

## 魚類のトリチウム移行に関する実験的研究

石川義朗\*§

## 1. はじめに

公益財団法人環境科学技術研究所は、原子燃料サイクル事業の一環として、青森県六ヶ所村への大型再処理施設の建設に際して、立地地域及び青森県民の安全・安心が得られるよう、関連する研究所の設置が要望され、平成2年、六ヶ所村に設置された。

大型再処理施設の稼働により、大気・海洋中に放射性物質が管理放出される (JNFL, 2022)。海洋には、六ヶ所村の沿岸から沖合3 km, 水深44 mにある放出口より、 $^3\text{H}$  (Tritium, トリチウム: T) が管理目標値 $9.7 \times 10^{15}$  Bq/年で放出が想定される。放出されたトリチウムは、大部分は海流による移流・拡散により希釈されると考えられるが、一部は海洋に生息している生物に取り込まれると推定される。

生物の体内では、海水中のトリチウムが、直接体内の水と入れ替わる自由水型トリチウム (Free Water Tritium : FWT) と、代謝活動により生体内の有機物と結合した有機結合型トリチウム (Organically Bound Tritium : OBT) の2種類が存在すると考えられている。そこで、食用となる魚類を対象に、FWTとOBTの移行に関して飼育実験を実施した。なお、実験ではトリチウムに代わり同じ水素の安定同位体である重水素 (Deuterium : D) を用いた。

## 2. 方法

実験対象の魚類には、カレイ目ヒラメ科ヒラメ (*Paralichthys olivaceus*) を選択した。選択理由としては、第一に、ヒラメは日本沿岸に生息し、定住性が高いと考えられるため、長期にわたってトリチウムにばく露される可能性があること。第二に、青森県のヒラメ漁獲量は令和3年度の統計では760万tであり、北海道の802万tに次いで全国第二位であるとともに、年間100万尾以上の種苗放流事業を実施しており、県内で重要な魚種とされていことによる。

## 1) ヒラメへのFree Water Deuterium (FWD) 移行実験

海水から海産生物体内への $\text{D}_2\text{O}$ の移行に及ぼす影響について、飼育実験により検討した。ばく露実験では、 $\text{D}_2\text{O}$ 試薬を添加して $\text{D}_2\text{O}$ 濃度を $2,000 \mu\text{mol D mol}^{-1} \text{H}$ にした海水入りの約300L容量の水槽にヒラメを投入し、時間経過に従って3個体ずつ採取した。その後、残りの個体を同水温の重水を添加していない海水の水槽に移し、排泄実験を行った。採取したヒラメ体表面の水分を吸水性の高い紙を使用して丁寧に除去した。続いて、ヒラメを解剖し、筋肉部のみを分析試料とした。分析試料に付着した血液、体液等は、吸水性の高い紙を使用して丁寧に除去し、直ちに完全密封が可能なポリ袋 (ナイロンとPEの二重フィルム) に入れて完全密封した。電子レンジ (Sharp株式会社 RE-S160-W) を使用して、150~180秒間 (200W) 加熱し、完全密封した分析試料内の水分をポリ袋内に蒸発させた。蒸発水は室温で冷却することにより液化し、バイアルビンに保存して $\text{D}_2\text{O}$ 分析試料とした。

水温の影響に関する飼育実験では、ヒラメを約7日間かけて緩やかに水温を変化させることによりそれぞれの水温 (5, 10, 15及び $20^\circ\text{C}$ ) に馴致させた後、各水温での飼育・採取を行い、解剖して筋肉部を分析試料とした。採取した筋肉中の $\text{D}_2\text{O}$ 濃度は、ガスクロマトグラフィ (Agilent社製 GC-6890) を用いて測定した。触媒反応カラムはHOKKO PAC, 検出器は熱伝導度検出器 (TCD), キャリアガスは水素, プレカラムにPorapak-Qをそれぞれ使用した。分析時の触媒反応カラムの温度は $120^\circ\text{C}$ , 検出器温度は $200^\circ\text{C}$ にそれぞれ設定した。

## 2) ヒラメへのOrganically Bound Deuterium (OBD) 移行実験

海水から海産生物体内でのOBDの生成及び排泄に及ぼす影響について飼育実験により検討した。ばく露実験では、 $\text{D}_2\text{O}$ 試薬を添加して $\text{D}_2\text{O}$ 濃度を $2,000 \mu\text{mol D mol}^{-1} \text{H}$ に調整した海水入りの約400L容量の水槽にヒラメを投入し、時間経過に従って3個体ずつ採取した。水温は $15^\circ\text{C}$ , 塩分

\* 公益財団法人環境科学技術研究所 環境影響研究部 (〒039-3212 青森県上北郡六ヶ所村大字尾駱字家ノ前1-7)  
§ E-mail: ishisim@ies.or.jp

は約34で行った。161日経過後、残りのヒラメを重水を添加していない水槽に移し、排泄実験を開始した。採取した個体は、湿重量を測定し、筋肉部分を採取し、筋肉の湿重量を測定、その後、凍結乾燥にかけ、乾燥重量を計測し、粉碎した。

OBDの中でも特に非交換型(Non-Exchangeable : Nx-)OBD濃度を測定するために、Pointurier *et al.* (2003) の方法の一部を改良した手法により交換型OBD (Ex-OBD) を除去した。試料10mgを15ml遠沈管に入れ、これに重水フリー水を15ml加えて、高速振とう器(キュートミキサー CM-1000型, EYELA) を使用し4時間振とうした。振とう後の試料は6,000rpm (3,780G) で60分間遠心分離後、凍結真空乾燥機により24~72時間乾燥し、Nx-OBDの分析に供した。

筋肉試料中のD濃度は質量分析装置 (IsoPrime 100, エレメンタル社製) を用いて測定した。水素同位体比の質量分析装置による測定では、前試料の影響(メモリー効果)が2~3回目までであるので1試料につき5~6回の繰返し測定を行い、後に測定した3回の測定値の平均から値を決定した。重水添加海水の測定では、海水をDフリー水で1/10に希釈してから測定を行った。

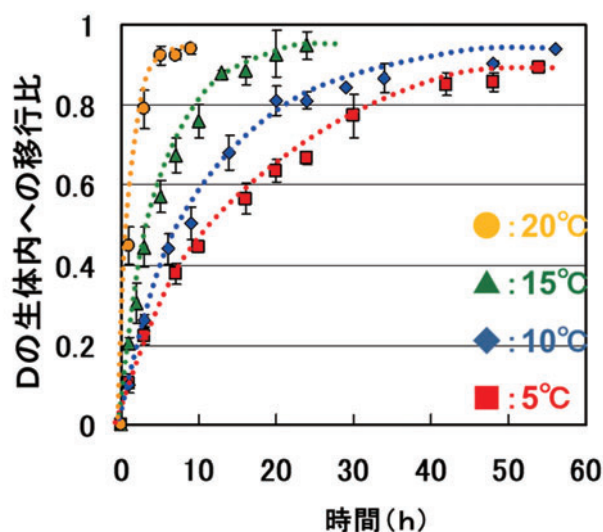
### 3. 結果

#### 1) ヒラメへのFWD移行実験

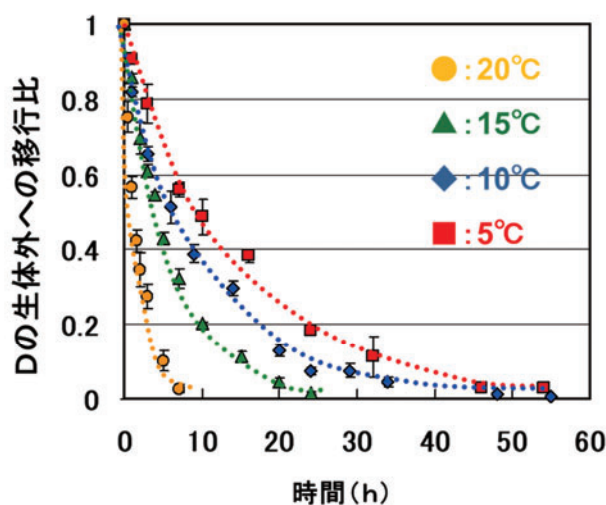
重水ばく露実験の結果を第1図に示す。横軸は時間 (h)、縦軸はDの生体内への移行比で表している。移行比とは、生体中の採取時のFWD濃度を分子、ばく露した海水中のD濃度を分母とした比率である。

体内への移行は、水温が高くなるほど早くなる傾向を示した。六ヶ所村沖合の海洋表面水温の平均に近い水温15℃では、24時間程度で移行比がほぼ1に近くなるのに対して、20℃では、6時間程度であった。一方、水温が10℃、5℃では50時間程度でようやく平衡になった。また、今回の全ての温度帯のばく露実験で、移行比が1以上になることはなく、最大でも0.95程度であった。このことは、自由水型重水素の生体内での濃縮は起こらないと考えられ、ひいては自由水型トリチウムについても同様に1以上になる濃縮はないと推定される。

排泄実験の結果を第2図に示す。横軸は時間(h)、縦軸は重水素 (D) の生体内への移行比で表している。



第1図 水温がヒラメのFWD移行に与える影響 (水温別にD添加海水中でヒラメを飼育)

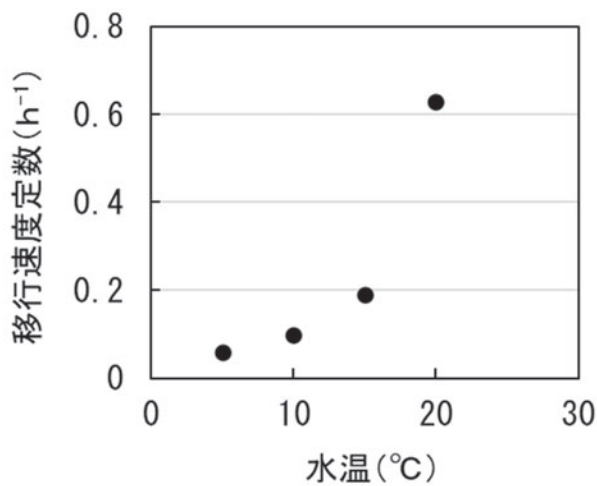


第2図 水温がヒラメのFWDの排泄に与える影響 (D添加海水で飼育したヒラメを天然海水に移して飼育)

ばく露実験の結果と同様に水温が高くなるほど、重水素の体外への排泄が早くなる傾向を示し、いずれの温度帯においてもD濃度は元の濃度レベルに戻った。

ばく露実験の各水温の結果を曲線近似することで、時間に対する濃度変化の係数を移行速度定数としたものを第3図に示す。

各水温での移行速度は、水温の上昇とともに大



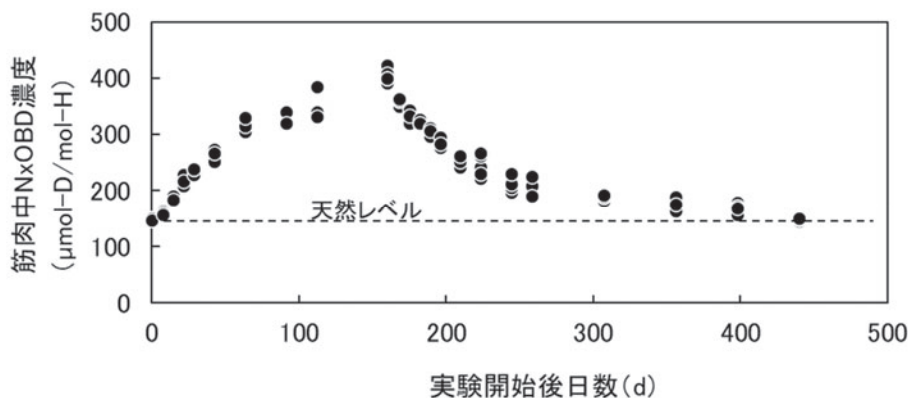
第3図 ヒラメへのDばく露実験におけるFWD移行速度定数と水温の関係

きくなった。特に、水温15°Cから20°Cにかけて急激に大きくなった。移行速度は、水温5°Cでの0.06に対して、水温20°Cでは0.63となり、約10倍もの差となった。

#### 2) ヒラメへのOBD移行実験

水温15°Cにおけるばく露及び排泄実験によって得られたヒラメ筋肉中のNx-OBDの濃度変化について、第4図(Tani and Ishikawa, 2023)に示す。

ばく露開始（開始時の濃度 $149 \pm 1.7 \mu\text{mol D mol}^{-1} \text{H}$ ; n=3）より筋肉中のNx-OBD濃度は増加した。開始100日後ころより増加は緩やかとなり、160日でほぼ平衡に達した ( $404 \pm 12 \mu\text{mol D mol}^{-1} \text{H}$ ; n=5)。ばく露した海水中のD濃度は、 $2,000 \mu\text{mol D mol}^{-1} \text{H}$ であることから、体内で生成されるNx-OBDは1/4程度であった。161日目からの排泄



第4図 非交換型有機結合型重水素におけるばく露及び排泄実験中の濃度変化 (161日間D添加海水で飼育, 次に天然海水で飼育)

実験では、ばく露実験と逆パターンで筋肉中のNx-OBD濃度は減少した。排泄実験開始から100日程度（通算日数で260日程度）で、減少は緩やかになった。ばく露した期間（160日）より少し長い356日目の値は $171 \pm 11 \mu\text{mol D mol}^{-1} \text{H}$  (n=5)であり、天然レベルの値より高かった。さらに実験を継続し、440日目の試料で濃度は、 $149 \pm 2.1 \mu\text{mol D mol}^{-1} \text{H}$ ; n=5)となり、天然レベルまで下がったことが確認された。これにより、体内に取り込まれたOBDは、取り込みに要した時間（160日）よりは長くなるが、元の濃度レベルに戻る事が明らかになり、OBTは体内に蓄積しないと考えられる。

#### 引用文献

- JNFL (2022). 再処理施設および廃棄物管理施設のしゅん工時期見直しに伴う工事計画の変更届出について. <https://www.jnfl.co.jp/ja/release/press/2022/detail/20221226-2.html>. (2023年10月18日アクセス)
- Pointurier, F., Baglan, N., Alanic, G., Chiappini, R. (2003) Determination of organically bound tritium background level in biological samples from a wide area in the south-west of France, *J. Environ. Radioact.*, **68**, 171-189.
- Tani, T. and Ishikawa, Y. (2023) A deuterium tracer experiment for simulating accumulation and elimination of organically bound tritium in an edible flatfish, olive flounder. *Sci. Total Environ.*, **903**(166792). Doi.org/10.1016/j.scitotenv.2023.166792.