

カートリッジ型不織布フィルタを用いた水中の懸濁物質付着態・溶存態 放射性セシウムの迅速な同時モニタリング技術の開発

Development of a method for a rapid and simultaneous monitoring of particulate and dissolved radiocesium in water with nonwoven fabric cartridge filters

○辻 英樹* 今藤 好彦** 鈴木 安和*** 保高 徹生*

○Hideki TSUJI, Yoshihiko KONDO, Yasukazu SUZUKI, Tetsuo YASUTAKA

1.はじめに

東京電力福島第一原子力発電所の事故により放射性セシウム(Cs)が環境中に拡散した。環境水中の放射性 Cs は主に懸濁物質付着態(SS 態)と溶存態からなり、その環境動態は両者で大きく異なることから、長期的な環境中の動態予測のためには SS 態・溶存態それぞれの放射性 Cs 濃度を測定することが重要である。存在形態別測定には固液分離と液相濃縮の工程が前処理として必要であるが、室内での濾過及び蒸発濃縮法に代表される従来の前処理法は大量の水の運搬、固液分離、濃縮に時間を要する。この課題に対し保高ら(2013)は、プルシアンブルー(PB)を担持させた不織布カートリッジ(PB-C)に環境水を通水することで溶存態放射性 Cs の迅速な濃縮が可能になることを示したが、SS の事前分離が課題であった。

そこで本研究では、PB-C の前に SS を分離するためのカートリッジ型不織布フィルタをプレフィルタとして設置することで、環境水中の SS 態・溶存態の放射性 Cs 濃度を現場で同時に測定する方法を開発した。本手法の測定精度はモニタリング結果を濾過及び蒸発凝縮法による測定結果と比較することによって評価した。

2.方法

本研究では、プリーツ型の不織布フィルタ(日本バイリーン社製)を充填した SS 捕捉用カートリッジ(SS-C)1 個と PB-C(PB: 大日精化工業社製、不織布: 日本バイリーン社製)3 個を直列に接続した装置を用いた(Fig.1)。このカートリッジは中空円筒形で外径 62 mm、高さ 46 mm である。SS-C 不織布は孔径 1 μm 、全幅 1064 mm、厚さ約 2 mm であり、PB 担持不織布は全長 480 cm、PB 担持の面密度は 5 g/m² である。

環境水モニタリングは福島県内阿武隈川の 2 地点(八幡・福島)で行った。河川水は橋の上からポンプを用いて汲み上げ、ポリタンク内に一

時的に貯留した。Fig.1 の装置を用いる方法では、流速 2.5 L/min で 24~36 L を 2 回反復で装置に通水した。SS-C の乾燥重量増加から水中の SS 濃度、SS-C の ¹³⁷Cs 濃度から SS 態 ¹³⁷Cs 濃度、PB-C の ¹³⁷Cs 濃度から溶存態 ¹³⁷Cs 濃度を求めた。また、PB-C 処理水と、SS-C 1 個の処理水の ¹³⁷Cs 濃度を測定した。

一方、濾過及び蒸発濃縮法では河川水 40 L を孔径 5 μm ・0.45 μm のメンブレンフィルタに 2 段階で通し、SS の析出重量から水中の SS 濃度、フィルタの ¹³⁷Cs 濃度から SS 態 ¹³⁷Cs 濃度、濾液の ¹³⁷Cs 濃度から溶存態 ¹³⁷Cs 濃度を求めた。

¹³⁷Cs 濃度はゲルマニウム半導体検出器によって測定した。測定時間はフィルタを 4,000 秒、SS-C を 9,000 秒、PB-C と水を 43,200 秒とした。PB-C は通水直後の湿潤状態のままプラスチック容器(内径 62 mm、厚さ 3.5 mm、高さ 53.5 mm)に入れて検出器に供し、検出値を幾何学的効率 0.77(保高ら, 2013)で除して実際の ¹³⁷Cs 濃度を得た。SS-C は乾燥後、容器を細かく破壊して中の不織布を取り出して裁断し、U-8 容器に詰めて測定した。残渣が付着したフィルタは U-8 容器に詰めて測定し、水検体は蒸発により 2 L まで濃縮して 2 L Marinelli 容器に充填し測定を行った。

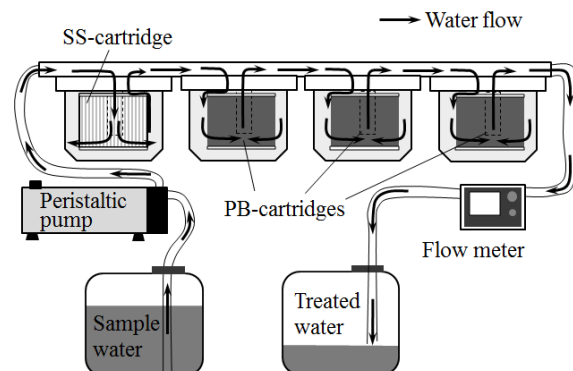


Fig.1 装置概念図(保高ら 2013,一部改訂)

The conceptual figure of monitoring device

[所属]*独立行政法人 産業技術総合研究所 National Institute of Advanced Industrial Science and Technology,
日本バイリーン株式会社 Japan Vilene Company, Ltd. *福島県農業総合センター Fukushima Agricultural
Technology Centre

[キーワード]: 放射性セシウム, 水環境, 懸濁物質, プルシアンブルー, モニタリング

3.測定結果と考察

Fig.2 に SS-C の重量増加と濾過残渣重量から求めた SS 濃度の比較を示す。エラーバーは測定誤差を表し、5 μm フィルタ残渣のエラーバーの端点は濾過開始後最初の 20 L と後の 20 L における測定値を表す。SS-C による SS 濃度は八幡：3.3～5.1 mg/L、福島：4.0～5.3 mg/L であったのに対し、濾過残渣では八幡：4.4～4.5 mg/L、福島：4.8～5.8 mg/L となり、両者の値は測定値の範囲内で一致した。したがって河川水中の SS は SS-C によりほぼ全量回収されたとと言える。

Fig.3 に SS-C と濾過残渣の ^{137}Cs 濃度の比較を示す。ここで、エラーバーはゲルマニウム検出器による計数誤差を表す(以下同様)。SS-C の SS 態 ^{137}Cs 濃度は八幡：0.023～0.045 Bq/L、福島：0.046～0.071 Bq/L となり、濾過法では八幡：0.039～0.047 Bq/L、福島：0.055～0.067 Bq/L と、計数誤差の範囲内で一致した。

Fig.4 に PB-C、SS-C 処理水、0.45 μm フィルタ濾液の ^{137}Cs 濃度を示す。PB-C 中の溶存態 ^{137}Cs 濃度は八幡：0.015～0.024 Bq/L、福島：0.013～0.028 Bq/L となり、0.45 μm フィルタ濾過における八幡の 0.021～0.025 Bq/L、福島の 0.017～0.023 Bq/L とほぼ等しくなった。2 番目以降の PB-C の ^{137}Cs 濃度は福島の 1 回目の試験以外では検出下限値(0.004～0.006 Bq/L)未満であったため、八幡・福島の 2 回目通水試験において ^{137}Cs 濃度が過小評価となった可能性があるが、測定時間をより長く取れば検出濃度は大きくなると考えられる。一方、SS-C 処理水と濾液の ^{137}Cs 濃度は計数誤差範囲内で一致し、SS-C は溶存態 ^{137}Cs をほとんど吸着していないことを確認した。また、4 試験における PB-C 処理水の ^{137}Cs 濃度は検出下限値(0.010～0.012 Bq/L)未満であり、溶存態 ^{137}Cs のほぼ全量が PB-C 内に吸着されたことがわかった。

4.検出限界と前処理工程時間

本試験で用いたカートリッジ検体の検出下限値は、20 L 通水時の値に換算した場合、SS-C(9,000 秒検出)では 0.012～0.017 Bq/L、PB-C(43,200 秒検出)では 0.006～0.008 Bq/L となった。特に PB-C の下限値は蒸発濃縮による水 2 L の下限値(43,200 秒で約 0.02 Bq/L)に比べて精度が高かった。一方、計数誤差は SS-C で 0.005～0.008 Bq/L、PB-C で 0.002～0.004 Bq/L となった。

また、本手法では水 20 L のモニタリングに要する時間は 8 分であった。これは蒸発濃縮に

要する時間(6 時間～1 日)に比べてはるかに短縮されたとと言える。

なお、本研究は科学技術振興機構の研究成果展開事業 先端計測分析技術・機器開発プログラムによる助成を受けて実施した。

[引用文献] 保高 徹生, 辻 英樹, 今藤 好彦, 鈴木 安和(2013), 分析化学(印刷中)

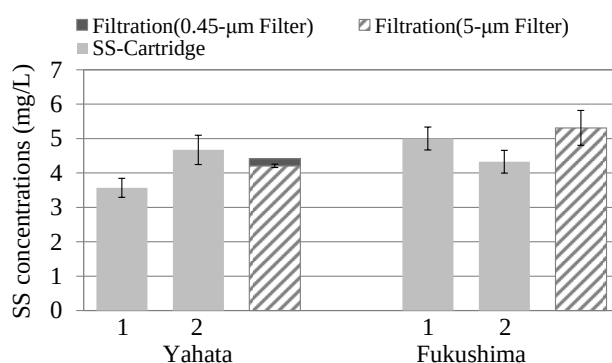


Fig.2 SS-C と残渣重量から求めた SS 濃度
SS concentrations calculated by the SS weight trapped in the SS-cartridge and the residue weight by filtration

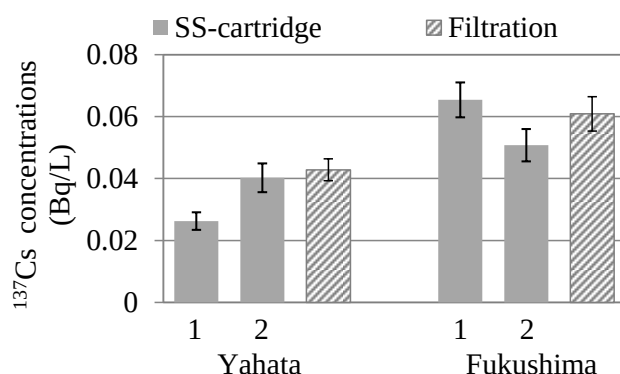


Fig.3 SS-C と濾過残渣の ^{137}Cs 濃度
 ^{137}Cs concentrations of the SS-cartridge and the residue by filtration

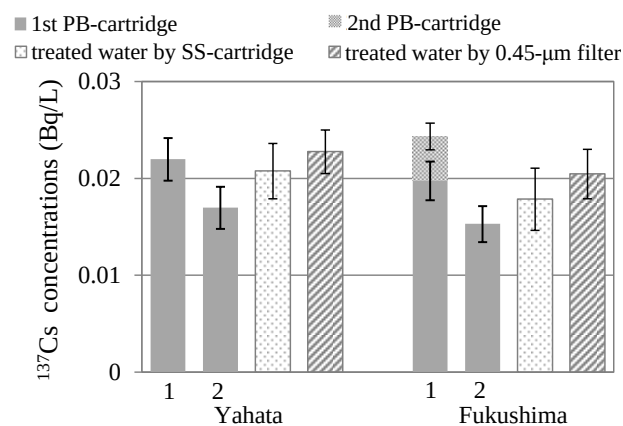


Fig.4 PB-C, SS-C 処理水, 濾液の ^{137}Cs 放射能濃度
 ^{137}Cs concentrations of the PB-cartridges, the treated water of the SS-cartridge, and the filtrate