

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 Seawater to Fishery Products

柴田 敏宏, 高久 雄一, 久松 俊一
環境影響研究部

Toshihiro SHIBATA, Yuichi TAKAKU, and Shun'ichi HISAMATSU
Department of Radioecology

Abstract

Radioiodine takes various chemical forms in the environment. Ion forms of both I^- and IO_3^- were found in the 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 to use the concentration factor of each chemical form of iodine for realistic assessment of radiation dose from the discharged radioiodine via marine products. This study aims to establish the concentration factor of radioiodine in I^- and IO_3^- for marine products (seaweed, shellfish and benthos). In FY 2013, the concentration coefficients of I^- and IO_3^- for brown algae (*Sargassum horneri*) were measured using an iodine radiotracer and the chemical form of stable iodine in *S. horneri* was analyzed by using X-ray absorption fine structure (XAFS) analysis.

The concentration factor of I^- or IO_3^- for *S. horneri* was measured with ^{125}I radiotracer. The seaweed samples were incubated for 7 d in the seawater with added $^{125}I^-$ or $^{125}IO_3^-$. The biological activity of the seaweed samples was checked by their ^{13}C absorption. The total ^{125}I and $^{125}I^-$ concentrations in seawater were monitored during the incubation. The difference between the total ^{125}I and $^{125}I^-$ concentrations was assumed as $^{125}IO_3^-$ concentration. Iodine-125 concentration in *S. horneri* was almost saturated after 3 d exposure. The rate constant of $^{125}I^-$ or $^{125}IO_3^-$ transfer from seawater into *S. horneri* and the transfer constant of ^{125}I from *S. horneri* into seawater were obtained by fitting experimental data to a compartment model with three compartments: ^{125}I in *S. horneri*, $^{125}I^-$ and $^{125}IO_3^-$ in seawater. Organic ^{125}I , which was possibly synthesized by the seaweed, was included in the $^{125}IO_3^-$ fraction in seawater but neglected here. However, the fitting result showed that organic ^{125}I should be considered to obtain an accurate rate constant.

The analysis of chemical forms of stable iodine in *S. horneri* samples by XAFS showed that most of the iodine in *S. horneri* was in organic iodine. A sample of *S. horneri* incubated in seawater with added I^- (iodine concentration of 2.5 mg L^{-1}), was also analyzed and no significantly different chemical form from the natural one was found.

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^- 及び 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 25 年度は、褐藻類(アカモク) を対象に、化

学形態の異なる放射性ヨウ素(^{125}I 又は $^{125}\text{IO}_3^-$)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カモク中のヨウ素の化学形態を明らかにした。

2. 方法

アカモク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 ^{125}I 又は $^{125}\text{IO}_3^-$ を添加し、アカモクの培養を行った。添加後、1、2、3、4、7 日後にアカモクの一部を採取し、アカモク中の ^{125}I 濃度の経時変化を測定した。また、アカモクの採取と同時に培養に用いている海水を採取し ^{125}I 濃度を測定した。海水中 ^{125}I を PdCl_2 により沈殿させ、 ^{125}I 濃度と I 以外の化学形態をとる ^{125}I に分離して測定した。なお、アカモク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、アカモク中の安定ヨウ素の存在形態を調べた。

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 を添加した海水でアカモクを培養し、アカモク中の ^{125}I 濃度の経時変化及び海水中 ^{125}I 濃度を測定した。アカモク中 ^{125}I 濃度の経時変化を Fig. 1 (^{125}I 添加実験結果) 及び Fig. 2 ($^{125}\text{IO}_3^-$ 添加実験結果) に示す。どちらの実験においてもアカモクへの ^{125}I の移行とともに、海水中 ^{125}I 濃度が急速に低下した。また、海水中 ^{125}I の化学形態変化が見られた。平成 24 年度に測定したアナアオサ(緑藻類)への移行と異なり、 $^{125}\text{IO}_3^-$ からアカモクへの急速な移行が認められた。

アカモクへの ^{125}I の移行は以下の(1)式によって表されると仮定し、アカモク中 ^{125}I 濃度変化を差分法により計算した。それぞれの定数は実験結果に対して計算結果をフィッティングすることにより、 ^{125}I 、

$^{125}\text{IO}_3^-$ それぞれからの取込速度定数を評価した。計算に当たり、海水中 ^{125}I は ^{125}I として存在している以外はすべて $^{125}\text{IO}_3^-$ として存在するものとした。

$$dC(t)/dt = k_1 C_{W1}(t) + k_2 C_{W2}(t) - k_3 C(t) \quad (1)$$

ただし、アカモク中 ^{125}I 濃度を $C(t)$ 、海水中 ^{125}I 濃度及び $^{125}\text{IO}_3^-$ 濃度を $C_{W1}(t)$ 、 $C_{W2}(t)$ とし、 ^{125}I 、 $^{125}\text{IO}_3^-$ の取込速度定数を k_1 、 k_2 、排出速度定数を k_3 とした。

^{125}I 及び $^{125}\text{IO}_3^-$ 添加実験結果の全ての測定値に対してフィッティングして得られた速度定数は、 $k_1=3.2\text{E}1 \text{ h}^{-1}$ 、 $k_2=5.6 \text{ h}^{-1}$ 、 $k_3=1.7\text{E}-2 \text{ h}^{-1}$ であった。しかし、 ^{125}I 添加実験及び $^{125}\text{IO}_3^-$ 添加実験各々の結果に対してフィッティングした場合には大きく異なるパラメーターが得られた。これは $^{125}\text{IO}_3^-$ として取り扱った成分が $^{125}\text{IO}_3^-$ ではなく有機態ヨウ素等、他の化学形態の成分を含むものであったことが原因として考えられ、海水中 ^{125}I の化学形態をより精密に分離して測定する必要があることを示す結果となった。

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カモク試料中のヨウ素の XANES スペクトルを測定し、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. 3 にヨウ素の標準溶液、アカモクの XANES スペクトルを示す。また、あわせて $2.5 \mu\text{g g}^{-1}$ の NaI を添加した海水で培養したアカモクの XANES スペクトルを示す。これらの結果より、アカモクに含まれるヨウ素の大部分は有機態であることがわかった。また、ヨウ素を添加した海水で培養し、ヨウ素濃度を高めたアカモクにおいても、スペクトルに顕著な差異は見られなかった。

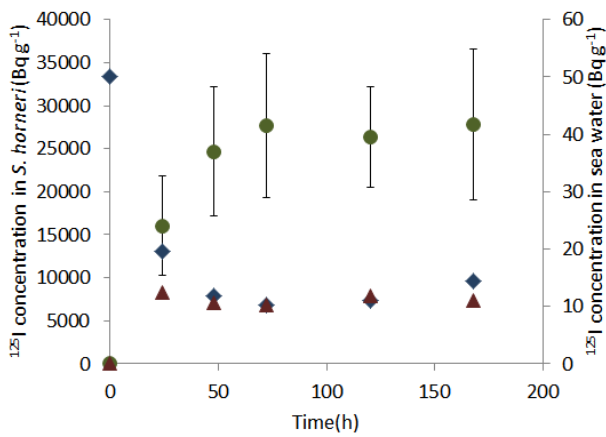


Fig. 1 Measured ^{125}I concentration in *S. horneri* and seawater after adding $^{125}\text{I}^-$ to the cultivation system. Solid circles show ^{125}I concentration in *S. horneri*, and solid squares and triangles show concentrations of $^{125}\text{I}^-$ and $^{125}\text{IO}_3^-$ in seawater, respectively.

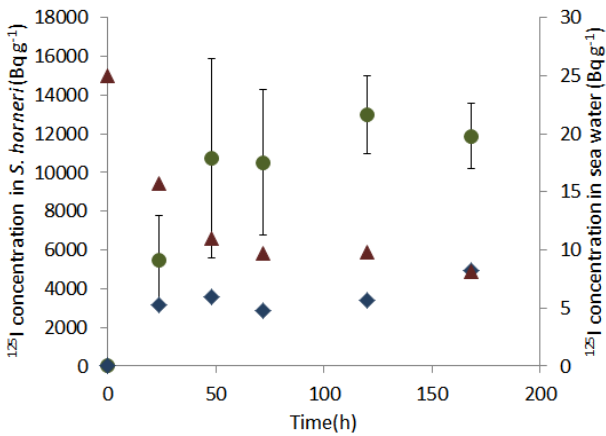


Fig. 2 Measured iodine concentrations in *S. horneri* and seawater after adding $^{125}\text{IO}_3^-$ to the cultivation system. Solid circles show radioiodine concentration in *S. horneri*, and solid squares and triangles show concentrations of $^{125}\text{I}^-$ and $^{125}\text{IO}_3^-$ in seawater, respectively.

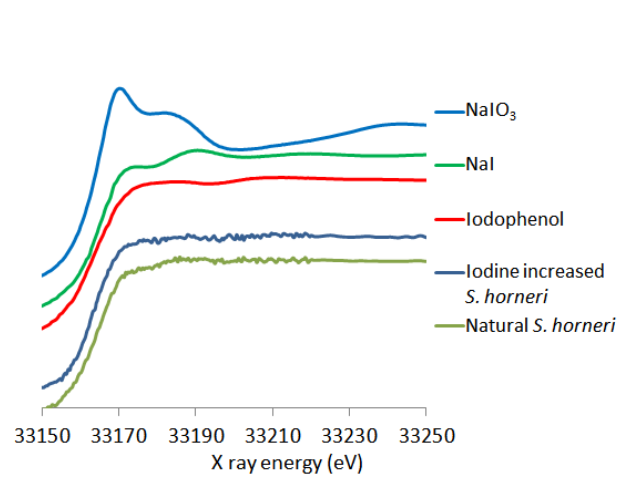


Fig. 3 Measured XAFS spectra of NaIO_3 , NaI , iodophenol, *S. horneri* incubated in seawater with elevated I^- concentration and natural *S. horneri*.