

1.3 パラメータの充実

1.3.1 放射性物質の形態間移行

1.3.1.1 放射性物質の海水中における形態間移行と植物性プランクトンへの移行

Transfer Rate of Radionuclides between Chemical Species in Sea Water, and Their Incorporation into Phytoplankton

高久 雄一, 中尾 淳, 久松 俊一

環境動態研究部

Yuichi TAKAKU, Atsushi NAKAO, and Shun'ichi HISAMATSU

Department of Radioecology

Abstract

Radionuclides, which are released from nuclear industry facilities and deposited on the surface of water expanses such as lakes and oceans, are considered to be initially in ionic forms, and then they are removed from the water system as particulates after various chemical and biological reactions. This study aims to clarify 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 the stable elements, Th and U to water samples. We have already reported results for fresh water and brackish water samples. Results for a seawater sample are presented here.

A seawater sample was collected from the coast at Rokkasho. An aliquot of a solution of lanthanoids and Th as ionic forms was added to the sample. After being allowed to stand for a predetermined period from 10 min up to 2 weeks, the particulate fraction in the sample was collected through a filter which had a pore size of 0.22 μm . 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 filtrates fractions were analyzed by ICP-MS. Most of the added lanthanoids were found in <10 kDa fractions. The proportion of the particulate fraction of lanthanoids was less than 1 % in all time periods. Initial proportions of Th in particulate and >10 kDa fraction were 6% and 40%, respectively. The particulate fraction then increased to 17% at 1 d after the addition, and then decreased to 6% at 14 d.

Since microorganism activity is considered as one of the parameters affecting transformation of chemical form, the effect of phytoplankton on the transformation was investigated by adding target elements in ionic forms to aliquots of the incubation medium for *Anabaena curva*, which is the predominant species of the fresh water lake Ichiyanagi. An aliquot of a solution of ionic lanthanoids, Th and U or inorganic iodine as I^- or IO_3^- was added to the medium sample. After allowing this to stand for a predetermined period from 1 to 9 d, the medium samples were separated into three fractions using the method described above. Most of the added light lanthanoids and Th were changed to a particulate fraction less than 1 d after the addition. On the other hand, almost all of the added I^- and IO_3^- was retained in the <10 kDa fraction throughout the experimental period. Although the chemical form of iodine added as IO_3^- was retained as IO_3^- in the <10 kDa fraction, the added I^- was gradually oxidized to IO_3^- , and after 9 days, this reached 15% of the amount of added I.

The same experiment will be carried out for phytoplanktons in brackish water and seawater in the next financial year. To decide species to be used for the experiment, the species composition of phytoplanktons was surveyed in the brackish lake, Obuchi, and along the seacoast at Rokkasho. Dominant species in each of these water expanses 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、高分子有機物に収着した形態等の様々な化学形態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。そこで本調査では、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）の影響の解明を目的とする。

平成 21 年度においては、以下に示す 3 項目について研究を実施した。

- 1) 六ヶ所村沿岸海水試料に、イオン態でランタノイド(La-Lu)及び Th を添加し、各元素のイオン態から高分子態及び粒子態への変化を明らかにする実験を行った。
- 2) 平成 20 年度に培養法を確立した植物性プランクトンを用いて、植物性プランクトンを含む淡水試料中におけるランタノイド、Th、U 及びヨウ素のイオン態から高分子態及び粒子態への形態変化についての調査を行った。
- 3) 尾駸沼及び海水中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

2.1 六ヶ所村沿岸海水試料を用いたランタノイド及び Th の添加実験

添加実験には、内容量 250 ml のポリエチレン容器を用い、試料量は 250 ml とした。試料溶液を秤量した後、溶液中に各元素を 250 ng 添加し、溶液中濃度が、 1 ng g^{-1} となるようにした。試料の保持時間は、1、6 時間と、1、2、7、14 日とし、各時間毎に 3 試料ずつ作成した。所定の時間経過後、直ちに、 $0.22 \mu\text{m}$ のメンブランフィルターを用いてろ過し、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、溶存態試料(溶存態)、 $<10 \text{ kDa}$ の 2 試料を作成

した。その後、キレート樹脂を用いて試料中のランタノイド及び Th を 5 倍に分離濃縮した後、ICP-MS を用いて定量した。

2.2 植物性プランクトンを含む淡水試料中へのランタノイド、Th、U 及びヨウ素の添加実験

添加培養実験には、内容量 100 mL のポリエチレン容器を用い、ろ過後オートクレーブ処理を行った市柳沼湖水に栄養塩類を加えた試料水を用いた。試料水 100 mL を秤量した後、市柳沼に生息する代表的な植物プランクトンである、*Anabaena curva* の単離株を溶液中に加え、定常期（細胞密度； $1.6 \sim 2.0 \times 10^5 \text{ cells mL}^{-1}$ ）まで培養した後にランタノイド及び Th、U をそれぞれ 100 ng 添加し、試料水中の各元素の濃度を 1 ng g^{-1} とした。ヨウ素については、 I^- または IO_3^- を、ヨウ素として 10 μg 添加し、試料水中のヨウ素濃度を 100 ng g^{-1} とした。元素添加以降の試料水の培養時間を、1、2、5、9 日とし、それぞれの時間について反復を 3 つずつ用意した。所定の時間経過後、 $0.22 \mu\text{m}$ のメンブランフィルターを用いたろ過により、溶存態とプランクトンを含む粒子態に分離し、フィルターを通過した溶存態を排除限界 10 kDa の限外ろ過フィルターを用いて限外ろ過し、 $<0.22 \mu\text{m}$ 、 $<10 \text{ kDa}$ の 2 試料を作成した。試料中の I^- と IO_3^- それぞれの濃度をイオンクロマトグラフィー (IC) -ICP-MS を用いて定量した。

2.3 植物性プランクトン単離・培養法の確立

尾駸沼（湖央）及び六ヶ所村沿岸（沖合 4 km）において 6 月に採水した表層水から、試料水中の粒子態を低速の遠心分離 (RP3000) によって濃縮する手法を用いてプランクトンを採取し、顕微鏡下で単離後、容量が 50 ml の培養フラスコに入れて培地量 25 ml で培養した。

3. 成果の概要

3.1 六ヶ所村沿岸海水試料を用いたランタノイド及び Th の添加実験

Fig.1 に示す様に、添加後 1 時間では、各ランタノ

イドとも、粒子態及び高分子態への形態変化はほとんど見られず、大部分が形態変化せず<10 kDa のまま存在した。全期間を通してランタノイドの粒子態への形態変化はほとんど見られず、全て 1%以下であった。一方、Th は添加後 1 時間でおおよそ 6%が粒子態に変化する。その後、1 日で 17%まで粒子態が増大した後、その後は、6%まで減少した。また、添加後 1 時間で約 40%が高分子態に変化した。

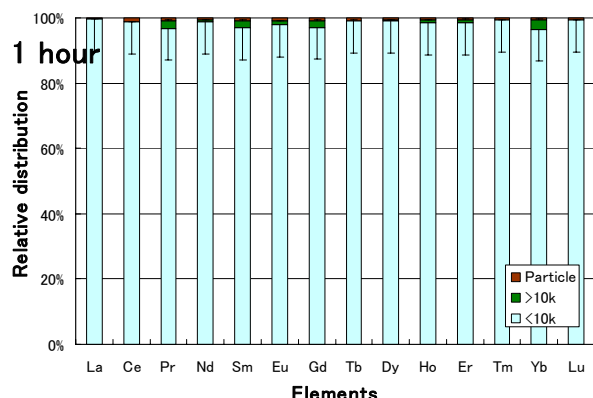


Fig. 1 Relative speciation of lanthanoids added to the sea water sample collected from the coast at Rokkasho

3.2 植物性プランクトンを含む淡水試料中へのランタノイド、Th、U 及びヨウ素の添加実験

ランタノイド及び、Th、U を市柳沼の優勢種である *Anabaena curva* の培養培地に添加した結果、Fig.2 に示すようにランタノイド、特に軽希土類元素は、非常に良く粒子態に収着することが分かった。特に、La 及び Ce の収着は顕著であり、添加後 1 日後の時点で、添加量のほぼ 90%以上が粒子態となった。しかし、ランタノイドの収着には元素依存性があり、軽希土類元素から重希土類元素に向かって収着量は減少し、Lu の収着は、9 日間で 5%以下であった。また、Th では、La、Ce と同様に、添加量の大部分が粒子態に変化する。しかし U の粒子態への形態変化は、Th に比べて小さく、5 日間でおおよそ 50%である。この値は、Eu や Gd とほぼ同じ値である。それに対してヨウ素は、I⁻ 及び IO₃⁻ 共、ほとんど粒子態にはならず、イオン態のまま存在していることが判った。また、Fig.3 に示すように添加された IO₃⁻ は、IO₃⁻ のまま存在しているが、添加された I の一部が時間の経過に伴って酸化され、9 日間で全体の約 15%が IO₃⁻ に酸化さ

れていることが判った。プランクトンが存在しない培地試料ではこの酸化は見られないことから、植物プランクトンの光合成により酸素が生成され、それによって I⁻ が酸化され IO₃⁻ に変化したものと考えられる。

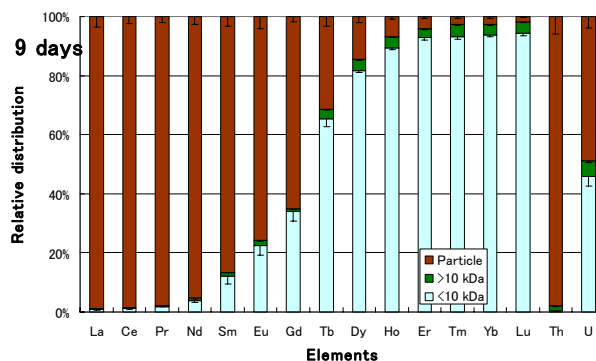


Fig. 2 Relative speciation of lanthanoids and Th, U 9 days after adding to the incubation medium of *Anabaena curva*

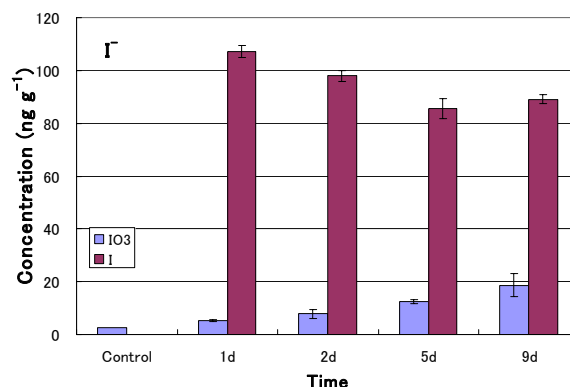


Fig. 3 Concentration of iodine and iodate in the incubation medium of *Anabaena curva* with added I⁻

3.3 植物性プランクトン単離・培養法の確立

尾駱沼の優勢種は、*Chaetoceros sp.* (cf. *C. muelleri*) であり、第 2 位は、*Prorocentrum minimum* であった。これら両者を合わせると約 94%となる。一方、沿岸海水では、いずれも珪藻網である、*Nitzschia sp.*、*Leptocylindrus danicus*、*Chaetoceros socialis*、*Chaetoceros radicans*、が優勢であり、この 4 種で約 80%を占めていた。このうち *Chaetoceros sp.*、*Nitzschia sp* を単離し培養法を確立した。