培）

2. 方法

2.1 土壤カラムを用いたヨウ素の化学形態別下方浸透速度調査（表層 0～50 cm）

ボーリングにより六ヶ所村二又の牧草地（N41°00.16′、E141°17.60′）から表層コア土壤を 2012 年 9 月 25～28 日に採取した。0～50 cm を層別に分け ^{125}I （ I^- 又は IO_3^- ）、 ^{85}Sr 及び ^{137}Cs のバッチ法による分配

係数（Kd）を求め、それを用いた遅延係数から下方浸透速度を算出した（Kd 法）。また、表層から 20 cm 毎に切断したコア土壤試料（0～60 cm）に ^{125}I （ I^- 又は IO_3^- ）、 ^{85}Sr 又は ^{137}Cs を添加した後、人工雨水を滴下し、滴下終了後のコア土壤試料中放射性核種の濃度分布を求めた（カラム法）。

2.2 物理・化学的要因による表層土壤中ヨウ素の化学形態変化調査（温度）

六ヶ所村内から採取した表層土壤を実験に用いた。乾燥処理を行った土壤試料に最大容水量の 60% となるように純水を加え、30℃で 21 日間の前培養を行った後に実験に用いた。土壤試料は一定の水分含量で 4℃、15℃、30℃及び 45℃の温度条件下で最長 18 日間培養した。所定の期間培養後に、高速遠心分離法により採取した土壤溶液中全ヨウ素濃度及び I^- 、 IO_3^- 濃度を HPLC により定量した。

2.3 生物学的要因によるイネ根圏中ヨウ素の化学形態変化調査（砂耕栽培）

250 ml 褐色ガラス瓶に粒径 2 mm の珪砂を入れ、播種後 16 日のイネ幼苗（品種：日本晴、コシヒカリ、トヨハタモチ、ゆめのはたもち、五百万石）を瓶あたり 5 株定植し、5 反復栽培した。春日井氏培養液の更新は 1 週間ごとに行い、培養液には I^- 及び IO_3^- の濃度がそれぞれ 0.005 mM になるように KI 及び KIO_3 を添加した。播種後 50 日齢のイネの培養液更新後、1、7、31、55 時間後の根圏間隙水中の I^- 、 IO_3^- 濃度の経時的変化を HPLC により定量した。

3. 成果の概要

3.1 土壤カラムを用いたヨウ素の化学形態別下方浸透速度調査（表層 0～50 cm）

30 cm 以深の土壤では ^{125}I に比べ $^{125}IO_3^-$ で添加した Kd 値は低い値であったが、それより上層土壤では両形態の Kd 値に大きな違いは見られなかった。これは、Kd 値を求める際に ^{125}I と $^{125}IO_3^-$ を土壤に添加し

て2週間振とうしており、有機物が多く存在する表層の土壌では両者の存在形態が一様になるためと考えられる。 ^{125}I のKd値は、0～2 cmの表層で低く、2～15 cmまで次第に高い値となった。 ^{125}I のKd値に比べ、 ^{85}Sr のKd値は数分の一、 ^{137}Cs の値は数倍から1桁以上高い値であった。

層別に求めたKd値から、六ヶ所村での年間降水量 1427 mm y^{-1} のうち牧草地での下方浸透する割合を50% (登尾ら, 2002) として、各層の ^{125}I 、 $^{125}\text{IO}_3^-$ 、 ^{85}Sr 及び ^{137}Cs の下方浸透速度を求めた。表層0～50 cmにおける放射性ヨウ素の下方浸透速度は、 $0.3\sim 2.3\text{ mm y}^{-1}$ の範囲にあり、そのうち表層0～3 cmの浸透速度は $1.1\sim 2.1\text{ mm y}^{-1}$ とそれ以深の層に比べて高い値(40～50 cmの $^{125}\text{IO}_3^-$ を除く)であった。0～50 cmの ^{85}Sr 及び ^{137}Cs の浸透速度は、それぞれ $1.2\sim 4.7$ 及び $0.02\sim 0.36\text{ mm y}^{-1}$ の範囲にあり、0～3 cmの表層で高い値であった。本調査で比較した3核種の中で ^{137}Cs の浸透速度が最も小さく、移動しにくい核種であり、 ^{85}Sr が最も移動しやすい核種であることが示された。

カラム法から求めた $^{125}\text{IO}_3^-$ と ^{125}I の浸透後の濃度分布は、0～20 cmのコア土壌では同様であったが、20 cm以深のコア土壌では ^{125}I に比べ $^{125}\text{IO}_3^-$ の下方での存在割合が高かった。このことから、カラム法による20 cm以深の土壌では両形態での浸透速度に差があると推測され、Kd法から求めた浸透速度と異なる傾向にあった。

3.2 物理・化学的要因による表層土壌中ヨウ素の化学形態変化調査(温度)

土壌溶液中 IO_3^- は全ての試料で検出限界以下($< 1\text{ }\mu\text{g L}^{-1}$)であった。4～30℃において、土壌溶液中全ヨウ素濃度及びI濃度に違いがないことから、この温度範囲では、表層土壌中ヨウ素の移動性に与える地温の影響は小さいと考えられた。一方、45℃における土壌溶液中全ヨウ素濃度及びI濃度は他の温度に比べて高く、培養開始18日後では30℃での濃度よりそれぞれ3～5倍及び2～3倍高かった。45℃で可溶化したヨウ素は主に有機態であると考えられた。

3.3 生物学的要因によるイネ根圏中ヨウ素の化学形態変化調査(砂耕栽培)

砂耕間隙水中のI、 IO_3^- 濃度は植物の有無により差異があることが明らかになった。砂耕間隙水中のI濃度に関しては品種間差異がみられ、I濃度は経時的に低下した。砂耕間隙水中の IO_3^- 濃度も低下したが、品種間差異は観察されなかった。播種後50日齢のイネ根においては、根圏のI濃度とイネ根のTTC活性との間にはやや弱い正の相関関係が認められ、根圏の IO_3^- 濃度とイネ根のTTC活性および $\alpha\text{-NA}$ 活性との間には相関関係は認められなかった。

引用文献

登尾浩助, 颯田尚哉, 古賀潔, 馬場秀和, 向井田善朗 (2002) 畜産環境情報 17, 12-15.