

## 2.3 パラメータの充実

### 2.3.1 放射性物質の形態間移行

#### 2.3.1.1 汽水中における放射性物質の形態間移行

#### Transfer Rate of Radionuclides between Chemical Species in Brackish Water

高久 雄一, 野副 晋, 久松 俊一

環境動態研究部

Yuichi TAKAKU, Susumu NOZOE, and Shun'ichi HISAMATSU

*Department of Radioecology*

#### Abstract

Radionuclides deposited on the surface of water expanses such as lakes and oceans are considered to be initially in ionic forms. They are then removed from the water system as particulates after various chemical and biological reactions. This study aims at clarifying the transformation rate of ionic radionuclides to various chemical forms and the effects of environmental parameters, such as salinity and microorganism activities, etc., on this rate, by adding stable elements, Th, and U to water samples. We have already reported results for a fresh water sample. Results for a brackish water sample are reported here.

A brackish water sample was collected from Lake Obuchi in Rokkasho where a spent nuclear fuel reprocessing plant is located. We added a mixture of lanthanoids, Th and U or just inorganic iodine as ionic forms to aliquots of the sample. After standing for a predetermined period from 10 min up to 2 weeks, the particulate fraction in each aliquot was collected on a filter (pore size, 0.22  $\mu\text{m}$ ). The molecular size of organic materials binding the elements in the filtrate was analyzed with an ultra-filter with a cut-off size of 10 kDa. The target element concentrations in the particulate and filtrate fractions were analyzed by ICP-MS.

Iodine was added to the sample as  $\text{I}^-$  or  $\text{IO}_3^-$  to examine the effect of chemical form on I behavior. Several percent of the  $\text{I}^-$  changed to a particulate form ( $> 0.22 \mu\text{m}$ ) 10 min after its addition, and remained as that form during the experiment. Initially, 3% of the added  $\text{I}^-$  was in the  $>10 \text{ kDa}$  fraction, and then the percentage varied from 7 to 16% after 15 min without dependency on elapsed time. Almost all added  $\text{IO}_3^-$  was retained in the  $<10 \text{ kDa}$  fraction throughout the experimental period. Most of the added lanthanoids were in the  $<10 \text{ kDa}$  fraction. The percentage of the lanthanoid particulate fraction varied from 0 to 15% at 10 min, and decreased with elapsed time. The fraction of  $>10 \text{ kDa}$  retained 5-10% of the original amount of lanthanoids throughout the experimental period. The relative distributions of Th in particulate and  $>10 \text{ kDa}$  fractions were larger than those of the lanthanoids, and they did not change over time. Initial percentages of particulate and  $>10 \text{ kDa}$  fractions were 10% and 20%, respectively. However, the relative amount of natural lanthanoids and Th in particulate form was much larger than that in our experiment; the cause of this is unknown.

The behavior of the target elements in the brackish water sample was similar to that in the fresh water sample. However, the percentages of particulate and  $>10 \text{ kDa}$  fractions of lanthanoids and I in the brackish

water sample were smaller than those in fresh water for the same fractions. From this we inferred that dissolved salts suppressed transformation between the fractions.

Since microorganism activity is considered as one of the parameters affecting transformation of chemical form, we have begun to investigate the effect of phytoplankton on the transformation. Species composition of phytoplanktons in the fresh water lakes, Lake Ichiyanagi and Takahoko, was surveyed. Dominant species were separated and their cultivation methods were established.

## 1. 目的

湖沼及び海洋に降下した放射性核種は、イオン態、有機物に収着した形態（高分子態）等様々な化学形態変化を経て粒子態となり、最後には沈降して系から除去されると考えられる。そこで、大型再処理施設に隣接する尾駸沼及び周辺環境中の水試料（淡水、汽水、海水）に安定元素等を添加し、経時的な形態変化を求めるとともに、それに対する環境要因（有機物、プランクトン等）の影響を解明する。

平成 20 年度においては、以下に示す 2 項目について研究を実施した。

- 1) 尾駸沼汽水試料に、イオン態で I ( $I^-$ ,  $IO_3^-$ ) 又は、ランタノイド (La-Lu)、アクチノイド (Th, U) を添加し、各元素のイオン態から粒子態及び高分子態への変化を明らかにする実験を行った。
- 2) 六ヶ所村淡水湖に生息する植物性プランクトンを採取・単離し、培養法を確立した。

## 2. 方法

添加実験用の水試料には、尾駸沼の二又川河口域において 2008 年 8 月に採水した表層水を用いた。試料の pH 及び塩分はそれぞれ 8.0 と 11.0 である。採水後、試料を 10 L のポリエチレン容器に入れ、約 12 時間、5℃ の条件下で静置し、採水時に混入した木の葉や土壌粒子等の大きなごみを除去し、実験用試料とした。添加実験には、内容量 100 ml のポリエチレン容器を用い、100 ml の試料水を入れた。試料溶液中に  $I^-$  と  $IO_3^-$  を、I として 100  $\mu\text{g}$  添加し、実験溶液中の濃度を 1  $\mu\text{g g}^{-1}$  とした。また、別の試料溶液に、各ランタノイド及び Th, U を 100 ng 添加し、溶液中濃度が、1 ng  $\text{g}^{-1}$  となるようにした。なお、尾駸沼試料中のヨウ素濃度は 10 ng  $\text{g}^{-1}$ 、各ランタノイドの濃度は 1-10  $\text{pg g}^{-1}$ 、Th と U の濃度はそれぞれ、0.1  $\text{pg g}^{-1}$

及び 200  $\text{pg g}^{-1}$  である。

添加後、所定の時間（10、15、30 分、1、3、6 時間、1、2、7、15 日）毎に 3 試料を用い、それぞれ 0.22  $\mu\text{m}$  のメンブランフィルターによりろ過し、溶存態と粒子態に分離した。フィルターを通過した溶存態の一部を排除限界 10 kDa の限外ろ過フィルターを用いて限外ろ過し、<10 kDa 試料を作成した。

作成した試料中の目的元素の濃度を ICP-MS を用いて定量し、>10 kDa（以降、高分子態）中の元素濃度は、溶存態と <10 kDa の差分として計算した。

## 3. 成果の概要

### 3.1 汽水試料を用いた添加実験

Fig. 1 に  $I^-$  及び  $IO_3^-$  の存在形態割合の経時変化を示す。 $I^-$  では添加直後の粒子態の割合は約 2% であり、

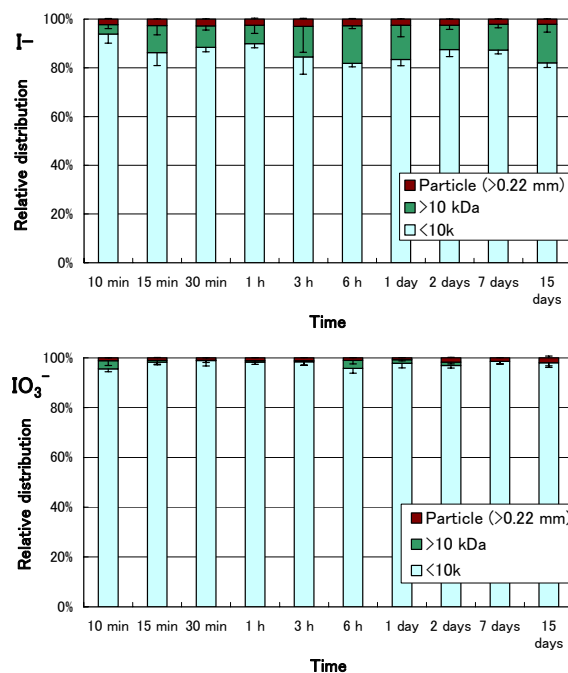


Fig. 1 Relative speciation of iodine added as  $I^-$  and  $IO_3^-$  to the brackish water sample collected from Lake Obuchi.

その後、変化しなかった。高分子態の割合は添加直後が約 3%と低かったのを除いて 7~16%の間で変化し、変化に規則性は見られなかった。一方、 $\text{IO}_3^-$ はほとんど形態変化せず、 $<10 \text{ kDa}$ のまま存在していることが判明した。今回の添加実験により、イオン態で添加されたヨウ素は添加後短い時間で粒子及び高分子体に吸着され、比較的安定に結合していた。

Fig. 2 に添加後 10 分と 15 日の全ランタノイドの存在形態割合を示す。ランタノイドは粒子態及び高分子態になる割合は少なく、約 80%以上が $<10 \text{ kDa}$ のまま存在した。添加直後に 5~10%程度が高分子態となるが、全期間を通して高分子態の存在割合には各ランタノイド間での大きな差は見られない。

La、Ce では、高分子態は認められるが、粒子態は見られなかった。Pr 以降の中及び重希土類元素では、添加直後に 10~15%程度の粒子態が見られたが、時間の経過に伴ってその割合は減少していった。Fig.3 に示すように Pr から Lu までの各ランタノイドともほぼ同じような割合で粒子態の占める割合が減少している。

一方、Th は、添加直後で約 70%が粒子態に、15%が高分子態に形態変化し、その後 2 週間でのそれぞれの形態の経時的変化はなかった。U は添加直後に、粒子態に約 10%、高分子態に約 20%が変化し、その後は、高分子態の割合に変化は見られず、粒子態の割合は減少した。

今回得られた汽水での各元素の粒子態、高分子態の割合は、昨年度の淡水の結果に比べて小さく、試料中の塩濃度が上昇することによりイオン態からの形態変化が抑制されることを示している。

### 3.2 六ヶ所村淡水湖に生息する植物性プランクトン培養法の確立

形態変化に影響を及ぼすと考えられる環境要因として、共存する生物の影響がある。そこで本年度より、元素の形態変化に対する生物学的要因を明らかとする調査を開始した。本年度は、予備試験として六ヶ所村の淡水湖沼（鷹架沼及び市柳沼）に生息する植物プランクトンの種構成を調査し、優勢種を単離した。その結果、市柳沼では、*Microcystis*

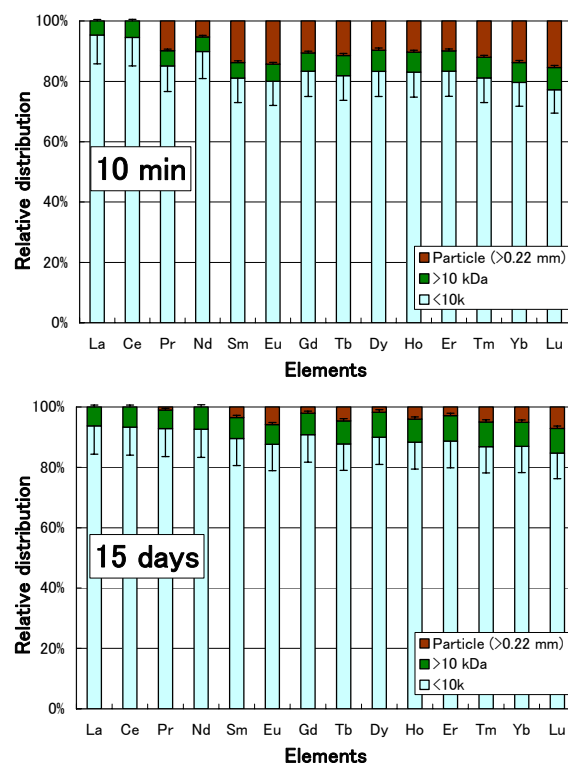


Fig. 2 Relative speciation of lanthanoids added to the brackish water sample collected from Lake Obuchi.

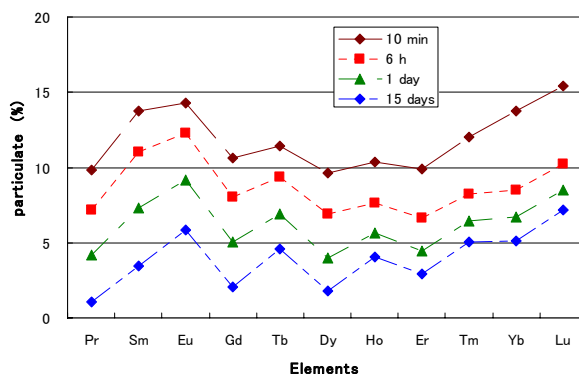


Fig. 3 Ratio of particulate lanthanoids from Pr to Lu to total concentration after addition to the brackish water sample collected from Lake Obuchi.

*aeruginosa* が最も多く、第 2 位は、*Anabaena* sp. (cf. *A. curva*) であった。市柳沼に生息する植物プランクトンに占めるこの 2 種の割合は、それぞれ 47%と 29%であり、この 2 種で 76%を占めている。一方鷹架沼では、*Skeletonema costatum* が最も多く、鷹架沼で計数した全細胞数に占める割合は、この種だけで

83%を占めた。この結果から、六ヶ所村周辺の淡水域に生息する植物プランクトンの優勢種は、*Microcystis aeruginosa*、*Anabaena* sp. (cf. *A. curva*)、及び *Skeletonema costatum* の3種であることがわかった。次に、これらの3種のプランクトンを単離し、インキュベーターを用いて培養を行った。培養に用いる培地や適切な温度については、国立環境研究所の微生物系統保存施設において示されている各植物プランクトンの種類に応じた培地の種類や温度を参考にした。その結果、*Microcystis aeruginosa* と *Anabaena* sp. の2種に対しては C2 培地、25℃、*Skeletonema costatum* には、f/2 培地、20℃の培養条件が最適であることが分かった。これら単離培養した3種の植物プランクトンを用いて、次年度以降元素の添加実験を行って行く予定である。