

第6章

固液分離法および懸濁態放射性Cs測定法

- 6. 1 吸引・加圧ろ過法
- 6. 2 カートリッジフィルター法
- 6. 3 積層型フィルター法

6章では、水中の懸濁態放射性Csの回収およびモニタリング手法について説明する。

第6.1節

吸引・加圧ろ過法

技術資料「環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法」では、「4.2ろ過法」に説明されている。

6.1節では、水中の懸濁態放射性Csの回収する吸引・ろ過法について説明する。
技術資料「環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法、2015年9月発行」では、「4.2ろ過法」の名称で説明されている。

- 吸引・加圧ろ過法は、水中の懸濁態放射性Csの回収・モニタリング手法である。
- 試料をろ過することでフィルター上に水中の懸濁物質を回収し、フィルターの放射性Cs濃度を測定できる。
- 吸引式または加圧式ろ過器を用いれば、ろ過時間を短縮することができる。
- ろ過装置によっては、調査地点でのろ過作業も可能であり、ろ過時のフィルター類はメンブレンフィルター、ガラスフィルター、カートリッジフィルターなど様々である。

吸引・加圧ろ過法は、水中の懸濁態放射性Csの回収・モニタリング手法であり、試料をろ過することでフィルター上に水中の懸濁物質を回収し、フィルターの放射性Cs濃度を測定すれば、水中の懸濁態放射性Cs濃度を求めることができる。

加圧式または吸引式ろ過器を用いれば、ろ過時間を短縮することができる。ろ過装置によっては、調査地点でのろ過作業も可能であり、ろ過時のフィルター類はメンブレンフィルター、カートリッジフィルター(6.3.で記述する)など様々である。

本節では、試料を実験室に持ち帰り、メンブレンフィルターやろ紙を用いてろ過する場合の前処理方法について述べる。



- ・ 共通資機材：フィルター、手袋、ろ紙用ピンセット、純水など



- ・ 吸引式：吸引式ろ過器、ろ過鐘、ろ過瓶、吸引ポンプ、真空ポンプ等



- ・ 加圧式：加圧式ろ過器, コンプレッサー、回転子等

本方法に使用する資機材の例を示す。

(1) 共通資機材

フィルター

ろ液回収容器(蓋付きバケツなど)

蒸留水

U8容器、マリネリ容器

はかり

ピンセット(先尖りではないもの)

手袋等

(2) 吸引式

吸引式ろ過器

ろ過瓶またはろ過鐘

吸引ポンプまたは真空ポンプ

(3) 加圧式

加圧式ろ過器

コンプレッサー

スターラー

回転子

吸引・加圧ろ過 操作手順(吸引式の概要)

6.1

吸引・加圧ろ過法

1. 吸引式ろ過器のロート部分をろ過瓶(またはろ過鐘)に接続する。
2. 懸濁態回収用のフィルターをろ過器に装着しホルダーで固定する。吸引式ろ過器の種類によってガラス繊維濾紙とメンブレンフィルターを重ねてろ過することも可能である。
3. ろ過瓶と吸引ポンプ(または真空ポンプ)をチューブで接続する。
4. フィルターが損傷しないように注意しながら、試料をろ過器の上段に入れる。
5. フィルターの通りが悪くなったら、吸引ポンプを用いてろ過瓶の中を減圧させる。
6. フィルターを通過する流量を均等にするのは難しいので毎回圧力を固定してろ過する。
7. ろ過瓶の中に試料が多くなれば、吸引ポンプの電源を切り瓶の中の圧力を大気圧に戻し、ろ液を取り出す。
8. ろ過器上段の受け皿の試料量が半分以下になったら、試料を追加する。
9. ろ過が完了したらピンセットでフィルターを取り出す。

本手順は、吸引式ろ過器(Advantec製、KS-47、KS-90)を用いたものである。

- (1) 減圧式ろ過器のロート部分をろ過瓶(またはろ過鐘)に接続する。
- (2) 懸濁態回収用のフィルターをろ過器に装着しホルダーで固定する。減圧ろ過器の種類によってガラス繊維濾紙とメンブレンフィルターを重ねてろ過することも可能である。
- (3) ろ過瓶と吸引ポンプ(または真空ポンプ)をチューブで接続する。
- (4) フィルターが損傷しないように注意しながら、試料をろ過器の上段に入れる。
- (5) フィルターの通りが悪くなったら、吸引ポンプを用いてろ過瓶の中を減圧させる。
- (6) フィルターを通過する流量を均等にするのは難しいので毎回圧力を固定してろ過する。
- (7) ろ過瓶の中に試料が多くなれば、吸引ポンプの電源を切り瓶の中の圧力を通常に戻し、ろ液を取り出しながら、ろ過器上段の受け皿の試料量が半分以下になったら、試料を追加する。
- (8) ろ過が完了したらピンセットでフィルターを取り出す。

吸引・加圧ろ過 操作手順(加圧式の概要)

1. 懸濁態回収用のフィルターをインラインホルダーに装着し3つの蓋を閉め、インラインホルダーの空気抜き口と空気抜き用チューブで接続する。
2. 回転子をタンクに入れスターラーの上に乗せ、コンプレッサーをタンクに接続する。
3. 気体の出口を超えないように注意しながら試料をタンク入れて蓋を閉める。
4. スターラーの電源を入れて回転子を回しタンク内の試料を攪拌させる。
5. タンクの圧力計レギュレーターを回しタンク内の圧力を少し高くしてからタンクのパルプを少し開けて試料をインラインホルダー側にする。
6. 空気抜き用チューブに試料または蒸留水を少量入れてからインラインホルダーの空気抜き用のパルプを少し開けてチューブ内の空気を抜く。
7. タンクのパルプを全開にして、圧力計レギュレーターを回し設定圧力に調整する。試料をろ過する際に流量を一定にすることは難しいので毎回同じ圧力に設定する。
8. 1次側チューブに試料がないことを確認できれば加圧タンク内には試料がないので、加圧タンクの圧力を下げ、すべてのパルプを閉める。
9. 試料をさらにろ過する場合はタンクに試料を追加し、手順通りにろ過する。
10. ろ過が完了したらピンセットでフィルターを取り出す。

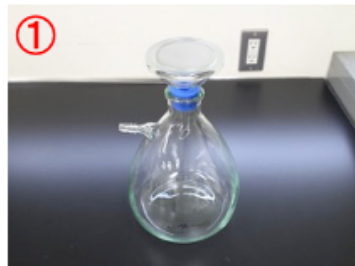
本手順は、加圧式ろ過器(3M製, 900DSA-P1)を用いたものである。

6.1

吸引・加圧ろ過法

吸引・加圧ろ過 操作手順(吸引式の画像付)

6.1 吸引・加圧ろ過法



① ロートをろ過瓶に装着する



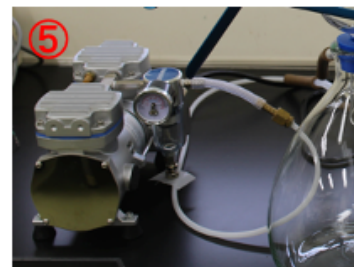
② フィルターを装着し固定する



③ ろ過瓶と吸引ポンプをチューブで接続する



④ 試料をろ過器の上段に入れる



⑤ ろ過瓶の中を減圧させる

- (1) 吸引式ろ過器のロート部分をろ過瓶(またはろ過鐘)に接続する。
- (2) 懸濁態回収用のフィルターをろ過器に装着しホルダーで固定する。
- (3) ろ過瓶と吸引ポンプ(または真空ポンプ)をチューブで接続する。
- (4) フィルターが損傷しないように注意しながら、試料をろ過器の上段に入れる。
- (5) フィルターの通りが悪くなったら、吸引ポンプを用いてろ過瓶の中を減圧させる。フィルターを通過する流量を均等にするには難しいので毎回圧力を固定してろ過する。

吸引・加圧ろ過 操作手順(吸引式の画像付)

6.1 吸引・加圧ろ過法



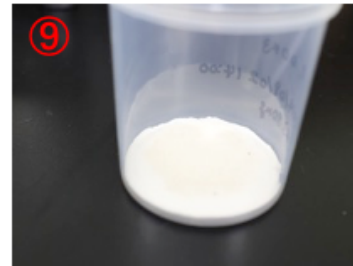
⑥ 試料を追加する



⑦ ろ過瓶のろ液を取り出す



⑧ ピンセットでフィルターを取り出す



⑨ U8容器に入れて測定試料とする

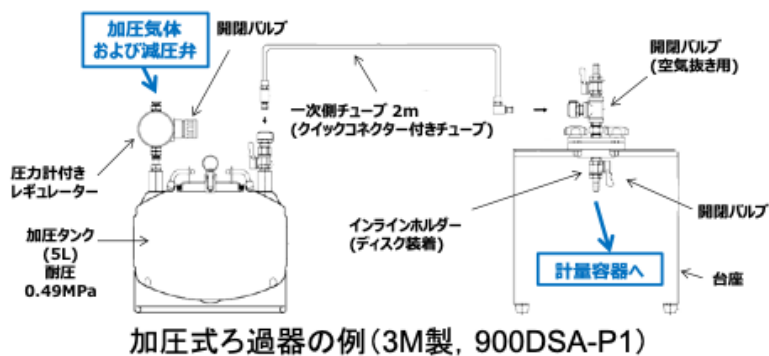
- (6)ろ過器上段の受け皿の試料量が半分以下になったら、試料を追加し、ろ過瓶の中に試料が多くなれば、吸引ポンプの電源を切り瓶の中の圧力を通常に戻す。
- (7)ろ過瓶からろ液試料を取り出す。
- (8)ろ過が完了したらピンセットでフィルターを取り出す。
- (9)47mmのろ紙の場合、そのままU8容器に入れて測定試料とする。

吸引・加圧ろ過 操作手順(加圧式の画像付)

6.1 吸引・加圧ろ過法



①フィルターの装着



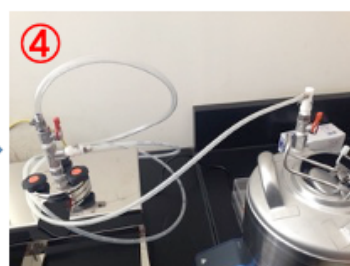
加圧式ろ過器の例(3M製, 900DSA-P1)



②空気抜きチューブを接続する



③加圧タンクをスターラーに乗せる



④加圧タンクとインラインホルダーを接続する

- (1) 懸濁態回収用のフィルターをインラインホルダーに装着する。
- (2) 3つの蓋を閉め、インラインホルダーの空気抜き口と空気抜き用チューブで接続する。
- (3) 回転子を加圧タンクに入れてスターラーの上に乗せる。
- (4) 加圧タンクとインラインホルダーを1次側チューブで接続する。

吸引・加圧ろ過 操作手順(加圧式の画像付)

6.1 吸引・加圧ろ過法



⑤コンプレッサーと加圧タンクを接続する



⑥加圧タンクに試料を入れて蓋を閉める



⑦加圧タンクの圧力を少し高め試料を送る



⑧インラインホルダー内の空気を抜く



⑨設定圧力に調整する

(5)コンプレッサーを加圧タンクに接続し、ろ液回収用の容器またはコンテナを準備する。

(6)加圧タンク内側にある気体の出口を超えないように注意しながら試料をタンクに入れて蓋を閉める。

(7)すべてのバルブが閉じていることを確認し、スターラーの電源を入れて回転子を回しタンク内の試料を攪拌させ、加圧タンクの圧力計レギュレーターを回しタンク内の圧力を少し高くしてから加圧タンクのバルブを少し開けて試料をインラインホルダー側に送る。

(8)空気抜き用チューブに試料または蒸留水を少量入れてからインラインホルダーの空気抜き用のバルブを少し開けてチューブ内の空気を抜く。

(9)加圧タンクのバルブを全開してから、圧力計レギュレーターを回し設定圧力に調整する。試料をろ過する際に流量が一定にすることは難しいので毎回同じ圧力に設定する。

吸引・加圧ろ過 操作手順(加圧式の画像付)

6.1 吸引・加圧ろ過法



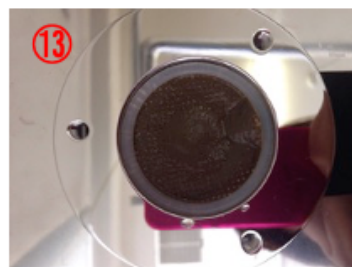
⑩ バルブを全開しろ過を開始する



⑪ チューブに試料がないことを確認する



⑫ 圧力を下げ、すべてのバルブを閉じる



⑬ インラインホルダーの蓋を開ける



⑭ ピンセットでU8容器に入れて測定試料とする

- (10)バルブを全開しろ過を開始する。
- (11)1次側チューブに試料がないことを確認する。
- (12)加圧タンク内には試料がないので、加圧タンクの圧力を下げ、すべてのバルブを閉める。
- (13)ろ過が完了したらピンセットでフィルターを取り出す。
- (14)U8容器に入れて測定試料とする。



47mm以外のサイズを用いた場合、均一に切断して、測定試料とする。

懸濁態放射性セシウム濃度

$$= \frac{\text{分析結果 (Bq/kg)} \times \text{分析時の重量 (kg)}}{\text{ろ過前の水量 (kg)}}$$

ろ過したフィルターが直径47mmであればU8容器に直接入れ、直径47mm以外の場合、乾燥させてから均一になるようにはさみで約2mmになるように切断しU8容器に入れて測定試料とする。

準備された試料は、ゲルマニウム半導体検出器を用いて、放射能核種を分析し以下の式で元の水中の懸濁態放射性Cs濃度に換算する。

$$\text{水中の懸濁態放射性Cs濃度(Bq/kg)} = \frac{\text{分析結果(Bq/kg)} \times \text{分析時の重量 (kg)}}{\text{ろ過前の水量(kg)}}$$

1. 固液分離の基準となるフィルターの孔径を例えば0.45 μmとした場合、試料の濁りによっては、すぐにろ過ができなくなることがある。この場合、より孔径の大きいフィルターでろ過してから孔径0.45 μmでろ過すると良い。
2. 直径47 mm以外のフィルターでろ過し、はさみで切断する際には、細断されたフィルター片の塊を均質な一つの試料として取り扱うことが可能となるように、注意しながら切断する必要がある。
3. ろ過器によっては、ガラス繊維ろ紙とメンブレンフィルターを重ねてろ過することができる。
4. Advantec社製のフィルターホルダー(KGS-90)は、3つの部品から成るが、購入時の3つのセットを維持して使用すること。他のセットと部品を交換すると、ろ過時の水漏れの原因となりうる。
5. 3M社の加圧式ろ過器は、5 L以下の試料を用いることが推奨されている。また、濁りによっては1次側のチューブが懸濁物質で詰まることもあるので、濁度が高い試料は減圧式が効率的である。
6. 吸引式ろ過器の目皿がガラス製の場合、環境水は影響が少ないが、放射性Cs単体に近い場合は、目皿に吸着する可能性がある。
7. 懸濁物質の捕捉重量を精度良く求めるためには、ろ過処理前とろ過処理後の乾燥温度・時間をなるべく揃えた方が良い。

1. 固液分離の基準となるフィルターの孔径を例えば0.45μmとした場合、試料の濁りによっては、すぐにろ過ができなくなることがある。この場合、より孔径の大きいフィルターでろ過してから孔径0.45μmでろ過すると良い。例えば、JIS K0102 14.1によると、SS濃度は孔径1 μmのガラス繊維ろ紙などを用いることとあることから、孔径1 μmのガラス繊維ろ紙を0.45μmのフィルターの前に設置することも考えられる。

2. 直径47 mm以外のフィルターでろ過し、はさみで切断する際には、細断されたフィルター片の塊を均質な一つの試料として取り扱うことが可能となるように、注意しながら切断する必要がある。直径47 mmのフィルターを用いると、直径90または142 mmのフィルターよりもろ過に時間を要するという欠点があるが、U8容器に直接入れることができるという利点もある。実験の目的や必要性に応じて、フィルターの直径を選択する。

3. ろ過器によっては、ガラス繊維ろ紙とメンブレンフィルターを重ねてろ過することができる。ただし、Advantec製のKSシリーズは、これら2枚を重ねてろ過する場合、圧力が高くなると試料が漏れることがあるので注意が必要である。

4. Advantec社製のフィルターホルダー(KGS-90)は、3つの部品から成るが、購入時の3つのセットを維持して使用すること。他のセットと部品を交換すると、ろ過時の水漏れの原因となりうる。

5. 3M社の加圧式ろ過器は、5 L以下の試料を用いることが推奨されている。また、濁りによっては1次側のチューブが懸濁物質で詰まることもあるので、濁度が高い試料は減圧式が効率的である。

6. 吸引式ろ過器の目皿がガラス製の場合、環境水は影響が少ないが、放射性Cs単体に近い場合は、目皿に吸着する可能性がある。

7. 懸濁物質の捕捉重量を精度良く求めるためには、ろ過処理前とろ過処理後の乾燥温度・時間をなるべく揃えた方が良い。

Momo Kurihara, 他26名, Repeatability and reproducibility of measurements of low dissolved radiocesium concentrations in freshwater using different pre-concentration methods, Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry, 2019
<http://dx.doi.org/10.1007/s10967-019-06696-2>

Moono Shin, 他6名, Behavior of radiocesium in decontaminated paddy fields in Fukushima Prefecture, Japan, Paddy and Water Environment, 2019
<http://dx.doi.org/10.1007/s10333-019-00694-6>

保高徹生, 他24名 (2017) 陸水中における微量溶存態放射性セシウムの濃縮法の比較, 分析化学, 66(4), 299-307.

水中の放射性セシウムのモニタリング手法に関する技術資料検討委員会 (2015) 環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法
http://unit.aist.go.jp/georesenv/information/20150917/TechRep_Cs_Monitoring_Water.pdf

藤村恵人, 他3名 (2013) 固相抽出ディスクを用いた農業用水の放射性セシウム濃度測定, RADIOISOTOPES, 62-11, 841-845

第6.2節

カートリッジフィルター法

技術資料「環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法」では、「4.3カートリッジフィルター法」に説明されている。

6.2節では、水中の懸濁態放射性Csの回収する「カートリッジフィルター法」について説明する。

技術資料「環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法、2015年9月発行」では、「4.3カートリッジフィルター法」に説明されている。

- カートリッジフィルター法は、比較的容量の大きいカートリッジ型フィルターをろ過装置に取り付けることでろ過処理を行うものである。
- デプス型やプリーツ型など、ろ過精度や処理効率に合わせて多種の製品が市販されている。
- カートリッジフィルターを設置するためのフィルターハウジング装置、および送水装置(ポンプ等)を別途用意する必要がある。
- 懸濁態Csの分析を行う場合、前処理としてカートリッジフィルターの破碎および分解物の規定容器(U-8等)への充填、あるいは非破壊測定におけるジオメトリ補正係数の同定が必要である。

カートリッジフィルタはろ過装置本体との脱着が容易なる過用多孔性物質であり、1個あたりの懸濁物質の回収容量が定性ろ紙に比べて大きいため、大量の水や高懸濁の試料水のろ過処理を行う際に有用である。

カートリッジフィルタは中心部を空洞、周縁部にろ材を持つ形状であることが多い。そのため、懸濁物質中の放射性Cs濃度を測る際に、標準線源による校正が行われた規定容器 (U8容器・マリネリ容器等) 内に懸濁物質を平面上に均質に充填することを目的に、カートリッジフィルタの分解・破碎の前処理が必要である。しかし一般的なカートリッジフィルタは、ろ過漏れを防ぐためろ材とカバーが強固に接着されており、その分解処理は容易ではない。

この毎回の分解・破碎処理の手間を省くため、線源が「ろ材部に分布している時」と「規定容器内に均質に分布している時」の比をジオメトリ補正係数としてあらかじめ同定しておくことで、処理済みのカートリッジフィルタを非破壊状態で検出器に供した際の検出値にジオメトリ補正係数を乗じて、真の懸濁物質中の放射性Cs濃度を算定することができる。

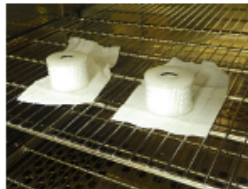
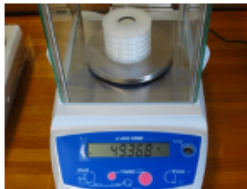
このようなジオメトリ補正係数が同定されたカートリッジフィルタの例として、本稿では「日本バイリーン製カートリッジフィルタ(RP13-011)」の使用方法(「迅速くん」に使用)について説明し、他のカートリッジフィルタを用いる場合との違いは注意書きにて捕捉する。

現場

- ・ フィルターハウジング
- ・ 送液チューブ
- ・ ストレーナ(粗大な夾雑物が混入している場合)
- ・ ポンプ(ペリスタルティック式等の送液ポンプが望ましい)
- ・ 電源

実験室

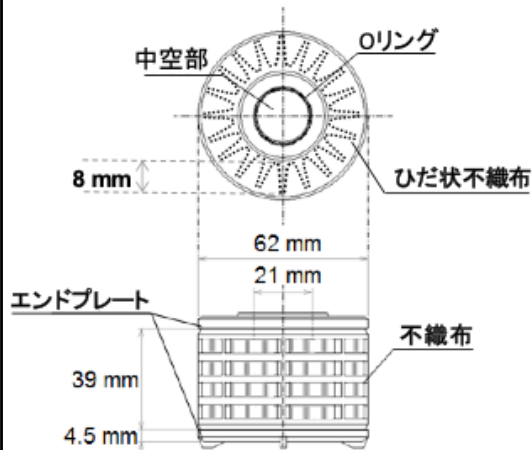
- ・ 重量計
- ・ 乾燥炉



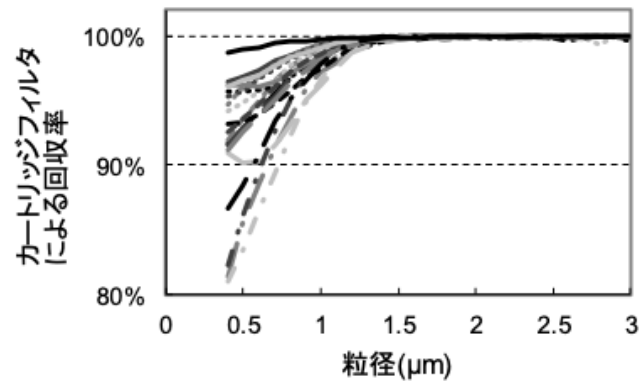
- ・ フィルタハウジング: ADVANTEC PSF-500Pなど。
- ・ 送液チューブ: 給水側・排水側合わせて1.5m以上が望ましい。ボトルに沈殿した懸濁物質を吸い上げるため、ポリ塩化ビニル製チューブ等の柔らかいチューブを用いると操作性が良い。
- ・ ストレーナ: 送水効率が低下しないよう、直径数mm~2cm程度の穴を持つものが良い。
- ・ ポンプ: Solinst Peristaltic Pump. Model 410など。
- ・ 電源: ポンプ性能に依存する。基本的にはAC12V。
- ・ 重量計: 供試水の懸濁物質量にもよるが、一般的には±1mg程度の精度が必要である。
- ・ 乾燥炉: 95~105°Cに設定可能な装置が望ましい。



Tsuji et al.(2015)より引用



カートリッジフィルターの構造



懸濁物質の粒径とカートリッジ
フィルターによる回収率の関係

カートリッジフィルタ内にポリプロピレン製の不織布がプリーツ型に織り込まれている。円筒の中心部から外側へ通水することにより、懸濁物質をプリーツの谷部に収集する。

不織布孔径のメーカー保証値は1 μ mであり、1.0～1.1 μ mの粒子を96%以上、0.4 μ mの粒子も80%以上回収可能であることが確認されている。

※右図はJIS試験用粉体(JIS Z8901)をカートリッジフィルタに通水する試験を19回反復して行い、カートリッジフィルタを通過した水に含まれる粉体の粒度分布から各粒径範囲(0.4～0.5 μ m, 0.5～0.6 μ m...)の粉体の回収率を求めたものである。

1. 未使用のカートリッジフィルターを約95°C^(注1)で48時間程度乾燥し、重量測定^(注2)を行う。
2. カートリッジフィルターをフィルターハウジングに装着する^(注3)。ハウジングを含め、通水部分に水漏れが生じないかを確認する。
3. 試料水の重量を測定する。
4. 給水側のチューブを試料水が入った容器に挿入してポンプを稼動し、フィルターハウジングに通水する。
5. 容器をよく攪拌し、容器の底に沈殿した懸濁物がチューブに流れるようにする。水がなくなったら蒸留水等を加え^(注4)、壁面に付着した懸濁物質を洗い流し、なるべく通水するようにする。
6. 通水前後の容器重量の差、または流量計による通過流体量から通水量を算定する。
7. ハウジングからカートリッジフィルターを取り出し、回収した懸濁物質がこぼれないように、中央部の穴をキャップ等で塞ぐ。

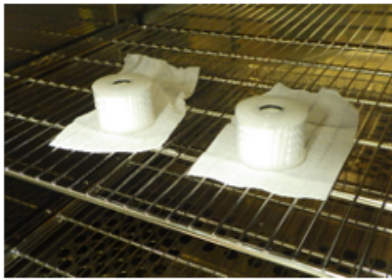
本手順は、産業技術総合研究所「水中の放射性セシウム回収システム「迅速くん」操作マニュアル」(2015年)、および技術資料「環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法」(2015年)の内容を一部改定して作成している。

(注1) RP13-011以外を用いる場合、フィルタの素材によっては変質によるろ過精度の変化を防ぐため乾燥温度・時間を変更する。

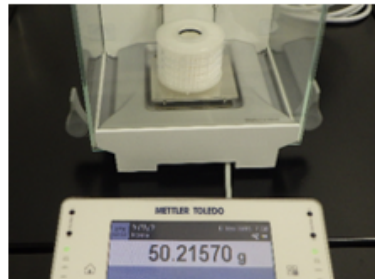
(注2) RP13-011の使用前乾燥重量は約50 g、通水後濡れた状態での重量は約100 gである。また回収容量は約1~10 gである(懸濁物質の性状による)。重量の測定精度は、懸濁物質の想定回収量に応じて定める。例えば懸濁物質濃度1 mg/Lの水を20 L処理する場合、懸濁物質の回収重量は20 mgであることから、±1 mg未満の精度が必要である。重量データは本体に直接記載するか、個々のカートリッジフィルターに番号を振り、データシートとの照合によって管理する。

(注3) 円筒の内側から外側へ通水する向きにハウジングをセットする。ADVANTEC PSF-500Pを用いる場合、OUTが上流側、INが下流側になるため注意が必要である。

(注4) 流量計から通水量を測定する場合は、加えた蒸留水の量を別途測定する必要がある。



① カートリッジフィルターをオーブンで乾燥する。



② 乾燥重量を測定する。



④ タンクの水を攪拌し、懸濁物質が容器底に溜まらないように注意する。



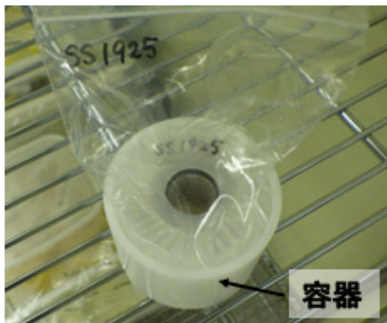
③ カートリッジフィルターをハウジングに装着し、通水を開始する。

(1) カートリッジフィルタをオーブンに置き、乾燥する。懸濁物質の捕捉重量を精度良く求めるためには、ろ過処理前とろ過処理後の乾燥温度・時間をなるべく揃えたほうが良い(写真)。

(2) オーブンから取り出したカートリッジフィルタをデシケータで30分～1時間程度冷やしてから、電子天秤を用いて1 mg未満の精度で乾燥重量を測定する(写真)。

(3) カートリッジフィルタ中央部のOリングをハウジングの突起部に押し込み、フィルタハウジングに装着する(写真)。ハウジングの蓋に付属しているOリング等のずれによる水漏れがないか入念に確認する。

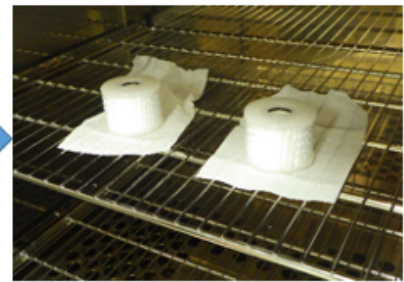
(4) タンク内の水の重量を予め測定し、給水チューブの先端をサンプル水が入った容器の底につけ、攪拌したり蒸留水を加えたりすることで容器内の懸濁物質を可能な限り吸い上げる(写真)。



検体を容器に封入



検出器で放射性核種の測定



乾燥重量を測定し、
捕捉懸濁物質の重量を
算定する

$$\text{水中懸濁態放射性Cs濃度 (Bq/kg)} = \text{測定結果 (Bq/kg)} \times \text{検体重量 (kg)} \\ \times [\text{ジオメトリ補正係数: 1.14}] / \text{水試料重量 (kg)}$$

$$\text{懸濁物質単位重量あたりの放射性Cs濃度 (Bq/kg)} \\ = \text{測定結果 (Bq/kg)} \times \text{分析検体の重量 (kg)} \\ \times [\text{ジオメトリ補正係数: 1.14}] / \text{カートリッジフィルターの乾燥重量増加 (kg)}$$

懸濁物質を回収したカートリッジフィルタ検体は、コンタミネーションを防ぐためビニール袋等に梱包して保存し、重量測定後、ゲルマニウム半導体検出器等の検出部の形状に適した容器(写真、内径62 mm, 厚さ3.5 mm, 高さ53.5 mmのポリアセタール製容器)に封入して検出器に供し、放射性Cs濃度を測定する。

ここで非破壊状態のカートリッジフィルタの形状は通常効率校正を行う規定容器と異なるため、検出値にジオメトリ補正係数を乗じることで真値の算定に換算する。

ジオメトリ補正係数は、解析ソフトの設定を「検体:水、容器設定:U-8容器、高さ:49.5 mm、密度:検体湿重量/127.17 cm³」とした際の値が1.14であることが確認されている(Tsuji et al., 2015)。

カートリッジフィルタを乾燥状態で測定する場合のジオメトリ補正係数は同定されていないが、水の遮蔽効果がなくなる分を考慮すると、1.14より約2~3%高い数値になるとと思われる。

水中の懸濁態¹³⁷Cs濃度は、

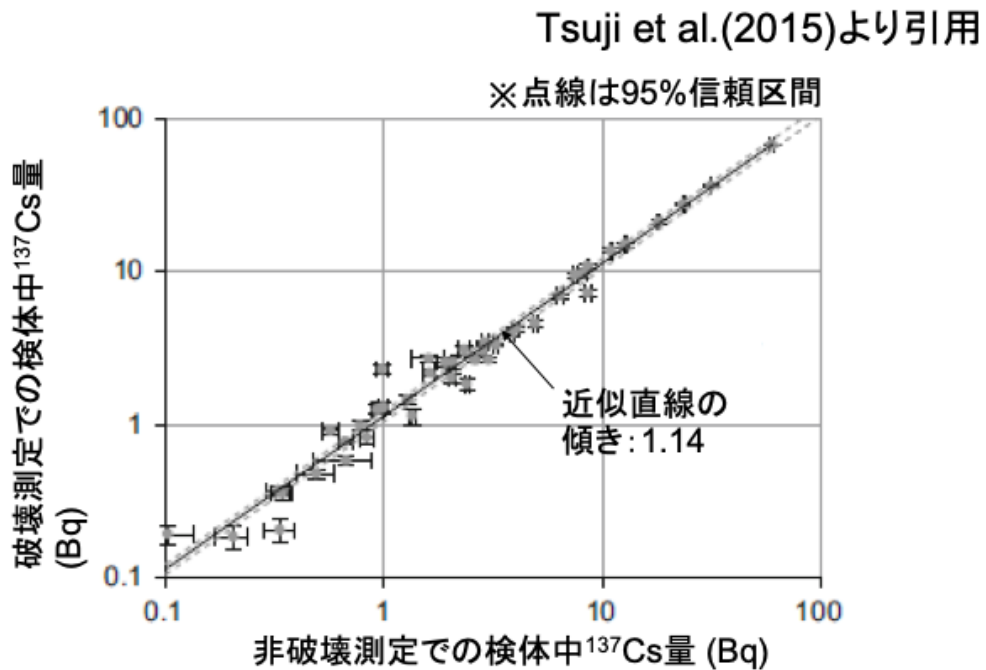
$$\text{測定結果 (Bq/kg)} \times \text{分析検体の重量 (kg)} \times [\text{ジオメトリ補正係数: 1.14}] / \text{水試料重量 (kg)}$$

から求める。

懸濁物質単位重量あたりの¹³⁷Cs濃度は、

$$\text{測定結果 (Bq/kg)} \times \text{分析検体の重量 (kg)} \times [\text{ジオメトリ補正係数: 1.14}] / \text{カートリッジフィルターの乾燥重量増加 (kg)}$$

から求める。



破壊測定はカートリッジフィルタを分解後、ろ材を裁断、カバーのプラスチック部をミルで破碎してU8容器に均質に充填し測定を行った。ジオメトリ補正係数の値(1.14)がPBカートリッジ法(7.3章)の値と異なるのは、線源となる物質が捕捉される位置の違いによるものである。

ジオメトリ補正係数はSEG-EMS製 GEM20-70(相対効率22.73%)を用いて測定したものであるが、実際には検出器の仕様(検出効率など)に依存して数%程度変化することが確認されている。

使用する検出器に対する正確なジオメトリ補正係数を求める際には、放射性Cs含有量が既知の同型カートリッジフィルタ等を用いて、検出器ごとに補正係数を求めることが望ましい。

1. カートリッジフィルターの放射能分析時までにはフィルタカバー部のプラスチックが破損し重量が変化してしまうと懸濁物質の重量測定が困難になるため、十分に気をつける。
2. 通水処理後、カートリッジフィルター中央部の穴に多くの懸濁物質が残存した状態で放射性Csを測定すると、ジオメトリ補正係数が推奨値の1.14から乖離してしまう可能性があるため、これらの残存懸濁物質は別途容器に封入するなどして放射性Cs濃度を測ることを推奨する。

Tsuji H., Kondo Y., Suzuki Y., Yasutaka T. (2014) Development of a method for rapid and simultaneous monitoring of particulate and dissolved radiocesium in water with nonwoven fabric cartridge filters. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry* 299(1), 139-147. <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-013-2735-0>

Tsuji H., Kondo Y., Kawashima S., Yasutaka T. (2015) Non-destructive detection of particulate radiocesium using a non-woven fabric cartridge filter for rapid preprocessing. *Journal of Radioanalytical and Nuclear Chemistry*, 303(3), 1803-1810. <http://dx.doi.org/10.1007/s10967-014-3800-z>

水中の放射性セシウムのモニタリング手法に関する技術資料検討委員会(2015)環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法
http://unit.aist.go.jp/georesenv/information/20150917/TechRep_Cs_Monitoring_Water.pdf

産業技術総合研究所, 水中の放射性セシウム回収システム「迅速くん」操作マニュアル
<https://staff.aist.go.jp/t.yasutaka/CsPBwater/images/ZnC-MoniM.ver3.5.pdf>

産業技術総合研究所, 水中の放射性セシウム回収システム「迅速くん」操作マニュアル～カートリッジ分析編～
<https://staff.aist.go.jp/t.yasutaka/CsPBwater/images/ZnC-AnalM.ver3.5.pdf>

第6.3節

積層型フィルター法

技術資料「環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法」では、「4.5多段式フィルター法」に説明されている。

6.3節では、水中の懸濁態放射性Csの回収する「積層型フィルター法」について説明する。

技術資料「環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法、2015年9月発行」では、「4.5多段式フィルター法」の名称で説明されている。

- ウクライナ水文気象研究所(UHMI)とロシアの研究機関(SPA,Typhoon)が、大量の河川水の放射性セシウム濃度を形態別に測定するために開発した手法。
- 福島大学環境放射能研究所が改良型を開発し、特許を取得している。以下、この改良型の特徴について記載する。
- 直径142mmのフィルターを並列に接続できる。試料の懸濁物質量に応じてフィルターの枚数を調整可能。
- 積層型ろ過装置へのフィルターの装着時のミスによる水漏れに注意が必要だが、習熟が必要な作業は少ない。
- フィルターに付着した懸濁態試料の重量測定方法を慎重に検討すること。懸濁態Cs濃度(Bq/kg-ss-dry)を算出する際に大きな誤差の原因となりうる。

低濃度の溶存態Csを測定することを目的に、大量の水試料をろ過する方法としてウクライナ・ロシアで開発された方法。多数の大判フィルターを並列に配置し、フィルターの交換等を行わず大量の水から懸濁物質を捕集することができる。

国内では、福島大学環境放射能研究所の改良型を開発し、特許(高橋隆行・難波謙二, 積層型ろ過装置, 特開2017-113695, 2017.06.)を取得している。本稿では、以後この福島大による改良型を用いた測定について記載する。

市販の規格品である直径142mmのフィルターを並列に接続することができる。学術論文への記載において、懸濁物質の除去に用いたフィルターの孔径が問題になる場合があるが、本手法であれば任意の孔径を明記することができる。

試料の濁度に応じて使用するフィルターの枚数を調整することが可能である。また、多段式フィルターの前にプレフィルターを取り付けることで、さらに通水可能量を増やすことも可能。

ランニングコストは、使用するフィルターの種類によるが、直径142mmのメンブレンフィルターを8枚程度使用するとして1回数千円程度である。積層型ろ過装置自体が商品化されていないため、コストについては評価不能とした。

20Lの濁りの少ない河川水のろ過に要する時間は10分程度である。乾燥と試料調整に1週間ほどかかるが、比較的測定に要する時間は短い手法といえる。

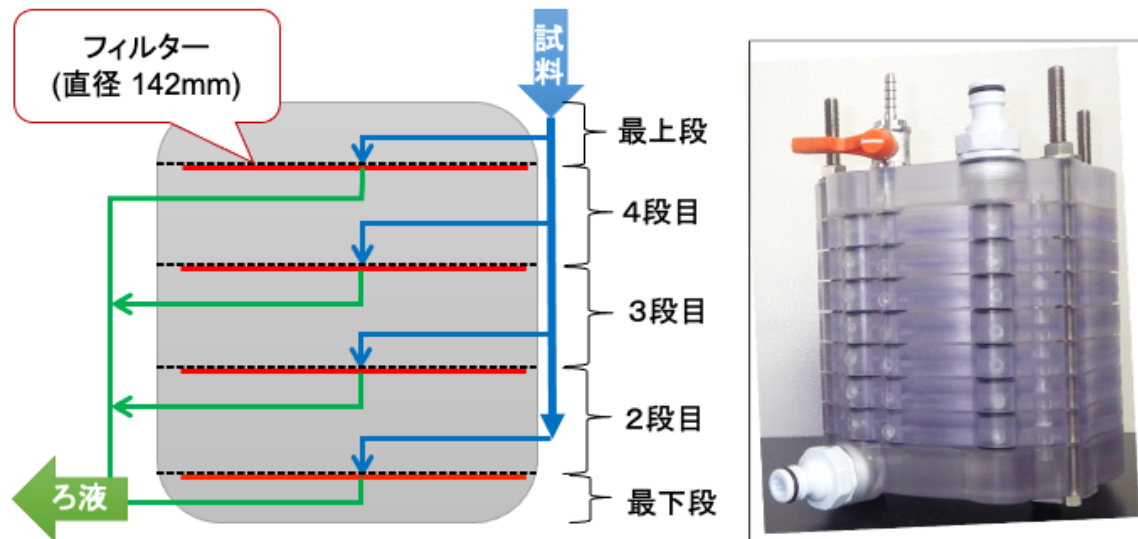
積層型ろ過装置へのフィルターの装着時のミスによる水漏れに注意が必要。

フィルターに付着した懸濁態試料の重量測定が困難な場合があり、これが測定精度に著しく影響する場合がある。

- ・ はかり
- ・ (必要に応じて)プレフィルター
 - ・ 定量ろ紙5Bまたはカートリッジフィルター
- ・ メンブレンフィルター(直径142mm, 孔径0.45 μ m)
- ・ 積層型ろ過装置(多段式フィルターブロック)
- ・ 圧力計
- ・ 流量流速計
- ・ ホース類
- ・ 乾燥機(送風型でないもの)・デシケーター
- ・ (必要に応じて)プレス機

- ・ はかり・・・0.1mgの桁まで計量可能なものが望ましい。
- ・ プレフィルター: 目標の孔径のメンブレンフィルターの前段として、プレフィルターを取り付けることで通水可能量を増加させることができる。
福島県環境創造センターで使用した例があるのは、
 - ①直径150mmの定量濾紙5Bを直径142mmに切断し、別の積層型ろ過装置にセットしたもの
 - ②カートリッジフィルター(6.2節に記載の日本バイリーン製カートリッジフィルタ(RP13-011))
の2種。
- ・ メンブレンフィルター: 海外の環境水の放射性セシウムの形態分離でよく使われていた孔径0.45 μ mメンブレンフィルターを採用した。
- ・ 積層型ろ過装置(多段式フィルターブロック)
- ・ 圧力計
- ・ 流量流速計
- ・ ホース類: 福島県環境創造センターでは、着脱の容易な散水用のジョイントシステム(タカギ社製)を採用している。
- ・ 乾燥機(送風型でないもの)・デシケーター
- ・ プレス機: 本手法で用いるフィルターは直径が大きく、そのままではU8容器に入らないため、はさみで裁断した後U8容器に封入することになるが、裁断したフィルターをよく混ぜ、プレス機で円盤状に整形することで、試料の偏りを低減させることができる。

・ 積層型ろ過装置の模式図



多段式フィルターのブロック内部で流路が分岐し、水試料はいずれか1枚のフィルターのみ通過する。模式図中の2～4段目のパーツは共通になっており、このパーツの増減で使用するフィルターの枚数を変えることができる。

積層型ろ過装置の構造図を示す。外観から、試料はすべてのフィルターを順番に通過するように見えるが、

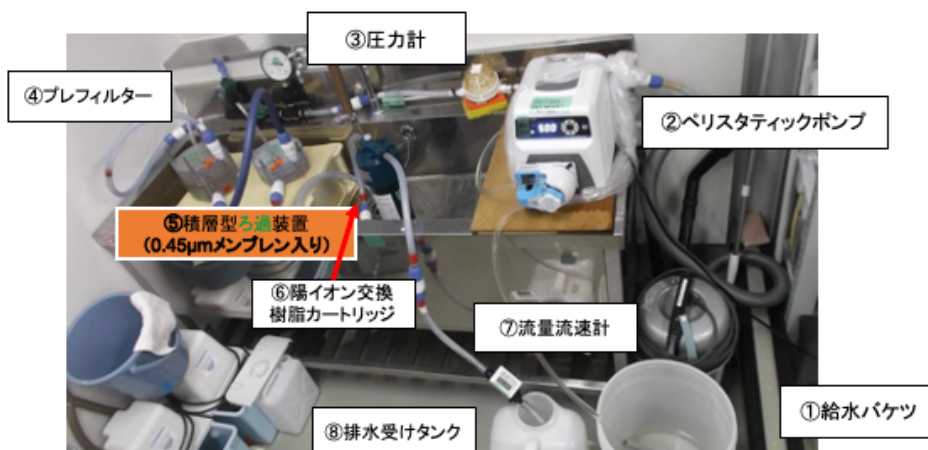
左の構造図が示すように、実際は試料がブロック内のいずれかのフィルター一枚のみを通過する構造となっている。

①ブロック上方から導入された水試料が、各段のフィルター設置面の上部からフィルター正面に流下する。(模式図中青矢印)

②フィルターを通過したろ液は、再び合流して、ブロック下部の流出口から排出される。(模式図中緑矢印)

※模式図中の2～4段のパーツは共通になっており、このパーツの増減で使用するフィルターの枚数が変わる。

- ❑ システム構成の例として、福島県環境創造センターが実施している機材レイアウトを紹介する。
- ❑ プレフィルターの後ろに、0.45 μm のメンブレンフィルターを2枚セットした積層型ろ過装置、さらに後ろには溶存態Csの捕集のため陽イオン交換樹脂カートリッジをセットする。



システム構成の例として、福島県環境創造センターが実施している機材レイアウトを紹介する。

市販の散水用のワンタッチジョイントを用いて、柔軟に組み替え可能なシステムとなっている。

写真に示した例は、

ペリスタティックポンプ→(脈動防止用のハウジング)→圧力計→プレフィルター(定量ろ紙をセットした積層型ろ過装置)

→積層型ろ過装置(孔径0.45 μm のメンブレンフィルターをセット)→溶存態Cs捕集用の陽イオン交換樹脂カートリッジ

→流量流速計 という構成。

本手順は、「環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法(2015年)」を参考に、福島県環境創造センターが実施している濃縮方法をもとに作成している。

1. デシケータで保管していたメンブレンフィルターを秤量してから、積層型ろ過装置の各段にセットする。
2. ペリスタティックポンプ等を用いて、環境水試料を積層型ろ過装置に通水する。
3. 通水後のメンブレンフィルターを乾燥し、再び秤量する。(乾燥方法については、注意点1(73ページ)を参照。)
4. 秤量済みのメンブレンフィルターを裁断し、プレス機を用いて円盤状に整形し、U8容器に封入する。(プレス機がない場合は、裁断後のフィルターを直接U8容器に封入してもよい。)
5. ゲルマニウム半導体検出器で放射性セシウム濃度を測定する。

本手順は、「環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法(2015年)」を参考に、福島県環境創造センターが実施している濃縮手順をもとに作成している。

1. デシケータで保管していたメンブレンフィルターを秤量してから、積層型ろ過装置の各段にセットする。
2. ペリスタティックポンプ等を用いて、環境水試料を積層型ろ過装置に通水する。
3. 通水後のメンブレンフィルターを乾燥し、再び秤量する。
4. 秤量済みのメンブレンフィルターを裁断し、プレス機を用いて円盤状に整形し、U8容器に封入する。(プレス機がない場合は、裁断後のフィルターを直接U8容器に封入してもよい。)
5. ゲルマニウム半導体検出器で放射性セシウム濃度を測定する。



①秤量後のメンブレンフィルターを、一枚ずつ多段ろ過フィルターブロックにセットし、Oリングをはめる。



②所定の枚数をセットし終わったら、ボルト4本を片締めにならないよう気をつけてきつく固定する。



③用いる機材を正しく接続したら、通水を開始する。

④通水開始直後には、多段ろ過フィルターブロック上部の弁を開き、空気を抜く。

⑤安定して通水できるようになったら、圧力計・流量流速計の値を見ながらポンプの回転数を調整する。

⑥通水量は、流量流速計の値を用いるか、排水受けタンク内の水の重量を測定して得た値を用いる。

①秤量後のメンブレンフィルターを、一枚ずつ多段ろ過フィルターブロックにセットし、Oリングをはめる。

※秤量は、0.1mgの桁まで測定することが望ましい。

②所定の枚数をセットし終わったら、ボルト4本を片締めにならないよう気をつけて固定する。

③用いる機材を正しく接続したら、通水を開始する。

※通水速度は、水圧によりメンブレンフィルターが破れない範囲であればよい。フィルターの目が詰まり、設定した水圧に達しても十分な通水速度が得られなくなった場合は、フィルターを交換する必要がある。

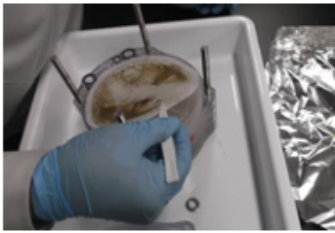
※実用上、多段式フィルターの後段に直接接続される溶存態捕集用の装置の通水速度がボトルネックとなることが多い。

④通水開始直後は、多段ろ過フィルターブロック上部の弁を開き、空気を抜く。

⑤安定して通水できるようになったら、圧力計・流量流速計の値を見ながらポンプの回転数を調整する。

※試料全量の通水が終わっても、ホース内に懸濁物質が残っている場合があるので、念のため純水を追加通水するとよい。

⑥通水量は、流量流速計の値を用いるか、排水受けタンク内の水の重量を測定して得た値を用いる。



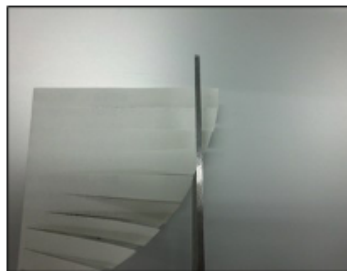
⑥メンブレンフィルターを取り外し、アルミホイルの台紙上で3日間以上風乾する。



⑦風乾後のメンブレンフィルターを乾燥機に入れる。



⑧乾燥後のメンブレンフィルターを秤量する



⑨秤量後のメンブレンフィルターを裁断する



⑩裁断後のフィルターをプレス成型し、U8容器に封入する。

⑥メンブレンフィルターを取り外し、アルミホイルの台紙上で3日間以上風乾する。
※上記写真は見やすさのため台紙上の濾紙を撮影したもの。ホコリ等の付着を防ぐため、風乾の際には上面にもアルミホイルをかぶせる。

⑦風乾後のメンブレンフィルターを乾燥機に入れる。
※福島県環境創造センターでは、予備実験の結果を受け60°C48時間の乾燥を実施している。

⑧乾燥後のメンブレンフィルターを秤量する。
※乾燥終了直後はフィルターの熱で対流が起こる場合があり、秤量結果が安定しない。デシケータ内で冷ましてから秤量すること。

⑨秤量後のメンブレンフィルターを裁断する。

⑩裁断後のフィルターをプレス成型し、U8容器に封入する。
※裁断の際には、フィルター表面から土砂がはがれ落ちないように注意して作業を行う。また、裁断後のフィルターに偏りが出ないように留意する。

ゲルマ測定へ

懸濁態放射性セシウム濃度 (Bq/L)

$$= \frac{\text{分析結果 (Bq/kg)} \times \text{検体重量 (kg)}}{\text{通水量 (L)}}$$

または

懸濁態放射性セシウム濃度 (Bq/kg-ss-dry)

$$= \frac{\text{分析結果 (Bq/kg)} \times \text{検体重量 (kg)}}{\text{捕集した懸濁物質の重量 (kg)}}$$

懸濁態放射性セシウム濃度 (Bq/L) = 分析結果 (Bq/kg) × フィルターと捕集された試料の乾燥重量 (kg) / 通水量 (L)

懸濁態放射性セシウム濃度 (Bq/kg) = 分析結果 (Bq/kg) × フィルターと捕集された試料の乾燥重量 (kg) / 捕集した懸濁物質の重量 (kg)

※捕集した懸濁物質の重量は、通水前後のフィルターの総重量の差分に等しい。
入力する検体重量は、実際にU8容器に封入された試料の重量を意味しており、
フィルターと捕集された試料の乾燥重量の和に等しい。

1. フィルターに付着した懸濁態試料がごく微量である場合は、重量測定を厳密に行わなければ測定精度に著しく影響する。これを防ぐためには、
 - ①吸湿による重量変化の少ないメンブレンフィルターを選択する
 - ②予備実験により適切な乾燥方法を決定する
 - ③なるべく多くの懸濁物質が捕集できるよう、通水量を増やすなどの対策が必要となる。
2. 通水時のフィルター破れ等の事故を防ぐには、予備実験によって上限となる圧力を設定しておくといよい。
3. ペリスタティックポンプとブルドン管式の圧力計を併用すると、水圧の脈動により圧力計の故障を引き起こすので注意。

1. フィルターに付着した懸濁態試料がごく微量である場合は、重量測定を厳密に行わなければ測定精度に著しく影響する。これを防ぐためには、①吸湿による重量変化の少ないメンブレンフィルターを選択する、②予備実験により適切な乾燥方法を決定する、③なるべく多くの懸濁物質が捕集できるよう、通水量を増やす、などの対策が必要となる。

※福島県環境創造センターで採用した方法は以下。

薄手で、吸湿による重量変化が少ないメンブレンフィルターとして、メルク社製のJHWP14225を採用。3日以上風乾し、60℃で48時間加熱して水分を飛ばした後、デシケーター内に15分放置し、冷ましてから秤量することとした。

2. 通水時のフィルター破れ等の事故を防ぐには、予備実験によって上限となる圧力を設定しておくといよい。

※福島県環境創造センターでは、0.2MPa以下の圧力となるようポンプをコントロールし、上限圧力に達しても十分な通水速度が得られない場合には、フィルターを交換することとしている。

3. ペリスタティックポンプとブルドン管式の圧力計を併用すると、水圧の脈動により圧力計の故障を引き起こすので注意。

※本当に数回の使用で圧力計の指針が飛んでしまうので注意。脈動・振動対策のため、文字盤内にグリセリンが封入された圧力計があるのでこれを利用してよい。あるいは、ペリスタポンプ吐出側のチューブにパルスダンパーを接続することによっても脈動の影響を低減できる。福島県環境創造センターでは、アドバンテック社製の500mLハウジング(PSF-500P)を圧力計の前に伏せて接続し、内部に空気の層を残して通水することで、脈動による圧力計の破損を防止している。

水中の放射性セシウムのモニタリング手法に関する技術資料検討委員会(2015)環境放射能モニタリングのための水中の放射性セシウムの前処理法・分析法
http://unit.aist.go.jp/georesenv/information/20150917/TechRep_Cs_Monitoring_Water.pdf

高橋隆行・難波謙二, 積層型濾過装置, 特開2017-113695, 2017.06.