

2.3 土壤中ヨウ素の浸透性

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 2013, 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 water condition 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 cultivated soil solution.

Undisturbed soil core samples were collected at a forest 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 a soil was estimated by using a retardation factor which was obtained by the measured K_d value. The downward migration rate of ^{125}I in the two forms examined ranged from 0.1 to 69 mm y^{-1} , where higher values were observed within 3 cm in depth. The downward migration rates of ^{85}Sr and ^{137}Cs were 0.9–7.5 mm y^{-1} and 0.03–2.2 mm y^{-1} , respectively. Undistributed soil columns were prepared from the core samples, and the solution of ^{125}I was added on the soil surface of each column. Vertical distribution of the nuclides was investigated after passing simulated rainwater through it. The vertical distribution was not different between $^{125}\text{I}^-$ and $^{125}\text{IO}_3^-$ in the 0–20 cm soil column while the distribution in a soil column deeper than 20 cm suggested that the downward migration rate of $^{125}\text{IO}_3^-$ was higher than that of $^{125}\text{I}^-$.

Surface soil samples were incubated during 28 d under different water conditions: 30, 60, 100, 200 and 300% of the maximum water holding capacity. Concentrations of I^- , IO_3^- and total I in the soil solution collected at pre-determined periods after starting the incubation were analyzed. The concentration of the total I in the soil solution was remarkably high under the soil reducing condition at higher water content, in which I^- was the main form of iodine in the solution. No IO_3^- was detected in any soil solution samples.

The chemical forms of stable I in the cultivation solution of different rice cultivars with different root activities were examined to study the effect of plants on I. Concentrations of I^- , IO_3^- and organic-I in the

soil solution were analyzed 4 d after adding I^- or IO_3^- solutions to the cultivated soil surface. Concentrations of I^- in all soil solution samples were not different from that in the soil solution without plants, so independent of the rice cultivars, while organic-I concentrations were increased for the plant cultivation, showing dependence on the rice cultivars. No IO_3^- was detected in any soil solution samples.

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 25 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（水分）
- 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（土耕栽培）

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尾駁の雑木林（N40° 57.5'、E141°22.5'）から表層コア土壤を 2013 年 7 月 3～10 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（水分）

六ヶ所村内から採取した表層土壤を実験に用いた。水分量を最大容水量の 30%、60%、100%、200% 及び 300% に調整した土壤試料を、20℃及び 30℃で最長 28 日間培養した。培養後に、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（土耕栽培）

根の TTC 活性の異なるイネ数品種を土耕（黒ぼく土）栽培し実験に供した。 I^- 又は IO_3^- 液を土壤に添加し、所定期間栽培後、土壤溶液中全ヨウ素濃度および I^- 、 IO_3^- 濃度を定量した。植物根の TTC 活性と土壤溶液中のヨウ素の化学形態との相関関係を調査し、また、水耕培養液の窒素形態（硝酸態窒素/アンモニア態窒素）を変えて植物を栽培し、培養液に添加したヨウ素の化学形態変化に及ぼす窒素の影響を調査した。

3. 成果の概要

3.1 土壌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）

層別に求めた K_d 値から、六ヶ所村での年間降水量のうち下方浸透する割合を 50% 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。その結果、 ^{125}I の表層 0～50 cm における下方浸透速度は、 ^{125}I 又は $^{125}\text{IO}_3^-$ を添加した場合、それぞれ 0.1～69 又は 0.3～65 mm y^{-1} にあった。そのうち表層 0～3 cm の浸透速度は数 cm (17～69 mm y^{-1}) と、3 cm 以深の層に比べ 1 桁以上高い値を示した。3～20 cm の層ではそれぞれの形態で添加した場合でも浸透速度は 0.2～4.3 mm y^{-1} にあり、0～20 cm 層までは添加した形態による浸透速度の差は見られなかった。

一方、20 cm 以深での ^{125}I 及び $^{125}\text{IO}_3^-$ の添加における下方浸透速度は、それぞれ 0.1 及び 1.1～2.0 mm y^{-1} と約 1 桁の違いがあった。 ^{85}Sr の 0～50 cm の層における浸透速度の変動は、0.9～7.5 mm y^{-1} の約 1 桁の範囲で、0～10 cm の層で 10 cm 以下の層に比べ高い値であった。 ^{137}Cs の 0～50 cm の層における浸透速度は、0.03～2.2 mm y^{-1} と 2 桁の範囲にあり、0～3 cm の表層において高い値であった。本調査で検討した 3 核種とも、表層での浸透速度が高く、特に ^{125}I と ^{137}Cs は 0～3 cm の層でそれより下層の層に比べ際立って高い値であった。

平成 24 年度の調査地点を対象に K_d 法で得られた浸透速度の結果と比較すると、 ^{125}I と ^{137}Cs の浸透速度は表層土壌 (0～10 cm) では採取地点により約 1 桁の違いがあるが、10 cm 以深の土壌では比較的同様の浸透速度であった。一方で、 ^{85}Sr の浸透速度は両地点で違いがなかった。

カラム法において ^{125}I と $^{125}\text{IO}_3^-$ の浸透後の ^{125}I 濃度分布は、0～20 cm のコア土壌では同様であった。一方、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。カラム法における ^{125}I 添加時の形態による浸透性の違いは、 K_d 法による結果と同様であった。

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（水分）

土壌溶液中 IO_3^- は全ての試料で検出限界以下 (< 1

$\mu\text{g L}^{-1}$) であった。土壌水分の増加により土壌の還元が進行した場合、土壌中ヨウ素濃度が急激に上昇する傾向が認められた。30℃で 28 日間培養した後の土壌溶液中ヨウ素濃度は、土壌水分を最大容水量の 300%とした場合に、60%とした場合と比較して最大で 500 倍高い濃度であった。また、土壌の還元に伴い溶出するヨウ素では、 I^- の存在割合が多かった。

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（土耕栽培）

は種後 50 日目に土壌に I^- を添加した試験においては、土壌溶液中の I^- 濃度は、無添加土壌と比べて BAROGGIA がやや高かったが、他の品種においては差異が見られなかった。また、土壌溶液中の IO_3^- は検出限界以下 ($< 1 \mu\text{g L}^{-1}$) であった。一方、有機態ヨウ素濃度は、無栽培の土壌に比べて高くなり、加えて、品種間差異も観察された。植物根の TTC 活性と土壌溶液中の全ヨウ素濃度の間には弱い正の相関が認められた。

さらに、培養液窒素形態の異なるイネ水耕液への IO_3^- 50 $\mu\text{g L}^{-1}$ 添加 1 日後のヨウ素形態の変化は、アンモニア態窒素を窒素源として与えた場合は硝酸態窒素を栄養源として与えた場合に比べ、 IO_3^- から I^- への還元が多く、有機態ヨウ素への形態変化も多かった。