

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. We have used the stable isotope of hydrogen, deuterium (D), as a substitute for tritium in our experiments.

In FY 2013, we investigated the biosynthesis and metabolism of non-exchangeable organically bound deuterium (NxOBD) in olive flounder (*Paralichthys olivaceus* Temminck and Schlegel) before 1 y old. As the first experiment in FY 2014, olive flounder (1 y old) were kept in seawater containing HDO with $2.0 \text{ mmol D mol}^{-1} \text{ H}$ up to 530 d after starting the exposure, and NxOBD concentrations in their muscle and viscera were measured at the predetermined period. In the second experiment, olive flounder (2 y old) were fed on a mixture of a commercial feed and a freeze-dry powder of D-labeled rockfish (*Sebastes vulpes* Doderlein), which was prepared by keeping in seawater with HDO. The exchangeable D in the rockfish powder was removed by repeating freeze-drying after soaking the dry powder in water. The final mixture feed contained NxOBD of $1.75 \times 10^{-3} \text{ mol D mol}^{-1} \text{ H}$. The flounder were given the pre-weighted mixture feed once a day, and dissected at the pre-determined period. The NxOBD concentration in the muscle increased depending on the weight of labeled feed given. In the third experiment, after olive flounder were kept in seawater containing HDO with $2.0 \text{ mmol D mol}^{-1} \text{ H}$, they were cultivated for 210 d in seawater with the background HDO to observe the excretion rate of deuterium. During the cultivation, the NxOBD concentration in their muscle was periodically analyzed.

A compartment model for metabolism of NxOBD in olive flounder was constructed by using results from those three experiments. In the model, olive flounder consisted of a muscle NxOBD compartment and a free water deuterium (FWD) compartment which was assumed to be in equilibrium with seawater. The rate constants of D transfer between each compartment were obtained by a least square fitting method using all experimental data. The observed NxOBD concentrations were fairly well described by the model calculation.

1. 目的

大型再処理施設の稼動に伴い、海洋放出口から水素の放射性同位体であるトリチウムが海水中に排出される。本調査では、海水中及び餌料中のトリチウム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とし、ヒラメ (*Paralichthys olivaceus* (Temminck et Schlegel)) を対象に重水を添加した海水からの移行及び排泄並びに重水素標識した餌料の投与を行い、トリチウム移行モデルを作成することを目標としている。平成25年度にはヒラメの当歳魚を対象に海水からの移行及び重水素標識した餌料の投与の実験を行っており、平成26年度も継続してデータを取得した。平成26年度には、更に、ヒラメの1歳魚を用いて、あらかじめ重水素標識したヒラメからの重水素排泄データを得るとともに、2歳魚による重水素標識した餌料からの移行実験を行い、それらの結果を基にトリチウム移行モデルを構築した。

2. 方法

平成25年度から、ヒラメを重水添加海水中で飼育しており(HDOばく露実験)、平成26年度も飼育を継続して、1歳魚となったヒラメ生体内のOBDの生成を測定した。即ち、孔径1 μm の円筒ろ紙でろ過した海水に重水を添加してD濃度を $2.0 \text{ mmol D mol}^{-1} \text{ H}$ に調整した海水を用い、水温 15°C で、個体識別したヒラメを飼育し、経時的に採取して筋肉の非交換型OBD(NxOBD)濃度を測定した。また、ヒラメ生体からの重水素排泄速度を求めるため、 $2.0 \text{ mmol D mol}^{-1} \text{ H}$ に調整した海水中で3~5ヶ月間1歳魚のヒラメを飼育した後、体内D濃度を求めるために硬骨組織を含まない尾びれの末端部分を切り取った。更に、個体識別のため番号を記載した標識を打ち込み、重水

無添加の水温 15°C の水槽で飼育し、経時的に採取して筋肉のNxOBD濃度を測定した(OBD排泄実験)。

OBD含有餌料の摂食によるヒラメ生体内へのOBDの移行を明らかにするため、重水を添加した海水でキツネメバル (*Sebastes vulpes* Doderlein) を飼育し、市販餌料と混合してヒラメ用NxOBD餌料を作成した。このNxOBD餌料を予め重量を計測して2歳魚のヒラメに投与した(NxOBD餌料投与実験)。

3. 成果の概要

Fig. 1 にばく露実験における筋肉中 NxOBD 濃度の結果を、平成25年度に報告したばく露開始後200日目までのデータとともに示した。なお、本報告でのD濃度は全てバックグラウンドを差し引いた値で示してある。Fig. 2 に排泄実験の結果を示し、Fig. 3 には、OBD 餌料投与実験の結果を、平成25年度に報告した当歳魚のデータとともに示した。得られたデータを基に、ヒラメの筋肉への重水素移行モデルを作成した(Fig. 4)。この時、海水中のHDOと組織中の自由水Dの交換は十分に速く、これらの重水素濃度は同一とみなせるものとし、組織中自由水Dの一部が直接筋肉NxOBDとして取り込まれるものとした。また、摂取した餌料中NxOBDは一定の割合で直接筋肉に分配されると仮定した。

モデル中の各係数は最小二乗法によって求め、その値をFig. 4に示した。排泄実験においては、重水無添加に移動させた時点でのNxOBD濃度を尾びれのNxOBD濃度から推定し、実験中のNxOBD濃度計算に用いた。モデルに基づく計算値は、HDOばく露実験に対してよく一致したが(Fig. 1)、排泄実験の実測値では一部が過小評価となった(Fig. 2)。OBD 餌料投与実験の結果では、モデル計算値が実測値の約15%高い値となった(Fig. 3)。

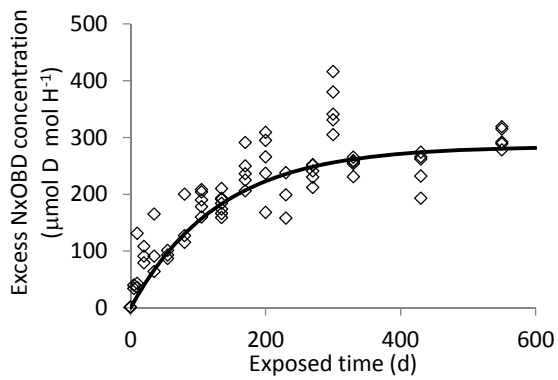


Fig. 1 Time dependent NxOBD concentration in the muscle of olive flounder (*Paralichthys olivaceus* Temminck et Schlegel) during HDO exposure. Open diamonds show measured values and the solid line shows estimated values by the metabolism model. HDO concentration was kept to 0.2 % (mol D mol H⁻¹) during the experiment. Background NxOBD concentration was subtracted.

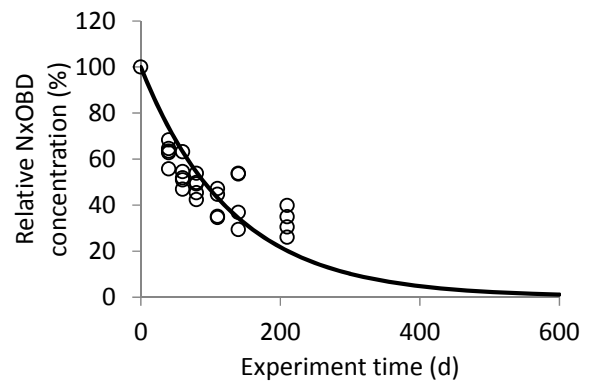


Fig. 2 Time dependent NxOBD concentration in the muscle of olive flounder kept in seawater with the background HDO after HDO exposure for 150 d. Open circles show measured values and the solid line shows estimated values by the metabolism model. Horizontal axis is time after transferring olive flounders into seawater without spiking HDO. Vertical axis is NxOBD concentration relative to that at the transfer date. Background NxOBD concentration was subtracted.

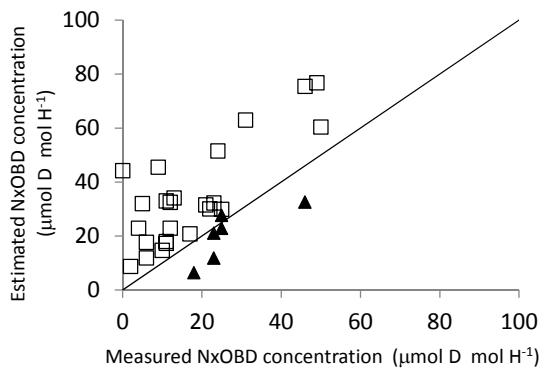


Fig. 3 Comparison between measured NxOBD concentration and that estimated by the metabolism model. Open squares and solid triangles show results of 1 y and 2 y old olive flounder, respectively. Background NxOBD concentration was subtracted.

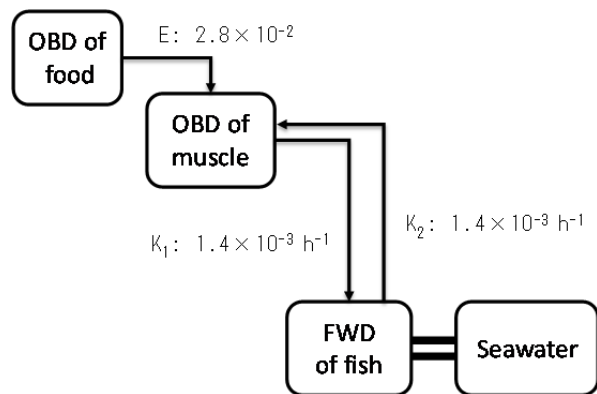


Fig. 4 Scheme of deuterium metabolism model in olive flounder.