資 料

環境におけるテクネチウム[†]

石井紀明, 桜木智史

独立行政法人 放射線医学総合研究所放射線安全研究センター

311-1202 茨城県ひたちなか市磯崎町 3609

Key Words : concentration of technetium-99, production of technetium-95m, bioaccumulation, marine alga

1. はじめに

1.1 テクネチウムの発見

元素発見の歴史の中で画期的な出来事は、メンデレーエフが元素の原子量と物理的・化学的性質との関係を調べ、一定の規則性が存在することに基づいて周期表という概念を 1869 年に提案したことである。周期表の発見以来、多くの研究者がモリブデンとルテニウムの間に位置する 43 番目元素の探求を行ったが、長い間空席のままであった。

1937 年に発見されるまでに、1908 年に小川正孝によるニッポニウム、また 1925 年にノダックらが 75 番元素レニウムを発見した際、43 番元素の存在を確認し、マスリウムと名付けたなど間違った報告があった。原子の核物理学的な理論研究が進むにつれて、43 番目の元素は安定に存在しない元素であることがわかり、1936 年にセグレらはモリブデン原子に重陽子（重水素核）をぶつけることによって、翌年 43 番目元素としてテクネチウムを発見した。その後、赤色巨星の表面に中性子捕獲に伴って生成されたと考えられるテクネチウムの存在が

観測された。赤色巨星は、恒星が主系列星の状態から進化して赤く大きく膨張した状態で、最終的には超新星爆発を起こして中性子星やブラックホールを残す。

我々の体を構成する炭素、窒素などは恒星内部の核融合で合成され、鉄より重い元素は超新星爆発時に生成される。

なお、超新星爆発時にニュートリノが放出されるが、大マゼラン星雲で起きた超新星爆発により発生したニュートリノを、小柴昌俊博士らは岐阜県にあるカミオカンデ観測装置を用いて 1987 年に世界で初めて検出した。

地球上では、ウランが自発核分裂する際に生成される微量のテクネチウムがウラン鉱石の中から見つかった。フランス原子力庁はガボン共和国のオクロ・ウラン鉱床で天然原子炉が作動していたことを公表しているが、オクロ鉱床では、ウランの同位体比の異常だけでなく核分裂生成物と超ウラン元素の存在が確認されている。ウラン鉱床はもちろんのこと、原子力発電所のウラン燃料棒の中では、ウランの核分裂による軽い元素の生成と、中性子捕獲に伴うウランより重い元素の創生が行われている。

1934 年ジョリオ・キュリー夫妻はアルミニウムに α 粒子をあてたところアルミニウムから陽電子が放出されることを発見した。放射化学分析の結果、陽電子は放射性リンから放出されていることを確認した。これが、初の人工放

[†] Technetium in the Environment.

Toshiaki ISHII and Tomofumi SAKURAGI: Research Center for Radiation Safety, National Institute of Radiological Sciences, 3609, Isozaki-cho, Hitachinaka-shi, Ibaraki Pref. 311-1202, Japan.

表1 放射性医薬品に含まれる核種の半減期, γ 線エネルギー (keV), 2003年及び2004年における供給量 (単位; GBq)*

核 種	半減期	γ 線エネルギー	2003年	2004年
^{51}Cr	27.7d	320	5.27	5.38
^{59}Fe	44.5d	1099, 1292	2.84	2.93
^{67}Ga	78.2h	93, 185, 300, 394	15,641	14,117
^{81}Rb -($^{81\text{m}}\text{Kr}$)	4.58h-(13s)	190	822	722
^{99}Mo -($^{99\text{m}}\text{Tc}$)	66.0h-(6.01h)	739-(141)	177,683	172,893
$^{99\text{m}}\text{Tc}$	6.01h	141	334,495	324,617
^{111}In	2.8d	171, 245	212	214
^{123}I	13.2d	159	23,778	23,061
^{125}I	60.1d	35	106	84
^{131}I	8.0h	364	8,644	9,077
^{133}Xe	5.2d	81	7,538	6,457
^{201}Tl	72.9h	135, 167	25,974	25,031

* 供給量に関するデータは、ISOTOPE NEWS Jul.'05 No.615, 38-56 (2005)¹⁾から引用

放射性核種の生成となった。 $^{27}\text{Al}(\alpha, n)^{30}\text{P}$, ^{30}P は陽電子放出して ^{30}Si になる。

水素からウランまでの従来の周期表の中でテクネチウムの発見は、Pm (プロメチウム), At (アスタチン) と並んで遅い部類に入る。現在, Cm (キュリウム), Es (アインスタイニウム), No (ノーベリウム) などの新元素が人工的に作られ, あるいはフォールアウトの中から発見されているが, テクネチウムは人類によって最初に製造された元素である。元素の存在限界を見極めようとする超重元素の探索が日本を含めて諸外国で活発に行われている。現在 118 番目までの合成が報告されているが, 名前の付いているのは 111 番の Rg (Roentgenium, レントゲニウム) までである。

1・2 人間社会におけるテクネチウム

テクネチウムは全て放射性であり, 安定同位体を持たない。20 種以上の放射性同位体 (核異性体を含む) が知られているが, 医療, 分析化学, 環境放射能の分野で主に注目されているのは, $^{95\text{m}}\text{Tc}$, $^{99\text{m}}\text{Tc}$, ^{99}Tc である。

2. 環境に放出されるテクネチウム

2・1 放射性医薬品

放射性医薬品の供給量 (核種別, 年度別) を表 1 に示した。 $^{99\text{m}}\text{Tc}$ の供給量が他の核種と比べて非常に多いことがわかる。放射性医薬品とは, 放射性同位元素 (RI) を使用した医薬品で, 薬事法により厚生労働大臣から製造 (輸入) を承認された薬のことを言う。放射性医薬品の製造及び取扱規則第 1 条第 1 号では, 放射線を放出する医薬品である (66 種類) と規定している。放射性医薬品の使用方法としては, 診療用 RI を人体に投与し, 特殊な装置で RI が放出する放射線を測定することによって腫瘍などの位置を特定するもの ($^{99\text{m}}\text{Tc}$ は, 核医学の分野において血流測定剤や骨イメージング剤などにも使用されている) のほか, 採取した血液などを試験管の中で診療用 RI と反応させてホルモンなどの活性や量を測定する用途がある。

もし, 仮に 324 TBq の $^{99\text{m}}\text{Tc}$ (6.01 h) が ^{99}Tc ($2.11 \times 10^5 \text{ y}$) に核異性体遷移したとすれば, 約 1 MBq の ^{99}Tc が日本国内のどこかに存在していることになる。この量は, 後述する日本原燃株式会社 (JNFL) 再処理工場の放射性廃液の推定年間放出量の約 1/370 に過ぎず, 放射性

表2 再処理工場の廃液中に含まれる放射性核種の
年間放出限度量及び推定年間放出量 (GBq)

放射能 (放射性核種)	BNFLの年間 放出限度量*	JNFLの推定 年間放出量**
^3H	25000000	18000000
^{14}C	20800	-
^{60}Co	13000	4.1
^{90}Sr	48000	12
$^{95}\text{Zr} + ^{95}\text{Nb}$	9000	-
^{99}Tc	90000	0.37
^{106}Ru	63000	24
^{129}I	1600	43
^{131}I	no data	170
^{134}Cs	6600	8.2
^{137}Cs	75000	16
^{144}Ce	8000	4.9
^{154}Eu	no data	1.4
Pu alpha	700	3.0
^{241}Pu	27000	80
^{241}Am	300	0.14
^{244}Cm	no data	0.39
Uranium	2040000	0.13

* 出典: RIFE-10 (2005)²¹ の 223 ページから引用

** 出典: 日本原燃(株)再処理事業指定申請書³⁾から引用
(ただし、表2は2001年に変更申請された値を使用)

医薬品として使用される $^{99\text{m}}\text{Tc}$ から派生する ^{99}Tc の存在量はほとんど無視できる値と考えてよい。

表1に医療・診断分野で使用されている主な核種と γ 線エネルギーも示したが、患者が投与されたことを知らないで病院の外へ出ることが予測される。そのような人がモニタリングポストの近くを通過したり、RI施設の見学及び修理などでの一時立ち入りを終えて管理区域から出る際のハンドフットクロスモニタや、原子力事故時に行う周辺住民に対する汚染検査の際にGM計数管などで投与患者を測れば異常な値として検出される可能性がある。そのときに γ 線スペクトロメトリができれば表1などと照合して核種の同定あるいは異常値の原因がわかる。

なお、研究あるいは教育機関用に供給されている非密封状態のテクネチウム量は放射性医薬

品と比べると桁違いに小さい。

2・2 再処理工場

2・2・1 海外における状況

現在、核燃料の再処理を商業ベースで大規模に行っているのは英国原子燃料公社 (BNFL) とフランス原子燃料サイクル会社 (COGEMA La Hague) である。セラフィールドにある BNFL の海洋放出管からの年間放出限度量²⁾を青森県六ヶ所村にある JNFL の推定年間放出量³⁾と比較して表2にまとめたが、2004 年における BNFL からの ^{99}Tc の放出実績は14.3TBqと報告されている²⁾。なお、セラフィールドの敷地内には核燃料再処理工場 (THORP)、MOX 燃料工場などがある。

2・2・2 国内における状況

日本には、JNFL と、茨城県東海村にある(独)日本原子力研究開発機構東海研究開発センター核燃料サイクル工学研究所再処理技術開発センターの再処理施設がある。

再処理技術開発センターからの ^{99}Tc の年間放出量⁴⁾を1990～2000年までの推移でみると、最小は1998年の 1.3×10^{-5} GBq/年、最大は1992年の 1.5×10^{-3} GBq/年であった。JNFLからの放出実績は現在(2006年1月)のところ使用済み燃料からのプルトニウム抽出作業が行われていないのでゼロである。

2・3 核実験

1945～1980年の間に行われた大気圏核実験(国連科学委員会2000年報告書⁵⁾)によって、テクネチウムが生成され、それがフォールアウトとして北半球を中心に拡散した結果、土壌、野菜、淡水、海水、海洋生物から微量ながら検出される。現在のところ太平洋における海水中の ^{99}Tc 濃度は非常に低く、筆者の分析の結果では2005年現在 $0.5 \sim 2$ mBq/m³程度と考えられる。この値はノルウェーのHillesøy(北緯70度)付近の海水中の ^{99}Tc 濃度⁶⁾である1Bq/m³と比べて約1/1000程度である。

図1 ^{95m}Tc を製造したときのモリブデンターゲット (^{95}Mo のかわりに天然存在比のモリブデンを使う時もある)

3. テクネチウムの分析

3.1 標準試料

試料中の濃度を決定するためには標準試料が必要となる。Isotope Products Laboratories (IPL) 社から ^{99}Tc 標準液 (Radioactivity; 91.95 MBq, Chemical form; NH_4TcO_4 in H_2O) を購入し、ICP-MS 及び β 線スペクトロメトリの標準試料として用いた。

3.2 回収率算出用 Yield monitor の製造

環境試料中の微量テクネチウムを測定するためには分離・濃縮の化学操作が必要であり、操作の間に起こる損失の程度を知るために Yield monitor が用いられる。 ^{99m}Tc が使用される場合があるが、半減期が 6.01 h と短いので、実用的でない。ここ数年、(社)日本アイソトープ協会からの非密封 ^{95m}Tc の入手が困難になったために、独理化学研究所との共同研究により AVF サイクロトロン加速器を用いたプロトン照射により ^{95m}Tc の製造を行った。図1は、ターゲットの様子を示したものであるが、ターゲットには米国オークリッジ国立研究所から入手した濃縮度 96.8% の ^{95}Mo を用いた。 ^{95m}Tc は $^{95}\text{Mo}(p, n)^{95m}\text{Tc}$ 反応で生成される。表3は、比放射能を比べたもので比放射能は照射に用い

表3 Mo ターゲットから生成された ^{95m}Tc の比放射能

Target	Proton energy	Specific activity*
Enriched ^{95}Mo	8.8 MeV	1.734 Bq/fg
Enriched ^{95}Mo	14.0 MeV	0.126 Bq/fg
Natural Mo	14.0 MeV	0.035 Bq/fg

* 比放射能 = ^{95m}Tc の放射能 / Tc ($\text{Tc} = ^{99}\text{Tc}$) 量
(生成反応および半減期から Tc は ^{99}Tc と見なす)

たプロトンのエネルギーとターゲットに用いる安定同位体の存在比や濃縮度の影響を受けることがわかる。ICP-MS で ^{99}Tc の分析を行う場合、質量 99 に試料由来の ^{99}Tc 以外の ^{99}Tc もしくは妨害元素、イオンが存在していると分析の正確さに影響する可能性があるので Yield monitor として使用する時に比放射能が問題となる。理化学研究所で製造された1週間後の ^{95m}Tc の放射能は 538 kBq/0.0055 g ^{95}Mo で比放射能は 1.734 Bq/fg であった。もし化学操作を行う時に 173.4 Bq の ^{95m}Tc がスパイクされたと仮定し、ICP-MS 測定時における最終溶液量を 20 mL とすれば 5 ppq (100 fg/20 mL) 分の持ち上がりで計算される。今回用いた ICP-MS の検出下限濃度は 31.4 ppq であるから Yield monitor 中に含まれる ^{99}Tc の存在量は無視できる位小さいと判断される。なお、 ^{99}Tc の由来は次の反応によるものと考えられる。

^{95m}Tc の比放射能は半減期 (61 d) の関係で時間とともに低くなるので数か月おきに製造しなければならない。

なお、 ^{95m}Tc はモリブデン以外の元素を用いて、プロトン以外の粒子を使用することで製造される場合がある。

3.3 放射化学的分離・濃縮操作

3.3.1 前処理

海水; GSWP (0.22 μm) もしくは HAWP

図2 英国産 *F.vesiculosus* に ICP-MS を適用したときのマスペクトル

(0.45 μm) フィルタを用いてろ過後, Tc 専用ディスク, 陰イオン交換樹脂もしくは活性炭でテクネチウムを捕集する。生物試料では, 乾燥後に湿式分解もしくは電気炉による乾式灰化によって有機物を分解する。

なお湿式分解及び化学分離の際に乾固などの操作を行うと, 使用する酸の種類によっては揮散損失が観察されるので注意が必要となる。

3.3.2 捕集・分離法

3M Empore 3292 Tc 専用ディスク, Eichrom TEVA レジン又はディスク, 陰イオン交換樹脂, 活性炭に吸着させ, 直接又は溶離後測定する。測定前の溶離液中に妨害元素が含まれていれば更に分離を行う。

3.3.3 測定法

^{99}Tc 濃度が低い時には ICP-MS を用いる。海藻試料に ICP-MS を適用したときのマスペクトルを図2に示したが, ICP-MS 測定において注意しなくてはならないのは, 同重体干渉 (Isobaric interference) の有無の確認である。図に示したように, 質量 99 のところには, $^{98}\text{Mo}^1\text{H}$, ^{99}Ru , Molecular ion が誤差を生み出す因子となるので注意が必要となる。モリブデンとルテニウムの完全除去と Molecular ion の発生の少ない測定条件を見つけることが必須となる。

図3 英国産 *F.vesiculosus* の β 線スペクトル

^{99}Tc は 294 keV の β 線を放出するので β 線スペクトロメトリでも測定が可能である (図3参照)。 β 線測定器では, 測定試料に含まれているあらゆる β 線が計数される。化学分離が不完全であればトリウムやウラン系列の壊変生成物や ^{40}K , ^{87}Rb などの天然放射性核種が ^{99}Tc の測定時に妨害して計数誤差の原因になるので十分な注意が必要となる。

4. 海洋環境試料中の ^{99}Tc 濃度

4.1 海外での現況

2003 年から 2005 年にかけて採取した海藻中の ^{99}Tc 濃度を表4に示したが, 英国セラフィールド付近で採取した褐藻・ヒバマタ目に属す *Fucus vesiculosus* 中の ^{99}Tc 濃度が 48 690 Bq/kg

表4 2003～2005年に採取された海藻中の ^{99}Tc 濃度 (Bq/kg 乾)

Sample*	Country	Area or Location	Reported value**	This work
EA2453 from EA and CEFAS	UK	Sellafield	61600 ± 13200	59400 ± 5100
EA2454 from EA and CEFAS	UK	Sellafield	25520 ± 5280	26800 ± 2180
EA2957 from EA and CEFAS	UK	Sellafield	2750 ± 250	2520 ± 150
<i>F. vesiculosus</i> from HS	UK	Sellafield	no data	48690 ± 2930
<i>F. vesiculosus</i> from NRPA	Norway	Hillesøy	no data	118 ± 35
<i>A. nodosum</i>	Canada	Canada-East coast	no data	3.5 ± 1.5
オオハネモ	Japan	Chiba and Ibaraki	no data	0.66 ± 0.25
ウミトラノオ	Japan	Aomori and Chiba	no data	0.069 ± 0.037
ヒジキ	Japan	Ibaraki	no data	0.024 ± 0.018
ワカメ	Japan	Ibaraki	no data	0.012 ± 0.015

* 外国産の海藻試料は、EA (Environment Agency), CEFAS (Centre for Environment, Fisheries and Aquaculture Science), HS (Heritage Service), NRPA (Norwegian Radiation Protection Authority) および輸入業者から譲渡された。

** Reported values は、譲受した分析試料に添付されていた ^{99}Tc 濃度

図4 英国、ノルウェー産 *F. vesiculosus* における γ 線スペクトル
(5 g 乾の試料を 200 000 秒測定)

乾と非常に高いことがわかる。ノルウェー産の *F. vesiculosus* 中の ^{99}Tc 濃度は 118 Bq/kg 乾であり、その差は 400 倍に達する。ノルウェーの *F. vesiculosus* 中における ^{99}Tc の大部分は英国本土の西海岸にあるアイリッシュ海に面している BNFL の再処理工場由来と考えられる。セラフィールド再処理工場などから海洋に放出された ^{99}Tc は 4 年でノルウェーの北緯 70 度付近

(表 4 の Hillesøy) まで達していると考えられている⁷⁾。同じ海藻種について γ 線スペクトロメトリ (5 g の乾燥試料に対して 200 000 秒) で核種同定を行ったが、図 4 に見られるようにセラフィールドの試料では ^{60}Co , ^{125}Sb , ^{137}Cs , ^{241}Am などの再処理工場由来の人工放射性核種のピークが明瞭に見られるが、ノルウェーの試料では人工放射性核種はほとんど検出されない。この

図5 英国産 *F.vesiculosus* におけるプルトニウムの α 線スペクトル

図6 英国産 *F.vesiculosus* におけるウラン、プルトニウムのマスペクトル

ことから、 ^{99}Tc などの一部をのぞいてほとんどの核種はアイリッシュ海の中にとどまっていると考えられる。1 000 km 以上離れたところにおいてもやや高濃度の ^{99}Tc が検出されることからテクネチウムは通常の混合・拡散モデル式があてはまらない元素である可能性がある。 ^{99}Tc は、安定した過テクネチウム酸イオン (TcO_4^-) のまま、海水自体や懸濁微粒子との間で相互作用を起こすことなく海流によって北大西洋及び北極海において拡散し続けているものと推定される。セラフィールドから離れた場所ごとに同種のサンプル (100 g 以上) が手に入れば、核種ごとの海洋での挙動 (移動速度など) の違いが把握できるであろう。なお、カナダ産の *Ascopyllum nodosum* 中の ^{99}Tc は 3.5 Bq/kg 乾であり、英国産の *A. nodosum* の ^{99}Tc 濃度 (28 ~ 350 Bq/kg 生)²⁾ と比較すると非常に低い値であった。

図5は、セラフィールドで採取した海藻についてプルトニウム分析したときの α 線スペクトルを示したものであるが、 ^{238}Pu と $^{239+240}\text{Pu}$ の明瞭なピークが観察される。 ^{239}Pu と ^{240}Pu は ICP-MS で測定することによって分別定量ができる。図6は同じサンプルについて ICP-MS で ^{239}Pu の ^{240}Pu 分別測定したものである。更に、図7に、同じサンプルについてアメリカシウム分析したときの α 線スペクトルを示した。これらの超ウラン元素のうち ^{238}Pu と ^{241}Am は現在のところ日本産海洋生物からはほとんど検

図7 英国産 *F.vesiculosus* におけるアメリカシウムの α 線スペクトル

出されないが、JNFL の再処理工場から管理放出される可能性があるので ^{99}Tc と同様に日本産海洋生物中における濃度レベルの上昇が予測される。

放射性核種の生物への移行について考慮するとき、元素が独立して生物との間で相互作用を示す場合と、取り込み時に同族元素や類似元素の影響を受ける場合とがある。たとえば、生物によるストロンチウムの取り込みは同じアルカリ土類元素でしかも海水中で 50 倍高い濃度で存在するカルシウムの支配を受ける。なお、同族元素、類似元素とは鉄、ニッケル、コバルトの鉄族元素やルテニウム、ロジウムの白金族元素などのことで、同族元素や類似元素同士は似かよった化学挙動をとるとされており、生物への移行の度合いが同じ化学的性質を持つ元素によって影響される可能性がある。マンガン族に属すマンガンとテクネチウム、レニウムとの関

図8 海藻におけるレニウムとテクネチウムの濃度関係

係について調査した結果、海水中において桁違いの大きさの存在量で含まれているマンガンはレニウムやテクネチウムに対して相関が全く見られず、マンガンはテクネチウムとレニウムに対して支配的でないことがわかった。

図8は、海藻について周期表の同じ第7族に属すレニウムとテクネチウムの濃度関係について見たものであるが、図の中で●と▲印の日本産海藻ではレニウムとテクネチウムは高い相関関係を示した。このことからレニウムとテクネチウムの生物学的挙動はほぼ同じと考えても良い。一方、大西洋産の海藻については同種の中でも大きな濃度差が見られた。たとえば、褐藻ヒバマタ目の *F. vesiculosus* (■) の場合、ノルウェー産と英国産とでは ^{99}Tc 濃度において400倍近い差があり、同種であっても地域が異なれば大きな濃度差が観察されることがわかった。

同じ種類のサンプル間において濃度差が生じた理由の一つとして、海水中における ^{99}Tc 濃度が、カナダ、ノルウェー、英国の沿岸水で大きく違っていることがあげられる。

なお、レニウムとテクネチウムは周期表の同じ第7族に属するので同じ化学挙動をとると予測されるが、実際には用いる酸の種類や濃度によって乾固時における揮発損失の程度が、あるい

は 3M Empore 3292 Tc ディスク、Eichrom TEVA レジンもしくはディスクによる捕集・分離時における捕集率、溶離率、溶離位置が異なるなど化学挙動が全く同じとは言えない場合が多い。なお、図8の横軸に相当するレニウム濃度を表5に示したが、オオハネモ (*Bryopsis maxima*) 中のレニウム濃度がほかの生物と比べて群を抜いて高いことが報告されている⁸⁾。ちなみに海水中におけるレニウム濃度は7.42 pg/g⁹⁾、オオハネモの湿重量 (Dry/Wet% = 9.8%) あたりの平均レニウム濃度は570 000 pg/g となるから、濃縮係数は77000と計算される。

4.2 国内での現況

表4で示したように、日本産の海藻中の ^{99}Tc 濃度は欧州産と比べて1/200 ~ 1/5 000 000である。日本の海洋生物で最も高い ^{99}Tc 濃度を示したのは緑藻のオオハネモである。日本産の海洋動物からは乾燥重量1 kgを使っても ^{99}Tc は検出されなかった。一般的傾向として、甲殻類のロブスター (日本のイセエビとは違う) の緑腺 (触覚腺) の例外はあるものの動物よりも海藻の方が ^{99}Tc の濃縮度が高く、また海藻では褐藻は緑藻や紅藻よりも高い濃縮係数を示す。

表5 生物中のレニウム (Re) 濃度

サンプル	Re濃度 (pg/g 乾)	
海藻		
オオハネモ	3,950,000 -	10,260,000
ネザシハネモ	3,780,000 -	6,130,000
<i>A. nodosum</i>	110,000 -	185,000
<i>F. vesiculosus</i>	22,900 -	139,000
ウミトラノオ	28,100 -	37,100
マコンブ	4,500 -	5,080
ヒジキ	980 -	1,100
アナアオサ	320 -	330
エゾシコロ	110 -	340
ハリガネ	111 -	250
ツノマタ	64 -	90
海洋動物		
二枚貝－軟体部	39 -	1,400
魚類－筋肉部	4 -	23
陸上植物		
野菜－葉菜部	54 -	4,137
果物－可食部	9 -	390

5. テクネチウム指標生物 (Indicator organism)

指標生物は、環境における放射性核種の拡散の程度と範囲を迅速に把握するための生物学的高感度検出器として使用するものであり、自治体や原子力施設設置者などが対象としているモニタリング生物とはやや異なる意味あいを持つ。

指標とするためには以下の条件を満足していることが望ましい。

- 1) 沈着率、移行係数、濃縮係数が他の種と比べて高い
- 2) 施設周辺に生息している
- 3) 大量にしかも簡単に確保できる
- 4) 固着性・定着性であること
- 5) 環境中の濃度レベル変化に対してレスポンスが速い(ただし、生物濃縮実験を行わないとレスポンスについての情報は得られない)

以上の条件をほぼ満足するのは、海洋生物の場合、日本ではオオハネモなどのハネモ属及びウミトラノオなどのホンダワラ属である。オオハネモはテクネチウムだけでなく⁹⁰Sr, ²²⁶Raなどの放射性核種を高濃縮する種であるが、日

本における分布は非常に狭く、主な生息地は茨城・千葉県を中心とする中部太平洋岸に限られる。そのため、指標生物になりにくいのが、ハネモ属は日本各地に生息するので原子力施設周辺に生息しているかどうかの確認が必要である。もし、確認できない場合は、オオハネモに次いで濃縮係数が高く、青森県で生息が確認されているウミトラノオが指標生物の第2候補になり得る。水産食品としての観点からはコンブ、ヒジキ、ワカメなどがモニタリングの対象となる。

6. 海藻における^{95m}Tcの濃縮実験

6種の海藻(緑藻: オオハネモ・アオサ, 紅藻: ツノマタ・サンゴモ, 褐藻: ウミトラノオ・ヒジキ)によるテクネチウムの取り込み実験を筆者らは行っている¹⁰⁾。実験に用いた^{95m}Tcは理化学研究所との共同研究で製造した^{95m}Tcで、飼育海水の中に^{95m}Tcを添加し、Ge半導体検出器でγ線のエネルギー204 keVのピークについて3 mLあたり300カウント/秒程度になるように濃度設定した。海藻サンプルを時系列に取り上げ、取り込み定数、排せつ定数を求め、濃縮係数を計算した。

海藻6種の中では、オオハネモがもっとも高い28,800～33,000の濃縮係数を示した。これに対してツノマタは0.8であったのでテクネチウムを全く濃縮していないことになる。

なお、Bonottoらは海藻によるテクネチウムの濃縮係数についてまとめているが、表4に示した*A. nodosum*の濃縮係数は9,000、*F. vesiculosus*は90,000～100,000と報告している¹¹⁾。

7. 線量

線量評価の観点からすると、⁹⁹Tcの経口摂取に起因する成人における実効線量換算係数(mSv/Bq)は 6.4×10^{-7} であり、他の核種たとえば¹³⁷Csの 1.3×10^{-5} 、²³⁹Puの 2.5×10^{-4} と比較して非常に低い。

ちなみに2005年現在のフォールアウトレベルのワカメについて線量を計算してみる。毎日

成人1人あたり40gのワカメを食すると仮定して以下に計算する。ワカメ中の ^{99}Tc 濃度は、表4から乾燥重量あたりの濃度(0.012 mBq/g)から、乾湿比=20%を用いて湿重量あたりの ^{99}Tc 濃度は0.0024 mBq/gとなる。なお、成人1日あたりにおける海藻類の摂取量40gは、「原子力安全委員会安全審査指針集」¹²⁾から引用し、摂取する海藻を全てワカメとする。

$$\text{線量} = 6.4 \times 10^{-7} \text{ mSv/Bq} \times 0.0024 \text{ mBq/g} \times 40 \text{ g} \times 365$$

$$(\text{日}) = 2.2 \times 10^{-8} \text{ mSv/y}$$

この線量は、国際放射線防護委員会が1990年勧告、いわゆるICRP Publication 60で勧告している公衆による年実効線量限度1 mSvをはるかに下回る値である。

なお、RIFE-10レポートでは、セラフィールド地区の海産食品摂取者グループにおける人工放射性核種による線量は0.22 mSv/yであり、そのうち ^{99}Tc は約12%の寄与と評価している²⁾。

文 献

- 1) 社団法人日本アイソトープ協会：資料－アイソトープ等流通統計2005, *Isotopes News*, Jul.'05 No.615, 38-56(2005)
- 2) Radioactivity in Food and the Environment, 2004(RIFE-10) compiled by the Centre for Environment, Fisheries and Aquaculture Science (2005)
- 3) 日本原燃(株), 再処理事業指定申請書, (1989)「備考：表2の数字は2001年に変更申請されたものを使用」
- 4) Takeishi, M., Hiyama, Y., Mizutani, T., Watanabe, H. and Maruo, Y., Investigation of Analytical Method for Technetium-99 in Liquid Effluent Discharged from Tokai Reprocessing Plant. In Abstracts from International Symposium on Technetium—Science and Utilization—, Oarai, Japan, 47-48(2005)
- 5) 放射線の線源と影響 [上] —原子放射線の影響に関する国連科学委員会の総会に対する2000年報告書 (監訳独放射線医学総合研究所), pp. 16-17, (株実業広報社, 東京(2002)
- 6) Strålevern Rapport 2004: 10-Radioactivity in the Marine Environment 2002, 20-21 (2004)
- 7) Progress Report from 5th International Conference on the Protection of the North Sea, 20-21 March 2002, Bergen, Norway, 174(2002)
- 8) Ishii, T., Sakuragi, T., Watabe, T., Nakahara, M., Matsuba, M., Haba, H. and Enomoto, S., High Accumulation of Rhenium and Technetium in a Marine Alga *Bryopsis maxima*, In Proc. from The 2nd International Conference on Radioactivity in the Environment, 2-6 October 2005 Nice, France (Edited by Per Strand, Peer Børrentzen and Torun Jølle), 253-256(2005)
- 9) Anbar, A.D., Creaster, R.A., Papanastassion, D.A. and Wasserburg, G.J., Rhenium in seawater confirmation of generally conservative behavior, *Geochim. Cosmochim. Acta*, 56, 4099-4103(1992)
- 10) Ishii, T., Hirano, S. and Watabe, T., Hyperaccumulation of Radioactive Isotopes by Marine Algae, In Proc. of the International Symposium: Transfer of Radionuclides in Biosphere-Prediction and Assessment—Mito, December 18-19, (Eds. Amano, H. and Uchida, S.), Issued by Japan Atomic Energy Research Institute, pp.187-191(2002)
- 11) Bonotto, S., Robbrecht, V., Nuyts, G., Cogneau, M. and Van Der Ben, D., Uptake of technetium by marine algae—Autoradiographic localization—, *Mar. Pollu. Bull.*, 19, 61-65(1988)
- 12) 原子力安全委員会安全審査指針集－改訂4版, 監修：科学技術庁原子力安全局原子力安全調査室, p.79, 大成出版社, 東京(1988)