

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 27 年 6 月 22 日現在

機関番号：32503

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2012～2014

課題番号：24651033

研究課題名(和文)パッシブサンプラーによる水圏環境中放射性核種の迅速・高精度モニタリング手法の確立

研究課題名(英文)An Establishment of rapid accurate monitoring methods to measure radionuclides in an aquatic environment by passive samplers

研究代表者

亀田 豊 (Kameda, Yutaka)

千葉工業大学・工学部・助教

研究者番号：60397081

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：河川水や湖沼水といった陸水中の溶存態放射性セシウムの微量迅速分析手法について、選択的に放射性セシウムを濃縮するディスクとNaIシンチレーションカウンターを使用した通水法及びパッシブサンプリング法を確立した。通水法はディスクに試料水を連続的に通水し、通水後のディスクをシンチレーションカウンターで測定する。無人連続処理が可能であり、短時間で分析が可能となった。一方、パッシブサンプリングはディスクを調査水域に浸漬することで、設置期間の時間加重平均濃度を推定できる。現場作業が数分で済むため、高濃度汚染地域でも調査が可能である。また、設置地点の時間的、空間的に代表的な汚染レベルを評価することができる。

研究成果の概要(英文)：Novel rapid analysis methods have been developed to measure trace levels of radiocaesium in surface water by using absorbent disks for radiocaesium with a NaI scintillation counter. One method involves two steps, that is, 1) to pass water samples through the disk to absorb radioactive caesium onto it and 2) to measure radioactive caesium on it by a NaI scintillation counter. The method makes it possible to concentrate radioactive caesium in water samples automatically and to finish the analysis in a shorter time than ordinary methods. The other method is a passive sampling method. This method can calculate time weighted average concentration at sampling sites during the deployment by permeating radioactive caesium on disks at sampling sites. Even at highly contaminated sites, contamination levels can be measured safely because the deployment takes only a few minutes. Moreover, this method can reveal contamination with levels as spatial and temporal representativeness.

研究分野：環境化学

キーワード：放射性セシウム パッシブサンプリング ラドディスク グラブサンプリング 陸水

1. 研究開始当初の背景

平成 23 年 3 月 11 日に発生した東日本大震災に伴う福島第一原子力発電所事故により、推定 12 PBq の放射性セシウムが大気中に放出され、東日本を中心に沈着等を介して汚染が生じた。その中で放射性セシウムによる陸域への沈着は、放出後の大気拡散と降雨等の気象状況によりホットスポットと呼ばれる高濃度汚染地域が形成される複雑なものであることが航空機によるモニタリング調査等を通じて明らかとなった。現在では、環境中に放出された放射性物質の移動・移行状況の把握、現在および将来のヒトの被ばく量推定等を検討するため、平成 23 年、国の総合モニタリング計画に基づき、幅広いモニタリングが実施されている。このモニタリングは文部科学省放射能測定シリーズに準拠して行うことになっており、このうち、陸水の分析方法は 10～100 L の試料水を 0.1 L 以下まで蒸発濃縮し、さらに赤外線ランプで蒸発乾固後、ゲルマニウム半導体検出器で測定することが記載されている。この方法は福島第一原子力発電所の事故前から国内で行われている一般的な分析手法として様々な調査で利用されており、また、海外でも陸水では一般的な分析手法として使用されている。しかし、一方でこの方法には大きな問題点が指摘され続けている。すなわち、蒸発乾固における火災事故のリスクやその防止策としての作業員の監視の必要性、それに伴う多大な労働力と昼夜操作の不可、操作自体の煩雑性および多大な蒸発乾固時間である。さらに、ここまでの労力をかけても現在の国内の陸水の放射性セシウム放射能はその多くが検出下限値未満と報告されている。したがって、現在の公共用水域の放射性セシウムモニタリングデータは、陸水中の放射性セシウム放射能の環境中挙動の研究や放射能の将来予測モデルおよびリスク評価のための基礎的情報として利用することが困難な状況となっている。そのため、平成 23 年度に文部科学省より見直しに関する検討が通達された。それによれば、陸水・底質汚染に関しては汚染分布の把握と中長期的な変動の追跡が重要視され、陸水の具体的なモニタリングは、検出下限値を 1 mBq/kg 程度(より低い値が望ましい)、三か月に一回程度の頻度とし、環境省が進めているモニタリング地点 500～600 地点のできる限り多く行うべき内容を提案している。しかしながら、現実の設備面でも、高額で設置環境条件が厳しいゲルマニウム半導体検出器の国内への幅広い普及は容易ではない。また、前述した前処理法の問題点も解決されていない。ただし、近年になり、蒸発濃縮に代わる分析手法も開発されてきた。しかし、これら両側面の問題の解決策、つまり、効率的な前処理方法とゲルマニウム半導体検出器の代替機器を組み合わせた方法の確立と、その分析精度面および作業効率面から従来の分析方法と比較し、定量的な評価を行った研究事例は少ない。

このように、研究開始当初、あるいは現在でも放射性セシウムの水環境中汚染レベルのモニタリングにおいて、新しい手法の確立が急務とされている。

2. 研究の目的

そこで、本研究ではこれらの状況を鑑み、以下の目的を掲げ研究を行った。

(1) 放射性セシウムの選択的吸着性を有するディスクに陸水を連続的に加圧通水することで、懸濁態と溶存態各々に分離濃縮し、分離濃縮試料をシンチレーションカウンターで迅速に高精度測定する手法(Absorbed Disks for radioactive Caesium with NaI Scintillation counter : 以降、ADiCS 法と称す)を確立すること。

(2) 実際の陸水へ ADiCS 法を適用し、蒸発乾固法との分析結果比較および操作の迅速性比較から、ADiCS 法の実環境中表流水への有効性を評価すること。

(3) ADiCS 法よりも低濃度の河川水中放射性セシウムの半連続モニタリング方法として、パッシブサンプリング手法を確立すること。

(4) 確立したパッシブサンプリング手法の精度を ADiCS 法と比較し、モニタリング方法としての特性を評価すること。

(5) パッシブサンプリング手法を用いて、関東地方の陸水中の放射性セシウム濃度をモニタリングし、現在の汚染状況の把握、特性評価を行うこと。

3. 研究の方法

(1) ADiCS 法のための装置開発 : ADiCS 法では大量の表流水を加圧条件下でセシウム選択性を有するディスクに吸着させる加圧通水濃縮過程と、吸着したディスクを非破壊のまま、NaI シンチレーションカウンターで測定する過程で構成される。本装置は、懸濁態を含む河川水を約 20 L 加圧容器に入れ、窒素ガス製造装置で加圧することで、連続的に孔径 0.45 μm の親水性 PTFE 膜で懸濁態を分離し、ろ液を放射性セシウム選択性吸着ディスクに通水することで溶存態放射性セシウムと懸濁態放射性セシウムの個別同時濃縮ができる。親水性 PTFE 膜およびラドディスクは専用の加圧ホルダーにセットし、300 kPa で加圧通水した。連続的に加圧するに伴い、PTFE 膜やディスクの閉塞によるろ過流量の減少が生じるため、ろ過流量が 10 ml/min 程度以下になった時点で親水性 PTFE 膜(孔径 0.45 μm)を交換した。なお、ラドディスクは一河川水に一枚使用し、加圧通水中は交換しなかった。ただし、ろ過流量の向上のため、コンディショニングとしてメタノールを 5ml 程度ラドディスクに通水した。全量通水後、ディスクを乾燥器で乾燥させ、ディスクに吸

着した放射性セシウム放射能を測定した。

(2) 蒸発乾固法：公定法の淡水の手法に準じて行った。まず、河川水20 Lのうち10 Lを5 Lビーカー2個にいれ、ホットプレートにて突沸しないように加熱濃縮した。懸濁態を含む河川水中の全放射性セシウム放射能を測定する場合は、懸濁態を含んだ状態で加熱濃縮し、溶存態放射性セシウム放射能を測定する場合は、0.45 μmのガラス繊維ろ紙でろ過した河川水を加熱した。20 L全量を加熱濃縮し、液量が少なくなった時点で壁面の析出物とともに磁性蒸発皿に移し、熱風乾燥機中で乾固させた。乾固後、乾固物をできる限り回収し、乾固物の放射能を測定した。なお、¹³⁷Cs添加による回収率補正は行わなかった。

(3) パッシブサンプリング手法の確立：ラドディスクをパッシブサンプラーホルダーである Chemcatcher® に組み込み、水中放射性セシウムのパッシブサンプラーとした。このサンプラーを、代表者が開発した室内キャリブレーション装置で約一か月間、水中放射性セシウムに流水式で暴露させ、サンプリングレートを算出した。さらに、サンプリングレートへの調査水域における流速の影響を評価するため、パッシブサンプラーをカルーセルに乗せたキャリブレーション装置により、カルーセルの回転速度を変えることで、疑似的にディスク直上の流速を変えた実験を行った。

(4) 実河川におけるパッシブサンプリング手法の精度評価：室内試験により確立したパッシブサンプリングの精度を評価するために、実際の河川にパッシブサンプラーを一週間設置し、設置期間における河川水中の時間加重平均濃度を推定した。同時に毎日一回計7回、河川水のグラブサンプリングを行い、ADiCS法により、河川水中の放射性セシウム濃度を測定し、グラブサンプリングによる時間加重平均濃度を計算した。最終的にパッシブサンプリングによる時間加重平均濃度とグラブサンプリングによる結果を比較した。

(5) 実河川や実湖沼へのパッシブサンプリング手法の適用：パッシブサンプラーを専用ケースに入れ、関東地方の河川や湖沼に一か月設置し、設置期間中の調査水域の溶存態放射性セシウムの時間加重平均濃度をモニタリングした。

4. 研究成果

(1) ADiCS法の確立：開発したADiCS法装置を用いて懸濁物質濃度(SS濃度)の異なる河川水に適用し、作業の迅速性を評価した。その結果、SS濃度が約20 mg/L未満程度であれば、加圧通水濃縮法は蒸発乾固法よりも、約6倍以上の濃縮作業迅速性があると評価できた。

(2) ADiCS法の分析精度における蒸発乾固法との比較分析：13種類の河川水や湖沼水を蒸発乾固法およびADiCS法で測定した結果、ADiCS法による測定値は蒸発乾固法の30%誤差範囲内となり、ADiCS法による表流水中放射性セシウムの分析精度が蒸発乾固法と大きく変わらないことが明らかとなった。

(3) 河川水中放射性セシウムの半連続モニタリング方法としてのパッシブサンプリング手法を確立：室内キャリブレーションにより、パッシブサンプラーの溶存態放射性セシウムのサンプリングレートが明らかとなった。サンプリングレートは、ディスク直上の流速と正の相関関係があることが明らかとなり、設置期間中の流速による栄養を評価する物質(Performance Reference compoundあるいはFlow indicator)の必要性が明らかとなった。本研究では、様々な重金属におけるラドディスクからの溶出特性を確認した結果、数種の重金属類がFlow indicatorとして利用できることが明らかとなった。さらに、この物質の添加回収率を利用したサンプリングレート推定式も明らかにした。以上のことから、流速の異なる様々な水域において、パッシブサンプラーのサンプリングレート推定式を用いることで、水中放射性セシウムのパッシブモニタリング手法が確立された。

(4) ADiCS法と比較した、パッシブサンプリング手法の精度評価：実際の河川にパッシブサンプラーを一週間設置し、パッシブサンプラーによる時間加重平均濃度と一日位階のグラブサンプリングによる時間加重平均濃度を比較した。設置期間の間に降雨があったため、グラブサンプリングによる濃度は採水日より大きく変化した。しかし、時間加重平均濃度では、パッシブサンプラーによる結果とグラブサンプリングによる結果で大きな違いはなかった。したがって、室内キャリブレーション試験に基づいたパッシブサンプリング法の実河川への適用が可能であることが明らかとなった。

(5) パッシブサンプリング手法を用いた、関東地方の陸水中の放射性セシウム濃度のモニタリング：ADiCS法およびパッシブサンプリング法を用いて関東地方の約20地点の表流水中溶存態放射性セシウムを測定した結果、検出下限値未満(17 mBq/L)~196 mBq/Lの放射性セシウムが検出され、事故前よりも高濃度であることが明らかとなった。特に100 mBq/Lを超える表流水は、沈着量の高い地域を流域とする河川や湖沼であった。1 Bq/L未満の検出下限値での詳細調査の必要性が示唆された。

<引用文献>

亀田豊、山口裕顕、玉田将文、太田誠一、

選択性吸着ディスクと NaI シンチレーションカウンターを用いた漂流水中放射性セシウムの迅速微量分析方法の確立と特性評価、水環境学会誌、査読有、37 巻、2014.、211-218、DOI 無し

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計 3 件)

亀田豊、山口裕顕、玉田将文、太田誠一、
選択性吸着ディスクと NaI シンチレーションカウンターを用いた漂流水中放射性セシウムの迅速微量分析方法の確立と特性評価、水環境学会誌、査読有、37 巻、2014、211-218、DOI 無し

中野和典、手塚公裕、長林久夫、亀田豊、
玉田将文、低線量地域における水中放射性セシウム濃度の計測、生物工学会誌、査読有、92 巻、2014、217-221、DOI 無し
亀田豊、パッシブサンプリングを用いた水中放射性セシウムの新しいモニタリング手法の確立、ぶんせき、査読有、9 巻、2013、550-553、DOI 無し

[学会発表](計 11 件)

法華津徹、佐藤花香、亀田豊、大堀川・
亀成川流域における水中放射性セシウムの流出挙動に関する研究、第 49 回日本水環境学会年会、2015 年 3 月 16 日-18 日、
金沢大学(石川県金沢市)

亀田豊、Passive sampling applications
for radioactive caesium source、SETAC
North America 35th Annual Meeting、
2014 年 11 月 9 日-13 日、バンクーバー(カナダ)

亀田豊、パッシブサンプラーを用いた手
賀沼における放射性セシウム汚染状況評価、
第 23 回環境化学討論会、2014 年 5
月 14 日-16 日、京都大学(京都府京都市)

亀田豊、関東地方の水溶性生物体中放射
性セシウム放射能実態及び特性に関する
研究、第 48 回日本水環境学会年会、2014
年 3 月 17 日-19 日、東北大学(宮城県仙
台市)

佐藤花香、大谷瑞季、亀田豊、手賀沼流
域における水中放射性セシウムのパッシ
ブサンプラーによる汚染源推定に関する
研究、第 48 回日本水環境学会年会、2014
年 3 月 17 日-19 日、東北大学(宮城県仙
台市)

亀田豊、パッシブサンプリング手法によ
る関東地方における河川湖沼水中溶存態
放射性セシウムのモニタリングに関する
研究、第 22 回環境化学討論会、2013 年 7
月 31 日-8 月 2 日、東京農工大学(東京
都府中市)

亀田豊、Kittisak Chaisan、Jim Smith、

選択性吸着ディスクを用いた水中放射性
セシウムモニタリング手法を利用した水
環境中放射性セシウム濃度の将来予測モ
デルの開発、第 47 回日本水環境学会年
会、2013 年 3 月 11 日-13 日、大阪工業
大学(大阪府大阪市)

宮本大輔、小口貴宏、亀田豊、選択性吸
着ディスクを用いたパッシブサンプリ
ング法による関東地方の湖沼、河川にお
ける環境水中放射性セシウムのモニタ
リングに関する研究、第 47 回日本水環
境学会年会、2013 年 3 月 11 日-13 日、
大阪工業大学(大阪府大阪市)

小口貴宏、宮本大輔、亀田豊、選択性吸
着ディスクを用いた水中放射性セシウム
の通水法、パッシブサンプリング法確立
に関する研究、第 47 回日本水環境学会
年会、2013 年 3 月 11 日-13 日、大阪工
業大学(大阪府大阪市)

亀田豊、Development of novel
monitoring methods for improving the
ecological risk assessment of
radioactive caesium in the aquatic
environment in Japan, SETAC Europe
Annual Meeting、2012 年 9 月 24 日-27 日、
ANA クラウンプラザホテル熊本ニュー
スカイ(熊本県熊本市)

亀田豊、パッシブサンプラーによる環
境水中放射性セシウムの迅速分析手法に
関する研究、第 21 回環境科学討論会、
2012 年 7 月 11 日-13 日、ひめぎんホ
ール(愛媛県松山市)

ホームページ等

<http://kamelab.pro.tok2.com/>

亀田研究室 HP

6. 研究組織

(1) 研究代表者

亀田 豊 (KAMEDA, Yutaka)
千葉工業大学・工学部・
建築都市環境学科・助教
研究者番号：60397081

(2) 研究分担者

中野 和典 (NAKANO, Kazunori)
日本大学・工学部・土木工学科・准教授
研究者番号：30292519