

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, 石川 義朗, 高久 雄一, 久松 俊一

環境影響研究部

Toshihiro SHIBATA, Yoshio ISHIKAWA, 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 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 2014, 1) the concentration factors of I^- and IO_3^- for shellfish (abalone, *Haliotis discus hannai*) were measured using an iodine radiotracer and 2) the chemical form of stable iodine in abalone was analyzed by using X-ray absorption fine structure (XAFS) analysis.

The abalone samples were exposed to $^{125}I^-$ or $^{125}IO_3^-$ in seawater using air-tight chambers. Exposures to ^{125}I were carried out for 24, 48 and 72 h. Three abalone samples were used for each exposure, after which each was dissected to obtain muscle and hepatopancreas tissues. The tissue samples were measured for ^{125}I concentration by using a NaI detector. The seawater in the chamber was also collected at the time of abalone sampling, and $^{125}I^-$ and $^{125}IO_3^-$ in it were separated by an anion exchange column followed by the radioactivity measurement. Concentration of ^{125}I in both kinds of tissues was monotonically increased during the expose and did not reach the equilibrium condition with that in seawater. Therefore, only the transfer rate constant of $^{125}I^-$ or $^{125}IO_3^-$ from seawater into each tissue was obtained by fitting experimental data to a compartment model, under the assumption that excretion rate constant from abalone into seawater was negligibly small. Excretion rate constant from the tissues to seawater was obtained by using the stable iodine concentration in seawater and the tissues under the assumption that the stable iodine concentration did not depend on the iodine in the food which abalone consume. The results showed that the concentration factor of ^{125}I to muscle tissue was comparable with that of $^{125}IO_3^-$. The concentration factor of ^{125}I to hepatopancreas tissue was twice that of muscle tissue, and that of $^{125}IO_3^-$ was quite small.

The analysis of chemical forms of stable iodine in hepatopancreas tissue of abalone samples by XAFS showed that most of the iodine in this tissue was in an organic iodine form similar to seaweeds which are the primary food for abalone.

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^-)別に求めることを目標としている。

平成26年度は、貝類（エゾアワビ）を対象に、 ^{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るとともに、大型放射光施設 SPring-8 を用いてエゾアワビ中腸腺中の安定ヨウ素の化学形態を明らかにした。

2. 方法

実験に用いたエゾアワビは（株）コスモ海洋牧場（愛媛県松山市）より購入した養殖個体を用いた。購入時のエゾアワビ中平均総ヨウ素濃度は、筋肉部分で $8.9 \mu\text{g g}^{-1}$ 、中腸腺で $84 \mu\text{g g}^{-1}$ であった。飼育にはむつ小川原港で採取した海水を用い、2年間飼育後に再度濃度測定を行った結果エゾアワビ中総ヨウ素濃度には大きな変動は見られなかった。以下の実験には2年間飼育した個体を用いた。また、実験前及び実験に用いたむつ小川原港の海水中的の総ヨウ素濃度は年間を通して約 50 ng-I g^{-1} とほぼ一定であったが、I、 IO_3^- の濃度比は1:2.6~3.7の範囲内で変動していた。

海水に ^{125}I 又は $^{125}\text{IO}_3^-$ を添加し、エゾアワビの飼育を行った。 ^{125}I を添加した海水中で3個体のエゾアワビの飼育を開始した。1、2日後にエゾアワビ3個体を順次追加し、3日後に全ての個体を回収、解剖し、エゾアワビ筋肉中及び中腸腺中の ^{125}I 濃度の経時変化を測定した。また、飼育に用いている海水を定期的に採取し、海水中 ^{125}I を陰イオン交換カラムにより ^{125}I と $^{125}\text{IO}_3^-$ に分離して、それぞれの濃度を測定した。

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 線吸収微細構造（以下 XAFS）解析を行い、エゾアワビ中腸腺中の安定ヨウ素の存在形態を調べた。

3. 成果の概要

3.1 エゾアワビの放射性ヨウ素形態別濃縮係数

Fig. 1 に ^{125}I にばく露したエゾアワビの筋肉及び中腸腺中 ^{125}I 濃度を、Fig. 2 に $^{125}\text{IO}_3^-$ にばく露した結果を示した。図にはそれぞれの飼育海水中的の ^{125}I 及び $^{125}\text{IO}_3^-$ 濃度もプロットしてある。どちらの実験においてもエゾアワビ中 ^{125}I 濃度はばく露時間に対して単調に増加した。

エゾアワビの筋肉及び中腸腺中のヨウ素を、海水中ヨウ素と直接交換する1コンパートメントでそれぞれ表し、相互のヨウ素移行がないとすると、それぞれの ^{125}I 濃度は次の式で記述できる。

$$dC_m(t)/dt = k_{1m}C_{w1}(t) + k_{2m}C_{w2}(t) - k_m C_m(t) \quad (1)$$

$$dC_h(t)/dt = k_{1h}C_{w1}(t) + k_{2h}C_{w2}(t) - k_h C_h(t) \quad (2)$$

ここで、 $C_m(t)$ 、 $C_h(t)$ は、それぞれエゾアワビ筋肉中 ^{125}I 濃度、中腸腺中 ^{125}I 濃度であり、 $C_{w1}(t)$ 、 $C_{w2}(t)$ は海水中 ^{125}I 濃度及び $^{125}\text{IO}_3^-$ 濃度である。エゾアワビ筋肉への ^{125}I 、 $^{125}\text{IO}_3^-$ の取込速度定数を k_{1m} 、 k_{2m} 、中腸腺への ^{125}I 、 $^{125}\text{IO}_3^-$ の取込速度定数を k_{1h} 、 k_{2h} 、筋肉、中腸腺それぞれからの排泄速度定数を k_m 、 k_h とした。

実験では、エゾアワビ中 ^{125}I 濃度が飽和する傾向が認められなかったことから、取り込み速度定数 (k_{1m} 、 k_{2m} 、 k_{1h} 、 k_{2h}) に比べ排泄速度定数 (k_m 、 k_h) は極めて小さいと見込まれたため、 $k_m = k_h = 0$ と仮定して、まず取り込み速度定数を求めた。その結果、 $k_{1m} = 1. \text{E} - 1 \text{ h}^{-1}$ 、 $k_{2m} = 1. \text{E} - 1 \text{ h}^{-1}$ 、 $k_{1h} = 2. \text{E} - 1 \text{ h}^{-1}$ が得られ、 k_{2h} は $0. \text{h}^{-1}$ となった。

次に、安定ヨウ素の測定データを用い、エゾアワビ中ヨウ素濃度は摂取している餌に依存しないと仮定して、以下のように k_m 、 k_h を推定した。即ち、実験に用いたエゾアワビ中のヨウ素濃度実測値を基に、エゾアワビ筋肉中及び中腸腺中総ヨウ素濃度をそれぞれ $10 \mu\text{g-I g}^{-1}$ と $100 \mu\text{g-I g}^{-1}$ と仮定し、更に、海水中 I、 IO_3^- の濃度比を 1:3、総ヨウ素濃度を 50 ng-I g^{-1} と仮定した。ここで、海水中 I と IO_3^- の比放射能が等しいとした上で、上記の取り込み速度定数でエゾアワビの組織にヨウ素が移行し、平衡時の筋肉及び中腸腺中ヨウ素の比放射能が海水と等しくなるように k_m 、 k_h を求めた。その結果、 $k_m = 6. \text{E} - 5 \text{ h}^{-1}$ 、 $k_h = 5. \text{E} - 4$

h^{-1} となり、海水中 $^{125}\text{I}^-$ と $^{125}\text{IO}_3^-$ から筋肉への濃縮係数は $2.E3$ 、 $^{125}\text{IO}_3^-$ からの濃縮係数は $2.E3$ 、海水中 $^{125}\text{I}^-$ から中腸腺への濃縮係数は $4.E3$ となり、 $^{125}\text{IO}_3^-$ からの濃縮係数は 0 と計算された。

3.2 海藻中の安定ヨウ素の化学形態分析

エゾアワビ中腸腺中のヨウ素の XAFS スペクトル

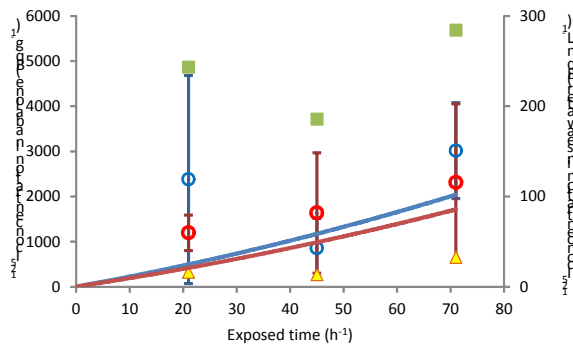


Fig. 1 Measured $^{125}\text{I}^-$ concentration in abalone and seawater during $^{125}\text{I}^-$ exposure. Open blue circles and open red circles show $^{125}\text{I}^-$ concentrations in abalone muscle and hepatopancreas, respectively. Solid blue and red lines show estimated concentrations in muscle and hepatopancreas, respectively. Green solid squares and yellow solid triangles show concentrations of $^{125}\text{I}^-$ and $^{125}\text{IO}_3^-$ in seawater, respectively.

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、エゾアワビ中腸腺の XAFS スペクトルを示す。エゾアワビ中腸腺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。これは 2013 年度調査で得られたエゾアワビの食藻ともなるアカモクと同様の結果であった。

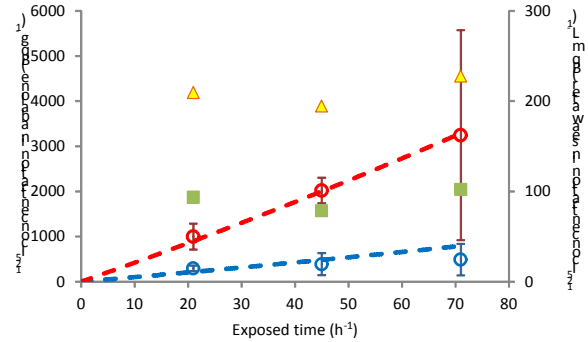


Fig. 2 Measured $^{125}\text{I}^-$ concentration in abalone and seawater during $^{125}\text{IO}_3^-$ exposure. Open blue circles and open red circles show $^{125}\text{I}^-$ concentrations in abalone muscle and hepatopancreas, respectively. Dashed blue and red lines show estimated concentrations in muscle and hepatopancreas, respectively. Green solid squares and yellow solid triangles show concentrations of $^{125}\text{I}^-$ and $^{125}\text{IO}_3^-$ in seawater, respectively.

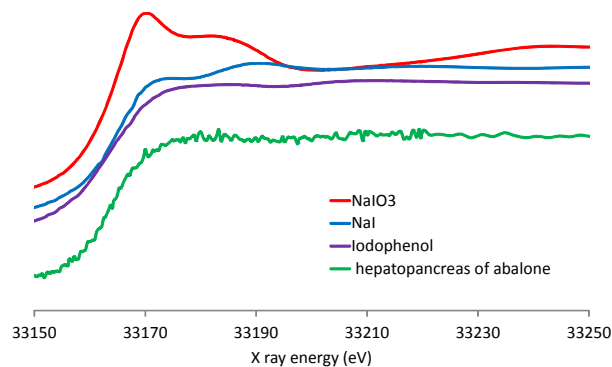


Fig. 3 Measured XAFS spectrums of NaIO_3 , NaI , iodophenol, and hepatopancreas of abalone.