

## 2.3 土壤中ヨウ素の浸透性

### Parameters of Iodine Migration in Soil

山上 睦, 武田 晃, 海野 佑介, 高久 雄一, 久松 俊一  
環境影響研究部

Mutsumi YAMAGAMI, Akira TAKEDA, Yusuke UNNO  
Yuichi TAKAKU, Shun'ichi HISAMATSU  
*Department of Radioecology*

#### Abstract

Iodine-129 (half-life,  $1.6 \times 10^7$  y) is one of the important radionuclides discharged from the first commercial nuclear fuel reprocessing plant in Rokkasho, Japan for the assessment of radiation dose to the public. A part of the  $^{129}\text{I}$  discharged to the atmosphere from the plant is deposited on the land surface and retained in surface soil. Downward migration of  $^{129}\text{I}$  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  $^{129}\text{I}$  in soil around the reprocessing plant and to clarify physico-chemical and biological factors affecting the migration rate. In FY 2014, we studied: 1) the downward migration rate of  $^{125}\text{I}$  in core samples of subsurface soil (0.5–3 m); 2) chemical form of stable I in surface soil in grassland and forest; and 3) the effect of pasture grassed and wild plants on the chemical form of stable I in soil solution by an experiment with cultivation pots.

A core sample in subsurface soil (0.5–3 m) was collected from grassland in Rokkasho to study the downward migration rate of I. The distribution coefficient ( $K_d$ ) values of  $^{125}\text{I}$ , as well as  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$ , in the soil samples fractionated from different depths of the soil core sample 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, under the assumption that half of the precipitation in Rokkasho permeates in the soil. The downward migration rate of  $^{125}\text{I}$ ,  $^{85}\text{Sr}$  and  $^{137}\text{Cs}$  ranged from 0.04 to 41  $\text{mm y}^{-1}$ , 0.02–0.16  $\text{mm y}^{-1}$  and 0.005–0.022  $\text{mm y}^{-1}$ , respectively. The downward migration rate of  $^{125}\text{I}$  significantly increased in soil under 2 m depth, while that of  $^{137}\text{Cs}$  and  $^{85}\text{Sr}$  in 0.5–3.0 m depth showed gradually increasing and decreasing trends with soil depth, respectively.

To study the chemical forms of stable I in soil, surface soil samples were collected at four points in each grassland area and forest around the nuclear fuel reprocessing plant at 5 cm depth intervals up to 20 cm. The organic layer including the root mat and O-horizon were also collected at each point. Soil solution of the surface soil sample was obtained by a centrifugation method and analyzed for  $\text{I}^-$ ,  $\text{IO}_3^-$  and total I separately. The concentration of the total I in the soil solution ranged from 2.8 to 46  $\mu\text{g-I L}^{-1}$ . The major form of I in the soil solutions was  $\text{I}^-$  (61%), whereas  $\text{IO}_3^-$  was not detected in any of the soil solution samples. Organic-I, which is assumed to be the difference between the total I and the sum of  $\text{I}^-$  and  $\text{IO}_3^-$ , was also a significant form of I in the soil solution. Water-soluble I, which was extracted at 1:10 (w/v) ratio with deionized water, occupied 0.03–1.2% of the total I in the organic layer and subjacent soil (0–5 cm) samples. The concentration of the water-soluble I positively correlated with that of water-soluble organic carbon, suggesting that

migration of I would be affected by behavior of the organic carbon in the surface soils.

The chemical forms of stable I in the soil solution in cultivation pots of pasture grasses and wild plants were examined to study the effect of plant cultivation on I in soil. Concentrations of  $I^-$ ,  $IO_3^-$  and organic-I in the soil solution were analyzed 1 d after adding  $I^-$  or  $IO_3^-$  solutions to the cultivated soil surface. Concentrations of both  $I^-$  and organic-I in the soil solution samples were increased by the plant cultivation. The increasing ratio of cultivated soil to non-cultivated control depended on the cultivated plants. No  $IO_3^-$  was detected in any soil solution samples.

## 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ている。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、 $^{129}I$  に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。表層土壤における放射性ヨウ素の浸透性はそ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 年度までに、六ヶ所村二又（放牧地）及び尾駁（雑木林）で採取した深度 0～0.5 m の土壤を対象に分配係数（Kd）法により求めた  $^{125}I$  の下方浸透速度は、後者の表層（0～3cm）において著しく大きな値を示した。また、高温条件下では主に有機態ヨウ素が土壤溶液中に溶出し、還元状態では  $I^-$  の溶出が増加した。更に、植物の有無による差異が明確で、特に有機態ヨウ素濃度が植物栽培で増加することが判明した。平成 26 年度は、以下の項目について調査を実施した。

- 1) 深度 0.5～3.0 m の土壤コアを用いたヨウ素の化学形態別下方浸透速度調査
- 2) 土地利用（草地と森林）による表層土壤中ヨウ素

の化学形態変化調査

- 3) 牧草及び野生植物の土耕栽培による根圏中ヨウ素の化学形態変化調査

## 2. 方法

### 2.1 深度 0.5～3.0 m の土壤コアを用いたヨウ素の化学形態別下方浸透速度調査

ボーリングにより六ヶ所村二又の放牧地から深さ 3 m までの浅層コア土壤を 2014 年 8 月 4～8 日に採取した。深さ 0.5～3.0 m のコアを深度別に分け  $^{125}I^-$ 、 $^{85}Sr$  及び  $^{137}Cs$  のバッチ法による分配係数（Kd）をそれぞれ求めた。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、分配係数から下方浸透速度を算出した。

### 2.2 土地利用（草地と森林）による表層土壤中ヨウ素の化学形態変化調査

大型再処理施設周辺地域の草地及び森林それぞれ 4 地点を対象として、100 mL の採土管で深さ 5cm 毎の土壤試料を 20 cm まで層別に採取し、高速遠心分離法により土壤溶液を採取した。また、有機層及び 0～5 cm の表層土壤は、採取後 4 mm の篩いを通して均質化し、水抽出を行った。土壤溶液及び抽出液中の  $I^-$ 、 $IO_3^-$  及び全ヨウ素濃度を測定した。

### 2.3 牧草及び野生植物の土耕栽培による根圏中ヨウ素の化学形態変化調査

牧草及び野生植物を土耕（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、1 日後、土壤溶液中の  $I^-$ 、 $IO_3^-$  及び全ヨウ素濃度を定量した。また、窒素形態（硝酸態窒素/アンモニア態窒素）を変えて牧草及びマメ科植物を土耕栽培及び水耕栽培し、根圏溶液での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 深度0.5～3.0 mの土壌コアを用いたヨウ素の化学形態別下方浸透速度調査

層別に求めたKd値から、各層の $^{125}\text{I}$ 、 $^{85}\text{Sr}$ 及び $^{137}\text{Cs}$ の下方浸透速度を求め、これまでに報告した表層の結果とともにFig. 1に示した。 $^{125}\text{I}$ の下方浸透速度は0.5 m以深で深度とともに増加し、 $^{85}\text{Sr}$ では漸減し、 $^{137}\text{Cs}$ はほぼ一定であった。

#### 3.2 土地利用（草地と森林）による表層土壌中ヨウ素の化学形態変化調査

土壌溶液中の全ヨウ素濃度は $2.8\sim 46\text{ }\mu\text{g-I L}^{-1}$ の範囲にあり、いずれの試料でも $\text{IO}_3^-$ は検出下限値以下であった。土壌溶液における安定ヨウ素は、 $\text{I}^-$ 及び有機態ヨウ素が主要な形態であった。土壌溶液中の安定ヨウ素のうち $\text{I}^-$ の存在割合は平均で61%であり、草地と森林の間に有意な差は認められなかった。土壌溶液中の有機炭素濃度は、全ヨウ素濃度及び有機態ヨウ素濃度と正の相関関係が認められた。

有機層及び0～5 cmの表層土壌に含まれる安定ヨ

ウ素のうち、水抽出される水溶性ヨウ素の割合は0.03～1.2%であった。水溶性ヨウ素濃度と水溶性有機炭素濃度の間には正の相関関係が認められ、表層土壌におけるヨウ素の浸透性は、有機炭素の挙動の影響を強く受けることが示唆された。

#### 3.3 牧草及び野生植物の土耕栽培による根圏中ヨウ素の化学形態変化調査

牧草及び野生植物を土耕栽培し、土壌溶液中のヨウ素の存在形態を調査した。植物を栽培している土壌溶液中の全ヨウ素、 $\text{I}^-$ 及び有機態ヨウ素濃度は、無栽培区に比べて高く、全ヨウ素濃度はアカクロバー、アルファルファ、ケンタッキーブルーグラス、チモシーで無栽培区よりも約3倍高い濃度を示した。 $\text{I}^-$ 濃度は、牧草の種間差異が明確で、アカクロバー、ケンタッキーブルーグラス、ソルガム、チモシー、リードカナリーグラスは無栽培区よりも約5倍高い濃度を示した。有機態ヨウ素濃度は、マメ科のアルファルファで、無栽培区のよりも約3倍高い濃度を示した。これらの結果から、土壌溶液中ヨウ素

濃度に与える影響は植物により異なることが判明した。

更に、アンモニア態窒素を窒素源とし育てた牧草やマメ科植物の水耕培養液に $\text{IO}_3^-$ を与えた場合、硝酸態窒素を窒素源として育てた場合に比べ、 $\text{IO}_3^-$ から $\text{I}^-$ への還元や有機態ヨウ素への形態変化が多く、植物種間で差異があることが明らかになった。

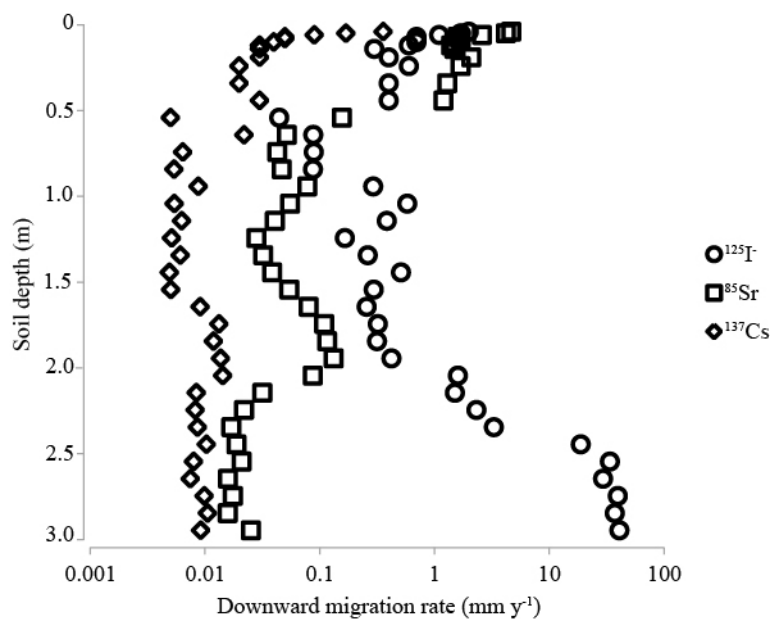


Fig. 1 Vertical profiles of downward migration rate. Open circles,  $^{125}\text{I}$ ; Open squares,  $^{85}\text{Sr}$ ; Small open rhombuses,  $^{137}\text{Cs}$ . Migration rates of 0 to 0.5 m were adapted from the previous report in FY 2012.