

解 説

海洋におけるトリチウムの動態と海生生物への蓄積

宮本霧子* §

Behavior of Tritium in the Ocean and Marine Organisms

Kiriko Miyamoto* §

要約: 海洋環境保全や気候変動適応を目的として、国際的な海洋調査プロジェクトで測定された海水や海生生物中の放射性核種濃度が地域から全球まで様々なレベルでデータベース化されている。宇宙線粒子と大気中原子との核反応と、核実験や原子力平和利用で生成したトリチウムも同様に、最初は1970年代のGEOSECSで海洋循環を解明するトレーサーとして利用された。欧州の海域では、核廃棄物の海洋投棄や原子力施設排水の影響が調査されているが、トリチウムで標識された有機化合物が廃棄された地域の海生生物には蓄積現象が観測された。原子力発電所のある日本沿岸海水も、1970年代より地域の降水やその海域に流出する陸水とともに測定値がデータベース化されているので、様々な視点から今後の有効利用が望まれる。

キーワード: トリチウム, 海水, 海洋調査, 海生生物, 蓄積, データベース, IAEA, MARIS

まえがき

全地球上に存在する「水」の98%近くが塩類を含む海水であり、全地球表面積の70%を占める海洋に存在している。ヒトは海水と海洋中の無生物と生物から様々な恩恵を受けており、海洋の保護が必要であることに気付いている。しかし人口が増え、多種類の工業生産物の恩恵に浴することによって、その代償として海洋環境は国境を越えて汚染された。意識的に強制的にそして国際的に、海洋環境保全の努力を行うため、様々な国際条約が結ばれている。海洋調査もその根拠となるデータ収集のために継続されており、放射性核種もまた調査の対象である。

水素の同位体である放射性のトリチウムを含むALPS処理水が福島から海洋へ放出される計画が

公表され世間を騒がせている（経済産業省, 2021）。トリチウムは太古より地球上に常に一定量存在した放射性核種だが、核実験により地球上の濃度レベルが一時期100倍に増加したこともあった。1970年代には海洋循環を解明するトレーサー物質として有効利用する目的で国際的な海洋調査も行われたが、現在では原子力平和利用から海洋環境を保全する目的で測定が様々な行われてきている。本稿では一部だがそれらのデータを見ることによって、海水中のトリチウム動態について過去から現在までの変遷を概観する。また、環境汚染物質について懸念されるのは海生生物への蓄積現象であろう。トリチウムについて蓄積ありやなしやと行われた国際的な議論を解説して、読者の判断材料に供したい。

(2021年10月31日受付, 2021年12月2日受理)

* 公益財団法人海洋生物環境研究所 (〒162-0801 東京都新宿区山吹町347藤和江戸川橋ビル7階)

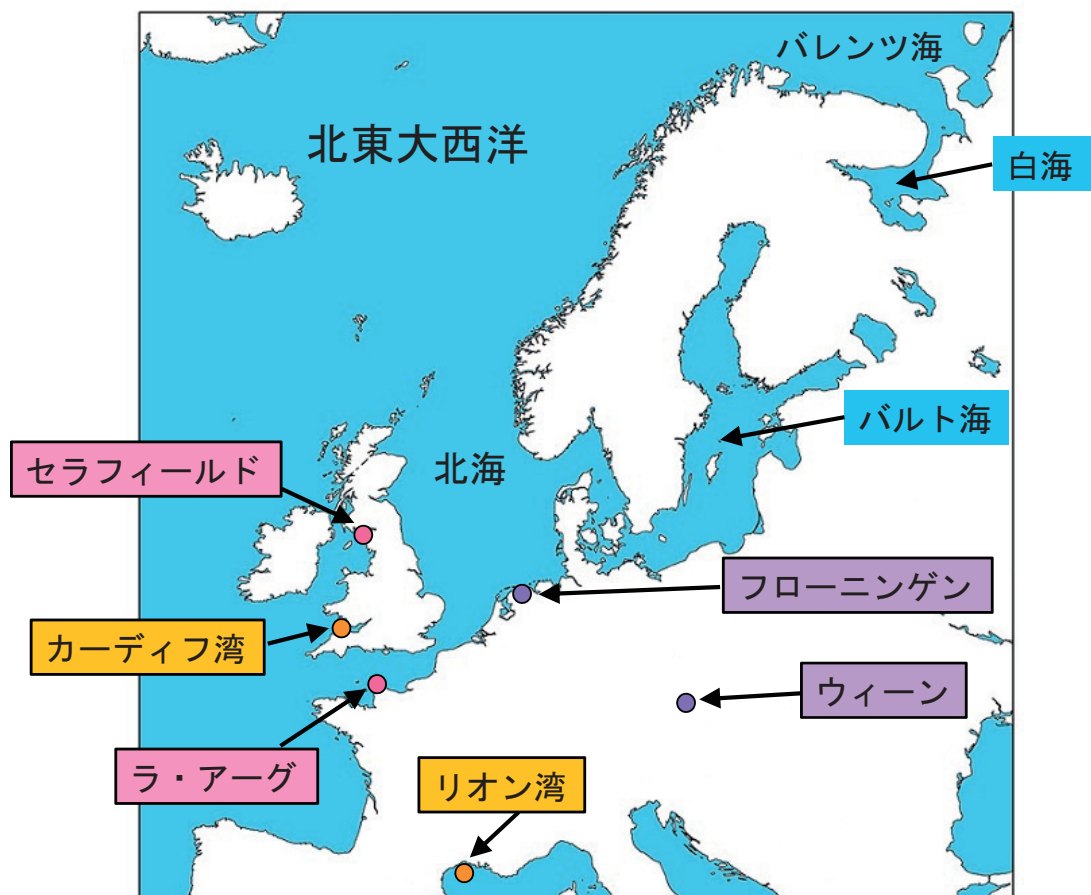
§ E-mail: miyamoto@kaiseiken.or.jp

海洋循環の解明と海洋生態系保全のために

GEOSECS (Geochemical Ocean Sections Study (当初はSurvey)) は国際的な海洋調査プロジェクトとして不滅の金字塔である。1972年～1978年にいわれ、大西洋、太平洋、インド洋において、温度や密度などの物理的測定と共に、化学物質や放射性核種の濃度測定も行われた。海洋の循環について知見を求めるプロジェクトであったが、1945年以来行われた大気圏内核実験で地球上に放出された人工の放射性核種（フォールアウト核種）も測定された。特にトリチウムや炭素14の核種は、それぞれ水素元素と炭素元素の同位体であるため、海洋の循環についての知見を得るトレーサー物質（目的とする物質の移動現象を追跡するために目印として使える物質）として利用できると期待された。海洋汚染を監視するために測定対象となるのは海水中の溶存・浮遊物質であるが、その運び屋である水分子の循環現象がまず興味の

対象となる。トリチウムも水として挙動するので、トレーサーとして当初より期待が大きかった。同じく水素の非放射性同位体である重水素はトリチウムに比べて多量にあるため、海水中の濃度が世界の海で均一と見做され、地球規模の海洋循環のトレーサーとして使用できない。トリチウムは全水素原子数の 10^{-16} %しか存在しないが、放出する β 放射線の精密測定が可能になりトレーサーとして期待されたのである。

現在でも、大小の様々な海洋調査が行われているが、特に欧州近くの北東大西洋、北海、バルト海（第1図）など、人口が多く原子力施設があり、工業生産や物流活動が盛んで、汚染物質の負荷が大きくかかる海域では危機感も強く、継続的に調査活動が行われている。その結果として得られた測定値をデータベース化し、オンライン公開して世界中に自由にデータ利用を促すものもある。IAEA（International Atomic Energy Association, 国際原子力機関）に所属するモナコの環境研究所



第1図 北東大西洋における海洋調査プロジェクトの対象海域、及びトリチウムデータベース関連地域の地図。
●：核燃料再処理施設操業地域とその名称、●：放射性医薬品工業活動地域とその名称、●：IAEAの月間降水中トリチウム濃度観測地点とその都市名

(IAEA Environment Laboratories) は、MARISデータベース (Marine Radioactivity Information System, 海洋放射能情報システム) を運営して、世界各国からのデータ提供も呼び掛けている (IAEA MARIS, 2021)。MARISに登録されている海水中のトリチウム濃度としては、まずバルト海 (第1図) の環境保護を目的とする1980年発効のヘルシンキ条約に基づくヘルシンキ委員会 (HELCOM, Baltic Marine Environment Protection Commission) の観測データと、北東大西洋を中心に1998年発効のオスパール条約 (OSPAR, Convention for the Protection of the Marine Environment of the North-East Atlantic) に基づくオスパール委員会が提供する観測データ、そしてフランスがラ・アーグにある核燃料再処理施設を視野に置き1982年から収集したBailly du Boisらの観測データなど、大量にある。第1図に、本稿に関連する海域名や地名を図示した。ちなみに海洋生物環境研究所の観測した福島沖や青森沖の海水中トリチウム濃度データも2014年以来MARISに掲載されている。

1990年から始まった大規模な国際協同研究計画 WOCE (World Ocean Circulation Experiment, 世界海洋循環実験計画) においては、eWOCEの名称でデータベースがオンラインで公開されているが、トリチウムも重要な位置を占めている。ただし、現在の海水中トリチウム濃度は小さく、鉛直分布を精密測定することが困難なので、海洋循環の研究にはトリチウムの娘核種である質量数3のヘリウム同位体の存在量が利用されている。大気から海表面に降下したトリチウムが放射壊変してできる ^3He は、海表面からは気圏に逃げるので表面海水中には少ない。しかし、フォールアウト起源のトリチウムが大量にあった時期に海表面に降下して海洋循環によって深部へ降下した後のトリチウムは、 ^3He になってもそのまま深部に残存し移動するので、今現在の ^3He の分布を測定すれば海洋循環のトレーサーとして利用できる。真空管理装置と質量分析技術の進歩により、宇宙科学や地球科学の分野においても大気圏・地殻圏に存在するヘリウム同位体比を利用した様々な研究が行われているが、深層海水中の ^3He の原子数を測定することによって、かつてあったトリチウム存在量を推定し、海洋循環について総論もまとめられている (Jenkins *et al.*, 2019)。

また2005年より30か国以上が協力して GEOTRACES (An International Study of the Marine

Biogeochemical Cycles of Trace Elements and Their Isotopes, 海洋の微量元素・同位体による生物地球化学研究) という国際プロジェクトも進行中である。海洋循環の解明が、地球にとって喫緊の課題である気候変動問題の課題の洗い出しと解決策の提言にとって重要であることを視野に入れて行われている。日本も力を入れているので、海洋のトリチウム濃度の測定値が提供され、解析されていくことが期待される。

自然界でのトリチウム生成

トリチウムは、核実験が終息した現在では原子力平和利用によって環境へ放出されることが改めて世間を騒がせているが、そもそもは天然に存在する放射性核種である。宇宙線が成層圏大気中の窒素や酸素原子と衝突して核反応を起こし、恒久的・永続的に生成されている。計算によると、1年間に 10^{17} Bq (ベクレル) 近くのトリチウムが大気中で粛々と生成されている。

地球科学、海洋科学の分野における物質中のトリチウム存在量・濃度の単位にはTU (Tritium Unit) が使用されることが多い。1TUとは、プロトン (^1H , 軽水素, 質量数1の水素原子) の原子数存在量を1とした場合、トリチウム (^3H , tritium, 三重水素, 質量数3の水素原子) の存在する原子数存在量が 10^{-18} レベルであることを意味する。非常に少ない。物質が水の場合の1TUは0.118 Bq/L に等しい。ちなみにもう1つの水素同位体であるデュウテリウム (^2H , deuterium, 重水素, 質量数2の水素原子) の原子数存在量は、 1.5×10^{-4} レベルであり、レベルで比較してみればトリチウムの 10^{14} 倍多い。なお1970年代の論文などでは、トリチウム濃度の単位として現在は既に使われなくなっているTR (Tritium Ratio, トリチウム比) が散見される。1TRは水の場合に1TUに等しく、0.118Bq/Lに相当する。

宇宙線によって生成するトリチウムは、核実験が開始されるより前、水を電気分解する過程で既にその存在は発見されていた。電極を浸して水を電気分解すると、イオン化した水素と酸素が両電極に分かれて移動し、電極表面上で水素と酸素の各気体分子に変化する電気化学的な反応が起こる。化学反応速度は同位体効果を受けるため、質量数大きい同位体の方が化学反応が起こりにくく、質量数の大きい重水素と、更に大きいトリチ

ウムの方が、液体の水相の方に多く残っていき、水の同位体濃縮が起こる。欧州では1930年代より加速器や質量分析計を利用してこの現象が解析され、質量数3の三重水素の存在が証明されたのである。

1945年アメリカニューメキシコ州で行われた最初の核実験以来、同年に広島・長崎に実戦使用された原子爆弾を含め、1963年に部分的核実験禁止条約（PTBT）が発効するまでに、2000回以上の核実験が行われ、総計 10^{20} Bq（ベクレル）のトリチウムが生成された。以来、半減期12.3年の放射壊変により全体としては減少しつつ、宇宙線で生成され大気圏から注入され続ける自然のトリチウムと混じりながら、水素同位体として区別なく地球上を循環してきた。ちなみに1996年に締結された包括的核実験禁止条約（CTBT）は未加盟の核保有国があり、核実験実施の可能性はまだ残っている。

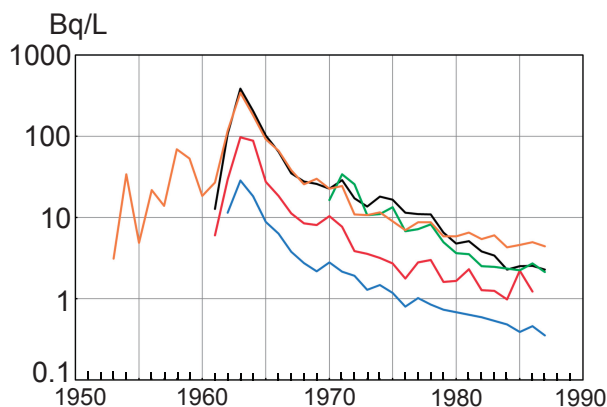
降水として地球に供給されるトリチウム

海水ばかりでなく、陸水・淡水、即ち降水・地下水・河川水・湖沼水の地球規模での水文学的循環解明についてもトリチウムがトレーサー利用できることは当然期待されてきた。大気圏で宇宙線の起こした核反応によって生成したトリチウムは酸素と結合して水分子となった後、対流圏に降下し、大気中の水蒸気→降水→地下水→河川水→海水→大気水蒸気のように循環する。半減期が12.3年のトリチウム濃度を測定すれば、地下水が地表面に流出するまでの地下滞留時間の推定（年代測定）や、陸水が海洋に流出するまでの陸圏での滞留時間の推定などに利用できる。皮肉なことだが核実験により存在量が増加したために以前より測定が容易になり、また核実験は主に大気圏で行われたので、大気圏から注入される水循環のトレーサーとして極めて都合がよかった。

そのニーズを受け、IAEAは1960年よりWMO（世界気象機関）との連携で、世界500箇所以上から月間降水中の重水素、重酸素（ ^{18}O ）濃度の測定値と共に、トリチウム濃度データを収集し、また自らも盛んに測定を行った。現在でも主に陸水圏で見られる重水素・重酸素濃度の微少な偏りや地域分布を利用して、水蒸気蒸発や降雨液化現象の解析、大気中の熱エネルギー収支の解析を行う気候変動研究に資するために、IAEAのGNIP（Global

Network of Isotopes in Precipitation）データベースとしてデータ収集と公開が続いている。

GNIPの測定は月間降水について行われているが、180箇所の気象観測所が選ばれ、各月の降水量を使って荷重平均計算処理を行い、1987年までの年平均濃度をIAEAが単行本にまとめている（IAEA, 1992）。本稿では、その中から東京と共に、北米内陸のカナダ首都オタワ、欧州内陸のIAEAがあるオーストリア首都ウィーン、欧州沿岸のオランダの都市フローニンゲン、そして太平洋中部に位置するミッドウェイ島と、北半球から4地点を選んで年平均濃度の変遷を第2図に図示した。どこも1963年をピークとしているが、海洋からの距離などの立地条件の違いにより、推移する濃度レベルが異なっている。宇宙線による核反応で生成したトリチウムも、大気圏内核実験で核分裂により生成したトリチウム等のフォールアウト核種も、成層圏と対流圏の境界にある圏界面にできる裂け目から、主に中緯度に降下する。また大気中水蒸気量が海洋上の方が大陸上よりも多いため、内陸から沿岸方向に大気水蒸気中トリチウム濃度に減少の勾配が生じる。こうして第2図のように立地条件の違いにより降水中濃度レベルの推移も異なった。また陸水圏では、大気水蒸気が降水として地下水に涵養された後、一定期間の地下貯留を経てから河川水として地表面に流出するので、その遅れを反映して河川水とその土地の降水のトリチウム濃度レベルとは異なってくる。この



第2図 月間降水中トリチウム濃度年間平均値の変遷。—:オタワ, —:ウィーン, —:東京, —:北太平洋 (Midway環礁), —:フローニンゲン (オランダ)

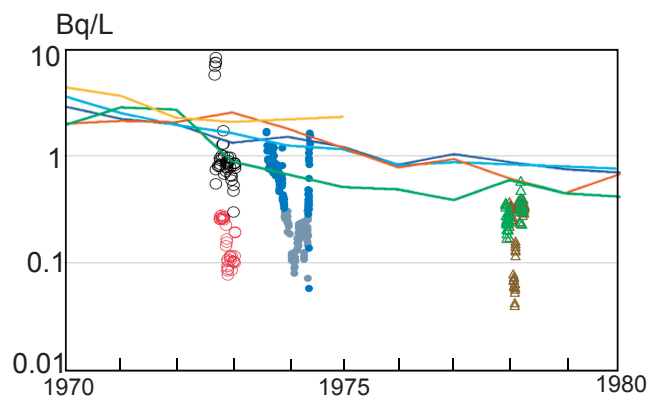
ような複合的要因により、今なお河川水は海水よりもトリチウム濃度が高く、涵養された降水の濃度だけでなく、河川流域の大きさや海岸からの距離、流域全体の構造によって、海洋へ流出する陸水の濃度レベルが変動する。なおここでは北半球5地点のデータのみ示したが、多くの核実験が北半球で行われたため、南半球よりも北半球のフォールアウト濃度レベルが高かったことが知られている。

海洋汚染調査の対象となるトリチウム

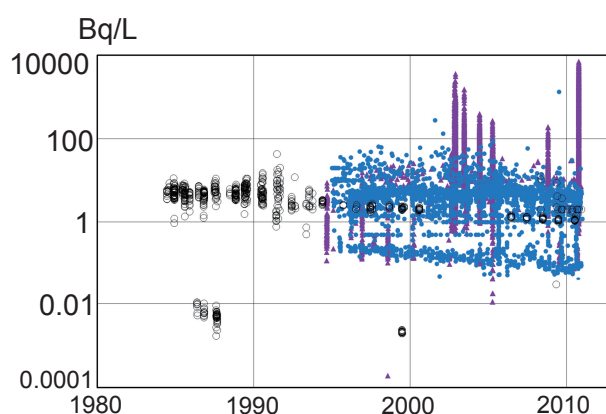
第3図にMARISデータベースから抽出したGEOSECSで測定されたトリチウム濃度について大西洋、太平洋、インド洋の採水深度が100mより浅い表面海水のデータを図示した (IAEA MARIS, 2021)。当時の地球へのフォールアウト降下量の違いを反映して、どの海域でも北半球の表面海水は南半球の表面海水よりもトリチウム濃度が高いことが分かる。またIAEAの月間降水データベースに登録されている、南・北大西洋、南・北太平洋、インド洋の5か所の採水地点を選び月間降水中濃度を第3図に同時にプロットした (IAEA, 1992)。1970年代ではこの5地点で各海域による降水中の濃度にほとんど差が見られない。また表面海水中濃度はどの海洋でも降水中濃度よりも低い傾向が顕著に表れている。海洋が大きな水のリザーバーとして、大気圏から降下したフォールアウトトリチウムの希釈・拡散に寄与した結果と推定されるが、均一濃度になるまでは混合されていない。このGEOSECSプロジェクトにより、初めて放射性同位体を利用して海洋の循環について多くの知見が得られたが (Östlund *et al.*, 1987), その後のWOCE, GEOTRACESなどのプロジェクトも気候変動問題の解決に役立つことが期待される。

MARISデータベースには、最近までのHELCOM (バルト海), OSPAR (アイリッシュ海, 北海), Bailly du Bois (ビスケー湾, ケルト海, イギリス海峡, アイリッシュ海) などの海洋調査データが登録されているが、いずれも北東大西洋の海洋汚染を対象とした調査であり、原子力施設ばかりでなく、海底油田や重工業施設などが集中する重要な海域の海洋生態系を守るために行われている。第4図にこれらのデータベースから抽出した、深度100mまでの表面海水中トリチウム濃度の観測

値を図示した。これらの調査海域に近い、第2図のフローニンゲン (オランダ国) とウィーン (オーストリア国) の降水中濃度が10Bq/L以下まで漸減している傾向と比較すると、この海域の表面海水中濃度は大きく変動し、原子力施設起源の関与が指摘されている。(Fiévet *et al.*, 2021; Masson *et al.*, 2005)



第3図 GEOSECSで測定された表面海水中トリチウム濃度 (記号) と当時の月間降水中トリチウム濃度 (直線)。○：北半球大西洋, ○：南半球大西洋, ●：北半球太平洋, ●：南半球太平洋, ▲：北半球インド洋, △：南半球インド洋, —：北大西洋 (気象観測船), —：南大西洋 (Gough島), —：北太平洋 (Midway環礁), —：南太平洋 (Campbell島), —：インド洋 (Diego Garcia島)



第4図 北東大西洋における水深100m以浅の海水中トリチウム濃度。○：HELCOM (バルト海), ●：OSPAR (アイリッシュ海, 北海), ▲：Bailly du Bios (ビスケー湾, ケルト海, イギリス海峡, アイリッシュ海)

トリチウムの生物への蓄積

本稿題名の中の「海生生物への蓄積」の趣意は、海生生物が海洋環境からトリチウムを取り込むとその後どうなるのか、濃縮されるのではないのか、という基本的な問いかけを意味する。トリチウム原子は化学反応としては基本的に水素原子として同じに振る舞うので、まず海水から水として、また様々な有機物に化合した水素として生物体内に摂取され、その後の振舞いが問題になる。 ^{137}Cs などの放射性核種の取り込みについての研究では、室内に置いた水槽の中で生物を飼い、水中の ^{137}Cs が生物体内に取り込まれた量を、時間を追って測定し、蓄積量を調査することが行われてきた。水中の濃度に対する生物体内中の濃度を比較し、何倍濃縮されるかその濃縮係数を求めることが、様々な実験条件で多くの生物種について調査研究され、そのデータが各国で、日本においても、そしてIAEAのデータブックとしてまとめられている。その数値を利用して、原子力施設から環境中に放出できる放射性核種の量を決め、原子力平和利用を行う仕組みになっている。

放射性核種が発する放射線には種類がありエネルギーも異なる。またヒトが放射性核種を体内に取り込んだ場合の、その核種の生理代謝的な振る舞いもさまざまである。骨に集まる性質のある元素の同位体であれば骨に蓄積し、筋肉を構成する元素の同位体なら筋肉に移動する。また蓄積した後、発する放射線がヒトにどのような健康影響を及ぼすかについても、様々な影響因子が関係する。こうして、防護の基準となる数値を定めて安全に放射線を利用することを目的に、様々な角度から多くの研究が過去に行われたが、それらの公開された研究結果を、ICRP (International Commission on Radiological Protection, 国際放射線防護委員会) が解析評価し、基準とすべき数値を決定して勧告を行ってきている。日本もICRP勧告にある考え方や基準の数値を取り入れて、トリチウムも含め、様々な放射線から防護するための法律を定めている。

基準となる数値の1つとして、放射性核種がヒトの健康に影響を与える危険度・安全度の程度を表す定数として、線量係数 (Dose Coefficient, 単位Sv / Bq) というものが放射性核種毎に勧告されている。具体的には、1Bqの放射性核種を体内

に取り込んだ以後50年間に亘り全身へ負荷されると見積もられる内部被ばくの実効線量 (預託実効線量, committed effective dose, 単位Sv) の大きさを表す定数である。線量係数は1990年まで「実効線量当量 (effective dose equivalent)」と呼ばれていたもので、今でも「線量換算係数」、「実効線量係数」などという言葉も使われている。

トリチウムの線量係数は ^{137}Cs の1000分の1と大変小さい。体内に取り込んだ場合の影響が小さいことが動物実験などで見積もられており、その結果環境中濃度の管理基準における放出可能な限度量が大きく設定されている。そうなる原因は、トリチウムの放射線のエネルギーが弱いことや半減期が短いこと、また体内に取り込まれた後の体外への排泄が早いことによる。水や有機物として体内に取り込まれたトリチウムは水素として体内で代謝され、一部は有機物へ合成もされるが、呼吸、分解などの体内代謝で水や有機物として排泄される。有機物になったトリチウムは水と比べれば排泄が遅くなるので、その観測結果は一時的にしても体内での蓄積現象と解釈されることもある。

一方「トリチウム原子は化学反応としては基本的に水素原子として同じように振る舞う」と既述したが、実は「基本的でない振る舞い」もあり、それはトリチウム原子の質量数 (原子核にある中性子の個数) が3で、プロトン水素よりも重いことによる。水を電気分解すると、電気化学反応の起こり易さの違いにより、水の同位体濃縮が可能であることを前述したが、同じように有機物の合成化学反応においてトリチウムの方がプロトン水素よりも化学結合反応を起こしにくくなることが推定されよう。過去にこの命題を実証するため屋内の計画実験が行われてきたが、トリチウム水を生物に取り込ませる実験であるため、大気中水蒸気との交換によるトリチウム濃度の変動 (主にはトリチウム水の蒸発による減少) を防止し、実験期間中に一定濃度を保つための機密性の高い実験系を作ることが難しく、初期の実験報告値はなかなか定まらなかった。また工業的にトリチウムを取り扱う施設が周辺環境のモニタリングを行う場合に、野外で採取した生物試料の有機物中トリチウム濃度が高いとの報告を行って、物議を醸すことも多々あった。しかしモニタリング当事者が生物試料を分析・測定する場合、分析室が大気水蒸気中トリチウム濃度が高い施設敷地内にあることが多いため、生物試料を常温に置いているうちに

大気中のトリチウム水蒸気を吸収し、有機化合物の交換し易い位置に化合した水素と置き換わる現象があることも、今では理解されるようになった。ここでは数十年に亘る幾多の議論の末に、IAEAが行ったプロジェクトから導かれた統一的であり最終的ともいえる報告を紹介したい。

カナダの観測データから

カナダは中性子減速材と冷却水として重水素を多く含んだ重水を利用することにより、 ^{235}U を濃縮しないウラン燃料を核分裂させるCANDU (Canadian Deuterium Uranium) 炉を利用している。北米五大湖の1つであるオンタリオ湖畔には、CANDU型の原子炉が多くあり米国にも電気を供給するほどの運転実績があるが、冷却水中に重水素の中性子捕獲の核反応によりトリチウムが生成するので、周辺環境のトリチウム濃度レベルは高く、モニタリングの実績も大きく、またトリチウムの生物影響や線量評価についての研究も盛んである。1940年代から首都オタワの西200kmにあるチョークリバー研究所でCANDU炉の開発を始めたが、サイト内にある直径約1kmのパーチ湖には、廃棄物埋設地区から長期間トリチウムが流れ込み、湖水や生態系のトリチウム濃度レベルが高い平衡状態にある。従って湖を自然界にある水槽のように利用して、水生生物のトリチウム取り込みについて観測データが得られた。

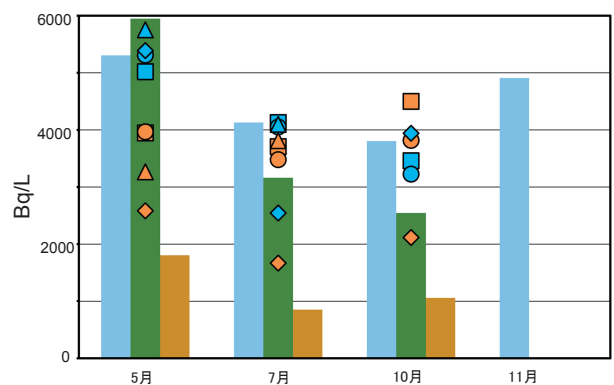
IAEAではチェルノブイリ事故の後、各国が利用する放射性核種環境移行モデルの斉一性の議論を行うために、1986年以来モデル相互比較プロジェクトをいくつも行ってきた。最近では福島事故についても環境移行モデルの構築とパラメータ収集が行われ、世界で利用できるモデルの高度化と精緻化の議論が続けられている。その中で2003～2007年に行われたEMRAS (Environmental Modeling for Radiation Safety) プロジェクトでは、パーチ湖で得られた藻類や魚介類のトリチウム取り込みデータについてモデルの議論がなされた。測定データとして、パーチ湖の湖水、湖底堆積物のトリチウム濃度などが提供され、参加各国が自国のモデルを使って水生植物、淡水アサリ、淡水魚などのトリチウム濃度を推測して、後に公開される実測値と比較して、モデルやパラメータの是非を議論するものである。(IAEA, 2008)。

生物体内のトリチウムのうち、体液・細胞水な

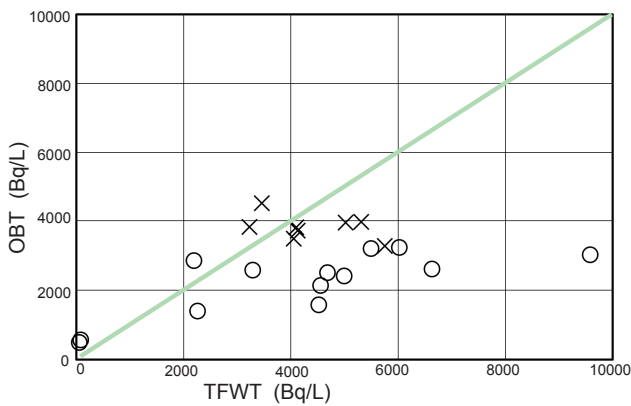
どのトリチウム水は、TFWT (Tissue Free Water Tritium, 組織自由水トリチウム) と表現することが多い。一方体内の有機物に結合しているトリチウムはOBT (Organically Bound Tritium, 有機結合型トリチウム) と表現される。

第5図に公開されたパーチ湖の実測値データをまとめて図示したものを示す。湖水のHTO濃度は4000～5000Bq/Lで高く、場所的にはほぼ均一だが多少の季節変化があった。また水生植物のTFWT濃度は、採取された場所の湖水中HTO濃度とほぼ同じであったが、枝葉が水上にもある種類の水生植物は大気中の水蒸気も取り込むため、湖水中HTO濃度よりも低い観測値もあった。水生動物であるアサリと魚のTFWT濃度は類似しており、生物体全体に均一に分布していた。また水生動物体の各部分のOBT濃度は5%以内で一致しており、採取時間や場所での変化をほとんど示さずに、湖水のHTO濃度と同レベルにあった。また湖底堆積物は、TFWTもOBTも低いレベルであることが分かった。

第6図に、水生植物と水生動物のTFWT濃度とOBT濃度の観測値の関係を示したが、OBT濃度/TFWT濃度は0.5～0.8と整理ができ、OBTへのトリチウムの濃縮は起きていない。この観測の結果、水生生物のTFWT濃度は水のHTO濃度と等しくなるが、OBT濃度はTFWT濃度を越えることがないばかりか、TFWT濃度より低くなることが示された。なぜ低くなるかは、質量数が大きい同位体の



第5図 パーチ湖生態系のトリチウム濃度 (2003年)。
◆:藻類TFWT, ◇:藻類OBT, ▲:貝(アサリ)TFWT, △:貝(アサリ)OBT, ●:魚(カジカ)TFWT, ○:魚(カジカ)OBT, ■:魚(カワカマス)TFWT, □:魚(カワカマス)OBT, ■:湖水HTO, ■:湖底堆積物TFWT, ■:湖底堆積物OBT



第6図 パーチ湖生態系のTFWTとOBTの関係（2003年）。○：藻類のトリチウム濃度観測値，×：魚と貝のトリチウム濃度観測値，直線はTFWT：OBT=1：1を示す。

方が化学反応を起こしにくいということから、トリチウムが生化学反応過程における同位体効果により、OBTになりにくい結果と説明されている。

パーチ湖の観測結果から下記のことが推定された。水生生物のTFWT濃度は、生物の水代謝反応によって、生物が留まる水塊のHTO濃度と等しくなる。しかし移動する生物は、移動先の水塊のHTO濃度に等しくなるまで一定時間かかるので、水塊のHTO濃度と異なるTFWT濃度を持つ期間がある。それはOBT濃度についても同じことが起こり、生物が留まる水塊のHTO濃度との大小関係は流動的である。ただし一定時間が過ぎ、平衡状態になるときは水塊のHTO濃度を越えることはない。

海生生物のOBT濃度を上昇させる原因

パーチ湖での観測結果は、湖水のトリチウム濃度が高い場合でも水生生物体内のトリチウム濃度は湖水の濃度を越えて蓄積されることはないことを示したが、ある地域では環境水のHTO濃度よりもOBT濃度が高い水生生物が観測されており、その現象については詳細な調査報告がある。

まず英国ウェールズ州カーディフ湾（第1図）の河口海域では、OBT濃度が高い底質微生物や魚類の存在が観測されたが、その原因となったのは、1940年代より当地で製造されてきた、医学・生命科学研究や医療診断においてトレーサー物質として使用されるトリチウム標識放射性医薬品の環境

中放出である。海水のHTO濃度は10 Bq/Lまでのレベルだが、底質の有機物や微生物はそれよりも高く、OBT濃度が最大 1.2×10^5 Bq / kgの底生魚が観測された時期もあった。（Williams *et al.*, 2001）。同じ現象はフランス地中海側のリオン湾（第1図）でも観測されている。これらの事象の原因物質は、生体内の生理・生化学的代謝反応を調べるトレーサーとして、医学・薬学分野で利用されることを目的に意図的に合成されたトリチウム化有機合成化合物であり、一部は環境中では分解されにくい高分子のものもある。排出基準を守って環境中に排出された場合でも、自然環境中で分解されにくく、底質から食物連鎖に入って生態系を循環・残留したものと推定された。今では放出が管理され濃度は下がっているとのことであるが、国際的な警告事象となった例である。しかしトリチウムの線量係数が小さいため、ヒトの受ける線量は安全な範囲であると結論されている（Eyrolle-Boyer *et al.*, 2014a, 2014b; Eyrolle *et al.*, 2018）。

一方、同じフランス国内でも核燃料再処理施設のあるラ・アーグでは、トリチウムがHTOとして年間 10^{15} Bq以上放出されており、第4図のように海水のHTO濃度がしばしば高いが、底質や海生生物のOBT濃度は海水のHTO濃度より高くなく、濃縮係数は1、すなわちトリチウムは海洋生物には濃縮されていないと結論されている（Fiévet *et al.*, 2021; Masson *et al.*, 2005）。

パーチ湖の観測結果でも、湖底堆積物のTFWTもOBTも湖水のHTO濃度を越えて濃縮されることはなかった。しかし工業的に生産されたトリチウムで標識された有機化合物が環境中へ排出され、自然界では十分に分解されないまま生態系で食物連鎖に入った場合の蓄積現象は、農薬やその他の環境有害物質の影響評価と同様に観測を継続しなければならない課題であり、今後も生物の取り込みと排泄モデルの議論を行い、放射線防護・環境管理に役立てることが必要である。

日本の降水と海水そして陸水のトリチウム

日本国内では、気象研究所が核実験フォールアウト核種の測定調査を行う中で、IAEAに東京都内の月間降水中のトリチウム濃度のデータ提供を行い、海水の測定も試みた（Miyake *et al.*, 1975）。その後気象庁がIAEAに月間降水の水試料

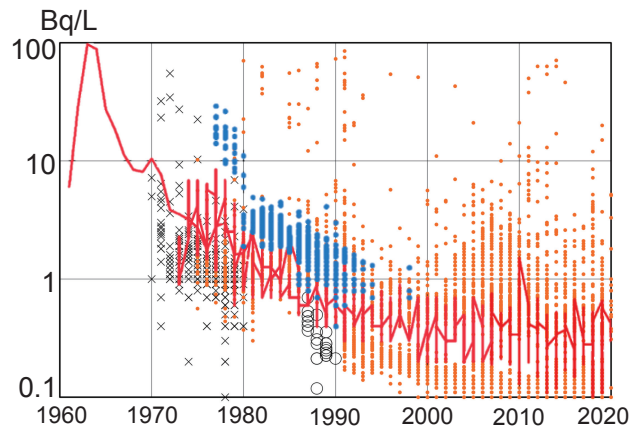
自体を提供することになり、採水場所も公害を避けて岩手県綾里に変更して継続していたが、1986年にその試料提供も終了されている。また放射線医学総合研究所は、1973年～2007年まで千葉市の月間降水中トリチウム濃度を独自に測定しており（放射線医学総合研究所、1979-2002）、毎年度の報告書から抽出して整理されたデータを2010年までデータベースとしてオンライン公開していた。今ではオンライン公開を終了しているが、研究者の円滑なデータ利用のため、再開されることが望ましい。2007年以降の月間降水中トリチウム濃度は原子力規制庁が日本分析センターに委託して測定し、環境放射線データベース（原子力規制庁、2021）で公開中である。2011年の3月の測定値は福島事故の影響を微妙に捉えている。

日本近海の海水は、放射線医学総合研究所が1970年～1980年に、日本全国の原子力発電所施設のある海域で原子炉の二次冷却水に使用される沿岸海水のトリチウム濃度を年に2回測定した。

(Inoue and Kasida, 1978; Tanaka *et al.*, 1981)。1975年以降は全国の原子力発電所立地県を中心に、沿岸の表面海水の濃度が各県の専門家によって測定されており、原子力規制庁の環境放射線データベース（原子力規制庁、2021）に登録されている。

第7図にそれらの測定値をまとめて図示した。降水中のフォールアウト起源のトリチウム濃度が減少して、核実験が開始される前のレベルまで下がっていることが見られる。日本沿岸の表面海水のレベルとして1Bq/Lを前後しているが、採取地点が原子力施設立地県の沿岸表面海水であるため、時々100Bq/L近くを検出することがある。また関東平野から流出する陸水の例として、茨城県の河川・湖沼水の濃度レベルと比較すると同期間の降水中濃度よりも高く、内陸で一定期間地下に滞留していた地下水が河川に遅れて流出することによって、既に濃度が減少した降水の濃度よりも高いことが示されている。沿岸海水のトリチウム濃度が内陸から流出する河川水等の影響を受けることは、沿岸の海洋環境生態系が陸地から供給される栄養源物質の影響を受けて形成されることと相似する。

なお1987～1990年には海洋循環研究の目的で北海道大学によって日本海の北東部海域のトリチウム濃度測定が行われている（渡辺、1991）。その後1993年には、旧ソ連が1966年～1992年に日本



第7図 日本の沿岸表面海水中トリチウム濃度。○：日本海（渡辺、1991）、×：全国（放射線医学総合研究所、1979-2002）、●：全国（原子力規制庁、2021）、—：日本の降水中トリチウム濃度（東京・綾里・千葉）、●：関東平野の陸水中トリチウム濃度（放射線医学総合研究所、1979-2002）

海北西部及びカムチャツカ半島南東岸沖の極東海域において、放射性廃棄物を海洋投棄したことが公に報じられ緊急海洋調査も行われたが、影響は観測されなかった。投棄が公表される前に行われた北海道大学の測定は、投棄が継続した時期に偶然相当するが、測定結果の濃度レベルにその影響は見られていない。ちなみに旧ソ連の放射性廃棄物海洋投棄はバルト海、バレンツ海、白海（第1図）、カラ海においても1959年～1992年に行われていて、上述のHELCOM、OSPARなどの海洋調査もそれを視野に入れて盛んになったと思われる。

おわりに

2011年の福島における原子力事故後、国内外の研究者・事業者が日本近海での多種の放射性核種の拡散や海生生物への蓄積について、多くの報告を行いデータベース化への努力がなされており成果が期待される。欧州では、海洋環境の汚染を監視しつつ工業活動を継続する中で、特に放出される放射エネルギーが多いトリチウムについて、地道な分析・測定とデータベース化の努力、安全評価が国際協力の下で行われている。これらを参考にして、日本でも過去から集積されてきたトリチウムのデータが、今後の安心度評価のための材料として自由に、また効果的に使用できるよう、効率的に情報公開されていくことが望まれる。

引用文献

- Eyrolle-Boyer, F., Boyer, P., Claval, D., Charmasson, S. and Cossonnet, C. (2014a). Apparent enrichment of organically bound tritium in rivers explained by the heritage of our past. *J. Environ. Radioactivity*, **136**, 162–168.
- Eyrolle-Boyer, F., Claval, D., Cossonnet, C., Zebracki, M., Gairoard, S., Radakovitch, O., Calmon, P. and Leclerc, E. (2014b). Tritium and ^{14}C background levels in pristine aquatic systems and their potential sources of variability. *J. Environ. Radioact.*, **139**, 24–32.
- Eyrolle F., Dizès, L. D., Le, S., Beaugelin-Seillera, K., Charmassona, S., Boyera, P. and Cossonnet, C. (2018). An updated review on tritium in the environment. *J. Environ. Radioact.*, **181**, 128–137.
- Fiévet, B., Bailly du Bois, P. and Voiseux, C. (2021). Concentration factors and biological half-lives for the dynamic modelling of radionuclide transfers to marine biota in the English Channel. *Sci. Total Environ.*, DOI: 10.1016/j.scitotenv.2021.148193.
- 原子力規制庁 (2021). 環境放射線データベース. <https://www.kankyo-hoshano.go.jp/data/database/> (2021年10月12日アクセス) .
- 放射線医学総合研究所 (1979–2002). 放射能調査研究報告書. 昭54年度～平成14年度, 千葉市.
- IAEA (1992). Statistical treatment of data on environmental isotopes in precipitation. Technical Reports Series No.331, International Atomic Energy Association, Vienna, 1–781.
- IAEA (2008). Modelling the environmental transfer of tritium and carbon-14 to biota and man. Report of the tritium and carbon-14 working group of EMRAS theme 1, Environmental modelling for radiation safety (EMRAS) programme. <https://www-ns.iaea.org/downloads/rw/projects/emras/2nd-combined-meeting/scenario-twg-perch-lake-final.pdf> (2012年7月17日ダウンロード) .
- IAEA MARIS (2021). IAEA marine radioactivity information system. Division of IAEA Environment Laboratories [online]. Monaco, <https://maris.iaea.org>. (2021年9月14日ダウンロード)
- Inoue, Y. and Kasida, Y. (1978). Tritium surveillance around nuclear facilities in Japan. Radioactivity Survey Data in Japan, NIRS-RSD-44, National Institute of Radiological Sciences, Chiba, 14–30.
- Jenkins, W.J., Doney, S.C., Fendrock, M., Fine, R., Gamo, T., Jean-Baptiste, P., Key, R., Klein, B., Lupton, J. E., Newton, R., Rhein, M., Roether, W., Sano, Y., Schlitzer, R., Schlosser, P. and Swift, J. (2019). A comprehensive global oceanic dataset of helium isotope and tritium measurements. *Earth Syst. Sci. Data*, **11**, 441–454.
- 経済産業省 (2021). ALPS処理水の処分. https://www.meti.go.jp/earthquake/nuclear/hairo_osensui/alps.html (2021年11月15日アクセス) .
- Masson, M., Siclet, F., Fournier, M., Maigret, A., Gontier, G. and Bailly du Bois, P., (2005). Tritium along the French coast of the English Channel. *Radioprotection, Suppl.1*, **40**, S621–S627.
- Miyake, Y., Shimada, T., Sugimura, Y., Shigehara, K. and Saruhashi, K. (1975). Distribution of tritium in the Pacific Ocean. *Rec. Oceanogr. Works Jpn.*, **13**, 17–32.
- Östlund, H.G., Craig, H., Broecker, W. S. and Spencer, D. (1987). GEOSECS Atlantic, Pacific, and Indian ocean expeditions, **7**, Shore based data and graphics by GEOSECS executive committee, National Science Foundation. Washington, D. C, 1–200.
- Tanaka, K., Inoue, Y., Iwakura, T. and Kasida, Y. (1981). Tritium surveillance around nuclear facilities in Japan. Radioactivity Survey Data in Japan, NIRS-RSD-56, National Institute of Radiological Sciences, Chiba, 1–18.
- 渡辺 豊 (1991). Tritium in sea water and its use in oceanography. 博士論文, 北海道大学, 札幌, 1–98.
- Williams, J. L., Russ, R.M., Cubbin, D. and Knowles, J.F. (2001). An overview of tritium behaviour in the Severn Estuary (UK). *J. Radiol. Prot.*, **21**, 337–344.