

2.2 水産生物におけるヨウ素の形態別濃縮係数

Concentration Coefficients of Radioiodine in Different Chemical Forms from Sea Water to Fishery Products

高橋 賢臣, 高久 雄一, 久松 俊一
環境影響研究部

Masaomi TAKAHASHI, Yuichi TAKAKU, and Shun'ichi HISAMATSU
Department of Radioecology

Abstract

Radioiodine takes various chemical forms in the environment. Ion forms of I^- and IO_3^- were found in ocean for ^{129}I discharged from the first Japanese commercial nuclear fuel reprocessing plant located in Rokkasho. Since the concentration factor of iodine from seawater to marine products strongly depends on the chemical form of iodine, it is necessary for realistic assessment of radiation dose from the discharged radioiodine via marine products to use the concentration factor of each chemical form of iodine. This study aims to establish the concentration factor of radioiodine in I^- and IO_3^- for marine products (seaweed, shellfish and benthos). In FY 2012, 1) the concentration coefficients of I^- and IO_3^- for green algae (*Ulva pertusa*) were decided using an iodine radiotracer and 2) the chemical form of stable iodine in *U. pertusa* was analyzed by using X-ray absorption fine structure (XAFS) analysis.

The concentration coefficient of I^- or IO_3^- for *U. pertusa* was measured with iodine radiotracer (^{125}I). The seaweed samples were incubated for 3 d at 15°C in the seawater with added ^{125}I as I^- or IO_3^- . The biological activity of the seaweed samples was checked by ^{13}C absorption experiment. Since the biological activity 3 d after the start of the incubation was lower than that before, we used the data for 2 d after the start. The concentration of ^{125}I in *U. pertusa* samples increased with the period of incubation in both forms. The ^{125}I concentration in *U. pertusa* samples exposed to $^{125}I^-$ was much higher than that for $^{125}IO_3^-$. The ^{125}I concentration in seawater in the incubation bottle decreased during the exposure experiment relative to the $^{125}I^-$ concentration. The concentration factor of $^{125}I^-$ for *U. pertusa* was estimated to be 140 with a one-compartment dynamic model considering decline of $^{125}I^-$ concentration in seawater, while that of IO_3^- was ~8. Those results showed that the iodine concentration coefficient of *U. pertusa* strongly depends on the chemical form of iodine.

Since XAFS analysis of chemical forms of stable iodine in the natural *U. pertusa* samples was hard to do due to the low iodine concentration, a *U. pertusa* sample was incubated in seawater with added I^- to get an iodine concentration of 5 $\mu g g^{-1}$ seawater (total iodine concentration in natural seawater is approximately 50 $ng g^{-1}$). The XAFS analysis of the incubated seaweed sample showed that iodine in the sample consisted of 34% I^- and 66% organic iodine.

1. 目的

大型再処理施設の海洋放出管から排出される放射性ヨウ素は I^- および IO_3^- の化学形態であるため、水

産物を介した現実的な被ばく線量を評価する際には、化学形態別の濃縮係数を用いる必要がある。そこで本調査では、六ヶ所村周辺で採取される海

産物（緑藻、褐藻、貝類、底生生物等）を対象に、海水から各海産物への放射性ヨウ素の濃縮係数を化学形態（I 又は IO_3^- ）別に求める。

平成 24 年度は、緑藻類（アナアオサ、*Ulva pertusa*）を対象に、化学形態別（I 又は IO_3^- ）の放射性ヨウ素（ ^{125}I ）を添加した海水を用いて濃縮係数を求めた。また、大型放射光施設 SPring-8 を用いて I 濃度を高めた海水で培養したアナアオサ中のヨウ素の化学形態を明らかにした。

2. 方法

アナアオサへの放射性ヨウ素の化学形態別（I 又は IO_3^- ）濃縮係数を求めるために、海水に放射性ヨウ素（ ^{125}I ）を I 又は IO_3^- の形で添加し、アナアオサの培養を行った。

^{125}I 又は $^{125}\text{IO}_3^-$ を添加した海水中でアナアオサを培養し、1, 3, 6, 18, 24, 30, 42, 48, 又は 72 時間後に取り出し、アナアオサ中の ^{125}I 濃度を定量した。アナアオサの培養を行う海水中の放射性ヨウ素濃度は、 ^{125}I では 160 Bq g^{-1} 、また、 $^{125}\text{IO}_3^-$ では 190 Bq g^{-1} とした。なお、アナアオサの生物活性は植物試料で広く用いられている ^{13}C 法を用いて確認した。

加えて、Spring-8 産業利用 II ビームライン BL14B2 を用いて、ヨウ素 K 吸収端（33.164 keV）の X 線吸収端近傍構造（以下 XANES）測定を行い、アナアオサ中の安定ヨウ素の存在形態を調べた。昨年度はアナアオサ中のヨウ素濃度が低いことから解析できなかったため、24 年度は I を 5 mg g^{-1} 添加した海水でアナアオサを培養することにより、アナアオサ中のヨウ素濃度を高めて XANES 測定を行った。

3. 成果の概要

3.1 水産物における放射性ヨウ素の形態別濃縮係数

^{125}I の添加実験で得られたアナアオサと海水中の ^{125}I の濃度及びアナアオサと海水に含まれる ^{125}I の合計量を Fig. 1-a に、同様に $^{125}\text{IO}_3^-$ の添加実験の結果を Fig. 1-b に示す。培養後 72 時間では、 ^{13}C の吸収量が低下し生物活性の低下が確認された。加えて試料の所々から葉緑素の脱離が認められたため、72 時間の ^{125}I 濃度は以下の解析に含めなかった。

実験結果を解析するために海水と海藻から成る 2

コンパートメントモデルを作成し、さらに実験系外への不可逆的な移行を考慮に入れ 3 つの速度定数（ k_1 ：海水からアナアオサ、 k_2 ：アナアオサから海水、 k_3 ：海水から系外）を設定した。それぞれのコンパートメント中 ^{125}I 量の変化を以下の式(1)および(2)で表し、アナアオサの重量 M は、実験期間を通じて変化しないと仮定した。

$$\frac{dC_M}{dt} = k_1 \cdot C_w - k_2 \cdot C_M \quad (1)$$

$$\frac{dC_w}{dt} = -k_1 \cdot \frac{M}{W} \cdot C_w + k_2 \cdot \frac{M}{W} \cdot C_M - k_3 \cdot C_w \quad (2)$$

C_M : アナアオサ中濃度, C_w : 海水中濃度,
 M : アナアオサ重量, W : 海水重量

特に海水中 ^{125}I 濃度の変化と ^{125}I の系外への移行が無視できる場合においては、 C_M の経時変化は(1)式を解いて以下の式(3)によって表される。

$$C_M(t) = C_w \cdot \frac{k_1}{k_2} \cdot (1 - e^{-k_2 t}) \quad (3)$$

また、 ^{125}I のアナアオサ中濃度と海水中濃度が平衡に達すると $dC_M/dt=0$ となることから(1)式により平衡時のアナアオサ中濃度/海水中濃度比は k_1/k_2 となる。

^{125}I を添加した実験では、アナアオサ中の ^{125}I 濃度の上昇に伴い、海水中濃度の減少が認められた。また、アナアオサ及び海水中の ^{125}I 総和量も減少しており、 ^{125}I が揮散しているか、壁面に吸着していることを示している。このため実験データを用いて式(1)および(2)に対して最小自乗近似を行い、各速度定数を求めたところ、 $k_1 = 1.8 \text{ E}+1$ 、 $k_2 = 1.3 \text{ E}-1$ 、 $k_3 = 2.9 \text{ E}-3$ が得られた。Fig. 1-a にモデルによるアナアオサ及び海水中の ^{125}I 濃度計算値（赤線）を示す。次に、得られたパラメータの値を用いて、平衡時の海水とアナアオサの ^{125}I 濃度比を算出した結果、アナアオサ中濃度/海水中濃度比として、 $1.4 \text{ E}+2$ が得られた。

一方、 IO_3^- の添加実験では、海水中 ^{125}I 濃度は培養開始時から培養終了時まで数%の減少が見られたが、減少率はわずかであることから、海水中の濃度変化を無視し、式(3)に対して最小自乗近似を行

い各速度定数を求めた。その結果、 $k_1=3.5E-1$ 、 $k_2=3.9E-2$ が得られ、海水とアナアオサの $^{125}\text{IO}_3^-$ 濃度係数は 9.1 と算出された。以上の計算結果から、 I^- と IO_3^- では、海水とアナアオサの ^{125}I 濃度係数におよそ 15 倍の差があることが判明した。

3.2 海藻中の安定ヨウ素の化学形態分析

NaI を添加し培養したアナアオサ試料中のヨウ素の化学形態を XANES により分析し、得られたスペクトルからヨウ素の存在形態 (I^- , IO_3^- 及び有機態ヨウ素) を解析した。Fig. 2 上段にヨウ素の標準溶液、下段に I^- を 5 mg g^{-1} 添加した海水で培養したアナア

オサの XANES スペクトルを示す。平均的な海水中の全ヨウ素濃度は、およそ 50 ng g^{-1} であることから天然のおよそ 100 倍の濃度となるように添加したこととなる。得られたアナアオサのスペクトルは、平成 23 年度に得られた天然試料のスペクトルとほぼ同様のスペクトルを示しており、 I^- と有機態ヨウ素の中間的なスペクトルであった。ピークフィッティングの結果は、 I^- : 有機態ヨウ素 = 0.34 : 0.66 となり、アナアオサ中には、 I^- と有機態ヨウ素の 2 つの形態でヨウ素が存在していることが分かった。

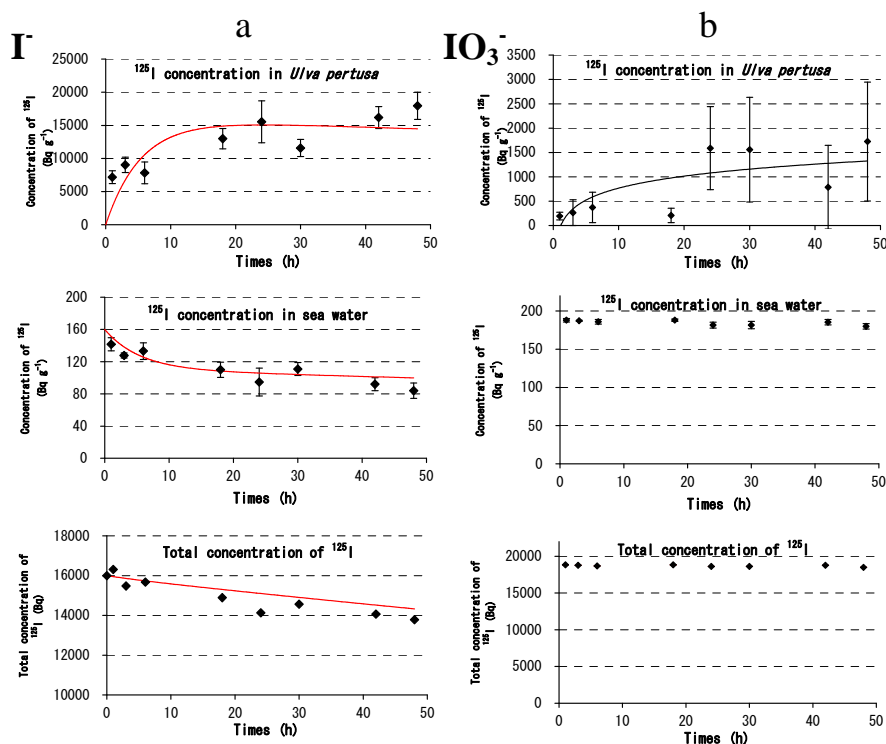


Fig. 1 Concentration of ^{125}I in *Ulva pertusa* and seawater samples, and total content of ^{125}I in seawater.

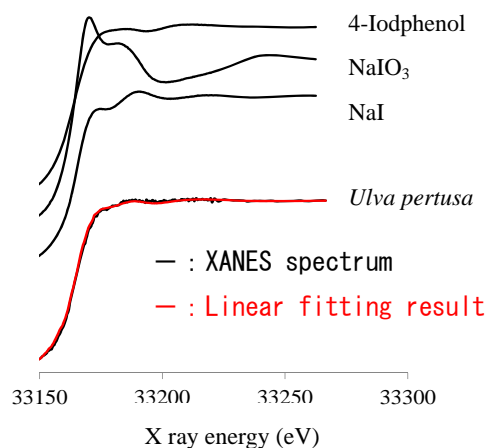


Fig. 2 XANES spectrum of *Ulva pertusa*.