# 3.2 海洋排出トリチウムの移行パラメータに関する調査研究

Transfer Parameters of Tritium from Seawater to Marine Organisms

石川 義朗, 柴田 敏宏, 多胡 靖宏, 久松 俊一 環境影響研究部

Yoshio ISHIKAWA, Toshihiro SHIBATA, Yasuhiro TAKO, Shun'ichi HISAMATSU Department of Radioecology

#### Abstract

The operation of the commercial spent nuclear fuel reprocessing plant in Rokkasho is accompanied by the discharge of a certain amount of tritium into the Pacific Ocean. Although most of the tritium discharged is diffused and spread widely throughout the ocean, some part will be transferred into marine organisms living close to shore areas. Tritium in organisms is composed of two chemical forms: one is free water tritium (FWT) and the other is organically bound tritium (OBT) fixed by the organism metabolic activity. In order to assess realistically the impact of tritium discharged into seawater to the public, it is important to understand the processes of transfer and accumulation of tritium from seawater to marine organisms, especially OBT in them. In this research, the transfer rates of tritium in seawater to OBT in several marine organisms are obtained. The OBT transfer through the food chain is also included in the scope of this study. In FY 2013, we investigated the biosynthesis and metabolism of non-exchangeable OBD (NxOBD) in olive flounder (*Paralichthys olivaceus* Temminck and Schlegel). In addition, the deuterium transfer model in a system consisting of seawater, a seaweed species (*Ulva. pertusa*) and an abalone species (*Haliotis discus hannai* Ino) was constructed based on experimental data, which were obtained through FY 2012.

The stable isotope of hydrogen, deuterium (D), was used as a substitute for tritium in the following two experiments. In the first experiment, olive flounders (1 y old) were kept in seawater containing HDO with 2.0 mmol D mol<sup>-1</sup> H up to 200 d, and NxOBD concentrations in their muscle and viscera were measured at the predetermined period after starting the exposure. The concentration factor from HDO in seawater to OBD in muscle was obtained as 0.22 after 200 d exposure. In the second experiment, fry of olive flounder (20-28 weeks old) were fed on a mixture feed of freeze-dry powder of polychaete (*Perinereis aibuhitensis* Grube) kept in seawater with HDO and a commercial feed. The exchangeable D in the polychaete powder was removed by repeating freeze-drying after soaking the dry powder in water. The final mixture feed contained NxOBD of 1.11 × 10<sup>-3</sup> mol D mol<sup>-1</sup> H. The flounders were given the pre-weighted mixture feed once a day, and dissected at the pre-determined period. The NxOBD concentrations in the muscle and viscera were increased depending on the weight of labeled feed given.

The deuterium transfer model of the seaweed, which was used as feed to the abalone, had a single NxOBD compartment with assumption of equivalent D between FWD in the seaweed and seawater. The deuterium transfer model of the abalone consisted of hepatopancreas and muscle NxOBD compartments those were constructed by using our metabolism data of D. In the deuterium transfer model of the abalone, NxOBD in feed was directly transferred into both NxOBD compartments, while a part of NxOBD in feed was promptly decomposed to FWD. The FWD in abalone was assumed to be in equilibrium with seawater.

Parameters in the models were obtained by a least square fitting method using experimental data. The two models were connected to simulate tritium transfer in the seawater-seaweed-abalone system. Test simulations successfully described the dynamic transfer of tritium in this system.

### 1. 目的

大型再処理施設の稼動に伴い、六ヶ所村沿岸から沖合約3kmの水深約44mの海底に設置された海洋放出口から水素の放射性同位体であるトリチウム(T)が海水中に排出され、一部が海産生物の体内に移行・蓄積する事が考えられる。本調査では、海水中及び餌中のTから海産生物体内の有機結合型トリチウム(OBT)への移行・蓄積過程を明らかにする事を目的にしており、ヒラメを対象にDを用いて移行実験を行った。また、これまでに行われたアナアオサ及びエゾアワビへのHDOばく露実験や有機結合型重水素(OBD)排泄実験、エゾアワビに対するOBD 餌料投与実験の結果から、各生物を対象とした水素の移行モデルを構築した。さらに、両モデルを統合し、海水-アナアオサ-エゾアワビからなる系のトリチウム移行モデルを作成した。

## 2. 方法

海水-海産生物間におけるトリチウムの移行・蓄 積に関する実験は、水素の安定同位体である重水素 (D) を用いて行った。重水添加海水中で飼育した ヒラメ生体内のOBDの生成に関する実験(OBD生成 実験)では、孔径1 μmの円筒ろ紙を用いてろ過した 海水に重水を添加し、D濃度を2000 µmol D mol-1 H に調整した海水を用いて、水温を15°Cに制御した水 槽で実験を行った。OBD含有餌料の摂食によるヒラ メ生体内へのOBDの移行に関する実験(OBD投与実 験)では、重水を添加した海水で一月間イソメを飼 育し、ヒラメ用餌料を作成した。ヒラメ当歳魚を個 体別にカセット式水槽に入れ、HDO無添加のろ過海 水で満たし、予め重量を計ったOBD含有餌料を与え た。実験時の水温は15℃である。実験に用いたヒラ メは筋肉と内臓に分けて分析し、非交換型OBT (NxOBD) 濃度を測定した。

海水-アナアオサ-エゾアワビからなる系のトリチウム移行モデルを作成するため、まず、海水からア

ナアオサへOBDへの重水素移行を記述する1コンパ ートメントモデルを作成し、パラメータを決定した。 エゾアワビでは、HDOばく露実験、OBD排泄実験及 びOBD摂食実験の結果を基に、エゾアワビ筋肉中 OBD、エゾアワビ中腸腺中OBDの2コンパートメン トモデルとして解析し、パラメータを決定した。Fig. 1にモデルの概略図を示す。いずれの場合も体内の FWDは海水と平衡にあると仮定した。アナアオサと エゾアワビのモデルを統合し、海水からエゾアワビ に至る水素移行モデルを構築した。試計算として、1  $MBq I^{-1}$ のトリチウム濃度の海水中に1日間ばく露さ れた場合(短期ばく露)、及び25 kBq l<sup>-1</sup>のトリチウ ム濃度の海水中に40日間ばく露された場合(長期ば く露) のアナアオサとエゾアワビのトリチウム濃度 を推定した。これは、同量のトリチウムを放出期間 を変えて放出したことに相当する。

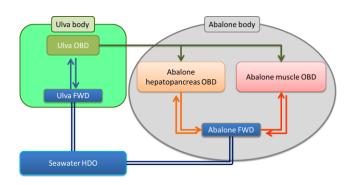


Fig. 1 Outline of deuterium transfer model in the seawater-seaweed-abalone system. FWD in seaweed (ulva) and abalone were assumed to be in equilibrium with seawater.

#### 3. 成果の概要

Fig. 2 にヒラメ筋肉中の NxOBD 濃度の時間変化を示す。ヒラメ筋肉中の NxOBD 濃度は実験開始時から 200 日目まで増加傾向を示し、内臓についても同様の増加傾向であった。摂食実験の結果では、摂食量が多い程、生体内の筋肉と内臓の NxOBD の蓄

積量は増加した。

アナアオサの重水素移行モデルにより計算されたアナアオサ中 NxOBD 濃度と実験結果はよく一致した。また、海水中 HDO からエゾアワビ中 NxOBDへの移行モデルによる計算値は実測値とよく一致した。さらに、アナアオサを投与した場合のエゾアワビ筋肉中 NxOBD 濃度の計算値は概ね一致していたが、中腸腺中 NxOBD の計算値は過大評価の傾向がみられた。今後、モデル構造及びパラメータを検討する必要がある。

 $1 \text{ Bq } \text{L}^{-1}$ のトリチウム濃度の海水中に 1 日間ばく 露された場合(短期ばく露)、及び  $25 \text{ mBq } \text{L}^{-1}$ のトリチウム濃度の海水中に 40 日間ばく露された場合(長期ばく露)の放出開始後 3 カ月間におけるエゾアワ

ビ筋肉とアナアオサ中NxOBT濃度の計算結果をFig. 3 に示す。両ばく露でのエゾアワビ筋肉中最大NxOBT濃度の差は 20%以内であり、それぞれの計算において設定した海水中トリチウム濃度が 40 倍の差があることと比較して差が小さかった。また、短期ばく露時を設定した場合においても、15 日程度にわたってエゾアワビ中NxOBT濃度が上昇する可能性が示された。この結果は相対的にトリチウム吸収の速い藻類に一時的にトリチウムが蓄えられ、そこから徐々にエゾアワビへ移行することを示している。また、同量のトリチウムが放出されると仮定した場合に、エゾアワビ中トリチウム最大濃度は放出期間によらず同様の値を取り得ることも示した。

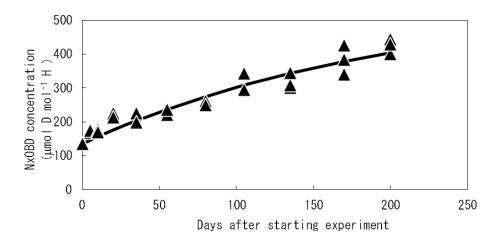


Fig. 2 Accumulation of NxOBD in muscle of olive flounder (*Paralichthys olivaceus* Temminck and Schlegel) kept in seawater containing HDO with 2.0 mmol D mol<sup>-1</sup> H.

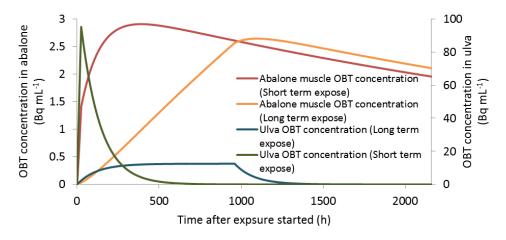


Fig. 3 Estimated OBT concentration in seaweed (*Ulva. pertusa*) and abalone (*Haliotis discus hannai* Ino). Tritium concentration in seawater was set to 1 kBq mL<sup>-1</sup> for 24 h (short term expose) or 2.5 Bq mL<sup>-1</sup> for 40 d (long term expose).