

B-4 水試料中の低濃度溶存態放射性セシウムの濃縮測定と 浄水処理工程中の挙動

○反保 亮祐^{1*}・大野 浩一²・小沼 晋³・齋藤 利晃³・寺田 宙²・秋葉 道宏²

¹ 日本大学大学院理工学研究科土木工学専攻 (〒101-8308 東京都千代田区神田駿河台 1-8-14)

² 国立保健医療科学院生活環境研究部 (〒351-0104 埼玉県和光市南 2 丁目 3-6)

³ 日本大学理工学部土木工学科 (〒101-8308 東京都千代田区神田駿河台 1-8-14)

* E-mail: csry14011@g.nihon-u.ac.jp

1. はじめに

平成 23 年 3 月 11 日に発生した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により、大量の放射性物質が大気中に放出された。大気中に放出された放射性物質は乾性沈着及び湿性沈着により地表面に降下した。こうした放射性物質の一部は雨水とともに河川に流出したと考えられる。

放射性ヨウ素-131 に関しては半減期が約 8 日間であることから、比較的早い時期に環境中から消失したと考えられる。一方で、地面に降下した放射性セシウム(以下 Cs)は、土壤等に吸着し、地下には容易に浸透せず、地表面に残留していると考えられる。そのため、強い降雨時には、地表面の土壤等が雨水流出に伴って河川に流出し、濁質成分として水道原水に流入する場合がある。特に放射性 Cs-137 は半減期が約 30 年であることから、長期にわたる影響を考慮する必要がある。

環境水中において、Cs の大部分は濁質成分に吸着した状態で懸濁態として存在している。ただし、一部は溶存態として存在している。浄水処理において、懸濁態 Cs は凝集沈殿処理によって除去可能だが、溶存態 Cs は濃度が非常に低いものの除去されにくいことが示されている¹⁾。しかし、これらの結果は晴天時など比較的原子水濁度が低い場合の結果であり、降雨後のように原子水濁度が比較的高い時の挙動は明らかになっていない。

また、現在の水道原水中の放射性 Cs は検出限界未満であり、通常の測定手法では検出できない。そこで本研究では、試料水に含まれる低濃度の溶存態放射性 Cs について、Cs 選択型固相抽出ディスクを用いて濃縮測定を行うことで、晴天時ならびに降雨後における浄水工程での溶存態 Cs の挙動について検討を行った。

2. 実験方法

(1) 水試料について

関東地方(A)と東北地方(B)の二つの浄水場より原子水、凝集沈殿後水、砂ろ過後水、原子水について滞留時間を考慮して採水を行った。晴天時(主に低濁時)、降雨後(主に高濁時)の両方で採水を行った。

(2) Cs 濃縮方法

Cs 選択型固相抽出ディスクとして、3M[®]エムポア[™]ラッドディスク(スリーエムジャパン製)を用いて、加圧通水し濃縮を行った。原子水には濁質が多いため、濃縮前に 3500rpm の遠心分離を 30 分間行って濁質の一部を分離した後、通水を行った。遠心分離にて分離しきれなかった濁質、及び原子水以外の工程水に含まれる濁質については、固相抽出ディスクの直前にプレフィルター 3 種(孔径 10, 1, 0.45 μ m, スリーエムジャパン製)を直列にホルダーに設置することで、濃縮の際に分離を行った。

(3) 測定方法

図 1 に前処理を含めた放射性 Cs の測定方法のフロー図を示す。本研究では、固相抽出ディスク内に捕捉された Cs-137 を溶存態の Cs-137 と見なした。固相抽出ディスクを U8 容器に収納し、ゲルマニウム半導体検出器(GEM40-76;ORTEC 製、EGPC20-190-R;EURISYS 製)により Cs-137 の測定を行った。プレフィルターも同様に測定し、その値を懸濁態 Cs-137 の一部とした。遠心分離により分離した原子水濁質は恒温器を用い 60℃にて U8 容器内で乾燥させた後測定を行い、原子水濁質とプレフィルターの Cs-137 濃度を足し合わせたものを懸濁態 Cs-137 とした。

また、試料水については溶存態 Cs-133 も ICP-MS(Agilent 7500cs)により測定した。なお、前処理として、各試料水を 0.45 μ m 親水性 PTFE フィルター(ADVANTEC 製)にてろ過後、硝酸を 0.1mL 添加した。

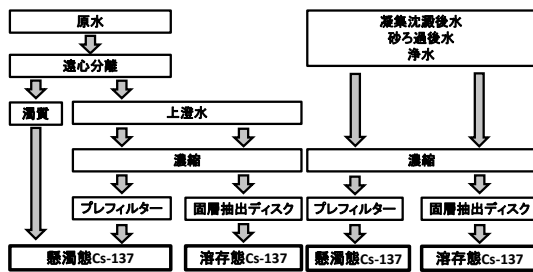


図1 放射性Csの測定方法のフロー図

3. 結果及び考察

(1) 晴天時

図2に晴天時におけるA,B浄水場の浄水処理工程水中の溶存態Cs-137濃度を示す。溶存態Cs-137濃度は原水、浄水とも0.002～0.013 Bq/Lの範囲にあり水道水の管理目標値である10 Bq/Lより3～4桁低い値であった。A浄水場の晴天時では原水のCs-137濃度が他の浄水工程水より高く検出され、凝集沈殿処理後で濃度が減少する場合があった。この理由については明らかではないものの、可能性の一つとして、以下のことが考えられた。晴天時には河川に流出される土壌が少ないこと、河川の流れが比較的穏やかなことから、河川流下中での濁質とCsとの接触が少なく吸着平衡に至らないまま浄水場に入入する。その後、浄水処理の急速攪拌等によって濁質への吸着が進み、凝集沈殿後水でのCs-137濃度が減少するということが可能性として推測された。

B浄水場の晴天時では、原水から浄水にかけてCs-137濃度の大きな変化はあまり見られなかった。B浄水場は水源がダム貯留水である（なお、A浄水場の水源は河川水である）ことから、晴天時は水質が安定していることが理由の一つであると考えられた。また、B浄水場は原水濁度が低い場合が多いことから、浄水場にて急速攪拌等を行っても濁質が少なく吸着反応が進まないまま固液分離が行われてしまう可能性もある。

以上、水質が安定している晴天時においては、原水中溶存態Csの一部が凝集時の攪拌によって、吸着平衡に達していない原水中濁質に吸着されると推測される減少が見られる場合があった。しかしながら、一般的に使用される凝集剤（ポリ塩化アルミニウム）によっては除去が期待できず、原水から浄水まで濃度が大きく変化しないことが示された。

(2) 降雨後

図3に降雨後におけるA,B浄水場の浄水処理工程水中の溶存態Cs-137濃度及び溶存態Cs-133濃度を示す。また、図4に降雨後における原水濁質及び原水・凝集沈殿後水のプレフィルター中の懸濁態Cs-137濃度を示す。

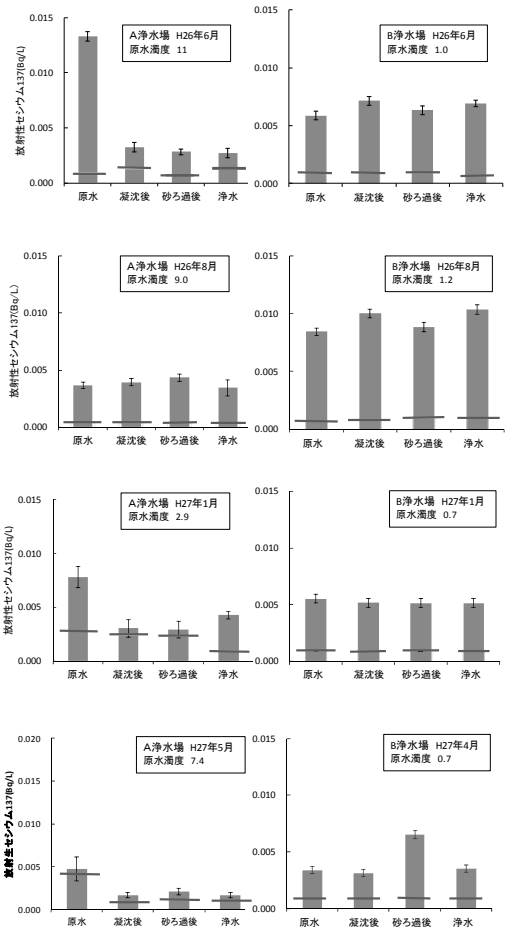


図2 晴天時の溶存態Cs-137濃度
(横線は検出下限値を示す)

降雨後の溶存態Cs-137の結果(図3)では、原水濃度は浄水と比較すると低く検出され、凝集沈殿後水から上昇して、浄水で比較的高く検出される傾向が見られた。安定型である溶存態Cs-133においても挙動も同様な傾向が見られた。

溶存態Csの挙動について、原水が低く検出された理由の一つとして、雨水によって希釈された可能性が考えられた。また、降雨によって河川に大量の土壌が流れ込みかつ流量・流速が大きくなることから、河川内で濁質とCsが混合され、濁質にCsが吸着された可能性も推測された。原水濁質の懸濁態Cs-137が検出されていることから、降雨時では、濁質にCsが吸着されている可能性が示唆された。凝集沈殿処理後でCs濃度が上昇している理由の一つとして以下のような可能性が推測された。

降雨時(特に豪雨時)のように濁度が高く流れが激しい場合、河川内で混合された濁質とCsは吸着平衡状態にあると推測される。1価の陽イオンであるセシウムイオン

(以下Cs⁺)は土壌中の負電荷をもつ部位に吸着される。Cs⁺の保持メカニズムの一つとして、2:1型層状ケイ酸塩鉱物の非膨張層と膨張層の境界にあるくさび形に開いた部分(フレイド・エッジ・サイト)は、Cs⁺を選択的に固定し、いったん固定すると容易に放出しない。この他に、2:1型層状ケイ酸塩鉱物の層間には、Cs⁺を選択的に保持しやすいが、吸着が可逆的である負電荷部位が存在する²⁾。このような層間あるいは表面の負電荷部位においてイオン交換作用により保持されたCs⁺は、凝集剤として添加される価数の高い陽イオンに交換され溶存態Csへと移動する可能性もあると考えられる。ただし、降雨により溶存態Cs濃度が薄まる影響や原水中のイオン強度が変化する影響なども考えられることから、高濁時における低濃度溶存態Csの挙動についてはさらなる検討が必要である。

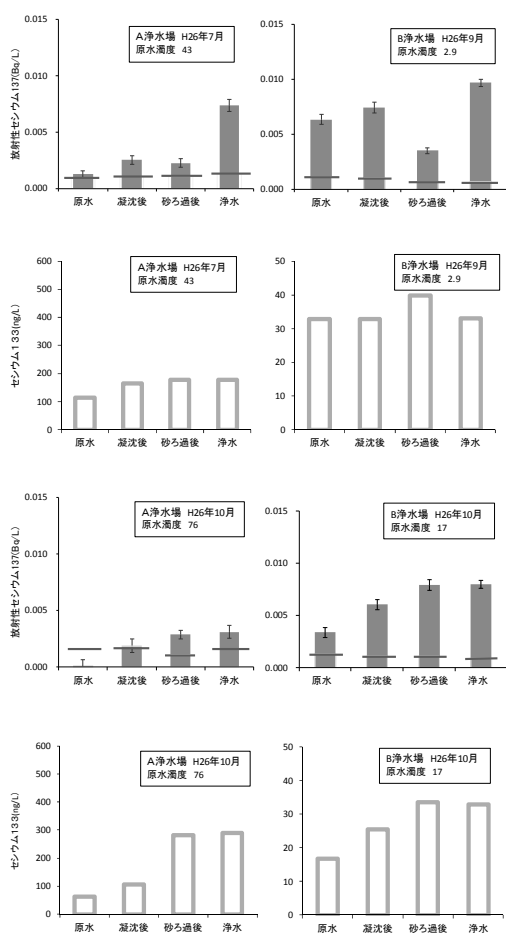


図3 降雨後の溶存態Cs-137濃度及びCs-133濃度 (Cs-137濃度の横線は検出下限値を示す)

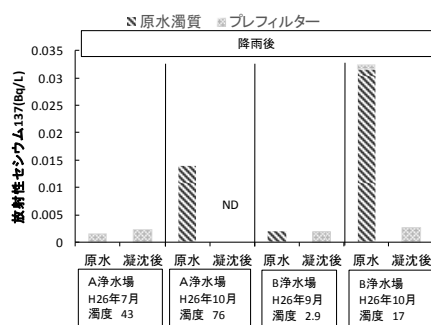


図4 原水濁質及びプレフィルターの懸濁態Cs-137濃度

降雨後の懸濁態Cs-137の測定結果(図4)では、原水濁質とプレフィルターのCs-137濃度を足し合わせたものを原水の懸濁態Cs-137とした。H26年A浄水場7月は原水0.001Bq/L、凝集沈殿後水0.002Bq/Lであり、10月は原水0.014Bq/L、凝集沈殿後水は検出限界未満であった。H26年B浄水場9月は原水、凝集沈殿後水共に0.002Bq/Lであり、10月は原水0.032Bq/L、凝集沈殿後水0.003Bq/Lであった。尚、晴天時の原水濁質はいずれも検出限界以下であった。A浄水場H26年10月やB浄水場H26年10月のように原水濁質由来の懸濁態Cs-137濃度が高い場合は、凝集沈殿処理により濃度が大きく減少した。濁質由来の放射性Cs-137濃度は、凝集沈殿処理による濁質成分の除去により、低減できることが示された。

4. まとめ

本研究で測定された溶存態Cs-137は最大でも0.013Bq/Lと管理目標値10Bq/Lより3桁程度低い濃度であり、検知できるレベルの健康リスクは存在しない。

晴天時は、原水から浄水にかけて溶存態Csの濃度変化はあまり見られなかった。しかし、原水の溶存態Csの濃度が凝集沈殿処理後で減少する場合もあった。この理由として、河川の流況が穏やかなことから、濁質とCsが吸着平衡に達していない状態で浄水場に入流し、急速攪拌で一部のCsが溶存態から懸濁態へ移行する可能性が示唆された。また、降雨後のように原水の濁度が高く、河川内で混合されて原水に入流してきた濁質はCsと吸着平衡状態にあると推測される。この時、イオン交換等の弱い結合などにより粒子表面に可逆的に吸着していたCsの一部が脱着して、溶存態Csとなる可能性も示唆された。

参考文献

- 1) 緒形季之ら(2013) 全国会議(水道研究発表会)講演集, 584-585.
- 2) 山口紀子(2014) 土壌の物理性, J. Jpn. Soc. Soil Phys., 126, 11-21.