

1. 2. 3 土壌におけるヨウ素の浸透性

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, 1.6×10^7 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}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 2015, we studied: 1) the downward migration rate of radioiodine in core soil samples (3–20 m), and 2) factors controlling the downward migration rate of radioiodine in surface soil.

A core sample of 3–20 m was collected from a pasture field in Rokkasho to study the downward migration rate of I. The distribution coefficient (K_d) values of ^{125}I , as well as ^{85}Sr and ^{137}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 was estimated up to the depth of 11.7 m at which a water table was found. The downward migration rate 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 the ^{125}I from the 3 m depth and deeper was higher than that in the upper 3 m and almost constant up to the water table, while the rates of ^{137}Cs and ^{85}Sr gradually decreased with depth in the soil profile.

To study the controlling factor of the migration rate of radioiodine, surface soil samples were collected at four points around the nuclear fuel reprocessing plant from different depths up to 50 cm. Soil samples before and after the pot cultivation of pasture grasses were also collected. The K_d of ^{125}I and soil chemical properties were determined for those samples and the relationships between the K_d and soil properties were examined. The K_d value of ^{125}I in the soil samples was positively correlated with K_d value of organic carbon, which was calculated from the concentrations of soil total carbon and dissolved organic carbon. The results suggest that radioiodine is transformed from inorganic to organic form in surface soil rapidly after deposition, and migration in soil is controlled by the partitioning of dissolved organic substances.

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、周辺土壌に沈着する。これまでの調査によって、土壌に沈着した放射性ヨウ素の一部は

植物に吸収されるが、大部分は土壌内に残留することが分かっている。さらに、大気圏核実験等による ^{129}I の土壌深度分布から、 ^{129}I には表層土壌に残留する画分や、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。表層土壌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、表層土壌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、土壌表層での物理・化学的要因（温度、水分、土壌種）や生物学的要因（植物の有無等）が、土壌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26年度までに、六ヶ所村二又（放牧地）及び尾駁（雑木林）でそれぞれ採取した深度0～3 m及び0～0.5 mの土壌を対象に分配係数（ K_d ）法によりヨウ素の下方浸透速度を求めた。 ^{125}I の下方浸透速度は、後者の表層（0～3 cm）において著しく大きな値を示した。また、森林や草地の表層土壌において、土壌溶液中の安定ヨウ素は I^- 及び有機態ヨウ素が主要な形態であり、安定ヨウ素の溶出は、溶存有機炭素の影響を強く受けていること、更に高温条件下では主に有機態ヨウ素、還元状態では I^- の溶出が増加することを明らかにした。加えて、植物の有無による差異は明確で、土壌溶液中の全ヨウ素、有機態ヨウ素、 I^- 濃度が植物栽培で増加することが判明した。平成27年度は、以下の項目について調査を実施した。

- 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（中層3～20 m）
- 2) ヨウ素下方浸透速度に及ぼす変動要因の調査

2. 方法

2.1 土壌コア試料を用いたヨウ素の化学形態別下方浸透速度調査（中層3～20 m）

ボーリングにより六ヶ所村二又の放牧地から深さ20 mまでのコア土壌を採取し、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（ K_d ）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 ヨウ素下方浸透速度に及ぼす変動要因の調査

表層土壌における ^{125}I の K_d に与える変動要因を明らかにすることを目的として、六ヶ所村内の4地点（放牧地、雑木林、クロマツ林、裸地）から50 cm深まで層別に10試料ずつ採取した土壌試料を対象に ^{125}I の K_d を求め、土壌の各種物理化学的特性と K_d の関連を解析した。

更に、前年度までの調査結果を踏まえて、土壌溶液中のヨウ素動態に強く影響した植物種（チモシー、ソルガム、アルファルファ）及び各種土壌（放牧地、クロマツ林、耕地、休耕地）を使ってポット栽培実験を行い、 ^{125}I の K_d に与える影響を調査した。

3. 成果の概要

3.1 土壌コア試料を用いたヨウ素の化学形態別下方浸透速度調査（中層3～20 m）

層別に求めた K_d 値から、各層の ^{125}I 、 ^{85}Sr 及び ^{137}Cs の下方浸透速度を求めた。深度11.7 m以深に地下水の存在が確認されたため、中層3～11.7 mにおける下方浸透速度をこれまでに報告した表層及び浅層の結果とともにFig. 1に示した。 ^{125}I の下方浸透速度は3 m以深で速く、ほぼ一定の速度を保っており、 ^{85}Sr と ^{137}Cs では逆に遅く、全体として漸減するパターンを示した。

3.2 ヨウ素下方浸透速度に及ぼす変動要因の調査

表層土壌における ^{125}I の K_d 値は $9.7\text{E}+0\sim 1.2\text{E}+3$ の範囲にあった。土壌中全炭素濃度が 10 g kg^{-1} 以上の有機物に富む表層土壌では、溶存有機炭素（DOC）濃度と ^{125}I の K_d の間に負の相関関係が見られた。また、土壌中の有機物量に関わらず、土壌中全炭素濃度とDOC濃度から算出した有機炭素の K_d は、 ^{125}I の K_d と正の相関関係が認められた（Fig. 2）。

植物栽培後の土壌では、栽培前と比較し土壌溶液中DOC濃度が増加しており、 ^{125}I の K_d は低い傾向にあった。有機炭素の K_d と ^{125}I の K_d の関係は、前述の表層土壌において見られた関係と同様であった（Fig. 2）。

更に、これまでに得られた放牧地及び雑木林の0

～3 m までの層別土壌試料における ^{125}I の K_d についても、有機炭素の K_d との間に正の相関関係が認められた (Fig. 2)。

表層土壌に沈着した放射性ヨウ素は、速やかに有機態に変化し、その後の下方への浸透は、溶存有機物の分配に支配されると考えられた。

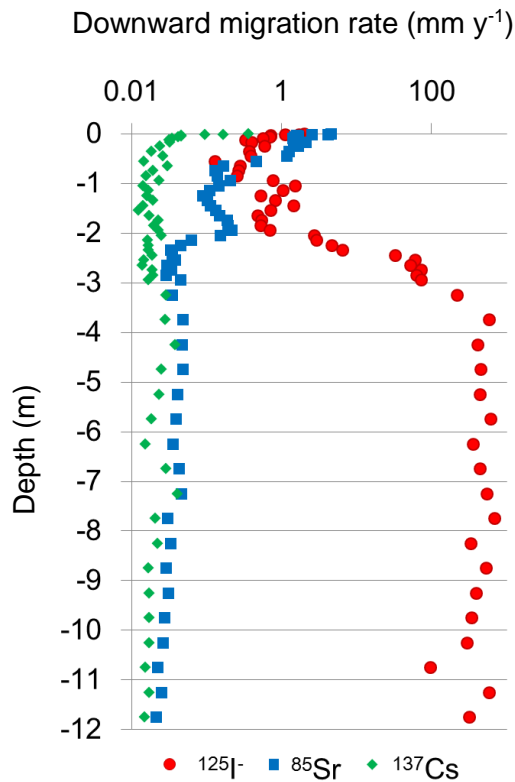


Fig. 1 Downward migration rate ^{125}I , ^{85}Sr and ^{137}Cs in soil samples from different depths in a pasture field. Results were obtained in FY2012, FY2014 and FY2015.

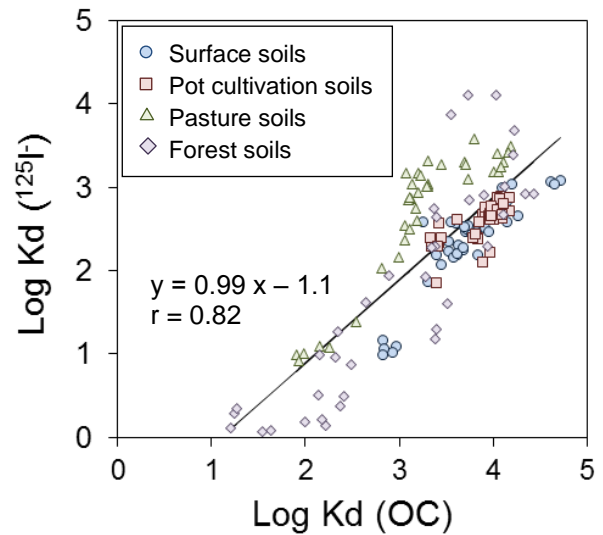


Fig. 2 K_d of ^{125}I and organic carbon in soils. K_d (^{125}I), K_d of ^{125}I evaluated from batch sorption experiment of ^{125}I . K_d (OC), K_d of organic carbon evaluated from concentration of soil total carbon and dissolved organic carbon. Surface soils represents soil samples from different depths (0-50 cm) collected from four different sites around the nuclear fuel reprocessing plant. Pot cultivation soils represents soil samples before and after the pot cultivation experiments. Pasture soils represents soil samples from different depths (0-3 m) in a pasture field. Forest soils represents soil samples from different depths (0-3 m) in a forest area.