農研機構
NARO 国立研究開発法人 農業・食品産業技術総合研究機構

# 水を用いた土壌撹拌ー吸引排水法による水田からの放射性セシウム除去技術の開発



| メタデータ | 言語: Japanese<br>出版者: 独立行政法人 農業環境技術研究所<br>公開日: 2019-12-20<br>キーワード:<br>作成者: 牧野, 知之, 赤羽, 幾子, 山口, 紀子, 荒, 貴裕, 山口, 弘, 木方, 展治, 藤原, 英司, 太田, 健, 石川, 哲也, 村上, 敏文, 江口, 哲也, 神谷, 隆, 青野, 克己, 齋藤, 隆<br>メールアドレス:<br>所属: |
|---|---|
| URL | https://doi.org/10.24514/00003013 |

[ 農環研報 34,
75－80（2015）]

# 水を用いた土壌撹拌－吸引排水法による水田からの放射性セシウム除去技術の開発

# Development of stirring cleaning method to remediate radioactive cesium-contaminated paddy fields.

牧野知之*・赤羽幾子*・山口紀子*・荒　貴裕**・山口　弘**・木方展治*・藤原英司*・太田　健***
石川哲也***・村上敏文***・江口哲也***・神谷　隆****・青野克己****・齋藤　隆*****

（平成26年12月2日受理）

Synopsis：
We have developed a stirring cleaning method to remediate radioactive cesium（Cs）-contaminated paddy fields. It was comprised of 1）adding water and a dispersive material to the field and stirring water and soil; 2）Drinage of soil suspension in, which containing much amount of radioactive Cs rich soil micro particles; and 3）on-site treatment of wastewater using a portable treatment system. After the decontamination, the decrease rates of $^{137}$Cs in soil and brown rice were 62％ and 58 ％, respectively.

## Ⅰ　はじめに

東京電力福島第1原子力発電所の放射能漏れ事故に伴い、放射性セシウム（Cs）で汚染された農用地が広範囲に発生し、汚染地における除染が大きな社会的課題となっている。放射性Csは土壌コロイドのフレイドエッジサイトやケイ素六員環に強く吸着する性質を持つため（山口ら, 2012），農耕地に降下した放射性Csは、土壌の極表層に留まり、梅雨を経てもほとんど下層に移行しない（Matsunaga et al., 2013）。このため、放射能漏れ事故以後、未耕起の圃場では、土壌の最表層（0～2 cm程度）に放射性Csが集積しているため表土のはぎ取りが有効と考えられる。1986年に起きたチェルノブイリ原子力発電所事故後には表層はぎ取りが行われ（Vovk et al., 2004）、環境省による除染ガイドラインでも未耕起圃場における主要な除染法の一つとして記載されている（環境省, 2013）。しかし、表層はぎ取りは既耕作の圃場には適用困難であり、既耕作圃場では、反転耕や深耕による除染が環境省の除染対策事業の助成対象とされる。しかし、作土層の厚さが不十分、作土直下に礫がある場合など、反転耕や深耕の適用困難な事例もある。既耕作ほ場に適用できる新たな除染対策が求められている。

* 土壌環境研究領域
** 研究技術支援室
***（独）農業・食品産業技術総合研究機構，東北農業研究センター
**** 太平洋セメント株式会社
***** 福島県農業総合センター

我が国では農地の多くが圃場に水を貯める事のできる水田であり、日本全体では54.3%、福島県では69.8%を占める（農林水産省, 2014）。このため、水田に水を貯めて直接圃場で土壌洗浄を行うことが可能である。土壌に水と薬剤を加えて有害化学物質を除去する土壌洗浄プロセスは、粒径別分級と汚染物質の抽出処理の2つに大きく分けられる。第一は、水を使って土壌を分散させ、沈降速度の違いや孔径の異なるフィルターなどを用いて土壌粒子をサイズ毎に分級し、浄化土壌と汚染土壌に分別して、減容する方法である（Anderson, 1999）。通常、サイズの小さな土壌粒子ほど、汚染物質の濃度が相対的に高く、微細な土壌粒子を分離することで汚染除去が可能となる。スクリュー分離機、液体サイクロンなどの機器が使われる（Anderson, 1993）。第二は、汚染土壌に洗浄薬剤と水を加え、懸濁状態となるように混合して土壌から液相に有害化学物質を浸出除去して排水し、汚染物質を含む排液を浄化システムで処理する修復技術であり、カドミウム汚染水田の浄化などに適用されている（Makino, 2007 and 2008）。

奥島ら（2012）は、放射能汚染された未耕起の水田圃場を湛水した後に、表層土壌を撹拌して微粒子を水中に浮遊させた濁水を強制排水（浅代かき強制排水）し、放射性Cs濃度が高い微粒子を選択的に排出することにより、水田圃場における効率的な除染に寄与できる可能性があるとの仮定をたて、コンテナ試験で検証した。コンテナ内に土壌を5 cmの厚さで充填して、土壌表面から水深10 cmとして土壌を撹拌し、濁水を排水した。その結果、土壌の放射性Cs濃度（$^{134}$Cs＋$^{137}$Cs）は処理前の25,900 Bq kg$^{-1}$から処理後には15,700 Bq kg$^{-1}$と低減率39%に達した。本法は圃場でも検証され、農林水産省（2013）の農地除染対策の技術書概要に引用されている。技術書における現地での具体的な工程は、①表層土壌の撹拌段階（浅代かき）、②オイルフェンスを利用した速やかな濁水の排出、③濁水処理からなる。トラクター走行による放射性Csの深部への拡散を防止するために、土壌撹拌は1 回としている。オイルフェンスは、本来水面に浮いた油の拡散防止に用いるものであるが、濁水の排出に利用している。濁水処理は凝集沈殿法や沈砂池などにより行っている。

一方、溝口（2013）は、「水による土壌撹拌＋強制排水」と「天地返し」を組み合わせた工法を提示している。圃場の一部に穴を掘り、代かき後に上記のオイルフェンスと似た器具を用いて泥水を穴に流し込むことで、水田土壌の浄化と排出土の処理を原位置で行うという手法である。

しかし、以上の方法では土壌の分散性を高めていないため、土壌微粒子の排出効率ならびに除染効率が低いという問題点がある。本研究では水田土壌の主要粘土鉱物が層状ケイ酸塩であることを鑑み、アルカリ資材を分散材として添加して排出効率を高めた除染技術の開発を目的とした。

## Ⅱ　試料および方法

**室内試験**：現地試験実施予定の福島県内の細粒質普通灰色低地土（作土の土性はLiC）の農家水田から作土を採取し、風乾後、2 mmの篩を通し、供試土壌とした。現地土壌の粘土鉱物組成を明らかにするため、粘土画分をピペット法で採取し、交換性塩基をマグネシウムおよびカリウム型に置換した後、x線回折で粘土鉱物を同定した。

供試土壌を用いてpHと土壌分散率の関係を明らかにするために、以下の実験を行った。土壌5 gを50 mL遠沈管に秤取し、純水20ml添加する。1M水酸化ナトリウムを0、0.1、0.15、0.2、0.25、0.3、0.35、0.4、0.45または0.5 ml加えて1時間撹拌後、pHを測定する。純水30 mlを追加添加する。30秒間手で振とうして、静置する。30分後、水面から深さ6 cmのところから、懸濁液を29.8 ml採取する。計量済みの秤量ビンにいれて、105℃で乾燥前後の重量を測定する。別途、遠枕管に残った懸濁土壌を遠心分離し、上澄みをろ過する。ろ過液を10 ml秤量ビンにとり、105℃で乾燥前後の重量を測定する。懸濁液の絶乾重量-上澄みの絶乾重量から懸濁液に含まれる懸濁物質量を算出する。分析は2連で行った。また、pHと土壌粒子の電気的な反発力の関係を明らかにするために、pHの異なる懸濁液中に含まれる土壌粒子のゼータポテンシャルをゼータ電位測定装置（Zeta Sizer Nano ZS, Malvern）でpH6～11の範囲で測定した。

**現地試験**：福島県内の農家水田において以下の工程を実施した。①水田内に約100m$^2$の試験区を設定し、赤外線レベルセンサー付きのトラクターで土壌深さ0-7 cmを耕起した。②用水を導水、耕盤からの水深を25cmとして水酸化ナトリウム粒剤を加え、代掻き車輪（通称：籠車輪）で撹拌、pH8-9とした。③撹拌後、直ちにポンプで水田表面の土壌懸濁水の排水を開始し、凝集沈殿漕に懸濁水を貯留した。④凝集沈殿漕にポリ塩化アルミニウムおよび高分子凝集剤を添加し撹拌、土壌微粒子が主体の懸濁物質（SS）を凝集沈降させた。⑤凝集沈降したSS

の沈殿物をタンク等に一時貯留後、フィルタープレスで固液分離して汚泥として回収した。⑥排水後、再度用水を導水し、撹拌－排水の工程を合計4回実施した。⑦撹拌－排水処理終了後の圃場に塩化第二鉄溶液を施用して撹拌し、pHを約6に復した（図4）。

**現地試験の試料および分析**：①排水ポンプから懸濁水を採水し、SS量および$^{137}$Cs濃度測定用に供試した。②土壌カラムサンプラーを用いて、除染前後に圃場の5か所から土壌深30 cmの土壌カラムサンプルを採取した。カラムを切断（土壌表面から0-2、2-5、5-10、10-15、15 cm以下）、深さ別の土壌試料として用いた。③除染前後の空間線量率をシンチレーションサーベイメーターで、土壌およびSSの放射性Csをそれぞれ NaI シンチレーション検出器、ゲルマニウム半導体検出器を用いて測定した。

**水稲栽培**：水による撹拌・除去による除染後、塩化第二鉄で作土のpHを6に戻した後、水稲栽培を行った。除染を行わない対照区を除染区の両脇に設定した。基肥施肥量は窒素・リン酸・カリすべて10 kg/10aとした（2反復、ただし除染区内は反復なし）。「まいひめ」を2012年7月2日に移植し、定期的に生育調査を実施した。成熟期に定法により収量調査を実施し、玄米の放射性Cs濃度（$^{134}$Cs＋$^{137}$Cs）を測定した。

## Ⅲ　結果と考察

現地試験圃場の主要粘土鉱物は層状ケイ酸塩鉱物であるバーミキュライト、スメクタイト、カオリン鉱物であり、Csに対する吸着能が高く、アルカリで分散しやすくなると推定される（図1）。土壌懸濁液pHとゼータポテンシャルの関係では原土のpH約6からpH8～9程度まで、ゼータポテンシャル（＝粒子の流動電位）がpH上昇に伴いマイナス方向に増加しており、表面負電荷の上昇が認められる（図2）。この表面電位の上昇と土壌粒子の分散性の挙動はほぼ一致した傾向を示し、pH6の土壌懸濁物質量を100としたときの相対値でpH7は172.4、pH8は180.0、pH9は191.3、pH10は192.7となり、アルカリ処理（水酸化ナトリウム添加）に伴う土壌粒子分散性の向上が認められた（表1）。以上の結果より、pH8～9以上における分散率上昇の頭打ち、圃場における設定pHと実pHの相違･変動および粘土への影響等を考慮して現地試験における目標pHを8～9とした。

一方、ストークス式から算出した土壌粒子の沈降時間と分級粒子径の関係は図3のようになる。約8$\mu$m以下

① レーザーレベルセンサー付きトラクターによる土壌解砕

② 水の導入、土壌撹拌

③ ポンプによる濁水の排水

④ 濁水の貯留、凝集剤添加による粘土の沈殿

⑤ 加圧ろ過装置（写真矢印の装置）による水と粘土の分離

⑥ 排出された粘土

図4　現地試験の工程

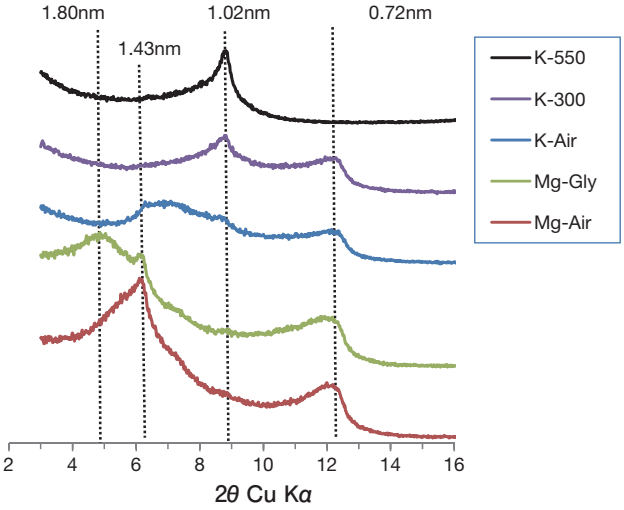



図1　X線回折による土壌中の粘土鉱物の同定

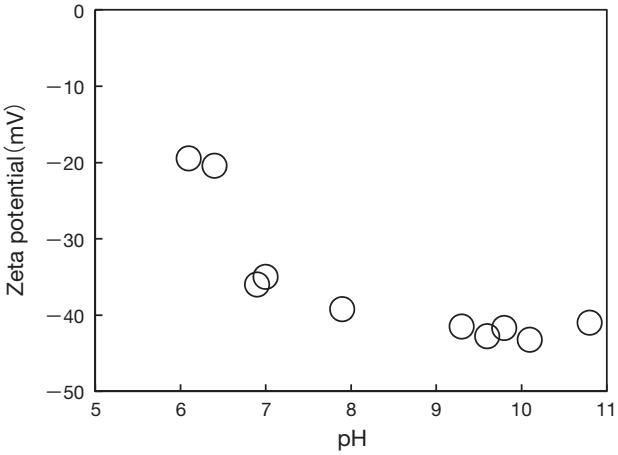
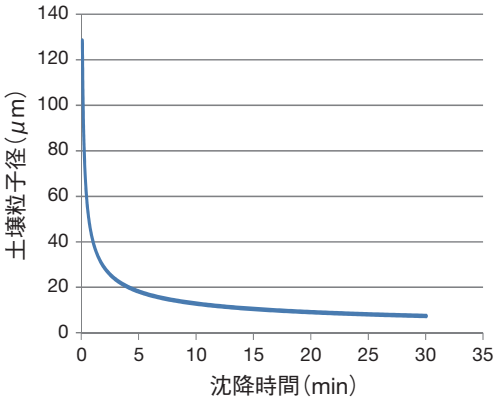



図2　土壌懸濁液pHとゼータポテンシャルの関係




$$d=\sqrt{\frac{18\eta\ \mathrm{h}}{\mathrm{g}(\rho_s-\rho_l)}}$$

$d$　：粒子径（m）
$\rho_s$：粒子の密度（kg m$^{-3}$）
$\rho_l$：水の密度（kg m$^{-3}$）
$\eta$　：水の粘度係数（Pa s）

図3　土壌粒子の沈降時間と分級粒子径の関係
（ストークス式から算出：理論値）

表1　土壌懸濁液pHと土壌分散率の関係

| pH | 分散率 | 標準偏差 |
|---|---|---|
| 6 | 100.0 | 1.05 |
| 7 | 172.4 | 0.00 |
| 8 | 180.0 | 0.10 |
| 9 | 191.3 | 0.18 |
| 10 | 192.7 | 0.21 |

pH：土壌懸濁液のpH
分散率：pH6の土壌懸濁物質量を100とした時の相対値

（シルトの一部と粘土画分）の粒子を分別して排出するため、現地試験では土壌撹拌終了後5分を目安に懸濁液の排出を開始し、30分以内に排出完了することを目標とした。

現地試験の状況を図4に示す。現地試験の結果、試験圃場における地上1 mの空間線量率は、除染前の1.77 μSv h$^{-1}$から除染後の1.24 μSv h$^{-1}$に減少、低減率は30.1％となった。土壌中の$^{137}$Cs放射能濃度（土壌深0～15 cmの総計）は3.06 kBq kg$^{-1}$から1.17 kBq kg$^{-1}$に減少、低減率は61.7％に達した。放射性Cs由来の放射能が検出されなくなる深さ30 cmまでの土壌を対象に算出した$^{137}$Cs低減量は、試験区（約100 m$^2$）全体で31.3 MBqである。撹拌排水処理4回で試験区から3.05 tのSSが排出された。これは容積重を1とした場合、約3 cmの土厚に相当する。排出SS量とSSの$^{137}$Cs放射能濃度から算出した試験区当たりの$^{137}$Cs排出量は34.9 MBqで、上記の深さ30 cmまでの土壌を対象に算出した$^{137}$Cs低減量31.3 MBqとほぼ一致し、圃場における$^{137}$Cs収支の整合性を確認した。粘土を凝集処理した上澄み排水および、凝集粘土をフィルタープレスで脱水した排水中の放射性セシウム濃度は、検出下限以下（1 Bq L$^{-1}$以下）となった。

一般的に農耕地は工場跡地などと比べ細粒の粘土（2 μm未満）、シルト画分（2～20 μm）を多く含むため、微粒子の分離が難しい場合が多い。黒ボク土以外の土壌では、強熱減量で推定される有機物含量と粘土分散率に相関が認められ、土壌の腐植物質による分散抑制が示唆される（赤江ら, 2002）。黒ボク土では粒子間架橋による強い凝集体の形成が示され（久保田, 1976）、強固で安定な団粒構造の階層性が明らかとなっている（Asano and Wagai, 2014）。従って、黒ボク土などの腐植を多く含む土壌では粒子を完全分散させることが困難と推察さ

れ、水による土壌撹拌・除去を適用するには凝集体の凝集構造を壊し、分散させることが重要となる。

水稲栽培では茎数・穂数や草丈・稈長は除染区がやや劣り、穂長は除染区が有意に短くなった。玄米収量は対照区6.35 t ha-$^{1}$に対し、除染区では15％減収し5.39 t ha-$^{1}$となった。玄米中の放射性Cs濃度は対照区40 Bq kg$^{-1}$に比べ、除染区で17 Bq kg$^{-1}$と58％低減し、土壌から水稲への放射性Csの移行低減に効果が認められた。（太田ら、2013）。

なお、本法は、撹拌深度を調整することで耕起済みの水田に適用可能である。

## Ⅳ　結論

表土の削り取りや反転耕では除染が困難な農地のうち、水田において「水による土壌撹拌・除去技術」により除染したときの放射性Cs濃度等の低減効果について、実証試験を行った。この実証試験では、①土壌中の放射性Cs濃度は除染前の38％に低減した。②生産された玄米中の放射性Cs濃度も、除染を行っていない水田で生産された玄米の42％に低減した。

水による土壌撹拌･除去は、除染関係ガイドライン（環境省, 2013）や農地除染対策の技術書概要（農林水産省, 2013）に除染法の一つとして記載されている。

## 謝　辞

本研究は農林水産省委託プロジェクト・農地・森林等の放射性物質の除去・低減技術の開発・高濃度汚染地域における農地土壌除染技術体系の確立（農地の物理的除染技術体系の確立）の研究助成を受けた。記して感謝する。

## 引用文献

文　献

1）赤江剛夫・後藤光喜・石黒宗秀（2002）：農地土壌の分散凝集特性とその影響要因について．219, 357-364

2）Anderson, R., Rasor, E., and Ryn, F. V.（1999）：Particle size separation via soil washing to obtain volume reduction. Journal of Hazardous Materials, 66, 89-98.

3）Anderson, W. C.（1993）：Innovative site remediation technology, Soil washing / soilflushing, American academy of environmental engineers

4）伊藤健一・宮原秀隆・氏家　享・武島俊達・横山信吾・中田弘太郎・永野哲志・佐藤　努・八田珠郎・山田裕久（2012）：湿式分級洗浄および天然鉱物等による農地土壌等に含まれる放射性セシウム除去方法の実践的検討．日本原子力学会和文論文誌, 11, 255-271

5）日本原子力技術協会（2012）：福島環境修復有識者検討委員会による除染技術等の調査検討, Ⅱ土壌修復技術, p. 11-14

6）環境省 2013. 除染関係ガイドライン．http://josen.env.go.jp/material/

7）久保田徹（1976）：火山灰土壌の界面化学的研究, 農技研報告 B-28, 1-74

8）農林水産省（2014）：農林水産統計平成26年耕地面積
http://www.maff.go.jp/j/tokei/kouhyou/sakumotu/menseki/index.html

9）環境省（2014）：除染技術探索サイト．https://www2.env.go.jp/

10）Maki, A. and Wagai R.（2014）：Evidence of aggregate hierarchy at micro- to submicron scales in an allophanic Andisol. Geoderma, 216, 62-74

11）Makino, T., Kamiya, H. Takano, T. Ito, N. Sekiya, K. Sasaki, Y. Maejima and K. Sugahara（2007）：Remediation of cadmium-contaminated paddy soils by washing with calcium chloride: verification of on-site washing. Environ. Pollut. 147, 112-9

12）Makino, T., H. Takano, T. Kamiya, T. Ito, N. Sekiya, M. Inahara and Y. Sakurai（2008）：Restoration of cadmium-contaminated paddy soils by washing with ferric chloride: Cd extraction mechanism and bench-scale verification. Chemosphere 70, 1035-43

13）Matsunaga, T., J. Koarashi, M. Atarashi-Andoh, S. Nagao, T. Sato, and H. Nagai（2013）：Comparison of the vertical distributions of Fukushima nuclear accident radiocesium in soil before and after the first rainy season with physicochemical and mineralogical interpretations, Science of the Total Environment, 447, 301-314

14）溝口　勝（2013）：農家自身でできる農地除染法の開発．三輪睿太郎，宮崎毅，金子真司，坪山良夫，大谷義一，佐藤睦人，根本圭介，塩沢昌，森敏，中

尾淳，宮下清貴，溝口　勝，松本　聰，大西　隆．放射能除染の土壌科学　－森・田・畑から家庭菜園まで－，(学術会議叢書（20))，p. 135-151（財）日本学術協力財団，東京
15）農林水産省（2013）：農地除染対策の技術書概要．http://www.maff.go.jp/j/nousin/seko/josen/pdf/gaiyou.pdf
16）奥島修二・塩野隆弘・石田　聡・吉本周平・白谷栄作・濵田康治・人見忠良・樽屋啓之・今泉眞之・中達雄（2012）：浅代かき強制排水による水田土壌中の放射性物質除染法の有効性に関する事前検討．土壌の物理性，121, 43-48
17）椿淳一郎（2013）：放射能汚染土壌減容化のキーテクノロジーは固液分離技術．粉体技術，5, 789-793
18）Vovk, I. F., Blagoyev, V. V., Lyashenko, A. N., and Kovalev, I. S (1993): Technical Approaches to Decontamination of Terrestrial Environments in the CIS (former USSR). Science of the Total Environment, 137, 49-63
19）山口紀子・高田裕介・林健太郎・石川　覚・江口定夫・吉川省子・坂口　敦・朝田　景・牧野知之・赤羽幾子・平舘俊太郎（2012）：土壌－植物系における放射性セシウムの挙動とその変動要因．農環研報，31, 75-129

## 摘　要

土壌撹拌法による放射性セシウム汚染水田の浄化方法を開発した。本法は、1）水田に水と分散剤を加えて撹拌、2）土壌懸濁液中に分散した放射性セシウムを多く含む細かい土壌粒子を排水、3）可搬型の処理装置による排水処理で構成される。除染により、土壌と玄米中の放射性セシウム低減率はそれぞれ62％と58％となった．