

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 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 the radionuclides 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, on the rate. The effect of phytoplankton on the transformation was investigated by adding target elements in ionic forms to f/2 culture seawater medium of a phytoplankton, *Skeletonema costatum* or *Nitzschia sp.*, which are predominant species of brackish Lake Obuchi and the Rokkasho seacoast.

An aliquot of solution containing ionic lanthanoids and Th was added to the medium sample. After standing for a predetermined period from 1 to 7d, the medium samples were separated into the particulate fraction, which was collected with a filter which had a pore size of 0.22 μ m, and the dissolved fraction. Most of the added light lanthanoids and Th were found in the particulate fraction less than 1 d after their addition.

An aliquot of ^{125}I solution in the form of I^- or IO_3^- was added to the medium sample of the phytoplanktons, and incubated for 12 d. The plankton cells sorbed ^{125}I in an amount up to about 10% of the added ^{125}I , while they did not apparently sorb ^{125}I added in the form of IO_3^- . In the medium samples of *Skeletonema costatum*, valences of both added $^{125}\text{I}^-$ and $^{125}\text{IO}_3^-$ did not change significantly. However, the concentration of $^{125}\text{I}^-$ added to the medium samples of *Nitzschia sp.* was gradually decreased, suggesting that $^{125}\text{I}^-$ was oxidized to $^{125}\text{IO}_3^-$ or bound to organic compounds, while some of the $^{125}\text{IO}_3^-$ was reduced to $^{125}\text{I}^-$ during the incubation. Since the cell numbers of the phytoplanktons varied during the experiments, the effect of the growth stage of the phytoplanktons should be examined further.

The chemical forms of iodine of both phytoplanktons incubated in the medium with 500 mg I L $^{-1}$ added in the form of I^- or IO_3^- were examined by using K-XANES in the large synchrotron radiation facility, SPring-8. The incubated phytoplankton cells were separated from the medium by filtration, and then dried by lyophilization. The iodine sorbed to both phytoplanktons grown in the media with added I^- remained as I^- with no valence change of iodine. Both I^- and IO_3^- were detected for both phytoplanktons grown in the

medium with added IO_3^- , and it showed that the added IO_3^- was reduced to I^- on/in the planktons and/or in the medium. The percentage of I^- to the total iodine of the phytoplankton cells of *Nitzschia sp.* was 61% and larger than the 28% of *Skeletonema costatum*.

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 22 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)平成 21 年度に培養法を確立した植物性プランクトンを含む、汽水・海水試料中におけるランタノイド及び Th のイオン態から粒子態への形態変化についての調査を行った。

2)平成 21 年度に培養法を確立した植物性プランクトンを含む、海水試料中におけるヨウ素のイオン態から粒子態への形態変化及び海水中の価数変化についての調査を行った。

2. 方法

2.1 植物性プランクトンを含む汽水・海水試料中へのランタノイド、及び Th の添加実験

添加培養実験には、ろ過後オートクレーブ処理を行った六ヶ所沿岸海水に栄養塩類を加えた試料水を用いた。六ヶ所村汽水湖及び沿岸海水に生息する代表的な植物プランクトンである珪藻類 (*Skeletonema costatum* 又は *Nitzschia sp.*) の単離株を試料水中に加え、定常期まで培養した後にランタノイド及び Th をそれぞれ添加した。元素添加以降の試料水を所定の時間培養後、 $0.22 \mu\text{m}$ のメンブランフィルターを用いたろ過により、溶存態 ($<0.22 \mu\text{m}$) とプランクトンを含む粒子態 ($>0.22 \mu\text{m}$) に分離し試料を作成した。

2.2 植物性プランクトンを含む海水試料でのヨウ素の形態分析

2.1 に示した条件で *Skeletonema costatum* 又は *Nitzschia sp.* を定常期まで培養し、その後 ^{125}I 又は

$^{125}\text{IO}_3^-$ を、 800 Bq mL^{-1} となるように添加した。所定の時間培養後、培地試料 2 mL を $0.45 \mu\text{m}$ フィルターユニットを用いてろ過し、溶液から植物プランクトンを含む粒子（以下、粒子態）を分離した。粒子態、ろ液及びろ過の粒子態を含む培地試料の一部を測定用試験管に分取し、ガンマカウンターで 30 分間計測し ^{125}I を定量した。更に、平成 20 年度に確立した陰イオン交換ディスクを用いた手法により、培地試料のろ液中で I の化学形態で存在する ^{125}I 量を求めた。

加えて、プランクトン中に存在する I の化学形態を調べる目的で、 I の K 殻 X 線吸収端近傍構造 (K-XANES) を用いた XANES スペクトル解析を行った。安定 I (I^- 又は IO_3^-) を、濃度が 500 mg L^{-1} となるように添加した培地 500 mL を用い、*Skeletonema costatum* および *Nitzschia sp.* を定常期に至るまで培養した。その後、ろ過、洗浄及び凍結乾燥処理を経て乾燥試料を作成し、ポリエステルフィルムに封入したものを、大型放射光施設 (SPring-8) の XAFS 専用ビームライン (BL01B1) を用いて解析した。

3. 成果の概要

ここでは、3-2 のヨウ素の結果を中心に報告する。

3.1 植物性プランクトンを含む汽水・海水試料中へのランタノイド及び Th の添加実験

Skeletonema costatum 及び *Nitzschia sp.* にランタノイド及び、Th を添加した結果、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、Ce 及び Th 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。

3.2 植物性プランクトンを含む海水試料でのヨウ素の形態分析

^{125}I (I^- 又は IO_3^-) を添加後、経時的に培地試料中の ^{125}I の形態を調べた結果、 ^{125}I 添加培養試験では、培養期間中で時間の経過とともに粒子態への収着割合が約 10% まで増加した。一方、 $^{125}\text{IO}_3^-$ 添加培養試験では ^{125}I の粒子態への収着量は、全添加量に対して 1% 以下と僅かであった。この傾向は *Skeletonema*

*costatum*を用いた試験でも、*Nitzschia* sp.を用いた試験でも同様であった (Fig. 1)。

培養期間中の培養液中の ^{125}I の化学形態の変化は *Skeletonema costatum*を用いた試験では明確には確認されなかった。一方、*Nitzschia* sp.を用いた場合、 ^{125}I 添加培養試験では、培地試料中の ^{125}I は添加直後から減少し始め、粒子態への収着量が最大となった時期 (^{125}I 添加後 7 日目) に最小値を示したが、11 日後には再びやや増加した (Fig. 1(c))。また、 $^{125}\text{IO}_3^-$ 添加培養試験では添加直後から ^{125}I の増加が認められた (Fig. 1(d))。このことから、*Nitzschia* sp.が共存する海水中ではヨウ素の化学形態変化が活発に行われることが示唆されたが、細胞数の増減との関連を精査する必要がある。

プランクトン乾燥試料を用いて得られたXANESスペクトルをFig. 2に示した。 I 添加培養で得られた両プランクトン乾燥試料のXANESスペクトルは、

0.1 MのKI溶液のXANESスペクトルと最も良く一致したため、収着した安定 I は全て I の化学形態で存在していることが分かった (Fig. 2 (a), (c))。一方、 IO_3^- 添加培地で培養した場合はKIと KIO_3 溶液のスペクトルに分解でき、KI溶液の寄与は *Skeletonema costatum*と *Nitzschia* sp.について、それぞれ 28%と 61%であった (Fig. 2 (b), (d))。 IO_3^- を添加した培地で生育したにもかかわらず、収着した安定 I の一部が I の化学形態を取っていることから、プランクトン表面あるいは培養液内で IO_3^- から I へ還元されていると考えられ、上記のFig. 1(d)で示した結果と整合する。以上のように、海水中の植物プランクトンは I を取り込み易いこと、海水中の IO_3^- を I に還元するプランクトン種があることが判明した。

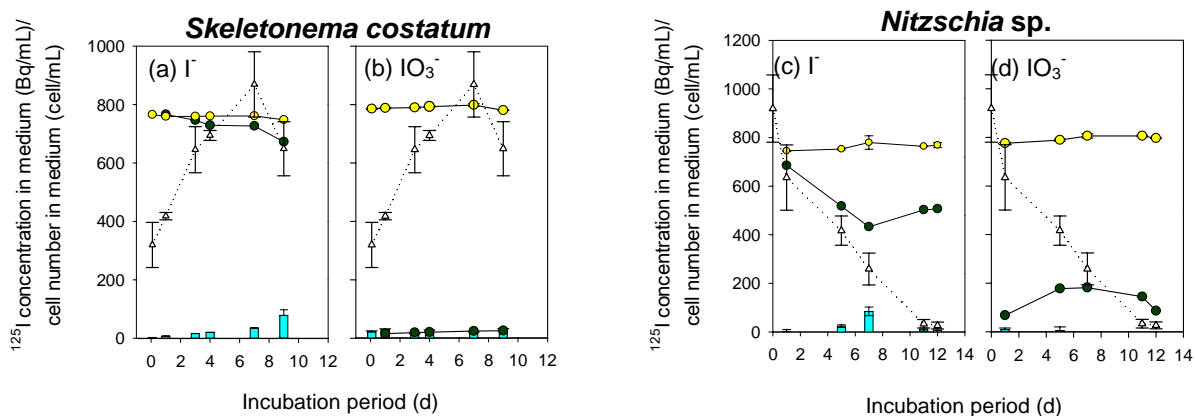


Fig. 1 Total ^{125}I (●), ^{125}I in the form of I^- (●), and ^{125}I accumulated by phytoplankton cells (■) in medium. (a) $^{125}\text{I}^-$ was added to the medium of *Skeletonema costatum*, (b) $^{125}\text{IO}_3^-$ was added to the medium of *Skeletonema costatum*, (c) $^{125}\text{I}^-$ was added to the medium of *Nitzschia sp.*, (d) $^{125}\text{IO}_3^-$ was added to the medium of *Nitzschia sp.*

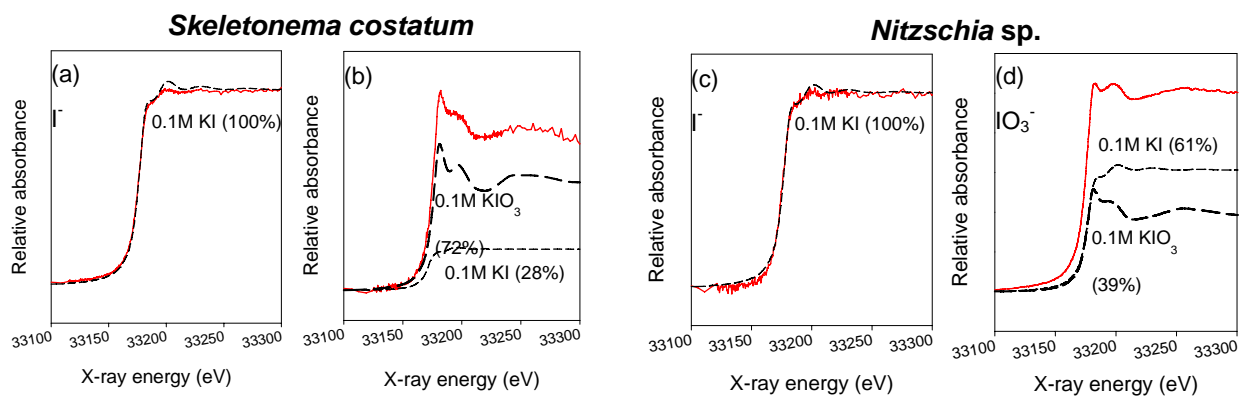


Fig. 2 K-XANES spectra of I sorbed by phytoplanktons (red solid line) in f/2 medium containing 500 mg I L^{-1} . Short-dashed lines represent the K-XANES spectra of standard I^- (0.1 M KI solution), and long-dashed lines represent those of standard IO_3^- (0.1 M KIO_3 solution). Percentages shown in the parentheses were obtained by spectrum resolving. (a) *Skeletonema costatum* grown in the medium with added I in the form of I^- . (b) *Skeletonema costatum* grown in the medium with added I in the form of IO_3^- . (c) *Nitzschia sp.* grown in the medium with I added as I^- . (d) *Nitzschia sp.* grown in the medium with I added as IO_3^- .