

放射性ヨウ素等対策に関する研究成果報告

2011年4月28日

日本放射線安全管理学会

西澤邦秀名古屋大学名誉教授を委員長とするヨウ素対策アドホック委員会のうち、水対策班（班長：徳島大学三好弘一准教授）について中間報告としてまとめましたので、その中でも特に国民の皆様に関心のあるヨウ素の除去対策について紹介します。飲料水中の放射能汚染については、現在収まっておりませんが、今後万一の事態に備えて、学会として知見をまとめておくことが大切であると言えます。

高濃度の放射性ヨウ素、放射性セシウムを含む飲料水の入手が困難であったことから、雨水を試験水として使用した結果であること、浄水器のろ過剤は活性炭を含むものであることをお断りした上で、以下のような重要な成果が得られていることをご報告いたします。

1. 市販のポット型浄水器による放射性ヨウ素の除去効果は70から98%であった。
2. 市販のポット型浄水器による放射性セシウムの除去効果は84から93%であった。
3. 電気ポットによる、カルキ抜きでは、ヨウ素の除去はできなかった。

浄水器は現在様々なものが市販されておりますが、同様のろ過剤を用いている場合には同様の効果が期待できると思われれます。日常の器具により、簡単な処理ができることは、水の買い占めなどに走ることなく、落ち着いた対処ができることになると期待できます。

詳しい結果は、中間報告をごらんください。

平成 23 年 4 月 28 日

日本放射線安全管理学会
会長 榊本和義 殿

日本放射線安全管理学会
放射性ヨウ素安全対策アドホック委員会
委員長 西澤邦秀

福島第一原発事故によって汚染された雨水中放射性ヨウ素
及び放射性セシウムの除去について

表記の件について、放射性ヨウ素安全対策アドホック委員会 水分析班三好弘一班長より別添のとおり報告書の提出がありましたので、ご報告いたします。
本報告書については、本学会のホームページへ掲載し学会員に対して公開するとともに関係機関等への適切な広報をお願い致します。

平成 23 年 4 月 28 日

日本放射線安全管理学会
放射性ヨウ素安全対策アドホック委員会
委員長 西澤邦秀 殿

放射性ヨウ素安全対策アドホック委員会
水分析班

班長 三好弘一

福島第一原発事故によって汚染された雨水中放射性ヨウ素
及び放射性セシウムの除去について

福島第一原発事故によって放出された放射性ヨウ素及び放射性セシウムにより汚染された雨水中からこれら放射性物質を除去するために平成 23 年 3 月 26 日から 4 月 17 日の間に行った実験結果を 4 月 20 現在で中間報告書として取りまとめたので別紙の通り報告いたします。

なお、本報告書は暫定的な結果であり、最終的な結果は別途報告いたします。

別紙

福島第一原発事故によって汚染された雨水中放射性ヨウ素
及び放射性セシウムの除去に関する
中間報告書

日本放射線安全管理学会
放射性ヨウ素安全対策アドホック委員会 水分析班

目次

提言

概要

はじめに

方法、結果及び考察

[1] モデル実験

- 1 市販浄水器による非放射性 I_3 の除去効果
- 2 ^{125}I 溶液に対する各種材料の除去効果

[2] 汚染雨水を用いる実験

- 1 雨水の放射能濃度及び放射能比
 - 1.1 試料採取場所及び日時の一覧
 - 1.2 核種分析
- 2 各種材料による雨水中の ^{131}I の除去効果
- 3 市販の浄水器による雨水中の ^{131}I 及び ^{134}Cs , ^{137}Cs の除去効果
 - 3.1 市販の浄水器による ^{131}I の除去効果
 - 3.2 市販の浄水器の繰り返し使用による ^{131}I , ^{137}Cs , ^{134}Cs の除去効果
- 4 残留成分の推定

まとめ

提言

今般の福島第一原発事故によって放出された放射性ヨウ素及び放射性セシウムによる汚染の程度であれば、一般家庭で容易に入手可能な活性炭を基剤とする浄水器を用いて雨水中のこれらの放射性物質を効率的に除去可能であることから、一般市民の体内汚染に対する懸念に対処するために、これら浄水器の有用性の周知をはかることが望ましい。

しかしながら、これまでのところ浄水器の汚染水道水に対する効果は確認されていないこと、雨水中にはこの浄水器によっても除去できない残留成分が存在すること、浄水器の浄化可能水量が確認されていない等の未解決の問題があるので、汎用性のあるより効率的な除去方法を開発するために、更に研究を進める必要がある。

概要

福島第一原発事故によって放出された放射性ヨウ素 ^{131}I 及び放射性セシウム ^{137}Cs 、 ^{134}Cs により汚染された雨水中及び水道水から一般家庭で容易に入手可能な器材を用いて簡便に放射性物質を除去することを目的として各種材料及び市販浄水器を用いて実験的に放射性物質除去率を求めた。汚染水道水の入手は困難であったので、実験では汚染雨水を試料とした。

雨水中には ^{131}I 、 ^{132}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs 、 ^{132}Te 、 $^{129\text{m}}\text{Te}$ 、 ^{129}Te が検出された。 ^{131}I と ^{137}Cs の存在比は場所と日時によって異なり ^{131}I は ^{137}Cs の 12～26 倍であり、雨水中の放射能の大部分は ^{131}I 由来であった。

大学等の実験室や家庭で比較的入手しやすい材料及び市販の浄水器に対する除去率を求めた。非放射性ヨウ素及び ^{131}I に代わって放射性 ^{125}I を用いたモデル実験では、活性炭が有効であることが示唆された。この結果に基づいて、活性炭を含むろ過材に、イオン交換樹脂、中空糸膜、セラミックスをプラスした 5 種類のポット型浄水器による放射性ヨウ素及び放射性セシウムの除去効果を調べた。

ポット型浄水器を用いる繰り返し浄化によって ^{131}I は 90～99%除去され、 ^{137}Cs は 94～100%除去された。この結果は、一般家庭において簡便に ^{131}I 及び ^{137}Cs を除去するためにこれらの浄水器を使用可能であることを示している。電気ポットによる煮沸では ^{131}I が濃縮されるので注意する必要がある。今回は実験を割愛した活性炭を基剤とする加圧型浄水器もポット型浄水器と類似した性能を有するものと思われるが、今後実験的に除去率を確かめる必要がある。又、浄化可能な水量及び放射エネルギーについても確認する必要がある。

^{131}I は、雨水の採取場所や時期によって、ポット型浄水器で除去できない残留成分が 1～9%存在し、残留成分の一部は SiO_2 によって吸着された。更に除去率を向上させるためには、残留成分の除去方法を開発することが不可欠である。

はじめに

水分析班の目的は、福島第一原発事故によって放出された放射性ヨウ素及び放射性セシウムで汚染された水道水ならびに雨水中のこれら放射性物質を除去する方法について検討しその除染方法を提案することである。

大学等の実験室や家庭にある比較的手に入りやすい材料又は市販の浄水器を用いて放射性物質を除去する方法を見い出すことを念頭において、モデル実験及び汚染試料を用いる実験により除去率を求めた。汚染水道水の入手は困難であったので、汚染雨水を対象として実験を行った。

以下で主要な方法、結果及び考察を簡潔に箇条書きで整理した。詳細については、本報告書では割愛し、最終報告書に譲ることとする。

方法、結果及び考察

以下の実験において除去率は、次式に従って算出した。

$$\text{除去率(\%)} = \frac{A_0 - A}{A_0} \times 100 \quad (1)$$

A_0 : 処理前の放射能濃度(Bq/L), A : 処理後の放射能濃度(Bq/L)

実施研究機関

TKS 大学: 徳島大学、

S 大学: 静岡大学

KEK: 高エネルギー加速器研究機構、

T 大学: 東京大学

[1] モデル実験 (TKS 大学)

1 市販浄水器による非放射性 I_3^- の除去効果

(方法)

モデル実験用の試料水は、蒸留水で非放射性的のヨウ素溶液を 100 倍希釈して 0.1 mM I_3^- 水溶液を調製した。除去率は、この試料水を浄水器でろ過する前後の紫外可視吸収スペクトルの面積比から算出した。

(結果)

表 1 のように活性炭とイオン交換樹脂をろ過材とする市販の浄水器の I_2^- 及び I^- の除去率に対する除去率は、98%(5 回の平均値)であった。

表 1 市販浄水器による非放射性 I_3^- の除去率

ポット型浄水器	ろ過材	実施場所	試料	$I_2^- + I^-$ 除去率
ブリタNavelia	活性炭 + イオン交換樹脂	TKS大学	0.1mM I_3^- 水溶液	98%

(考察)

非放射性ヨウ素の除去率が 98% という結果は、放射性ヨウ素であっても活性炭を持つ市販の浄水器を用いることによって高い効率で除去可能であることを示唆している。

2 ^{125}I 溶液に対する各種材料の除去効果

(方法)

家庭にあるコーヒードリッパーに専用のペーパーフィルタを配置し、6種類の捕集材を任意量充填して ^{125}I モデル溶液(^{125}I 廃液(Bolton-Hunter, KI等混合廃液, 4.9MBq/L)をろ過して放射能濃度を測定し、除去率を求めた。

(結果)

除去率は、BCDPで72%、BCDPが比較的高い除去率を示した。他の活性炭、とろろこんぶ、片栗粉、小麦粉の除去率14%~39%の範囲に分布し、40%以下であった。食品用ヤシガラ活性炭は40%弱の値であったが、事前の洗浄操作(水洗および熱湯透過)を行うことでヨウ素除去率は85%程度まで上昇した。

表2 ^{125}I モデル溶液と各種材料による除去実験

方 法	除去率(%)
ペーパーフィルター(PF):1.26g	14
PF+活性炭(洗浄処理なし):16.79g	39
PF+とろろこんぶ:3.45g	30
PF+薄力粉:37.04g	23
PF+片栗粉:30.04g	25
PF+BCDP(洗浄処理なし):17.83g	72

(考察)

^{125}I 溶液を用いるモデル実験では、材料により除去率に差があるが、それぞれ一定の除去効果があることを示している。しかしながら前処理を行ったヤシガラ活性炭及びBCDP以外は高い除去率を望めないことも示唆している。ヤシガラ活性炭は前処理によって、更に高い除去率を示す可能性がある。

[2] 汚染雨水を用いる実験

1 雨水の放射能濃度及び放射能比

1-1. 試料採取場所及び日時の一覧

(方法)

表3は、試料水採水場所、種類、採水日時を、採水時の放射能濃度、及び放射能比を示している。表中の—は、放射能を算出していないことを表す。採水時の放射能濃度及び放射能比については、次節で述べる。

(結果)

試料水は3月21日から4月12日の間に採水されたものであり、3月21日の日立市の浄水場を除いて、他は全て雨水である。

表3 採水場所、種類、採水日時、採水時の放射能濃度、及び放射能比

採水場所	種類	採水日時	採水時の放射能濃度(Bq/L)			放射能比	
			¹³¹ I	¹³⁴ Cs	¹³⁷ Cs	¹³¹ I/ ¹³⁷ Cs	¹³⁴ Cs/ ¹³⁷ Cs
日立市	雨水	2011.3.21. 16時40分	3458.9	116.8	133.4	25.9	0.9
東京都	雨水 ¹⁾	2011.3.22. 17時	3542.9	208.5	219.5	16.1	0.95
つくば市	雨水	2011.3.24. 0時	905	-	-	-	-
日立市	雨水	2011.3.24. 0時	6980	-	-	-	-
日立市	浄水場	2011.3.27. 9時	19.8	1.3	0.8	24.8	1.6
福島市笹木野	雨水 ²⁾	2011.4.1	3830	-	236	16.2	-
福島県	雨水	2011.4.12. 10時	1462.2	109	127	11.5	0.9

¹⁾定性分析ろ紙でろ過。

²⁾3/15汚染降雨水を福島市笹木野字町裏の雨水で希釈。

1-2. 核種分析

(方法)

核種は、Ge 半導体検出器を用いて分析した。

(結果)

図1 は雨水の代表的なγ線スペクトルを示しており、¹³¹I、¹³²I、¹³⁴Cs、¹³⁷Cs、¹³²Te、^{129m}Te、¹²⁹Te のピークが確認された。

表3のように再水時の放射能濃度は、¹³¹Iで20~7,000 Bq/L、¹³⁴Csで1.3~117 Bq/L、¹³⁷Csで0.8~236 Bq/Lの間に分布しており、経過日数により¹³¹Iの物理的半減期8日で減衰していなかった。場所と日時により大きな変動を示した。表3のように核種間の比は、¹³¹I/¹³⁷Csで12~26、¹³⁴Cs/¹³⁷Csで1~1.6であった。¹³¹I/¹³⁷Csの放射能比は、採水地によって異なり、約2倍の差があった。

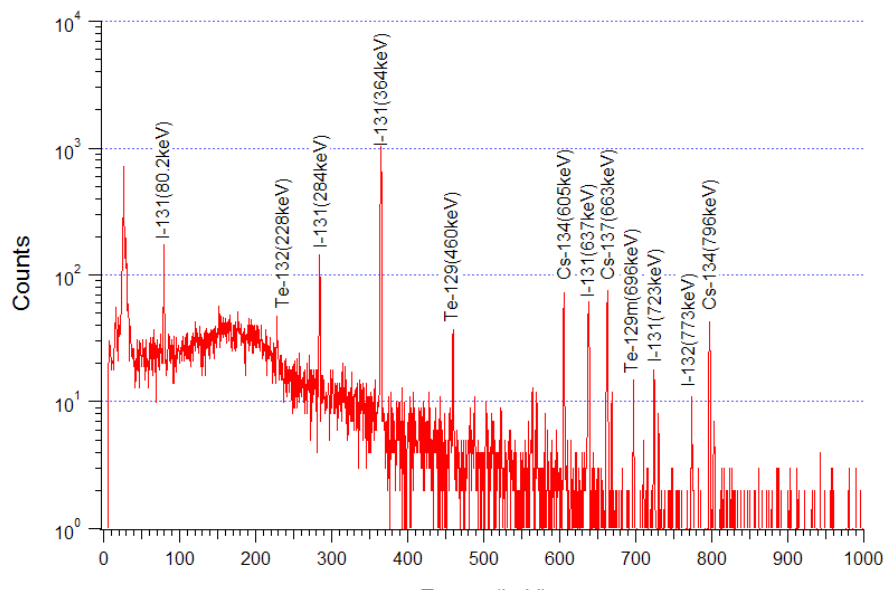


図1 雨水の代表的なγ線スペクトル(T大学)

(考察)

表3の ^{131}I の放射能濃度が場所と日時により大きな変動を示した原因は、当時の ^{131}I 放出量の時間経過及び気象条件と比較分析しなければ究明することはできない。今後の分析が必要である。核種間の比は、 $^{131}\text{I}/^{137}\text{Cs}$ で12~26、 $^{134}\text{Cs}/^{137}\text{Cs}$ で1~1.6であることから、大略雨水は、 ^{131}I を ^{137}Cs の30倍以下含んでおり、 ^{134}Cs を ^{137}Cs の2倍以下含んでいたと推定される。

2. 各種材料による雨水中の ^{131}I の除去効果

(方法)

表4及び表5の($^{131}\text{I}+^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$)除去率は、NaI(Tl) γ カウンターによる正味の計数率より算出した。 γ カウンターはIとCsを分離できないので、除去率は両核種に対する値である。表中のマイナス表記は、フィルターろ過することによって計数率がろ過前の計数率よりも増加したことを示している。100%を超えた表記は、フィルターろ過することによって計数率がろ過前の計数率よりも減少したことを示している。

表6の ^{131}I 除去率は、Ge 半導体検出器で測定した ^{131}I の放射能濃度から算出した。

(結果)

- 1) 表4のフィルターろ過では、孔径1.2 μm から順に5段階でろ過を行った各フィルターでのろ過後の除去率は、段階ごとに異なり、5段階目の2.6 nmの孔径で($^{131}\text{I}+^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$)をほぼ除去することができたが、濾過によって試料水の濃度が増加している濾紙もあった。また、2.6 nmの孔径で100%より高い除去率132%が得られたが、4段階目フィルターでの濾過水の計数率が低かったので大きい誤差を示した。
- 2) 表5のイオン交換樹脂(陽イオンと陰イオンの混合型)の($^{131}\text{I}+^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$)に対する除去率は73%であった。
- 3) 表5の銀イオン固定リン酸ジルコニウムの($^{131}\text{I}+^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$)に対する除去率は、59%であった。
- 4) 表5の銀微粒子固定粘土の($^{131}\text{I}+^{134}\text{Cs}+^{137}\text{Cs}$)に対する除去率は、18.2%除去であった。
- 5) 表6の5Aろ紙の除去率は、 ^{131}I に対して3.5%であり、 ^{137}Cs (表に示さない)に対して26.3%であった。
- 6) 表6の銀盤接触による ^{131}I の除去率は、8%であった。
- 7) 表6の活性炭の除去率は、一晩放置するにより46%から88%まで増加した。
- 8) 表6の電気ポットによる煮沸では、 ^{131}I は17%濃縮された。
- 9) 表6の薄力小麦粉の ^{131}I 除去率は、5-8%であった。

表4 孔径1.2 μmから2.6 nmまでのフィルターでろ過した雨水中の(¹³¹I+¹³⁴Cs+¹³⁷Cs)除去率

方 法	材 料	実施場所	雨水採取場所	(¹³¹ I+ ¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs)除去率
フィルターろ過	①孔径:1.2 μmメンブレンフィルター	TKS大学	東京都	21%
	②孔径:0.45 μmメンブレンフィルター			-27%
	③孔径:0.2 μmメンブレンフィルター			5%
	④YM-100, 孔径10 nm限外ろ過フィルター			-11%
	⑤YM-1, 孔径2.6 nm限外ろ過フィルター			132%

表5 イオン交換樹脂、銀イオン、銀微粒子による雨水中の(¹³¹I+¹³⁴Cs+¹³⁷Cs)除去率

方 法	材 料	実施場所	雨水採取場所	(¹³¹ I+ ¹³⁴ Cs+ ¹³⁷ Cs)除去率
イオン交換樹脂	Mixed Resin	TKS大学	東京都	73%
銀イオン	Ag ⁺ /Zr ₂ (PO ₄) ₃			59%
銀微粒子	Ag NPs/clay			18%

表6 ろ紙によるろ過、銀盤接触、活性炭の使用と一晚放置、電気ポットによる煮沸、薄力小麦粉との混合による雨水中の¹³¹Iの除去率

方 法	材 料	実施場所	雨水採取場所	¹³¹ I除去率
ろ過	5Aろ紙	S大学	福島県の雨水	4%
		K機構	日立市雨水+水道水	3%
接触	銀盤	K機構	日立市雨水ろ過後水	8%
活性炭+振とう	活性炭10分振とう	K機構	日立市雨水ろ過後水	59%
		K機構	日立市雨水+水道水	46%
活性炭+振とう +一晚放置	活性炭10分振とう+ 一晚放置	K機構	日立市雨水+水道水	88%
電気ポット	電気ポットカルキ 抜き	K機構	日立市雨水+水道水	-17%
電気ポット+活 性炭+振とう	抜き+活性炭10 分振とう	K機構	日立市雨水+水道水	42%
薄力小麦粉	薄力小麦粉そそぎ	K機構	日立市雨水+水道水	5%
薄力小麦粉+ 振とう	薄力小麦粉2分振 とう	K機構	日立市雨水+水道水	8%

(考察)

- 1) 表4及び表5の除去実験では、γカウンターを使用して全γ測定により正味の計数率を測定してその値から(¹³¹I+¹³⁴Cs+¹³⁷Cs)の除去率を算出したが、今後、Ge検出器を使用して核種分析し、除去率を再確認する必要がある。フィルターろ過では、①から⑤のろ過後の中で除去率が減少している場合があり、2.6 nmの孔径で100%を超える除去率が得られたが、使用した試料水の放射能濃度が低かったため、高濃度水を用いて再実験を行う必要がある。(表4)
- 2) 銀の除去率は、表6の銀盤接触による8%、表5の銀微粒子による18.2%及び銀イオン

による 59%の順番に増加しており、この結果は銀の反応性の高い順に除去率が高くなっていることを示している。

- 3) 表6の電気ポットによる煮沸により除去率が減少したのは、煮沸によって試料水が濃縮されたことにより濃度が上昇したことを示している。

3. 市販の浄水器による雨水中の ^{131}I 、 ^{134}Cs 、及び ^{137}Cs の除去効果

[1]1 の非放射性 I_3 を用いて市販の浄水器による除去率が高効率を示したことを考慮して、市販の浄水器による雨水中の ^{131}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の除去率求めた。

3.1 市販の浄水器による ^{131}I の除去効果

(方法)

市販の浄水器には、一般にポット型、蛇口取付型、据え置き型がある。この中で、蛇口取付型と据え置き型については、水道管に直結する必要があるため、雨水の場合は、加圧する装置が必要となるが手元になかったため、今回は、汎用性の高いポット型を使用することとした。その中で、表6の結果から雨水の活性炭による ^{131}I の除去率が 88%であり、表1の結果から活性炭を持つろ過材で非放射性 I_2 と I^- の除去率が 98%であったことから、全て活性炭をろ過材を基材とする浄水器を選んだ。活性炭を含むろ過材に、イオン交換樹脂、中空糸膜、セラミックスをプラスした浄水器による放射性ヨウ素と放射性セシウム除去の有効性を調べた。表7のようなろ過材を有する5種類の浄水器を用い、4大学で ^{131}I 除去実験を行った。

(結果)

- 1) 市販の浄水器 A~E の ^{131}I に対する除去率は、70%から 98%であった。
- 2) 雨水の採水場所によって ^{131}I の除去率に違いが見られた。

表7 市販の浄水器による雨水中の ^{131}I の除去率(浄化1回)

ポット型浄水器	ろ過材	実施場所	試料	^{131}I 除去率
A	活性炭	T大学	東京都の雨水	78%
B	粒状活性炭+イオン交換体	K機構	日立市雨水+水道水	70%
		T大学	福島県の雨水	81%
C	活性炭+イオン交換樹脂	TKS大学	東京都の雨水、	-
			福島県の雨水 1st	83%
			福島県の雨水 2nd	79%
D	中空糸膜(ポリエチレン)、セラミック、活性炭	K機構	日立市雨水+水道水	71%
		S大学	福島県の雨水	97%
E	活性炭+セラミック+中空糸膜、硫酸カルシウム	T大学	福島県の雨水	94%

A: LAICA(イタリア) CAPRI

B: 東レ トレビーノ PT302

C: ブリタ(ドイツ) Navelia

D: 三菱レイヨン クリンスイ CP002

E: パナソニック TK-CP11

(考察)

- 1) 表 1 の非放射性ヨウ素を用いるモデル実験の除去率 98%は、表 7 の放射性ヨウ素除去率の最大値と同じである。化学形が、 I_2 や I^- であれば、活性炭とイオン交換樹脂を使用することによって放射性ヨウ素を十分除去可能であることを示すとともに、実際の汚染雨水の場合は、採水場所によってモデル実験値よりも低い除去率になることを示している。これは、採水場所によって雨水中の成分が異なることを示している。
- 2) ^{131}I の市販のポット型浄水器の除去率が最大で98%であったことは、 I_2 と I^- は除去されるが、活性炭とイオン交換樹脂によっても除去されない ^{131}I 含有物質(残留成分)が存在することを示している。
- 3) 降水の日時および発生源からの距離により生ずる ^{131}I の化学形や吸着している物質の大きさ等の差に依存して、浄水器により除去可能な成分と残留成分の比率が異なる可能性がある。
- 4) 本実験で得られたポット型浄水器の除去率は蛇口取付型と据え置き型の浄水器の除去率を推測するための資料とはなるが、ポット型浄水器の除去率をそのまま適用することは避けなければならない。加圧型の場合は、別途実験で除去率を確認する必要がある。
- 5) 汚染空気ろ過用のチャコールフィルターは空気中の ^{131}I を捕捉するが、一旦捕捉された ^{131}I が時間経過とともに離脱する現象が知られている。離脱の程度には、空気流量と流速が影響すると言われている。水中において活性炭に捕捉された ^{131}I が離脱する現象の存否については調査中である。もしも離脱する場合は、加圧型の浄水器の除去率はポット型浄水器の除去率より低くなることが予測される。
- 6) ポット型浄水器による ^{131}I 除去率は、使用した水量及び放射エネルギーに依存して低下することが予想されるが、現時点では浄水器の有効な水量及び放射エネルギーについての知見は得られていない。

3.2 市販の浄水器の繰り返し使用による ^{131}I 、 ^{137}Cs 、 ^{134}Cs の除去効果

(方法)

市販の浄水器 B～E について、雨水の除去試験を行った後、さらに繰り返し浄化による ^{131}I 、 ^{134}Cs 、 ^{137}Cs の除去率を求めた。

(結果)

- 1) 表 8(1)に示すように、全ての浄水器において浄水操作を繰り返すことによって ^{131}I の除去率が増加した。5回目の ^{131}I 除去率は、ろ紙によるろ過のみで3%(S 大学)、Dで99%、Bで99%、Eで98%、Cで92%~95%であった。
- 2) Dの浄水器で5回浄化後、四塩化炭素及びジエチルエーテルを用いて残留 ^{131}I の溶媒抽出を試みたが、有機層には検出限界程度の量のみが残り、ほとんど水相に残っていた。
- 3) 表 8(2)に示すように、 ^{137}Cs の除去率は、ろ紙によるろ過のみで26%(S 大学)、Dで2回目の浄水以降100%、Bで5回目の浄水で94%、Eで5回目の浄水で98%であつ

た。

- 4) 表 8(3) に示すように、 ^{134}Cs の除去率は、B で 5 回の浄水で 92%、E で 5 回の浄水で 96%であった。

表 8 市販の浄水器による繰り返し浄化による除去効果

(1) ^{131}I の除去率

ポット型浄水器	実施場所	試料	^{131}I 除去率-1	^{131}I 除去率-2	^{131}I 除去率-3	^{131}I 除去率-4	^{131}I 除去率-5
B	K機構	日立市雨水+水道水	70%	75%	78%	81%	79%
	T大学	福島県の雨水	98%	99%	98%	98%	99%
C	TKS大学	福島県の雨水 1st	83%	92%	93%	94%	95%
		福島県の雨水 2nd	79%	88%	90%	92%	92%
D	S大学	福島県の雨水	97%	99%	99%	99%	99%
E	T大学	福島県の雨水	94%	98%	99%	98%	98%

(2) ^{137}Cs の除去率

ポット型浄水器	実施場所	試料	^{137}Cs 除去率-1	^{137}Cs 除去率-2	^{137}Cs 除去率-3	^{137}Cs 除去率-4	^{137}Cs 除去率-5
B	T大学	福島県の雨水	84%	97%	96%	96%	94%
D	S大学	福島県の雨水	93%	ND	ND	ND	ND
E	T大学	福島県の雨水	90%	98%	98%	98%	98%

(3) ^{134}Cs の除去率

ポット型浄水器	実施場所	試料	^{134}Cs 除去率-1	^{134}Cs 除去率-2	^{134}Cs 除去率-3	^{134}Cs 除去率-4	^{134}Cs 除去率-5
B	T大学	福島県の雨水	78%	95%	95%	95%	92%
E		福島県の雨水	88%	98%	99%	97%	96%

(考察)

- 1) 表 8(1)、(2)は ^{131}I 繰り返し浄化により器種間の差があるものの 90~99%除去され、 ^{137}Cs は 94~100%除去されることを示しており、一般家庭において簡便に ^{131}I 及び ^{137}Cs を除去するために使用可であることを示している。
- 2) ^{131}I を含有する残留成分は、四塩化炭素及びジエチルエーテルには抽出されなかったことから親水性の成分であると推察される。
- 3) ^{137}Cs は、5A ろ紙によって比較的容易に除去される水に不溶な成分と浄水器でろ過される成分の2種類がある。

4. 残留成分の推定(TKS 大学)

(方法)

実際の水道水は、浄水場において活性炭等により浄化が行われた後に、家庭に届くため、ポット型浄水器の残留成分に相当する ^{131}I が残存している可能性があることから、この残留 ^{131}I の除去法を見いだす必要がある。残留 ^{131}I の化学形態を推定するため、非放射性ヨウ素との同位体交換、ハイドロサルファイトナトリウムによる I への還元による溶出、シリカゲルへの吸着、限外ろ過による分画、添加したシリカナノ粒子(Silica NPs)による凝集沈殿を試みた。

(結果)

- 1) 表 9 に示すように、ブリタ浄水器で 1 mM I_3 浄水後に、残留成分のみを含む水を加えてろ過したが、 ^{131}I 除去率(94.9%→95.2%)に変化はなかった。残留成分を含む溶液にヒドロサルファイトナトリウムを加えて還元・溶出を試みたが、 ^{131}I の除去率は増加しなかったことから、残留成分は I_2 や I^- が表面にはない可能性がある。
- 2) 表 10 に示すように、雨水の限外ろ過(YM-1, 分子量 1000)による濃縮を行った結果、約 5.9 倍の ^{131}I を含む溶液が得られたことから残留成分は分子量 1000 以上の分子から成る物質であることが示唆された。
- 3) 表 11 に示すように、Silica NPs を加えた雨水には沈殿が見られ、沈殿を含む液の方に ^{131}I の 52%、 ^{137}Cs の 59%、 ^{134}Cs の 75%が検出された。沈殿を含む液に ^{131}I が 52%検出されたことから Silica NPs に吸着された ^{131}I が沈殿したことを示している。また、シリカゲルに吸着する ^{131}I があることもわかった。

表 9 除去されない成分を含む溶液へのヒドロサルファイトナトリウム、シリカゲル添加後のろ過試験

方 法	試 料	^{131}I の除去率			
		1回目	2回目	シリカゲル	シリカゲル 200g
ヒドロサルファイトナトリウム 10g添加後ろ過	福島県雨水(1st)ろ過7回後溶液	-592%	-779%	-	-
	福島県雨水(2nd)ろ過6回後溶液	-374%	-	-2%	-24%
シリカゲルの ^{131}I の吸着割合		-	-	17%	19%

表 10 雨水の限外ろ過による濃縮試験

方 法	正味の計数率/cpm		正味の計数率比
	濃縮液	ろ過された液	濃縮液/ろ過された液
限外ろ過YM-1濃縮(1)	323	55	5.9
(1)+雨水の限外ろ過YM-1濃縮	220	156	1.4

表 11 シリカナノ粒子への雨水中の ^{131}I の吸着試験

Silica NP(7nm)-I+雨水の限外ろ過(YM-10)	γ カウンター正味計数率/cpm	γ 線スペクトルのピーク面積		
		^{131}I	^{134}Cs	^{137}Cs
濃縮液(上澄み+沈殿)	832	410.5	266	196
上澄み液(3ml)のみ	濃縮液/ろ過された液の正味計数率比=8.7	269	48	33
沈殿を含む液(0.5ml)		211.5	200	115
ろ過された液	96	-	-	-

(考察)

残留成分は、放射性ヨウ素単体で存在するのではなく、分子量 1000 以上の分子からなる

物質と結合又は吸着していると考えられ、 SiO_2 に吸着する可能性が示唆された。

まとめ

1. 非放射性ヨウ素を用いるモデル実験において活性炭が98%の除去率であったことは、放射性ヨウ素であっても活性炭を持つ市販の浄水器を用いて除去可能であることを示唆している。
2. ^{125}I モデル溶液を用いた除去実験では、BCDP及び前処理を行った活性炭が70及び85%程度の比較的高いヨウ素除去率を示したことは、非放射性ヨウ素を用いるモデル実験の結果と同様に活性炭が効率的に ^{131}I を除去する可能性を示した。
3. 雨水に関して、 ^{131}I は、活性炭とイオン交換樹脂からなる市販のポット型浄水器を使用することにより、その化学形である I_2 と I^- は除去されるが、その後浄化を繰り返しても除去されない ^{131}I 含有物質(残留成分)がある。
4. 残留成分は、四塩化炭素及びジエチルエーテルには抽出されなかったことから親水性の成分であると推察される。
5. ^{131}I の化学形や吸着している物質の大きさ等に違いがあり、汚染雨水により浄水器を用いて除去可能な成分と残留成分の比率が異なる。
6. 残留成分の一部は、 SiO_2 に吸着する可能性が示唆された。
7. ^{137}Cs には、5Aろ紙によって比較的容易に除去される水に不溶な成分と浄水器でろ過される成分の2種類がある。
8. 電気ポットによる煮沸では ^{131}I が濃縮される。
9. 活性炭を基剤とする加圧型浄水器もポット型浄水器と類似した性能を有するものと思われるが、今後実験的に除去率を確かめる必要がある。
10. ポット型浄水器の浄化可能な水量及び放射エネルギーを確認する必要がある。

水分析班

- 班 長 三好弘一(徳島大学アイトープ総合センター)
副班長 桧垣正吾(東京大学アイトープ総合センター)
班 員 梶本和義(高エネルギー加速器研究機構放射線科学センター)
野川憲夫(東京大学アイトープ総合センター)
廣田昌大(東京大学大学院工学系研究科)
矢永誠人(静岡大学理学部放射科学研究施設)
佐瀬卓也(徳島大学アイトープ総合センター)
末木啓介 (筑波大学アイトープ総合センター)

研究協力者

松村宏、豊田晃弘、高橋一智(高エネルギー加速器研究機構放射線科学センター)