土壤中の放射性ヨウ素の形態別吸着挙動

関 李紀, 高橋俊之, 池田長生

筑波大学化学系

305 茨城県新治郡桜村天王台 1-1-1

1983年9月13日 受理

茨城県東海村の土壌を用いて、土壌中の放射性ヨウ素の吸着挙動を I^- , IO_3^- の化学的形態別に調べた。さらに、土性と有機物含量を決定し、吸着挙動との関連について考察を行った。その結果、無担体の I^- 形の放射性ヨウ素は、土壌の性質に無関係に吸着され、 IO_3^- 形の放射性ヨウ素は、有機物含量の高い土壌に吸着されやすい傾向のあることが分かった。

Key Words: adsorption, radioiodine, soil, chemical form, soil texture, iodide, iodate

1. 緒 言

最近、原子力平和利用の進展に伴い、原子力施設から、長半減期放射性核種である ^{129}I の放出量の増加が報告されている¹⁾。ヨウ素は食物連鎖から人体に摂取されると、甲状腺に蓄積されることから、放射線被曝線量評価の観点から注目される。環境中で土壌は、食物連鎖への重要な移行経路となり、放射性ヨウ素の挙動を調べることは重要である。一方、ヨウ素の放射性同位体のうちでは、従来は核分裂収率の高い ^{131}I が注目されたが、半減期が短いため、ミルクや食品などの分析が主で、土壌中の挙動については関心は低く、報告例は少ない²⁾。また、土壌中で放射性ヨウ素は、種々の化学形で存在すると考えられ、土壌中の挙動は化学形によって異なると予想される。

そこで本研究では、土壌における放射性ヨウ素の挙動を化学的形態別に調べることを目的とし、トレーサ実験により土壌に対する放射性ヨウ素の吸着特性を化学形別に調べた。またさらに、吸着実験に使用した土壌について、化学的性質を試験し、吸着特性との関係を解明することを試みたので、その結果を合わせて報告する。

2. 実 験

2.1 土壌

今回は、茨城県東海村の原子力施設周辺で採取した土壌を実験に使用した。採取地点を Fig. 1 に示す。採取地点を便宜上、北部、中部、南部の3地区に分類した。採取した土壌（主として表層土）を風乾し、2 mmφ のフルイを通過したもの（風乾細土）を実験に

I: The Japan Atomic Power Company
II: Japan Atomic Energy Research Institute
III: Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corporation

Fig. 1 Sampling sites of soils in Tokai, Ibaraki Pref.

使用した。ただし、有機物含量の定量のさいは、風乾細土をすりつぶし、0.2 mmφ のフルイを通したのち、通過した部分（風乾微細土）を分析に使用した。

2.2 放射性ヨウ素

実験では、トレーサとして、 I^- , IO_3^- の化学形の無担体の ^{125}I を添加した。 I^{*-} は、日本アイソトープ協会から購入した NEN 社製のものを希釈して用いた。 $I^{*}O_3^-$ は、 I^{*-} を臭素水で $I^{*}O_3^-$ に酸化し、過剰の臭素を四塩化炭素で抽出除去して調製した。

2.3 吸着実験

吸着実験の操作は、つぎの通りである。まず、風乾細土 5 g を 100 ml の三角フラスコに入れ、前述の方法で調製した I^* -または $I^*O_3^-$ -のいずれかの水溶液 (pH 6~7) を 20 ml 加えた。添加後、室温で 10 日および 46 日間放置した。所定の時間が経過したのち、溶液をろ紙 (No. 5A) でろ過し、そのろ液から 5 ml を採取して、 $NaI(Tl)$ シンチレーション計数装置 (インターテック社オートウェルカウンタ) で放射能を測定した。放射能測定値より、次式により吸着率 $R(\%)$ と分配比 $D(ml/g)$ を求めた。

$$R(\%) = \frac{A_0 - A_w}{A_0} \times 100$$

$$D(ml/g) = \frac{\text{単位重量当たりの土壌の放射能}}{\text{単位容積当たりの水相の放射能}} \\ = \frac{(A_0 - A_w)/5}{A_w/20}$$

ただし、 A_0 は最初に添加した ^{125}I の放射能であり、 A_w はろ液 20 ml の放射能である。このようにして表された吸着率と分配比との間にはつぎの関係が成り立つ。

$$D = \frac{4R}{100 - R}$$

2.4 土質試験

土壌の化学的性質を調べるために、つぎの項目について土質試験を行った。

- (1) pH: 風乾細土 10 g に蒸留水 25 ml を加え、30 分放置後、pH メータにより上澄液の pH を測定した。
- (2) 有機物含量: 風乾微細土について、小坂・本田・井碓法³⁾により求めた。
- (3) 粒径組成: 風乾細土中の有機物を過酸化水素で分解し、4%ヘキサメタリン酸ナトリウム溶液中に分散させた後、ピベット法と篩別により、粗砂 (2~0.2 mm ϕ)、細砂 (0.2~0.02 mm ϕ)、シルト (0.02~0.002 mm ϕ)、粘土 (<0.002 mm ϕ) に分け、おのおのの重量から粒径組成を求めた⁴⁾。
- (4) 土性: 国際土壌学会区分に従い、粒径組成から決定した。

3. 結 果

Fig. 2 に各地区の土壌についての吸着実験の結果を示す。図の縦軸は、吸着率 R と分配比 D を示す。Fig. 2 に、各土壌について放射性ヨウ素の添加後 10 日目と 46 日目の吸着率を示したが、大部分が 10 日目の時点で

Fig. 2 Percent adsorption (R) and distribution ratio (D) of radioactive iodide and iodate in soils (Tokai).

吸着されており、46 日目の結果と大きな差はない。各地点の 10 日目の吸着率を比較すると、北部地区では、 I^* -と $I^*O_3^-$ -との間の差は概して小さく、吸着率は採取地点 2 の $I^*O_3^-$ の場合を除けば、60% 以上である。一方、中部地区、南部地区では、 I^* -と $I^*O_3^-$ -との差は比較的大きく、 I^* -は採取地点 10, 11 を除けば、北部地区と同様 60% 以上であるが、 $I^*O_3^-$ は 50% 以下であり、20% 以下のものが多い。

つぎに、Table 1 に各土壌についての土質試験の結果を示す。pH は 4.8 から 8.9 の間にあり、pH 6 付近の土壌が多い。有機物含量は北部地区で採取した土壌に高く、他の地区で採取した土壌では、地点 13 を除けば、1.0% 以下である。粒径組成をみると、北部地区で採取した土壌に、シルトや粘土含量の高い砂質壤土や埴壤土が含まれており、中部地区や南部地区で採取した土壌は大部分が壤質砂土である。

4. 考 察

吸着実験から、 I^* -は採取した地点によらず、各種土壌に同程度に吸着されるが、 $I^*O_3^-$ は採取した地点によって異なり、中部地区や南部地区で採取した土壌には吸着されにくいことが分かった。一方、土質試験の結果では、北部地区と他の地区では、土壌中の有機物やシルトおよび粘土含量が異なっており、吸着実験における $I^*O_3^-$ の挙動の差に密接な関連のあることを示唆している。ところで、有機物や粘土は、その構造中に陰イオンを吸着する部位を持ち、安定ヨウ素では、有機物が大きな役割を果たすとの報告例^{5),6)}がある。そこで、分配比について、粘土含量あるいは有機物含量との関係をそれぞれ、Fig. 3 と Fig. 4 に示す。分配比のデータは、添加後 10 日目のものを使用した。Fig. 3, Fig. 4 において、 I^* -ではいずれも分配比との

Table 1 Chemical properties and soil texture of the soils in Tokai, Ibaraki Pref.

Sampling site	No.	pH (H ₂ O)	Organic matter (%)	Particle size distribution				Soil texture
				Coarse sand (%)	Fine sand (%)	Silt (%)	Clay (%)	
Northern area	1	4.8	2.8	80.3	10.8	4.4	3.5	L. S.
	2	4.8	1.6	86.9	7.8	3.5	1.3	L. S.
	3	5.5	13.8	28.5	21.2	22.3	9.9	C. L.
	4	5.5	7.6	45.5	20.1	13.9	9.9	S. L.
	5	6.3	4.5	50.8	25.7	10.8	7.0	S. L.
Central area	6	5.7	0.3	75.8	21.7	0.3	1.8	L. S.
	7	5.9	1.0	66.1	28.6	2.4	2.8	L. S.
	8	6.0	0.7	86.9	11.1	1.6	0.7	L. S.
	9	5.6	0.7	82.0	15.2	0.5	3.2	L. S.
	10	8.6	0.7	92.1	7.1	0.1	1.8	L. S.
	11	8.9	0.5	88.5	10.3	0.0	1.9	L. S.
	12	6.0	0.9	77.6	14.3	3.3	3.7	L. S.
	13	5.6	3.8	45.7	25.0	11.8	11.1	S. L.
Southern area	14	7.9	0.7	39.5	54.5	2.3	4.0	L. S.

L. S. : Loamy Sand S. L. : Sandy Loam C. L. : Clay Loam

Fig. 3 Relation between clay contents and distribution ratio.

間に相関はない。I*O₃⁻では分配比と、粘土含量あるいは有機物含量の間に正の相関がある。このため、土壤中の放射性ヨウ素がI⁻形であると、土壌の種類に無関係に吸着保持され、IO₃⁻形の場合には、有機物含量の高い土壌に吸着保持される傾向が大きいものと考えられる。

Fig. 4 Relation between organic matter contents and distribution ratio.

このように今回の実験で、放射性ヨウ素は土壌の種類、供給される化学形によって、異なる挙動をとることが実証された。

終わりに、土壌試験を行うにあたって、ご教示を賜った筑波大学応用生物学系大羽 裕教授に深く感謝

の意を表する。また、研究費の一部は、文部省科学研究費補助金ならびに科学技術庁原子力平和利用研究委託費より支出した。合わせて感謝の意を表する。

文 献

- 1) D.G. Watson: BNWL-SA-5411, BattelleNorth-west Laboratory, Richland, WA (1975)
- 2) M.E. Raja and K.L. Babcock: *Soil Sci.*, **91**, 1~5 (1961)
- 3) J. Kosaka, C. Honda, A. Iseki: *Soil Plant Food*, **5**, 77~83 (1959)
- 4) 東京大学農学部農芸化学教室:「改訂新版 実験農芸化学上巻」, pp.65~69, 朝倉書店(1974)
- 5) D.C. Whitehead: *Sci. Fd. Agric.*, **24**, 547~56 (1973)
- 6) D.C. Whitehead: *ibid.*, **25**, 73~79 (1974)

Abstract

Adsorption Behavior of Radioactive Iodide and Iodate on Soil

Riki SEKI, Toshiyuki TAKAHASHI and Nagao IKEDA

Institute of Chemistry, University of Tsukuba
1-1, Tennodai 1-chome, Sakura-mura, Niihari-gun, Ibaraki Pref. 305

The adsorption behavior of radioiodine on soils has been studied. Soils were collected in Tokai, Ibaraki Pref. and classified with soil texture and contents of organic matter.

Carrier-free radioiodine in iodide form is adsorbed on soil independent of soil properties. while radioiodine in iodate form is more readily adsorbed on soil which is abundant in organic matter.

(Received September 13, 1983)