

資 料

海生研シンポジウム2023 海洋環境におけるトリチウムの動態とモニタリング

2021年4月に政府が示した基本方針を受け、ALPS（多核種除去設備：Advanced Liquid Processing System）処理水の海洋放出に備えた様々な準備が進められている。処理水中に含まれる除去が困難なトリチウムについては、関係省庁が丁寧な説明を実施しているものの、水産業界や消費者を含めて国内外から懸念の声がある。

本シンポジウムでは、トリチウムに関する基礎知識や分析技術、海洋環境における挙動、海洋放出およびモニタリングの現状について、専門家による講演をとおして、最新知見の共有を図ることを目的とした。

プログラム

日時：2023年8月23日（水）14：00～17：20

場所：御茶ノ水ソラシティカンファレンスセンター 2階 sola city Hall [WEST]
（東京都千代田区神田駿河台4-6）

トリチウムとは？ その化学と科学と社会学

公益財団法人海洋生物環境研究所 フェロー 宮本 霧子

魚類のトリチウム移行に関する実験的研究

公益財団法人環境科学技術研究所 環境影響研究部 研究員 石川 義朗
安全確認を目的とした魚介類中トリチウム迅速分析法

一般財団法人九州環境管理協会

技術部 先進領域課 主席研究員 玉利 俊哉

福島第一におけるALPS処理水海洋放出に向けた取り組み

東京電力ホールディングス株式会社 福島第一廃炉推進カンパニー

プロジェクトマネジメント室 副室長 入野 隆之

海生研が実施する海域モニタリングの概要

中央研究所 海洋環境グループマネージャー・主幹研究員 小林 創

「トリチウムとは？ その化学と科学と社会学」

宮本霧子* §

1. はじめに

宇宙・太陽系の中で存在が確認されている元素の種類は、水素HからオガネソンOgまで118種類あるが、それらの存在する原子の全個数の90%以上は水素の原子であり、地球にも水分子H₂Oとして最も身近にある。水素原子の原子核には陽子が1個だけあるので原子番号は1だが、中性子の個数が0, 1, 2個と異なることによって質量数が異なる3種類の同位体が存在し、どれも水素として化学的には同じ性質がある。まず99.9%以上は原子核に中性子がない軽水素（プロチウム）と呼ばれる同位体であり、中性子が1個ある同位体は重水素（ジューテリウム, ²H, D）と呼ばれ、そして中性子が2個ある同位体が三重水素（トリチウム, ³H, T）である。トリチウムは原子核から最大18.6 keVのβ線を放出する性質があり、半減期が12.3年の放射性同位体であり、他の元素にも多数ある放射性核種の1つである。

大気中に存在する窒素や酸素の原子核が、宇宙線から発する中性子と核反応を起こし、トリチウムの原子核が生成するため、地球の周りの大気圏で毎年10¹⁶Bqも生成しており、太古より地球上に常に一定量存在していた。しかし自然界でのその存在が知られ始めた頃、まもなく原水爆の核実験が始まり、米国・ソ連・英国等による1945年以来の2,000回以上の核実験によって、他の多くのフォールアウト放射性核種と共にトリチウムも大気圏に放出され、1960年代のピーク時には地球上の濃度レベルが100倍に増加したこともあった。部分的核実験停止条約が1963年に調印され減り始めたものの、フランス・中国などが継続したこと、また地下核実験もあり、1980年までに10²⁰Bqのフォールアウトトリチウムが地球上に放出された。その後は原子力産業の発展で副産物として引き続き生成されてきたが、同時に核融合炉の燃料として期待される存在ともなった。トリチウムに対するそれらの懸念や期待を巡って、世界で行われてきた研究成果の一端と共に、国際社会がトリ

チウムとの合理的な付き合い方を議論してきた経過を紹介したい。

2. 自然界の観測による環境研究

トリチウムは水素ガスとして水として、環境中で拡散が早く、分離や除去が困難であるため、早期から環境汚染の懸念があったが、それだけではなく気象学や水理学に役立つことも期待されて濃度が盛んに測定された。1960年代から国際原子力機関IAEA（International Atomic Energy Agency）は世界気象機関WMO（World Meteorological Organization）との共同事業で世界150か所以上の地域から降水を受取って自らも測定しつつ、測定値を集めてデータベース化してきた（IAEA, 1960）。世界中どこかの降水も1960年代に濃度ピークがあったが、大気中水蒸気に希釈されて減少し、海面から供給される水蒸気で薄められ易い地域では降水中トリチウム濃度の減少が早かったことなども早々に情報共有されている（岩倉, 1975）。

核兵器工場や原子力施設のある国・地域では、降水ばかりでなく、大気水蒸気・地表水・地下水・温泉水・海水などのモニタリングも熱心に行われたが、その目的も環境汚染に対する懸念からだけではなく、トリチウムが地球上の水や水蒸気の移動についての目印、追跡子（tracer）として利用できる、地下水の年代測定もできるのではないか、などの期待が大きく、また水は他の放射性核種が環境中を移動するときの媒体となるため、トリチウムを検出することにより更なる環境汚染を事前に想定するための前駆体（precursor）の役割を果たすとして、世界ばかりでなく日本国内でも1960年代から多くの大学や研究機関で測定を始めている。そのために水試料を電気分解して測定濃度を高める濃縮技術の普及も早く、また弱いベータ線のみを放出するトリチウムの放射線計測法は、最初は水素ガスなどの気体に変えて行う気体計数法から始まったが、1970年代には水のまま測定できる大容量低バックグラウンド液体シンチレーションカウンタが放射線医学総合研究所で技術開発され、ALOKA社でLSC-LB1として製品化されて、IAEAに1台寄付するまでになった（Iwakura *et al.*, 1979）。

日本からIAEAに毎月送っていた降水は東京大

* 公益財団法人海洋生物環境研究所 事務局（〒162-0801 東京都新宿区山吹町347番地 藤和江戸川橋ビル7階）
§ E-mail: miyamoto@kaiseiken.or.jp

手町の気象庁屋上で採取されていたが、大気汚染が懸念されて1970年代に採取場所を岩手県大船渡市三陸町綾里の大気環境観測所に移していた。しかしその送付事業も今ではやめているとのことである。従って日本の降水中濃度の連続データとしては、千葉市で放医研が1970年代から毎月測定して2007年からは日本分析センターが継続しているものが、原子力規制庁の環境放射線データベースからダウンロードできるようになっている（原子力規制庁, 2023）。

1970年代には国内各地域の地下水や河川水の濃度観測値報告が多いが、飲料水源ともなっていた河川水の濃度は数10Bq/Lのレベルを超えていた。また地下水や河川水の濃度が降水の濃度よりも高いことがままあって、地下水のトリチウム濃度から単純に地下滞留時間を求められない、という問題に突き当たっていた。温泉水水源調査においても、地下深くから汲み上げられ期待通りにトリチウム濃度がほとんどゼロのものもあるが、降水の濃度よりも高いものもたくさん見つかると、大いに悩ませられた時代であった。結局その現象は地下水の帯水層を3層あると仮定したモデルを立てることで解決することができた。即ち降水が表面の地層に浸透してもすぐに地表に流出せずに2層目の帯水層に浸透するものがあり、10年程度（関東平野であれば）遅れて地表に出れば、1960年代の濃度が高い降水の影響が河川水に遅れて観測される。一部の地下水は更にもっと深部の3層目の帯水層に浸透して温泉水や井戸水として利用されるものもある。この仮説は地下帯水層を三段のボックスに見立て、降水によるトリチウムの供給量と河川水や地下水の濃度の変化を年毎の逐次計算を行うことによって証明された。関東平野全体については、浅層は約3年、その下層は約10年、最下層に30年の平均滞留時間を仮定すると、トリチウム濃度の実測値の変化を再現することができる（Miyamoto *et al.*, 1995）。

地下帯水層の規模が大きく河川の流域も広い大陸とは異なる日本では、半減期が12年余のトリチウムの核実験が盛んな時期の濃度ピークを有効に利用することができたと言える。フォールアウトトリチウムが崩壊して少なくなった現在では、極微量のトリチウム濃度の変動を利用した研究は困難であろうと思われるが、今でも長半減期放射性核種を利用した水理学研究は続いている。

3. 原子力施設モニタリングによる環境研究

1950年代から始まった核爆弾の製造、その後のエネルギー産業によって、核分裂の副産物としてトリチウムが世界各地の原子力施設で多量に生成した。事故と評価されたものには限らず、大気圏や水圏に定常的に放出され拡散したため、モニタリング観測が行われ濃度分布や環境移行について報告が多い。特に炉の冷却水に重水HDOを利用するCANDU型原子炉（Canadian Deuterium Uranium）を開発したカナダでは、重水素が中性子を吸収してトリチウムができ易い懸念から研究に熱心であった。炉の開発時期には施設敷地に廃棄物を埋設したことなどにより敷地内の湖のトリチウム濃度が数千Bq/Lにも達していた。

1986年チェルノブイリ事故が起こった後、IAEAが放射性核種の環境中での移行や拡散について、より正確な予測を行うためモデル開発を支援する国際協力プロジェクトを始めたが、特に2003年からのEMRAS（Environmental Modelling for Radiation Safety）事業ではトリチウムにも特化したワーキンググループを作った（IAEA, 2003）。国際協力で核融合開発計画が開始される機運の下で、燃料となるトリチウムに対する懸念からである。カナダ、英国、ドイツ、フランス、ルーマニア、日本などが、自国の観測値データ群を汚染シナリオとして提供して、参加国が自国の移行モデルを使って予想した計算値と比較議論するモデル検証活動が行われたが、カナダは終始まとめ役リーダーとして活躍した（宮本, 2008）。

カナダから提供された観測値はCANDU炉開発地のオンタリオ州チョークリバ研究所の敷地にあるパーチ湖の湖水濃度で、各国の参加者はそこに生息する藻類、魚貝類の組織自由水型トリチウム濃度TFWT（Tissue Free Water Tritium）と有機結合型トリチウム濃度OBT（Organically Bound Tritium）を自国のモデルを使って計算し、後で初めて明かされる実際の観測値と比較してモデルの妥当性を議論した。その結果、TFWTとOBTの実際の観測値は、両者の関係がほぼ1:1でありトリチウムはOBTに濃縮されていないことが明らかにされた（IAEA, 2006）。計算参加者の中には多少ともOBTの濃度がTFWTよりも高めの計算結果を報告したものもいたが、与えられた湖水の濃度は平均値・固定値ではなく、採取場所や季節によっても変動しているため、生息する生物の移動・代謝特性などを考慮したモデルを使うことに

よっては、その変化を鋭敏に捉える計算結果が得られることになる。もとより湖のような閉じられた環境とは異なり、濃度が変化し易い自然界の水環境で、TFWT濃度が環境水の濃度と同じになり、それがOBTへと代謝されるうちに、環境水の濃度の方が減少して、TFWT濃度がつられて減少すると、そのときに採取・測定された生物のOBT濃度はTFWT濃度よりも高くなり、濃縮が起こっているように見えることになる。生物による取り込みや代謝が早い水素原子として、トリチウムのモニタリング結果の評価には、環境の変化や生物の特性を考慮に入れた、総合的な洞察が必要であるということになる。

トリチウムの環境モニタリングにおいて、考慮に入れるべきもう1つの厄介なことは、医薬・生化学分野の調査研究の目的で、トリチウムで標識された多種類の人工有機化合物が作られ利用されていることである。バイオ事業の分野でも生化学反応、薬物動態の試験研究のために使われてきた。本来生体に取り込まれやすい化学形なので、もし適正な廃棄物処理が行われずにそのまま環境中に出された場合には、環境にいる生物が体内有機物に好んで取り込む可能性があり、OBT濃度が環境水のHTO濃度よりも高く、生物濃縮が起こっているように見える。イギリスやフランスでは、その影響とみられる観測結果が報告され、一時心配されたことがあったが、河川・海洋は除染されて、より厳しい廃棄物規制が行われるようになってきている (Eyrolle *et al.*, 2018)。また最近のバイオ事業ではなるべく放射性核種を使用せず、安定同位体即ち放射性崩壊をしない同位体を使った研究も増えているとのことである。

4. 放射線防護のためのしくみ

放射線利用における防護のための国際基準設定の枠組みは国際組織の連携によって作られている。まず国際放射線防護委員会ICRP (International Commission on Radiological Protection) は放射線科学の専門家の立場から放射線防護に関する勧告を行う国際的な学術組織で、X線やラジウムの医学利用が盛んになった1928年にその母体が英国に成立した。放射線防護方策の基礎となる基本原則を検討し、ICRPの後に番号を付した出版物シリーズを順次発行して、世界に向け勧告を行っている。詳細な項目別に議論するための日本人も参加するタスクグループがあり、毎年会合も開きなが

ら常に新しい学術的な知見やデータ群を集めて評価し、規制基準のための数字や技術的手法などについて、必要なパラメータなどを改訂して勧告し直す。

原子放射線の影響に関する国連科学委員会UNSCEAR (United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation) は、核実験と原子力の平和利用が始まる中で1955年に国連で立ち上げた科学委員会で、放射線の線源とその影響について国連加盟国からデータの提出を求め、それらを科学的に評価したものを加盟国向けに報告書とする。今ではICRPの勧告やUNSCEAR報告書はWebからダウンロードでき、随時日本語訳もある。またIAEAは、加盟している国々が、国際的に調和の取れた安全基準に基づいて、国内法令の整備を行えるよう支援するため、ICRPやUNSCEARが収集し、評価した知見や防護のための技術的な方針などを基本安全原則、国際基本安全文書などにまとめ公表している。

日本国内では、「放射性同位元素等の規制に関する法律」の下で放射線を利用しているが、ICRP勧告やIAEAの基本安全文書が発せられると、その内容の国内法令取入れについて、原子力規制庁放射線審議会で審議し必要な場合は法律の改訂を行っている。

5. トリチウムの放射線防護

トリチウムの環境中拡散への懸念から、環境観測が始まると共に、動物実験や疫学調査など放射線影響の研究も始まった。1960年代には、トリチウムが時計文字盤や信号の蛍光塗料に工業的に利用されて、工場の作業者が大量摂取する被ばく事故が起こり、原子力施設から漏れ出る事故も起こっている。1970年代にはICRPやIAEAなどの国際組織から、人を防護し環境中の濃度を規制するための勧告や出版物が次々と出された。日本でも1950年代に原子力利用についての法律が整備されると共に、日本放射線影響学会や日本原子力学会などの研究者も集まってきた。そして1980年代になると、核融合炉開発への期待から燃料となるトリチウムの大量取り扱い技術開発が進む中、改めて生体への影響が懸念され、科学研究費助成事業によるものなども含めて、哺乳動物個体や組織細胞、DNAを利用した実験研究が盛んに行われた。2000年代には国際熱核融合実験炉ITER (International Thermonuclear Experimental Reactor)

の国際共同プロジェクトが本格的に始まり、放射線影響についても国際的な膨大なレビューやデータ解析が行われ、その結果はUNSCEARが詳細なデータブックとも言える報告書をまとめ(UNSCEAR, 2016；環境科学技術研究所, 2021)、また日本でも放射線影響学会が、生物影響のレビューを出版したところである(日本放射線影響学会, 2019)。

放射性核種を飲んだり食べたりしたときに、どのくらいの内部被ばく線量を受けることになるか計算して、摂取量を許容できる範囲に制限するための防護の仕組みがトリチウムにもある。食品中の濃度にそれを体内に摂取する重量をかけ算して、調理で減少する割合なども補正し、最後にその放射性核種の影響する程度、危険度ともいえる線量係数というものをかけ算して、体内被ばくすることになる放射線量を求める。線量係数とは1Bq(ベクレル)を摂取した時に何Sv(シーベルト)の線量を受けたことになるかの基本定数であり放射性核種毎に決まっていて、この線量係数こそがICRPが長年努力して世界に向け勧告してきた基準値である。その放射性核種が生物に影響する特質について、実験観測や疫学調査されて学術論文等に発表された情報を評価し、まとめ上げて放射性核種別に定義した数字である。

放射性核種が生物に影響する特質としては、まずその核種が放出する放射線の種類やエネルギー、半減期などの物理的性質があり放射線加重定数として数値化される。またその核種が環境中や食品中でどのような化学形であるものなのか、その化学的性質とともに、生物が体内に取り込んだ後、吸収、循環、分布、集積、濃縮、排泄などの代謝における生物学的性質についても、多くの動物実験や疫学調査のデータ発表を評価する。またその核種を体内に取り込んでから排泄するまでの典型的な運命を代謝モデルという数式に表す。

トリチウムのICRP代謝モデルは、まず水として取り込まれた場合は97%は水として10日間の生物学的半減期で体外に排出し、3%は体内で蛋白質、炭水化物、脂肪などの有機物に代謝されるが、それらも総計として40日間の生物学的半減期で体外に排出するとしている。一方有機物の化学形で体内に取り込まれたものは、半分は水に代謝されるので半減期10日間で体外に出るが、残り半分は体内の有機物代謝経路に乗って、40日間の半減期で体外に出るとしている。

こうして学術情報の評価結果から放射性核種ごとに1Bqを体内に摂取した時に何Svの線量を受けたことになるかの定数、線量係数を定めるが、トリチウムについては水素としての特質が考慮された結果として、トリチウムの化学形別に、また摂取する人間の年齢別に線量係数を勧告している(ICRP, 1995)。成人が水HTOを取り込んだ場合の線量係数は 1.8×10^{-11} Sv/Bq、有機物OBTを摂取した場合は 4.2×10^{-11} Sv/Bqである。 ^{137}Cs の 1.3×10^{-8} Sv/Bqと比較するとトリチウムは3桁小さい。トリチウムが他の核種に比べて、世界の原子力施設から環境水中に多く放出することが許されてきたのは、水から除去することが困難だからではなく、水として拡散し濃度が薄まり易いことと、生物への放射線影響が小さいからである。

現在国内の法律では、一般の人が接する液体のトリチウム濃度は60,000Bq/L以下でなければならないとされているが、この数字は生まれてから70歳になるまでこの濃度の水を毎日飲み続けたときに、その人の内部被ばく線量が年間1mSvに達するものとして導き出された数値であり、人がその濃度の水と共存していてもよいとの基準を意味する。そしてこの限度を守るために、各原子力施設は環境中に放出してよいトリチウムの総量や濃度の目標値を決め、それを守るために環境のモニタリングが行われている。

6. 終わりに

トリチウムも化学的には水素として、水として、動植物に取り込まれると、生化学的な代謝・同化・異化作用が起こり環境生態系に拡散する。また水であるから水から分離して除くことは容易ではない。しかし生体への放射線影響は少ないので環境中でトリチウムと安全に共存することが可能である。このような科学的な考え方で、過去から今まで他の放射性核種と比べて環境中の濃度規制値は高く、飲料水としての基準値も高い。しかし通常とは異なる新たな行為によって、環境中濃度を上昇させるときには、科学的に安全なだけでは社会で容認されない。なぜその行為を行うことが必要であり合理的なのかについて同意を得るためには、化学と科学だけで考察するのは不十分で、社会学の力を借りなければならないかもしれない。

ICRPの最も有名な基本勧告として1977年の防護の三原則(ICRP, 1977)というものがある。

まず個人は線量限度を決めて防護すべきこと、また放射線の利用や発生の行為はプラスの便益が得られることよってのみ正当化されるべきこと、という2つの基本的な内容と共に、放射線によるリスクを軽減し人を防護するための行為は、社会性と経済性の視点から合理性がなければならぬとされている。即ちICRPは放射線から人を防護する行為は、純粋なサイエンスへの理解と共に社会学的な承認が必要であることに我々の同意を求めている。過去にはチェルノブイリ事故によって被ばく線量の上昇した地域で生活する住民の防護方策のために、ICRP自身が当事者に働きかける社会学的な活動を実践しており、福島事故後にも関与してきた。将来にわたる環境中トリチウムとの共存についても、科学的・社会学的な課題解決の実践と多くの支援が望まれる。

引用文献

- Eyrolle, F., Ducros, L., Le Dizès, S., Beaugelin-Seiller, K., Charmasson, S., Boyer, P. and Cossonnet, C. (2018). An updated review on tritium in the environment, *J. Environ. Radioact.*, **181**, 128–137.
- 原子力規制庁 (2023). 環境放射線データベース. <https://www.kankyo-hoshano.go.jp/data/database/>. (2023年10月12日アクセス).
- IAEA (1960). Global Network of Isotopes in Precipitation (GNIP). <https://www.iaea.org/services/networks/gnip>. (2023年10月12日アクセス).
- IAEA (2003). Working Group on Modelling of tritium and carbon-14 transfer to biota and man. <http://www-ns.iaea.org/projects/emras/emras-tritium-wg.asp?s=8>. (2023年10月12日アクセス).
- IAEA (2006). EMRAS Tritium/C14 Working Group, THE PERCH LAKE SCENARIO Final Report, May 2006. <http://www-ns.iaea.org/downloads/rw/projects/emras/2nd-combined-meeting/scenario-twg-perch-lake-final.pdf>. (2023年10月12日アクセス).
- ICRP (1977). ICRP Publication 26, Recommendations of the ICRP. International Commission on Radiological Protection. <https://www.icrp.org/publication.asp?id=ICRP%20Publication%2026>. (2023年10月12日アクセス).
- ICRP (1995). ICRP Publication 72, Age-dependent Doses to Members of the Public from Intake of Radionuclides: Part 5, Compilation of Ingestion and Inhalation Dose Coefficients. International Commission on Radiological Protection. https://journals.sagepub.com/doi/pdf/10.1177/ANIB_26_1. (2023年10月12日アクセス).
- 岩倉哲男 (1975). 一般環境におけるトリチウムの挙動とモニタリングのための予備知識. 保健物理, **10**, 131–140.
- Iwakura, T., Kasida, Y., Inoue, Y. and Tokunaga, N. (1979). A Low-Background Liquid Scintillation Counter for Measuring Low-Level Tritium. Behaviour of Tritium in the Environment (San Francisco, 16–20 Oct. 1978), Proceedings Series – IAEA, Vienna (1979), IAEA-SM-232/32, 163–171.
- 環境科学技術研究所 (2021). UNSCEAR2016年報告書科学的附属書C「内部被ばく核種の生物学的影響—トリチウム—」の日本語版. https://www.ies.or.jp/publicity_j/data/unscear_2016annex_v2.pdf. (2023年10月12日アクセス).
- 宮本霧子 (2008). IAEA EMRAS環境モデル検証プロジェクトトリチウム&炭素14作業部会の活動(トリチウム). 保健物理, **43**, 50–59.
- Miyamoto, K., Kimura, K. and Hongo, S. (1995). A Transfer Model of Tritium in a Local Hydrosphere. *Fusion Technology (Fusion Sci. & Technol.)*, **28**, 910–917.
- 日本放射線影響学会 (2019). トリチウムによる健康影響. https://www.jrrs.org/assets/file/tritium_20191111.pdf. (2023年10月12日アクセス).
- UNSCEAR (2016). SOURCES, EFFECTS AND RISKS OF IONIZING RADIATION. United Nations Scientific Committee on the Effects of Atomic Radiation. UNSCEAR 2016, Report to the General Assembly, with Scientific Annexes, ANNEX C. BIOLOGICAL EFFECTS OF SELECTED INTERNAL EMITTERS—TRITIUM. https://www.unscear.org/unscear/uploads/documents/publications/UNSCEAR_2016_Annex-C.pdf. (2023年10月12日アクセス).

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、 ^3H (Tritium, トリチウム: T) が管理目標値 9.7×10^{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 D_2O 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、 D_2O 試薬を添加して D_2O 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 D_2O 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°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 D_2O 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°C, 検出器温度は200°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、 D_2O 試薬を添加して D_2O 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°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。

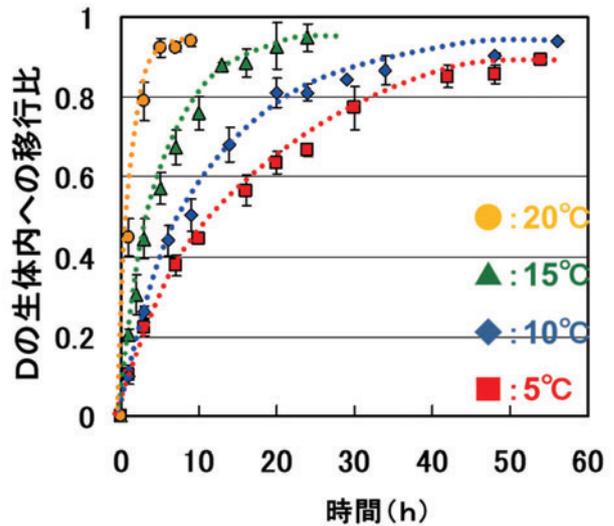
3. 結果

1) ヒラメへのFWD移行実験

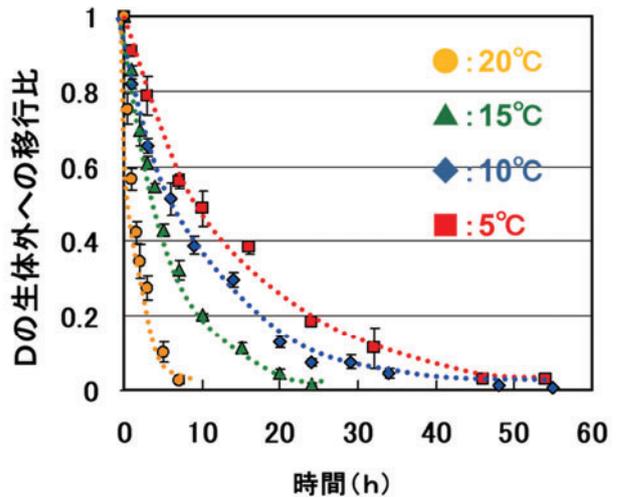
重水ばく露実験の結果を第1図に示す。横軸は時間 (h)、縦軸はDの生体内への移行比で表している。移行比とは、生体中の採取時のFWD濃度を分子、ばく露した海水中のD濃度を分母とした比率である。

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)

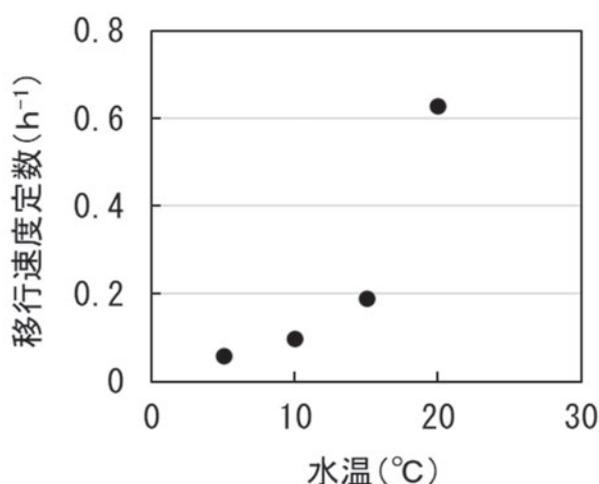


第2図 水温がヒラメのFWDの排泄に与える影響 (D添加海水で飼育したヒラメを天然海水に移して飼育)

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



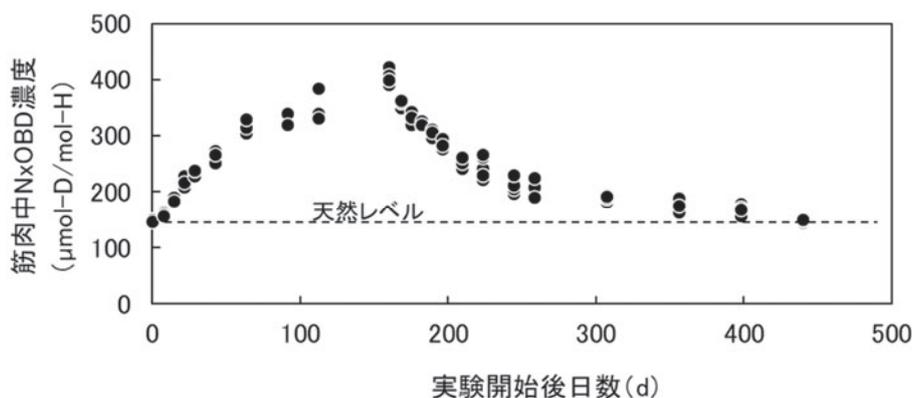
第3図 ヒラメへのDばく露実験におけるFWD移行速度定数と水温の関係

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ことが明らかになり、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.

「安全確認を目的とした魚介類中 トリチウム迅速分析法」

玉利俊哉* §

1. はじめに

分析測定における検出感度（検出下限値）の設定は、調査の規模、必要試料量、処理に要する時間、測定の必要時間、そして費用に直接関係する重要な事項であり、先ず調査の目的を明確にし、それに応じて慎重に設定されるべきである。定められた基準を下回ることを確認する等の安全確認、ある一定の感度を設定して経年変動を把握するモニタリング、出来る限り有意な数値を得、解析、評価する研究等、それぞれ分析処理に供する試料量が大きく異なることも多く、多量の試料が必要な場合はサンプリングによる試料確保さえ困難であることもある。

福島第一原子力発電所事故以降、国内における飲料水、食品等の放射性物質に係る基準が定められ、基準を下回ることを確認すること（安全確認）を目的とし、これに合わせた検出感度を設定したGe半導体検出器によるスクリーニング測定は既に一般化している。すなわち施設周辺環境モニタリング等において実施される、乾燥 - 灰化等による濃縮処理後、およそ1日かけて測定する念入りな手法ではなく、生試料のまま測定用容器に充填し、短時間で測定する迅速手法である。Cs-134+137については一般食品の基準値100Bq/kgに対し、魚介類の場合生2kgを直接測定し、1Bq/kg生を下回る程度の検出下限値が得られる十分な感度設定で測定されている。

一方、生物試料中トリチウム分析は、これまでは主に施設周辺モニタリングを目的とし、多量の試料を用い、前処理は煩雑で手間、時間がかかる手法で行われてきた。しかしこれは多数の試料の迅速な安全確認に対して適用することは困難である。トリチウムに係る魚介類の安全確認を目的とした場合の分析手法最適化を行い、迅速に安全確認が可能なスクリーニング手法として確立したものを今回紹介する（玉利ら, 2020）。

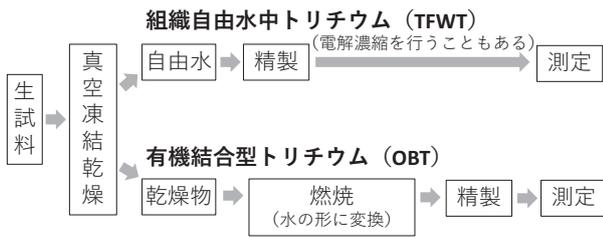
2. 現在の環境トリチウム濃度レベルと環境モニタリングにおけるトリチウム分析

大気圏核実験による影響が最大であった1960年代から50年以上経過した現在、一般環境中のトリチウム濃度は希釈、拡散と12.3年の半減期による減衰によって相当低くなっており、現在の河川水中トリチウム濃度は0.5Bq/L前後、海水中トリチウム濃度はさらに低く、0.1Bq/Lを下回る程度である（Akata *et al.*, 2016; Ohtsuki *et al.*, 2023）。日本における環境水のトリチウム分析では、一般的に蒸留精製した試料水50mLを100mL測定容器内でシンチレータと混合し、低バックグラウンド仕様の液体シンチレーションカウンタ（以下LSC）により500~1,000分の測定が行われるが、その検出下限値は0.3~0.5Bq/Lであるため、現在の環境トリチウム濃度は検出することが困難なレベルにあるといえる。環境モニタリングにおいて、このトリチウム濃度レベルを有意な数値として評価するためには、水試料を電気分解することでトリチウムを濃縮する、いわゆる電解濃縮法を用いる必要がある。これにより検出下限値0.05Bq/L程度が得られるが、濃縮に供する試料水が1 Lほど必要となり、濃縮前に行う蒸留精製、電解濃縮、濃縮後の再蒸留といった処理を経て測定終了するまで30日程度を要する。

生物試料中のトリチウムは、組織自由水に含まれるトリチウム（TFWT）、有機結合型トリチウム（OBT）の形態として存在する。一般的にこれらの形態毎にトリチウム分析は行われるが、その概要を第1図に示す。先ず生試料を真空凍結乾燥により自由水と乾燥試料に分別する。得られた自由水を有機物分解、蒸留により精製しTFWT試料水とする。得られる自由水の量が多い場合には電解濃縮を行うケースもある。乾燥試料は石英管中で酸素を流しながら燃焼して燃焼水を得た後、自由水と同様の処理を行いOBT試料水とする。得られる燃焼水は少量であるため、電解濃縮は通常行われない。精製された試料水はシンチレータと混合し、LSCにより測定される。測定される濃度単位は水体积当たりであるBq/Lであるが、試料の含水率と水素含有率を用いて試料重量当たり濃度単位 Bq/kg生に変換される。TFWT、OBTの目標

* 一般財団法人九州環境管理協会 調査分析部（〒812-0004 福岡市東区松香台1-10-1）

§ E-mail: tamari@keea.or.jp



第1図 一般的な生物試料中トリチウム分析法の概要

検出下限値を、現在の環境トリチウム濃度に合わせて設定すると、約1,200g生という多量の試料が必要であり、処理に多くの日数が必要となる上、装置は大型化し、複数試料の同時処理が困難となる。TFWTを電解濃縮法で分析するケースが最も日数がかかり、分析必要日数は最短で1.5か月である。このように、環境モニタリングにおけるトリチウム分析では、多くの労力と時間が費やされている。

3. 魚介類中トリチウム迅速分析法

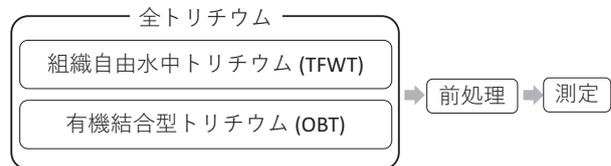
1) 目標検出下限値の設定

安全確認のための検出感度は、基準、ガイドラインが存在する場合、それに基づいて設定するのが合理的である。食品については、CODEX委員会により輸入による国民の平均被ばく線量評価のための放射性核種に係るガイドラインレベルが定められている (FAO/WHO, 1995)。トリチウムに関してはOBTのみが示されており、乳児用食品について1,000Bq/kg、乳児用食品以外の食品について10,000Bq/kg がガイドラインレベルとなっている。安全確認のための目標検出下限値は、乳児用食品のガイドラインの1/10である100Bq/kgに設定した。この目標に対する分析の規模を次に考える。一般環境モニタリングにて使用される低バックグラウンドLSCの感度は、測定水10mLを小容量20mLの低拡散ポリエチレン製バイアルの測定容器で測定した場合、50min測定で約5.5Bq/Lである。魚介類供試量を、取扱い易さを考慮して10g生とし、これの全てがLSC測定されたと仮定すると、試料重量あたりの検出下限値は5.5Bq/kg生であり、目標検出下限値を十分に達成可能であることがわかる (実際には前処理で得られた回収水量の7割程度が測定されるため、これよりわずかに高い検出下限値となる)。10g生という少量の供試量で十分に分析可能であることは、処理時間の短縮、装置の小型化、複数試料の同時処理による

分析可能数増加に繋がる。

2) 測定対象とするトリチウム形態の設定

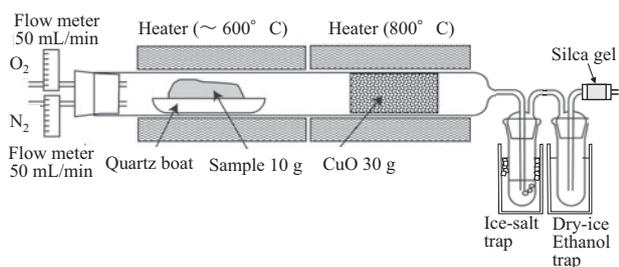
一般的に生物試料のトリチウム分析は、真空凍結乾燥により自由水と乾燥物を分別し、自由水でTFWTを、乾燥物でOBTを別々に前処理、測定するが、1試料あたり2種の分析測定を行うことになり迅速性に欠ける。本手法では迅速に安全確認を行うためにTFWTとOBTを区別せず、その試料に含まれる全トリチウム (TFWT+OBT) を評価することとした (第2図)。1試料につき前処理、測定を1回とすることで分析時間は短縮され、操作は簡便化される。



第2図 全トリチウム迅速分析のイメージ

3) 魚介類中トリチウム迅速分析法

魚介類中トリチウム迅速分析法の概要は、試料を生のまま石英管中で徐々に加熱、燃焼させ、自由水と燃焼水をまとめて混合試料水として回収し、測定するものである。燃焼装置図を第3図に示す。外径2.5cm、長さ60cmの石英管を用い、石英管後部には試料から発生する燃焼ガスを酸化するための酸化銅を配置し、これを管状炉により800℃で加熱する。水回収系のトラップは2段構成としており、1段目は予め無トリチウム水5mLを添加したバブリングによる氷-塩冷却トラップであり、2段目は捕集をより確実にするためのエタノールドライアイスによる低温冷却トラップである。生試料は試料皿に載せ、管前方に挿入し、酸素、窒素混合ガスを流しながら試料部の管状炉を徐々に昇温し、最終的に600℃として試料を完全に燃焼させる (本工程の所要時間は約4時間である)。トラップには、昇温工程初期に試料の自由水が捕集され、その後燃焼水が混合捕集される。魚試料の場合、この工程で得られる回収水は、予め添加した無トリチウム水を含めて約14mLとなる。回収水は酸性となるが、その中和のためにNa₂O₂を少量、さらに溶存する有機物の分解のためにKMnO₄を少量加えて蒸留し、測定用試料水とする。測定用試料水10mLとシンチレータ10mL



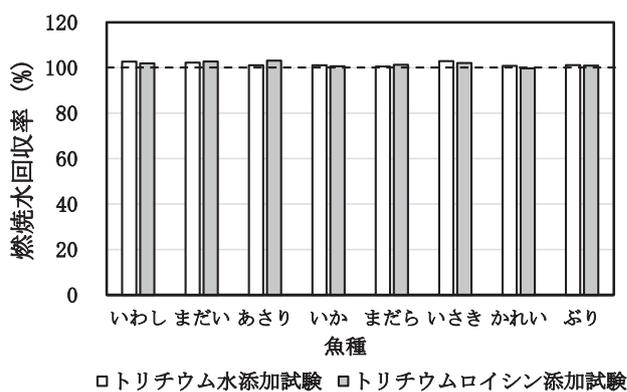
第3図 燃焼装置

(Ultima Gold uLLT, Perkin Elmer)を20mL低拡散ポリエチレン製測定バイアル中に混合し、低バックグラウンドLSCにて50min測定する。LSC測定によって得られる濃度、検出下限値は、予め添加された無トリチウム水5mLを含む回収水あたりの濃度である。後述するが、加熱 - 燃焼工程における回収水の収率は完全であるので、測定により得られた濃度から回収水中のトリチウム全量を計算し、分析供試重量で除することで試料重量当たり濃度は容易に算出される。試料重量あたりの検出下限値は、低バックグラウンド仕様LSCによる50min測定で10Bq/kg生を下回る程度であり、目標検出下限値100 Bq/kg生を充分達成している。さらに、全トリチウム (TFWT+OBT) が試料重量当たり10Bq/kg生未満であることは、TFWTも、OBTも、それぞれ10Bq/kg生未満であることを意味する。CODEXガイドラインにおいて、トリチウムはOBTが対象とされているため、この点は重要である。分析必要時間は1検体の場合、生試料の捌き作業開始から測定終了まで最短で約11時間、このうち人手が必要な作業時間は約6時間であり、大幅な時間短縮と省力化を達成した。

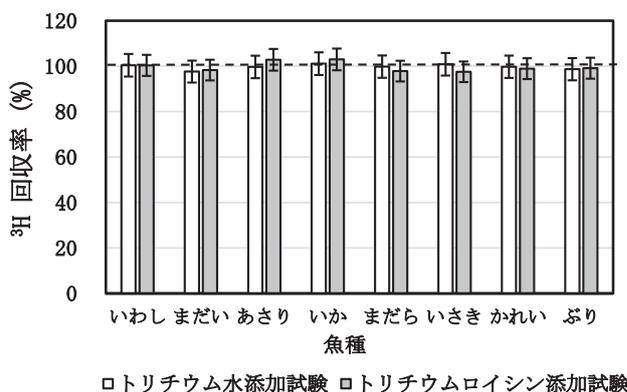
4) 本分析手法の妥当性評価

本手法の妥当性確認のため、TFWTの試験としてトリチウム標準溶液(日本アイソトープ協会製)を希釈したトリチウム水を、OBTの試験としてトリチウムでラベルされたロイシン (L-leucine [4, 5 - 3H], American Radiolabeled Chemicals) から調製した溶液を用い、一定量を魚介類生試料10gの数か所にマイクロシリンジで注入し、8種の魚介類を使用して試験した。得られた回収水の収率を第4図に示す。試料から回収されるべき理論水量は、試料の含水率と水素含有率を別途測定した結果から算出される。この理論水量に対する、試験における回収水量の収率は、すべての試験についてほぼ100%であり、回収水の損失はほとんどな

いことが確認された。さらに、添加したトリチウム量に対する、分析測定により得られたトリチウム量の収率を第5図に示す。トリチウム水添加試験、トリチウムロイシン溶液添加試験双方とも、トリチウムの回収率はほぼ100%であった。これらのことから、本実験系は全トリチウム分析として妥当なものであるといえる。一方、LSC測定により得られた体積当たり濃度単位Bq/Lを試料重量あたりの濃度単位Bq/kg生に変換するためには、含水率と水素含有率を別途測定する必要があるが、迅速性を損なう。これらの試験結果により、本実験系を用いる場合は回収水とトリチウムの損失は無いことが確認されていることから、生試料重量あたりの濃度は、含水率と水素含有率の測定を行わずに、回収水中のトリチウム絶対量と分析供試量から計算して良いといえる。



第4図 回収水の収率



第5図 トリチウムの収率

5) 本手法により確認可能な線量

摂取による内部被ばくへの寄与の程度は放射性核種毎に異なるため、安全確認は線量により評価されるべきである。本手法による魚介類試料中全

トリチウム分析の検出下限値は10Bq/kg生程度である。一方、Cs-137について、生2kgをGe半導体検出器により安全確認のための測定を行った場合の代表的な検出下限値は1Bq/kg生程度である。検出下限値を濃度で比較し、本手法による魚介類中トリチウム安全確認は感度が足りず劣っている、とするのは間違いであり、検出下限値相当濃度の魚介類を摂取した場合の年間内部被ばく線量で考える必要がある。摂取による年間内部被ばく線量 (mSv/年) は、[放射性物質の濃度 (Bq/kg)] × [年間摂取量 (kg)] × [実効線量係数 (mSv/Bq)] で計算される。令和元年国民・健康栄養調査 (厚生労働省, 2020) によると、日本人の年間魚介類摂取量は 13.7 ± 21.0 kgである。魚介類を多量に摂取するグループを平均 + 標準偏差×3で設定し、年間76.7kgとする。また、トリチウムのTFWT, OBTの実効線量係数はそれぞれ 1.8×10^{-8} , 4.2×10^{-8} mSv/Bqであり、Cs-137は 1.3×10^{-5} mSv/Bqである。本手法における全トリチウムでは、より安全側の評価とするためにOBTの実効線量係数を用いるものとする。これらの条件から摂取による年間内部被ばく線量を計算して考えると、魚介類を多量に摂取した場合においても、全トリチウム濃度が10Bq/kg生未満であることは、摂取による年間内部被ばく線量が 3.2×10^{-5} mSv未満であることが確認されることとなる。同様にCs-137が1Bq/kg生未満であることは年間 1.0×10^{-3} mSv未満であることが確認されることとなる。つまり、本手法による全トリチウムスクリーニングは、より低い線量まで評価しているといえる。また、これらは国際放射線防護委員会 (ICRP) が提案している一般人の年間被ばく線量限度である1mSv (自然放射線を除く) を大きく下回っている。

4. まとめ

トリチウムに係る魚介類の安全確認を目的とした場合の分析手法最適化を行い、迅速に安全確認

が可能なスクリーニング手法を確立した。生試料10gを管状炉で加熱、燃焼することでTFWTとOBTを混合して回収し、全トリチウムとして分析することにより、分析開始から最短約11時間で結果が得られ、大幅な時間短縮を実現した。低バックグラウンドLSCを測定に使用した場合の検出下限値は、全トリチウムとして約10Bq/kg生 (試料重量あたり) であり、CODEX委員会によりOBTとして設定されている乳児用食品のガイドライン1,000Bq/kg に対し、本手法は十分な検出感度を有している。この検出下限値を、摂取による内部被ばく線量に換算して考えると、多量に魚介類を摂取した場合においても年間 3.2×10^{-5} mSv未満であることを本手法は確認可能である、といえる。これは一般公衆の年間線量限度1 mSv/年に対して大変低い値である。

引用文献

- 玉利俊哉・島長義・百島則幸 (2020) . 線量評価のための魚介類中トリチウム迅速分析法. 保健物理, **55**, 136-143.
- Akata, N., Tanaka, M., Kato, H., Yamanishi, H., Kakiuchi, H., Hayashi, H., Miyake, H. and Nishimura, K. (2016). Long-term monitoring of tritium concentration in environmental water samples collected at Tono area, Japan. *Plasma Fusion Res.*, **11** (1305032).
- Ohtsuki, S., Shirotani, Y. and Takata, H. (2023). Distributions of tritium and ¹³⁷Cs in coastal seawater and biota off Aomori and Iwate prefectures, Japan. *J. Oceanogr.* Doi.org/10.1007/s10872-023-00697-2.
- FAO/WHO (1995). Codex general standard for contaminants and toxins in food and feed, codex stan 193-1995.
- 厚生労働省 (2020). 令和元年 国民健康・栄養調査報告, 厚生労働省, 東京, 1-232.

「福島第一におけるALPS処理水海洋放出に向けた取り組み」

入野隆之* §

1. はじめに

トリチウムの水域環境・生体中の挙動については内外で多数の先行研究が行われ、生体内のトリチウム濃度は環境水の濃度以上とはならず、一定期間で平衡状態に達することが明らかにされている。また、放出水中のALPS処理水中のトリチウム（1,500ベクレル/L未満）の安全性については、科学的には担保されている。さらに当社や関係機関において、希釈放出前の濃度測定や海域モニタリングなどを通じて放射性物質濃度を数字として公表している。それでもなお、安全性を心配するご意見をいただいていることから、ALPS処理水を添加した海水で海洋生物を飼育することにより、目に見える形で海洋生物に影響がないことを示すために、2022年3月より海洋生物飼育試験に着手した。

2. ALPS処理水を用いた飼育試験

1) 飼育装置および飼育方法

飼育対象生物には、魚類としてヒラメ*Paralichthys olivaceus*、無脊椎動物としてエゾアワビ*Haliotis discus hannai*、藻類としてホンダワラ*Sargassum fulvellum*を選定した。また、飼育開始時点ではALPS処理水を外部に排出できないことから、閉鎖循環式で飼育を実施した。

容量約1トンの角形飼育槽4基、約0.5トンの角形飼育槽1基、海藻培養槽2基（容量約0.3トン円筒水槽および0.4トン角形水槽）、硝化槽（容量約0.1トン円筒水槽×3基）、ばっ気塔（容量約0.1トン円筒水槽）、カートリッジフィルター（目合い100および10 μ m×各3）、紫外線照射装置、プロテインスキマー、水温調節装置（クーラー+ヒーター）からなる、総水量約4.5トンの閉鎖循環式水槽（第1図）4式を設置し、2式を通常海水飼育区（通常海水①および②）、2式をALPS処理水添加海水飼育区（ALPS処理水①および②）とした。硝化槽に充填したプラスチック濾材は、約2カ月

間、10mg-N/L塩化アンモニウム添加海水中で熟成させたものを用いた。

飼育海水には、福島第二原子力発電所港湾から採水し、フィルター濾過（50→20→1 μ m）した天然海水を用いた。ヒラメ（体重36±12g）は福島県栽培漁業協会から、エゾアワビ（殻長5.8±2.4cm）は北日本水産から入手した。2022年9月13～14日に計758尾のヒラメを飼育水槽に導入した。本飼育に先立ち実施した練習・訓練飼育において対応に苦慮した単生類寄生虫*Neoheterobothrium hirame*の持ち込みを防止するため、導入直前に3%食塩添加海水×60分間の塩水浴を行った。ヒラメの状態に問題がなく、水質も安定していることが確認できた2022年9月30日を試験開始日（試験0日目）とした。エゾアワビは2022年10月25～28日に計768個体を飼育水槽に導入した。ヒラメおよびエゾアワビは同一系統内の閉鎖循環水槽内で飼育した。ヒラメおよびエゾアワビには市販の配合飼料を定量給餌（ヒラメ；計測時の総体重の1～2%の飼料を、毎日一回からヒラメの成長に応じ週4回給餌；エゾアワビ；翌日に残餌を確認し、残餌がない場合は給餌量を増やして毎日給餌）した。

トリチウム測定用に生物を定期的に採材することにより供試尾数変動すると、生存および成長を比較・評価することが困難となる。そこで、2022年12月19～20日に、容量約1トンの角形飼育槽4基のうち1基にヒラメ50尾を収容し、その水槽からはトリチウム測定用のヒラメを採材することなく飼育を継続した。約半年後の2023年6月20～21日に計測を行い、生存および成長を比較した。

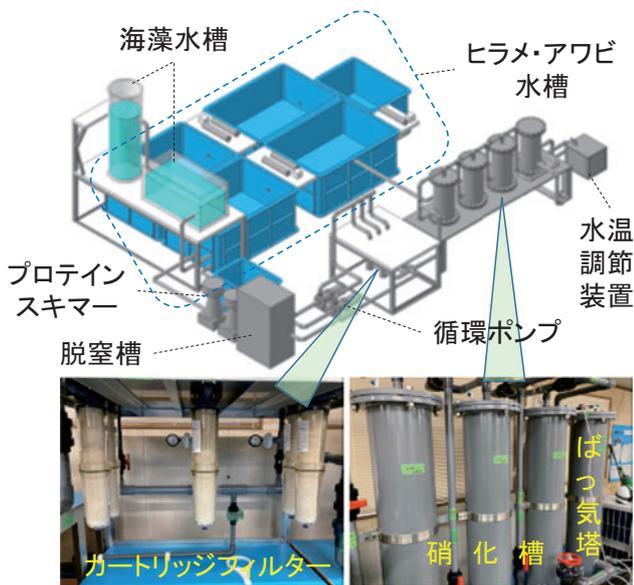
ホンダワラは2023年5月9日に福島第二原子力発電所地先から採取し2日間のトリチウム取り込み・排出試験を行った（長期間の栽培は行わなかった）。海藻に付着した微生物類がヒラメやエゾアワビに及ぼす影響が懸念されたため、ホンダワラは循環系統から隔離した状態の海藻水槽に収容して試験を行い、海藻水槽内の海水はホンダワラを取出し後、3カ月程度紫外線殺菌を行ってから循環系統に戻した。

水温は18℃設定とした。カートリッジフィルター内のフィルターは週3回新たなものに交換した。トリチウム飛散防止の観点から、ブローアに

* 東京電力ホールディングス株式会社 福島第一廃炉推進カンパニー プロジェクトマネジメント室（〒100-8560 東京都千代田区内幸町1丁目1番3号）

§ E-mail: irino.takayuki@tepcoco.jp

よる給気はばっ気塔内および海藻水槽内でのみ行った。飼育水の水質は第1表に示す方法で測定・調整した。飼育水の塩分および水位に応じ、天然海水または残留塩素を中和した水道水（いずれもALPS処理水を適宜添加）を補充した。硝化に伴いpHが低下した際には飼育水1トン当たり約200gのNaHCO₃を飼育水に添加した。試験45日目以降、容量約0.3トンの脱窒槽（オーシャンクリーナー N₂, S100, 大洋水研）を稼働させた。



第1図 飼育試験装置

第1表 測定した水質項目と測定方法

水質項目	維持する目安	測定方法	測定頻度など
水温	18℃	熱電対法	毎日1回
溶存酸素	飽和度80~100%	蛍光法	毎日1回
塩分	30~33	屈折率法	週1回、飼育開始時32
pH	7.5~8.1	ガラス電極法	毎日1回、飼育開始時8.1、硝化(アンモニア→硝酸)に伴い低下
アンモニア	0.5 mg-N/L以下	インドフェノール青法	週3回、硝化細菌の働きにより硝酸に酸化
亜硝酸	0.5 mg-N/L以下	ナフチルエチレンジアミン法	週3回、脱窒槽の働きにより大気中に排出
硝酸	50 mg-N/L以下	亜鉛還元法	週3回、脱窒槽の働きにより大気中に排出

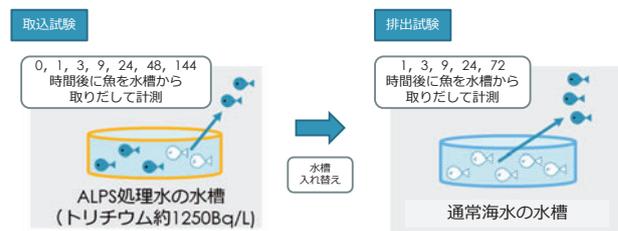
2) トリチウム取り込み・排出試験

生物中の組織自由水 (Free Water Tritium, FWT), 有機結合型トリチウム (Organically Bound Tritium, OBT) への移行測定は、前述の天然海水にALPS処理水を添加し、トリチウム濃度を1.3 kBq/Lに調製した環境中で飼育したものを測定した。

各海洋生物がトリチウムを取り込み、一定期間経過後に生育環境より低い濃度で平衡状態になることを検証するため、海洋生物をALPS処理水中に入れてからトリチウムの濃度を測定する【取込試験】を行った (第2図)。

その後、同一水槽の海洋生物を通常海水に入れてから、海洋生物がトリチウムを排出してトリチウム濃度が下がることを検証するため、トリチウム濃度を測定する【排出試験】を行った (第2図)。

またヒラメOBTの測定の試料は、概ね1~2か月程度の間隔で採取し、凍結乾燥後Ge半導体検出器によりγ核種濃度を確認した後、燃焼法によりOBT濃度を測定した。



第2図 取込・排出試験の例 (ヒラメFWT測定の場合)

3. 結果と考察

1) 生物飼育

飼育試験における飼育水の水質は、通常海水区とALPS処理水区でほぼ同等であった (第2表)。水温、溶存酸素飽和度、アンモニア、および亜硝酸は、概ね維持する目安(第1表)内に維持された。

pHは6.8～8.0，硝酸は0～206mg-N/Lの間で変動した。pHの低下および硝酸の上昇は，脱窒槽が十分に働かず，硝化によるアルカリ消費が脱窒によるアルカリ生成を上回る時期に生じた。これまでの閉鎖循環式でのヒラメの飼育に関する既存知見（本田ら，1994）から，本飼育試験における飼育水の水質は，ヒラメの生存および成長に影響を及ぼさない範囲に維持できたと考えられた。一方，アワビ類の飼育において，Leighton（2008）が理想的な水質はアンモニア1mg-N/L以下，亜硝酸0.5 mg-N/L以下，pH8.0～8.2，硝酸50mg-N/L以下，溶存酸素飽和度90%以上としている。本飼育ではほとんどの場合，上記の値をpHは下回り，硝酸は上回った。

約半年間の生存と成長を比較した結果，通常海水区とALPS処理水添加区との間に差異は認められなかった（第3表）。すべてのヒラメのうち，飼育期間全体（2022年9月30日～2023年10月12日：377日間）での死亡数は5尾であり，初期の導入数に対する生残率（トリチウム分析用に採材した尾数は考慮していない）は99%であった。死魚数は通常海水区（①，1尾；②，2尾）とALPS処理水区（①，0尾；②，2尾）で同等であった。死亡したヒラメには特段の感染症の兆候は認められず，目を怪我したことで摂餌が困難となり成長が劣った個体がほとんどであった。本飼育は現在も継続中であるが，死亡魚およびトリチウム測定用採材魚に*N. hirame*の寄生は認められず，水槽内から*N. hirame*の卵も確認されていない。

エゾアワビについては飼育期間中に死亡が継続した。飼育開始から350日間の生残率は，通常海水およびALPS処理水区ともに約50%であった。これまでに閉鎖循環式により長期間エゾアワビを飼育した事例は少ない。Park *et al.*（2008）は，送水量約60m³の循環濾過水槽を用い155日間の飼育を行った結果，88～92%の生残率を得ている。この値は本飼育での155日後での生残率86%と同等であった。本飼育における死因としては，前述したpHの低下および硝酸の蓄積が考えられ，脱窒槽の安定的な機能発揮が今後の課題となる。なお，エゾアワビの成長の評価については飼育期間中死亡が継続し，計測の際の剥離がさらなる死亡の原因となることが懸念されたため実施しなかった。

第2表 飼育試験における飼育水の水質

水槽	水質	水温(°C)	溶存酸素飽和度(%)	pH	アンモニア(mg-N/L)	亜硝酸(mg-N/L)	硝酸 [※] (mg-N/L)
通常海水	①	18.1±0.5	96±3	7.5±0.2	0.2±0.0	0.1±0.1	57±25
	②	18.1±0.4	92±4	7.5±0.2	0.2±0.0	0.1±0.1	66±40
ALPS処理水	①	18.0±0.4	92±3	7.5±0.2	0.2±0.1	0.1±0.1	67±39
	②	18.1±0.5	93±3	7.5±0.2	0.3±0.3	0.2±0.2	80±49

平均値±標準偏差で示した。
[※]、試験開始時～脱窒槽稼働前のデータを含む。

第3表 飼育試験におけるヒラメの生存と成長

水槽	生残率(%)	全長(mm)	成長率(%)	体重(g)	増重率(%)	給餌量(kg)	餌料効率(%)
通常海水①	100	220 ± 19	41	117 ± 31	180	9.06	116
		310 ± 29		328 ± 99			
通常海水②	100	219 ± 19	42	116 ± 32	176	9.06	113
		312 ± 35		320 ± 110			
ALPS処理水①	100	215 ± 19	46	118 ± 28	164	8.91	109
		314 ± 32		312 ± 96			
ALPS処理水②	98	219 ± 19	42	124 ± 33	159	8.78	117
		312 ± 31		321 ± 107			

各水槽に50尾を収容し，市販の配合飼料を0.9～2g/尾・日与え，184日間飼育した。全長および体重は，上段に開始時，下段に終了時の値を示した。
 成長率：(終了時のヒラメの全長-開始時のヒラメの全長)÷開始時のヒラメの全長
 増重率：(終了時のヒラメの体重-開始時のヒラメの体重)÷開始時のヒラメの体重
 餌料効率：(終了時のヒラメの総重量-開始時のヒラメの総重量)÷与えた配合飼料の量

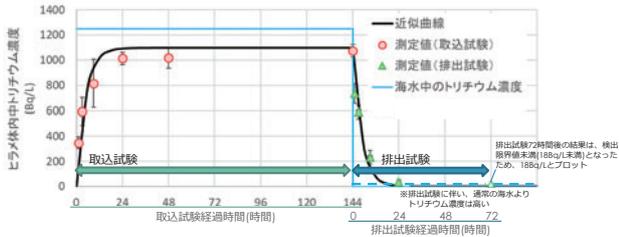
2) トリチウム濃度測定

各生物種におけるFWT濃度の経時変化を第3～6図に平均と標準偏差で示す。FWT濃度はばく露開始後24時間程度で飽和し，飼育水のトリチウム濃度を超えることはなかった。また，処理水を添加していない海水に移動した後24時間でFWT濃度は飽和値の10%以下まで低下した（第3図）。

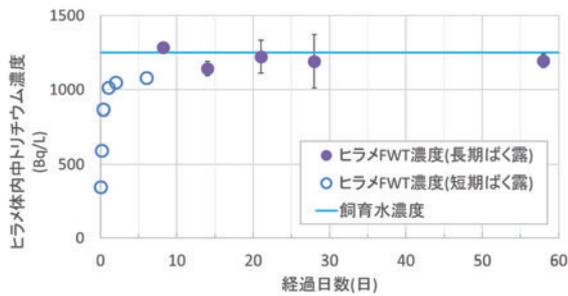
また，ヒラメのFWT濃度は上記の通り2日間で1.0 kBq/Lまで上昇した後，半年の間穏やかに上昇し，飼育水中濃度に等しい1.3 kBq/Lに至った。ヒラメFWTは交換が早い成分と遅い成分が存在していると考えられる（第4図）。

アワビおよびホンダワラのFWT濃度はともに1時間程度で飽和し，トリチウム無添加の海水に戻した後1時間程度で排出された。アワビの飽和FWT濃度は飼育水と同じ1.3 kBq/Lであったが，ホンダワラは1.2 kBq/L程度にとどまった（第5図，第6図）。

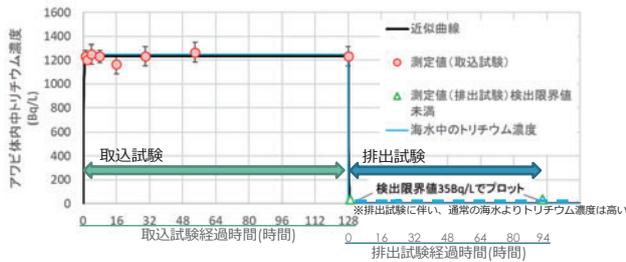
ヒラメ中OBT濃度は飼育期間単調に増加した。また， γ 核種は検出されなかった。現時点において，環境科学研究所（2014）が示した計算モデルにより予測される濃度と同程度であることが確認され，OBT濃度は既存の水素同位体へのばく露実験と同様の経過をたどると見込んでいる（第7図）。



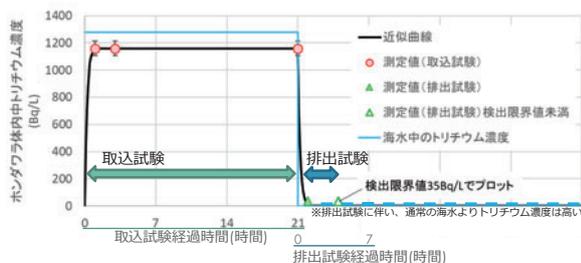
第3図 ヒラメのFWT測定結果（短期）※



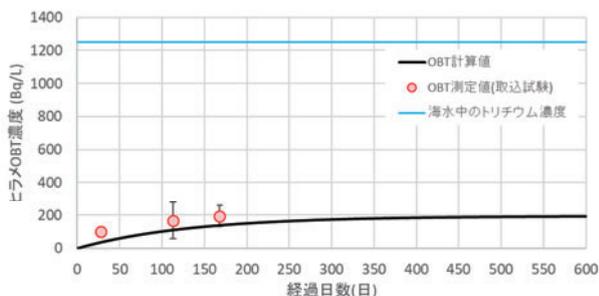
第4図 ヒラメのFWT測定結果（長期）※



第5図 アワビのFWT測定結果※



第6図 ホンダワラのFWT測定結果※



第7図 ヒラメのOBT測定結果※

4. おわりに

今後はヒラメのOBTについて、平衡に達するまで取り込み試験を行い、それに引き続き通常海水にヒラメを移しOBT排出試験を行う予定である。また、2023年8月24日に放出を開始したALPS処理水を含む海水を用いた海洋生物の飼育試験も行う予定である。

謝 辞

本試験の実施にあたり、近畿大学水産研究所教授 家戸敬太郎博士、海洋生物環境研究所ならびに電力中央研究所の関係各位には、海洋生物飼育に関する有益なご助言をいただいた。福島県栽培漁業協会の関係各位にはヒラメをご提供いただいた。茨城大学大学院理工学研究科教授 鳥養祐二博士、ならびに環境科学技術研究所の関係各位には、トリチウム測定などに関する有益なご助言をいただいた。東京パワーテクノロジー福島事業所、シガ環境、青田興業の関係各位には、海洋生物飼育に際して様々なご協力をいただいた。ここに記して感謝の意を表する。

引用文献

- 本田晴朗・菊池弘太郎・渡部良朋・岩田仲弘・武田重信・植本弘明・古田岳志・清野通康 (1994) .ヒラメ用循環濾過養魚システムの設計と運用. 電力中央研究所報告, **U94018**, 1-29.
- Leighton, P. (2008). Abalone Hatchery Manual. *Aquaculture Explained*. **25**, 1-89.
- Park, J., Kim, P.K. and Jo, J.Y. (2008). Growth performance of disk abalone *Haliotis discus hannai* in pilot- and commercial-scale recirculating aquaculture systems. *Aquacult. Int.*, **16**, 191-202.
- 公益財団法人環境科学技術研究所(2014). 平成26年度排出トリチウム生物体移行総合実験調査報告書. 公益財団法人環境科学技術研究所, 青森, 103-110.

※図中の各プロットは、平均値と標準偏差で示している。

海生研が実施する海域モニタリングの概要

小林 創^{*§}

1. はじめに

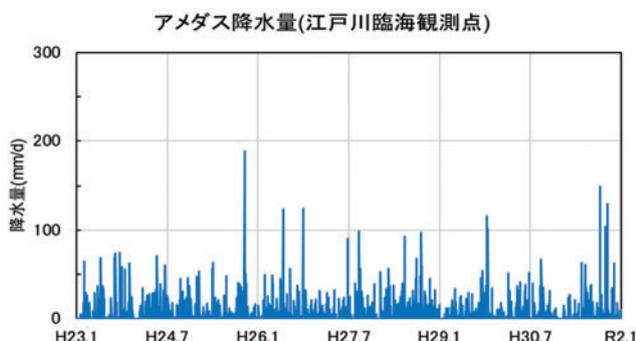
Monitoring：モニタリングという単語は監視すること、観察し記録することを意味している。一般的に「モニタリング調査」では“定点”で“定期的”に環境データを取得することでその推移を把握し、データに大幅な変化があった場合の原因説明とともに、環境全体への影響を推定する。

モニタリングデータの例としては、日頃、天気予報で耳にするアメダスデータがある。

地域気象観測システム(AMeDAS：アメダス)で日々観測される降水量データをまとめると第1図のような経時変化が得られる。

一方、「水」に関連する情報として、水文水質データベースから河川流量の推移をまとめると第2図のような経時変化が得られる。

2つのデータを比較することで、降水量の変化と河川流量の変化にある程度同調性があることが確認できる。



一方、水深の浅い沿岸至近域の場合は、小型船舶で第5図に示す投げ込み式ポンプを用いて採水するなど、対象エリアで最適な装備、方法を採用して作業を行っている。



第5図 投げ込み式水中ポンプによる小型船での採水

3. 福島第一原子力発電所事故後の放射能モニタリングの仕組み

東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故を受けて、陸域～海域に至る広範な調査範囲の水、土壌、野生動植物を対象として、国、福島県、東京電力で分担してモニタリングを進める「総合モニタリング計画」を国が定めて、環境中の放射能濃度の継続的な計測が進められているが、その内容は調査項目で異なる主体が実施するものとなっている（第6図参照）。

野生動植物、廃棄物、除去土壌
→環境省，地方自治体(福島県)，事業者等
農地，林野，牧草地等
→農水省，林野庁，地方自治体(福島県)
港湾，公園，下水道等
→国交省，福島県，地方公共団体

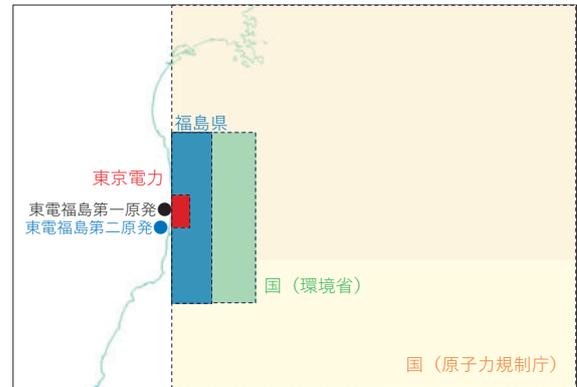
第6図 総合モニタリング計画に基づく陸域モニタリング

総合モニタリング計画の内、海域については「海域モニタリングの進め方」で実施主体と調査内容を定めて調査が進められてきている。

海水及び海底土について原子力規制庁、国交省、環境省、福島県、東京電力が、水産物を水産庁が分担する実施体制となっている。

海域モニタリングの進め方における海水及び海

底土の調査測点について、海域と実施主体の区分を大まかに整理すると第7図に示すイメージになる。



第7図 モニタリング海域と実施機関のイメージ図

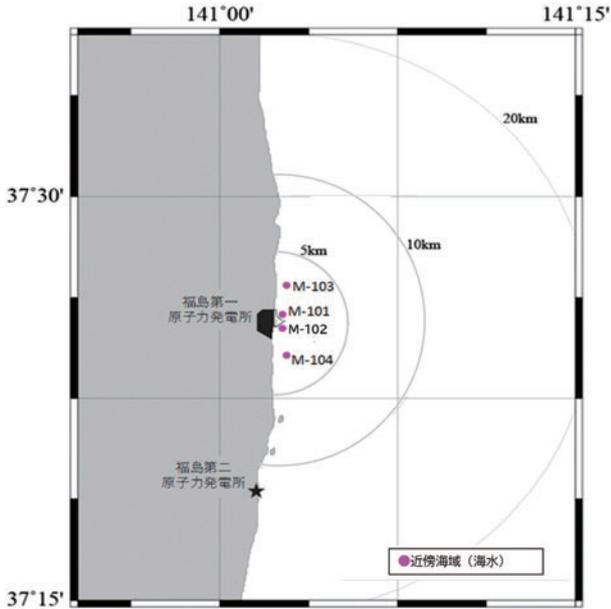
4. 海生研が実施する放射能に係る海域モニタリング

海生研では原子力規制庁より受託している「海洋環境における放射能調査及び総合評価」事業において、全国16海域で海水、海底土、海産物の放射能モニタリングを40年近く継続して実施してきた（第8図）。

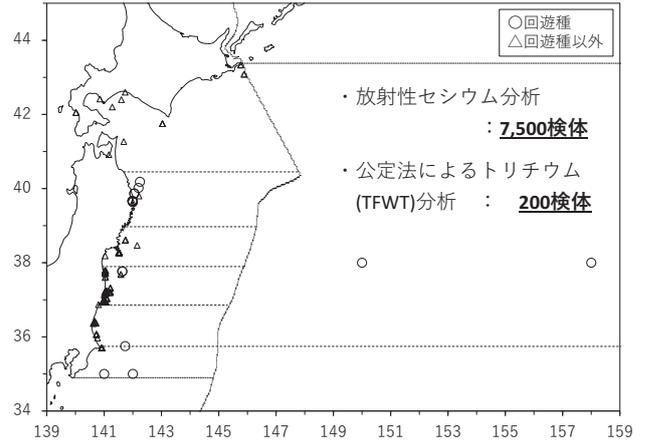


第8図 原子力規制庁事業で対象としている16海域

福島第一原子力発電所事故後、同じく原子力規制庁の「総合モニタリング計画に基づく放射能調査」を受託し、「総合モニタリング計画」や「海域モニタリングの進め方」に定められた内容に従い、福島県の近傍から東日本太平洋沿岸並びに東京湾の海水、海底土の放射能モニタリングを実施してきた（第9図）。

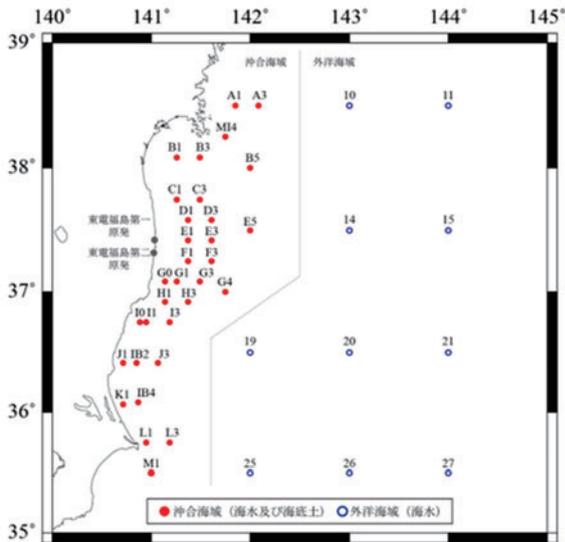


近傍海域の調査測点
(海水を月1回採取)



第10図 水産庁事業における魚介類試料の漁獲位置

2022年度に公定法を用いたトリチウム分析を行い、第1表に示すとおり216検体（魚類29種、軟体類9種、甲殻類4種、海藻4種）の水産物を分析した。



沖合及び外洋海域の調査測点
(測点名M-○の「M-」を省略)

- 沖合：海水、海底土を年4回採取
 - 外洋：海水を年2回採取
- 総合モニタリング計画より引用

第9図 総合モニタリング計画に基づく放射能調査における福島県周辺海域の測点配置
(上：近傍海域，下：沖合及び外洋海域)

また、東日本太平洋沿岸・沖合海域で漁獲された魚介類を対象とした「水産物の放射性物質の影響調査」を水産庁から受託し、7道県で漁獲された水産物についての放射能調査を実施している(第10図)。

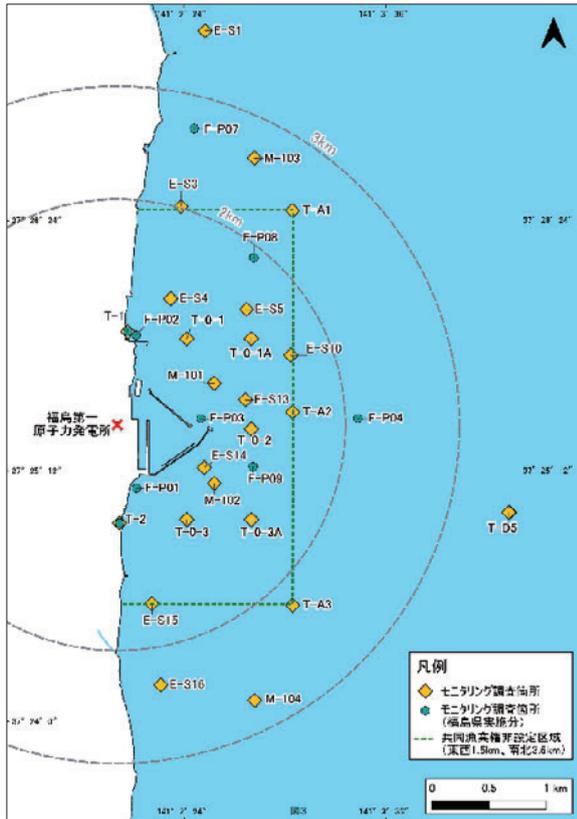
第1表 2022年度におけるトリチウム分析の対象種

	検体数	種数	主な種名
福島県	86	22	エゾアワビ、イセエビ、シログチ、マアナゴ、スズキ、他
北海道	23	8	スケトウダラ、マダラ、マツカワ、他
青森県	17	7	ウバガイ、スルメイカ、マナマコ、他
岩手県	25	13	ブリ、ヤリイカ、ゴマサバ、他
宮城県	21	9	ホタテガイ(養殖)、マガキ(養殖)、アカガイ、他
茨城県	21	1	ヒラメ
千葉県	23	3	ヒラメ、ビンナガ、カツオ

5. ALPS処理水放出に係る海域モニタリング

海域モニタリングの進め方に基づく一連の調査では、「モニタリング調整会議」を開催し、関係主体間で海域モニタリング調査の進捗、データ解析について議論が重ねられてきている。

2022年3月30日の同会議での議論を経て、福島県はALPS処理水放出の影響を把握することを目的に第11図に示すとおり、既存6測点に放水口の南北に計3測点を加えた全9測点(●)でモニタリングを強化する計画としている。



総合モニタリング計画より引用

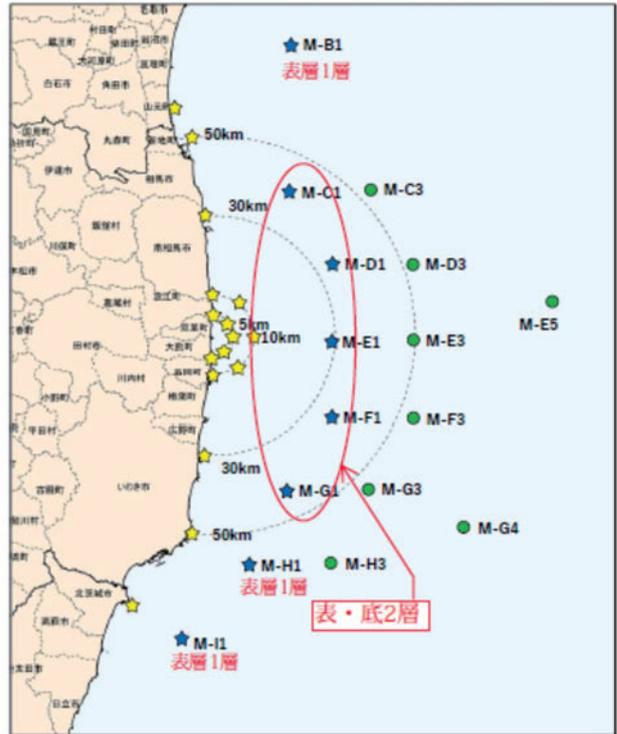
第11図 福島県が設定している海域モニタリング測点

また、海生研が原子力規制庁から受託している「総合モニタリング計画に基づく放射能調査」事業の一部として実施している福島県周辺海域の調査でも、2022年度の段階でALPS処理水放出の影響把握のための強化が図られた。これまで沖合海域8測点(●)で各1試料×4期＝年間32試料を採取分析していた海水中のトリチウムについて、新たに8測点(★)で計13試料×4期＝年間52試料追加して、年間で84試料を採取分析する計画に変更された(第12図)。

水産庁からの委託事業である水産物のモニタリングにおいても、ALPS処理水放出に向けた組織自由水型トリチウム(TFWT)分析が新たに加わった。

更に2023年度の事業では、

- 1) 福島県沿岸で年間180検体を対象に、迅速分析による魚の全トリチウム(TFWT+OBT)分析
- 2) 2022年度に引き続き福島県を含む7道県で年間200検体を対象に、公定法による水産物の組織自由水型トリチウム(TFWT)分析を実施する計画となっている。



第14回モニタリング調整会議(2022年3月30日)資料に加筆

第12図 沖合海域におけるトリチウム試料追加採取測点

以上、海生研が実施する海域モニタリングとその背景を概略的に紹介してきた。モニタリングで得られたデータは、原子力規制庁の「放射線モニタリング情報」や環境省の「ALPS処理水に係る海域モニタリング情報」、水産庁の「水産物の放射性物質調査の結果について」で公開されており、海生研のHPでも公開している。

また、web上でデータを公開するだけでなく、各海域に関係する機関(地方自治体及び関連外局、各道県漁業協同組合連合会など全国約120カ所が対象)に対し調査結果を説明し、意見交換している。

更に、国際原子力機関(IAEA)を始めとする海外の機関、県・自治体職員、漁連など漁業団体他の視察も受け入れるなど、事業に関係する諸機関との連携に努めている。

引用文献

気象庁. 地域気象観測システム. <https://www.data.jma.go.jp/stats/etrn/index.php>. (2023年7月31日アクセス)

国土交通省. 水文水質データベース. <http://www1.river.go.jp/>. (2023年7月31日アクセス)
原子力規制委員会. 放射線モニタリング情報. <https://radioactivity.nra.go.jp/ja/>. (2023年7月31日アクセス)
環境省. 第14回モニタリング調整会議. <https://www.env.go.jp/water/shorisui/monitoring/014>.

[html](#). (2023年7月31日アクセス)
環境省. ALPS処理水に係る海域モニタリング情報. <https://shorisui-monitoring.env.go.jp/>. (2023年7月31日アクセス)
水産庁. 水産物の放射性物質調査の結果について. <https://www.jfa.maff.go.jp/j/housyanou/kekka.html/>. (2023年7月31日アクセス)