- 課題名 5ZB-1205 放射能汚染土壌の飛散防止・洗浄・固化を行う生物処理実用 システムの開発
- 課題代表者名 片山 新太 (名古屋大学エコトピア科学研究所環境システムリサイクル科学研究部門教 授)
- 研究実施期間 平成24~25年度
- 累計予算額 68,510千円(うち25年度34,255千円) 予算額は、間接経費を含む。
- 本研究のキー 放射性セシウム、水田土壌、洗浄と固定、微生物鉱物化反応、ナノバブル水、木質チップ ワード ろ過、イネ移行性、トラクター作業

#### 研究体制

- (1) 放射能汚染土壌の固化に関する生物処理実用システムの開発(名古屋大学)
- (2) 放射能汚染土壌の飛散防止と洗浄に関する生物処理実用システムの開発(石巻専修大学)

研究協力機関

環境省福島環境再生事務所、福島県農林水産部、福島県飯舘村

# 研究概要

#### 1. はじめに(研究背景等)

福島原子力発電所から飛散したセシウムやストロンチウム等の放射性核種によって広範囲に放射能 汚染土壌が生じ、この対策が急務となっている。これまで重金属汚染農耕地(例:カドミウム汚染水田) では排土客土による対策がとられてきたが、土壌の確保が難しいことから、客土を伴わない方法によ る農耕地再生方法の確立が求められている。同時に、放射性核種で汚染された排土の大量発生も大き な問題となっており、排土量の少ない対策が望まれている。さらに、現地では完全な土壌除染は難し く、残留する放射性核種の2次的拡散の防止も望まれている。社会経済的には、大手ゼネコンによる大 がかりな除染を実施しても、除染はしたが肥沃度の低下した土地が農家に返されるに過ぎず、農地再 生を実施する農家に別の経済的援助が必要となるという課題が残る。そのため、農家自身で農地除染 を行うことによって、除染費用が農家に

渡る仕組みも必要となっている。



種を粘土画分とともに洗浄除去し、洗浄後に残留する放射性核種を微生物鉱物化反応によって固化(固定化)して、放射性核種のイネへの移行を防ぐ技術を開発することを目的とした。本申請研究で用いる 洗浄・固化反応は、これまでに部分的には開発されているが、それらをシステムとして実農用地に応 用した例は無い。従って、現地で適用する上で必要な仕様(洗浄効率、水田肥沃度への影響、イネへ の低移行係数)を達成するための条件を明らかにすることを目的とした。

#### 2. 研究開発目的

本研究では、汚染土の飛散防止、洗浄、固化(放射性核種の固定化)処理を行う生物システムの実用化開発を行って、現地土壌を農耕地として再生することを目的としている。本生物処理システムは (a)原位置処理が可能で、(b)従来の農作業に沿った工程によって実施可能であることの2点を満たすように開発し、農家が自身で浄化を可能とするものである。

放射性核種の土壌洗浄剤として、浸透性の高い水(高浸透性水、いわゆるナノバブル水)に、イオン 交換反応が期待でき且つ農耕地の肥沃度に影響の小さい塩類を溶かした液を用いて、高効率で放射性 セシウムを除去する方法を確立する。ここでは、放射性セシウムを多く含む粘土画分を分級しながら 洗浄する方法を開発する。また、下層土および畦畔は、放射性核種が広がらないように微生物鉱物化 反応によって非透水性とする方法を確立する。さらに、洗浄後も水田作土中に残留するセシウム・ス トロンチウムを固化(固定化)し植物に吸収されにくい形態へ変化させる技術も同時に確立する。高 浸透性水の作製には、高崎らが開発した活性水生成用高圧噴流水共鳴振動発生装置を用い、発生する 放射性洗浄水は木材チップ等を用いたろ過装置で処理する。また、微生物鉱物化反応には、微生物に よって方解石(*Sporosarcina*属細菌、ToblerらGeochim Cosmochim Acta, 75, 3290, 2011)、菱鉄鉱 (*Schwanel/a*属細菌、Rodenら、ibid, 66, 2823, 2002)、フェライト(*Geobacter*属細菌、J。R。Lloyd personal communication)等を利用する。

#### 3.研究開発の方法

#### (1) 放射能汚染土壤の固化に関する生物処理実用システムの開発

- 1) 漏水水田に対する処理技術:室内でガラスビーズを用いたモデル実験によって、粒径、ベントナイト、塩化カルシウム、尿素、微生物基質、温度の透水係数に対する効果を明らかにすることによって、現地試験に必要な投入資材の条件を決定した。次に、名古屋大学附属農場の漏水水田(透水係数 10<sup>-4</sup> cm/s)を対象として、下層土にベントナイト(目の粗い孔を防ぐ)、塩化カルシウム、尿素(カルサイト形成)およびコーンスティープリカー(微生物基質)を加え、土壌微生物の持つウレアーゼ活性を利用して尿素をアンモニアと二酸化炭素に分解して高い pHを保ちつつ炭酸カルシウム(カルサイト)沈殿を形成させて、下層土に存在する漏水の原因となる隙間を埋める実験を実施した。この時、浸水量は、土壌表面に木枠をおいて減水深を測ると同時に現地での降水量と蒸発量を測定することによって求めた。
- 2) 鉄酸化物の効果の評価:鉄還元菌を用いて土壌中に多く存在する鉄酸化物を還元して、鉄の鉱物を形成する化学反応を誘導する実験を行った。還元して生成する鉄(II)イオンと鉄(III)酸化物の反応によってマグネタイトが形成、炭酸との反応でシデライトが形成、リン酸との反応でビビアナイトが生成することを利用するとともに、粘土鉱物が放射性セシウムと強く吸着することを利用して、放射性セシウムを粘土鉱物ごと鉄酸化物で覆ってしまうことが可能かどうかを試験した。結果はSEM-EDSでの観察および土壌からの放射性セシウムの逐次抽出試験によって調べた。放射性セシウム濃度はゲルマニウム半導体検出器で決定した。
- 3) 植物移行試験:バーミキュライト等の粘土鉱物と鉄酸化物の効果を放射性セシウムのイネ移行 試験によって調べた。試験は高濃度汚染土を用いたポット試験と現地での稲作試験の二通りで 行った。現地試験では農家が実際に行っている代掻き作業で処理を行った。放射性セシウム濃 度は、ヨウ化ナトリウムシンチレーション検出器で決定した。

# (2) 放射能汚染土壤の飛散防止と洗浄に関する生物処理実用システムの開発

- 1) 土壌中の放射性セシウム洗浄:ナノバブル水に酸(硫酸、クエン酸)、アルカリ(炭酸ナトリウム)を加えた ものを高浸透性水として、土壌(乾物基準質量)に対して 0.9~6 倍(質量)加えて洗浄した。実験室レベ ルでボトル振とうー静置試験として行って、洗浄に必要な土:水の割合および洗浄と沈殿時間を決定し、 それを野外試験での条件として実施した。野外試験では 100kg 程度の土壌を 1 回で洗う条件で評価し た。
- 2) 河川水中の放射性セシウム除染:河川水中に含まれる放射性セシウム汚染懸濁物の除去を木材チッ

プで作成したろ過槽によって除染する技術の開発を目指し、カラム試験および実際のろ過槽での試験を 行った。木質チップは購入した物と現地の木材を用いて作成した物の2通りで行った。カラム試験でチッ プ槽に必要とされる厚みを調べ、その条件でろ過槽での長期運転を行ってろ過効果の持続性を試験した。放射性セシウム濃度は、ヨウ化ナトリウムシンチレーション検出器で検出した。また、チップによる懸 濁物の最大保持量から、土壌洗浄水に対するろ過処理設計パラメータを求めた。

### 4. 結果及び考察

#### (1) 放射能汚染土壤の固化に関する生物処理実用システムの開発

- 1) 漏水水田に対する処理技術:名古屋大学附属農場の漏水水田(透水係数 10<sup>-4</sup> cm/s)を対象として、土壌微生物の持つウレアーゼ活性を、ベントナイト(目の粗い孔を防ぐ)、塩化カルシウム、尿素(カルサイト形成)およびコーンスティープリカー(微生物基質)を加えることによって、微生物活性の低い冬期でも透水係数を低下させ、水田で理想的と考えられる透水係数 10<sup>-5</sup> cm/s ~10<sup>-6</sup> cm/s を1ヶ月程度で達成できることを明らかにした。これによって、粘土粒子の移行による放射性セシウムの輸送を防ぐことが可能となった。
- 2) 鉄酸化物の効果の評価:水田土壌に広く存在する鉄還元細菌を使って、強還元条件下で鉄酸化物を還元可溶化し、可溶化鉄(II)と土中の陰イオン、あるいは可溶化鉄(II)と酸化鉄の化学反応により不溶性のシデライトやマグネタイトを生成させ、土壌粘土のコーティングすることを試みた。コーティングは、シデライトが土壌粘土の中でもバーミキュライトで見られる一方、ベントナイトに対するコーティング効果は低かった。反応期間に長期を要することが示唆された。
- 3) 植物移行試験:土壌中の放射性セシウムは、バーミキュライト、ベントナイト、鉄酸化物を用いた処理によって抽出されない形態(イネ移行しない画分)となることが明らかとなった。この効果は、イネポット試験(1-2ヶ月)で確認された。しかし、野外試験(4ヶ月)での玄米への移行性に対しては、無処理土でも移行性が低かった(基準の100Bq/kg 未満)ため、有意な効果が観られなかった。2年以上が過ぎ、水田土壌に降り注いだ放射性セシウムは既に強固に吸着して植物吸収率が低下したのかもしれない。なお、処理時に土壌を酸性化すると、イネ移行性がやや高まったことから、処理時のpHには注意が必要である。

#### (2) 放射能汚染土壌の飛散防止と洗浄に関する生物処理実用システムの開発

- 1) 土壌中の放射性セシウム洗浄:河川水の水田灌漑および洗浄水処理を目的として、放射性セシ ウム含有微細粒子濁質物を抑留する木材チップ濾過槽(チップ槽厚>40cm)を用いて、懸濁物 99%以上除去に成功した。放射性セシウムは、おおむね検出限界以下であった。灌漑水用には、 チップ濾床は少なくとも一作期間は継続して用いることができることを明らかにした(通常の 上水などに、用いられる砂濾過に比べ、濁質抑留能力は濾槽全体で濁質抑留を進行させる特長)。 周辺の里山、森林の樹木伐採時に発生する木材を利用することが期待される。また、洗浄水を 直接的に木材チップ濾過槽に導入するのではなく、その前に沈殿槽を設けることの必要性が明 らかとなった。また、その沈殿槽で用いる鉄系凝集剤は、セシウムの植物移行ブロック技術と も組み合わせて使えることが期待される。
- 2) 河川水中の放射性セシウム除染:河川水から作製したナノバブル水をベースに酸(硫酸、クエン酸、炭酸)を加えた高浸透性水を洗浄水として福島県飯舘村佐須土壌に1:0.9~1.3の低土水比で加え、粘土画分等の細粒とともに放射性セシウムを除去する方法で、放射性セシウムの30%(野外代掻き除染)~80%(室内試験)の除去率を達成した。ただし、80%の達成には丹念な粘土画分の除去が必要となる。除染作業時間は、1回洗浄20分から30分を3回程度で洗浄が可能である。ただし、処理対象土が頑固な泥団子状態の場合には処理時間の延長も必要となる。分級操作に必要な水は、循環と再利用が可能であることを確認した。

# 5. 本研究により得られた主な成果

#### (1)科学的意義

5,000Bq/kg程度の放射性セシウムで汚染された水田土壌であれば、農家がトラクターで行える安価な水田再 生技術を開発した。その工程は以下の様である:(i)漏水の大きな水田の場合は微生物によるカルサイト形成に よる漏水防止処理を下層土および畔畦に対して行う。(ii)水田表層土5cmをトラクターで剥ぎ取る。(iii)灌漑水路 から水田に引き込む水口で50cm以上厚さのある木質チップ槽によって放射性セシウム付着懸濁物をろ過して取 る(99.9%以上の除去率)、(iv)チップ槽浄化水から高浸透性水を作成し、剥ぎ取り土壌の洗浄を行う(洗浄効率 30%の代掻き洗浄~洗浄効率80%の洗浄-沈殿槽からなる洗浄装置)。(v)洗浄土壌の粘土・鉄処理(バーミキュ ライト、ベントナイト、コロイド酸化鉄)による残留放射性セシウムの土粒子内への封じ込め反応実施(これは半年 以上養生した方が良い)。

また、当初の目的に付随して、農地の除染を 行っても空間線量は下がらないことから通い 農家の形態をとって農業を再開することしかで きないことが示唆された。また水中の懸濁物の 放射性セシウム汚染レベルが高く、土壌を除 染しても山林から流下する懸濁物によって再 び汚染される可能性が明らかとなった。住民が 戻るためには、空間線量の原因となっている 山林を削って谷を埋めるような大規模土木工 事を行う必要があることが示唆された。

### (2)環境政策への貢献

現在、緊急課題となっている福島県相馬郡 飯舘村の水田の除染に対し、現地の住民を 活かした除染の進め方に関して研究開発を進



めるとともに意見交換を行い、放射性セシウム汚染農地の復興政策への選択肢を用意した。

- 5,000Bq/kg程度の汚染土であれば、広範な除染に使える安価な除染技術を確立した。これによって、 客土を最低限に抑えた水田農地を 1,000Bq/kg 以下に除染することが可能である。また、地元住民 (農家)が自分でトラクターを使って除染できる技術一除染作業が仕事になるため、除染費用を地元 民への賃金として出すことが可能となり、住民の元気づけとなって早期帰宅を目指すことが出来る。
- ・ 無処理土壌でもイネへの移行性が低いことから、水田汚染レベルが 10,000Bq/kg 程度までは無処理 で水稲栽培しても玄米中の放射性セシウム濃度が基準(100Bq/Kg)を超えることは殆ど無い。即ち、 作付け条件をゆるめても良いことが示唆される。ただし農地除染しても空間線量は低下しないので、 農家自身の外部被曝を低下させるために通い農業の形態が良いと考えられる。また、収穫物の全量 検査態勢を確立し、規定の線量未満のものだけを出荷することができる体制を整なければならないと 考えられる。
- 汚染土壌を農地外に持っていくのではなくて、農地の土粒子自体に封じ込めることによって、廃棄土 壌の排出量の減量化を行う事ができることが明らかとなった。汚染土の処理という2次的問題を小さく 出来るので、税金投入量が少なくてすみ、地元農家の早い帰還に繋がることが期待される。

く行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

# <行政が活用することが見込まれる成果>

- 5,000Bq/kg 程度の汚染土であれば、地元住民がトラクターを使って除染できる安価な除染技術。
- 農地での植物移行は小さいので作物中の放射性セシウム濃度が基準(100Bq/Kg)を超えることは殆ど 無いこと。
- 土粒子自体に放射性セシウムを封じ込めることが可能である。空間線量の低下を行うためには、それを 地中に埋めると良いと考えられる。
- 一方、農地除染しても空間線量はあまり低下しないことから、人々が戻って住むためには空間線量の原因となっている山林を潰して谷を埋める様な大規模な土木工事を行った方が良いと考えられる。

6. 研究成果の主な発表状況(別添.作成要領参照)

(1)主な誌上発表

<査読付き論文> 特に記載すべき事項はない

(2)主な口頭発表(学会等)

- Akatsuka, T., Suzuki, D., Eryürük, K., Tsuchiya, T., Yang, S., Takasaki, M., Fukushima, M., Abe, T., Usui, T. and Katayama, A. Horizontal and vertical profiles of radiocaesium in a contaminated paddy soil due to Fukushima nuclear power plant accident, First International Symposium on Advanced Water Science and Technology (ISAWST-1), November 11-13, 2012, Noyori Conference Hall, Nagoya University, Nagoya, Japan (poster)
- 2) Yang, S., Eryürük, K., Akatsuka, T., Suzuki, D., Sawada, K. and Katayama, A. Comparative study on the methods to decrease Strontium bioavailability 第 12 回アジア太平洋廃棄物専門家 会議 (SWAPI)、於:中央大学2013年2月26-28日
- Eryürük, K., Yang, S., Akatsuka, T., Suzuki, D., Tsuchiya, T. and Katayama, A. Reduction of hydraulic conductivities of glass beads using *Sporosarcina pasteurii*, Water and Environment Technology Conference 2013, Tokyo University of Agriculture and Technology, Koganei, Japan, (Hybrid)15-16 June 2013
- 4) Tsuchiya, T., Akatsuka, T., Yang, S., Eryürük, K., Suzuki, D., Takasaki,M., Sawada, K., Fukushima, M., Abe, T., Usui, T., Katayama, A. Suppression of bioavailability of radioactive Cesium from soil to rice plants, International Symposium on EcoTopia Science 2013, December 13-15, Nagoya, Japan
- 5) Akatsuka, T., Yang, S., Tsuchiya, T., Eryürük, K., Suzuki, D., Sawada, K., Takasaki,M., Fukushima, M., Abe, T., Usui, T., Katayama, A. Decrease of the plant-available radiocaesium using the iron compounds and clay minerals of 2:1 layer type, International Symposium on EcoTopia Science 2013, December 13-15, Nagoya, Japan (poster)
- 6) Eryürük, K., Akatsuka, T., Suzuki, D., Tsuchiya, T., Yang, S. and Katayama, A. Determination of Physical Characteristics of Contaminated Soil of a Paddy Field in Fukushima Prefecture, International Symposium on EcoTopia Science 2013, December 13-15, Nagoya, Japan (poster)

# 7.研究者略歴

# 課題代表者:片山 新太

広島大学理学部卒業、工学博士(東京工業大学)、現在、名古屋大学エコトピア科学研究所教授

### 研究分担者

- 1) 澤田 佳代 (サブテーマ1)
  - 名古屋大学エコトピア科学研究所准教授
- 2) 鈴木 大典 (サブテーマ1) 名古屋大学エコトピア科学研究所助教
- 3) 高崎 みつる (サブテーマ2、サブリーダー) 東北学院大学工学部卒業、工学博士(東北大学)、現在、石巻専修大学理工学部教授
- 4) 福島 美智子 (サブテーマ2)石巻専修大学理工学部教授
- 5) 阿部 智顕 (サブテーマ2)
   石巻専修大学理工学部教授

5ZB-1205 放射能汚染土壌の飛散防止・洗浄・固化を行う生物処理実用システムの開発

# (1) 放射能汚染土壌の固化に関する生物処理実用システムの開発

名古屋大学エコトピア科学研究所

環境システムリサイクル科学研究部門 片山 新太

<研究分担者>

- 名古屋大学エコトピア科学研究所
  - 環境システムリサイクル科学研究部門 澤田 佳代・鈴木 大典

<研究協力者>

- 名古屋大学エコトピア科学研究所
  - 環境システムリサイクル科学研究部門赤塚 徹志・楊 素銀・坂口 巌名古屋大学大学院工学研究科Kağan Eryürük・土屋 貴之名古屋大学工学部社会環境工学科久野 安通志

平成24(開始年度)~25年度累計予算額:43,097千円

(うち、平成25年度予算額:21,629千円)

予算額は、間接経費を含む。

# [要旨]

本研究では、汚染土の飛散防止、洗浄、固化(放射性核種の固定化)処理を行う生物システムの 実用化開発を行って、現地土壌を農耕地として再生することを目的としている。このサブテーマで は、下層土および畦畔は、放射性核種が広がらないように微生物鉱物化反応によって非透水性とす る方法を試験するとともに、洗浄後も水田作土中に残留する放射性セシウムを固化(固定化)し植 物に吸収されにくい形態へ変化させる技術も同時に確立することを目的とした。

名古屋大学附属農場の漏水水田(透水係数 10<sup>-4</sup>cm/s)を対象として、土壌微生物の持つウレアー ゼ活性を、ベントナイト(目の粗い孔を防ぐ)、塩化カルシウム、尿素(カルサイト形成)およびコ ーンスティープリカー(微生物基質)を加えることによって、微生物活性の低い冬期でも透水係数 を低下させ、水田で理想的と考えられる透水係数 10<sup>-5</sup>cm/s~10<sup>-6</sup>cm/s を 1 ヶ月程度で達成できるこ とを明らかにした。これによって、粘土粒子の移行による放射性セシウムの輸送を防ぐことが可能 となった。

水田土壌に広く存在する鉄還元細菌を使って、強還元条件下で鉄酸化物を還元可溶化し、可溶化 鉄(II)と土中の陰イオン、あるいは可溶化鉄(II)と酸化鉄の化学反応により不溶性のシデライト やマグネタイトを生成させ、放射性セシウムを吸着した土壌粘土をコーティングすることを試み た。シデライト生成は、バーミキュライトで効果が高かった。土壌中の放射性セシウムは、バーミ キュライト、ベントナイト、鉄酸化物を用いた処理によって抽出されない形態(イネ移行しない画 分)となることが明らかとなった。この効果は、イネポット試験(1-2ヶ月)で確認された。しか し、野外試験(4ヶ月)での玄米への移行性に対しては、無処理土でも移行性が低かった(基準の 100Bq/kg 未満)ため、有意な効果が観られなかった。2年以上が過ぎ、水田土壌に降り注いだ放射 性セシウムは既に強固に吸着して植物吸収率が低下したのかもしれない。なお、処理時に土壌を酸 性化するとイネ移行性がやや高まったことから、処理時のpHには注意が必要である。

# [キーワード]

微生物鉱物化反応、放射性セシウム、粘土鉱物、植物移行性

#### 1. はじめに

福島原子力発電所から飛散したセシウムやストロンチウム等の放射性核種によって広範囲に放 射能汚染土壌が生じ、この対策が急務となっている。これまで重金属汚染農耕地(例:カドミウム 汚染水田)では排土客土による対策がとられてきたが、土壌の確保が難しいことから、客土を伴わ ない方法による農耕地再生方法の確立が求められている。同時に、放射性核種で汚染された排土の 大量発生も大きな問題となっており、排土量の少ない対策が望まれている。さらに、現地では完全 な土壌除染は難しく、残留する放射性核種の2次的拡散の防止も望まれている。社会経済的には、 大手ゼネコンによる大がかりな除染を実施しても、除染はしたが肥沃度の低下した土地が農家に返 されるに過ぎず、農地再生を実施する農家に別の経済的援助が必要となるという課題が残る。その ため、農家自身で農地除染を行うことによって、除染費用が農家に渡る仕組みも必要となっている。

そこで、本研究では、農家がトラクターと簡易な装置程度を用いれば実施出来る除染および水稲 (イネ)移行抑制技術の開発を行うこととした。これまで放射性核種の汚染水田におけるイネ移行 試験は、1960年~1970年代の核実験フォールアウトの影響評価の研究で実施され(渋谷政夫編「土 壌汚染の機構と解析」産業図書、東京、1979)、ストロンチウムは作物吸収され易いこと、セシウ ムは通常は土壌(特に粘土画分)に固定化されるが水田条件では、アンモニウム態窒素がセシウムと 置換し、セシウムが遊離してイネに吸収されることが明らかにされている。そこで、植物移行性の 高い放射性核種を粘土画分とともに洗浄除去し、洗浄後に残留する放射性核種を微生物鉱物化反応 によって固化(固定化)して、放射性核種のイネへの移行を防ぐ技術を開発することを目的とした。 本申請研究で用いる洗浄・固化反応は、これまでに部分的には開発されているが、それらをシステ ムとして実農用地に応用した例は無い。従って、現地で適用する上で必要な仕様(洗浄効率、水田 肥沃度への影響、イネへの低移行係数)を達成するための条件を明らかにすることを目的とした。

このサブテーマ「放射能汚染土壌の固化に関する生物処理実用システムの開発」では、土壌中にある放射性核種を逃がさないための微生物鉱物化反応を用いた技術に関して開発を行った。

### 2. 研究開発目的

本研究では、汚染土の飛散防止、洗浄、固化(放射性核種の固定化)処理を行う生物システムの 実用化開発を行って、現地土壌を農耕地として再生することを目的としている。本生物処理システ ムは(a)原位置処理が可能で、(b)従来の農作業に沿った工程によって実施可能であることの2点を満 たすように開発し、農家が自身で浄化を可能とするものである。

このサブテーマでは、下層土および畦畔は、放射性核種が広がらないように微生物による鉱物化 反応によって水田下層土の透水性を低くして放射性物質の散逸を防止する方法を確立するととも に、土壌洗浄後も水田作土層に残る残留放射性物質の植物吸収率を低下させる技術を開発すること を目的とする。

#### 3. 研究開発方法

### (1) 対象とした飯舘村佐須地区の水田土壌の理化学性と放射性セシウム(<sup>137</sup>Cs)汚染の調査

調査は,2012年4,5,7,9,10月に福島第一原子力発電所から北西に位置する飯館村佐須地区の 研究対象水田(37°44。1'N,140°43。4'E)で行なった。

### 1) 飯舘村佐須地区水田土壌の理化学性

福島の土壌(三相、細孔径分布、透水係数)の物理的特性を測定するために、コアサンプルを、 水田の4カ所から採取した。土壌層の三相の測定は、デジタル実容積計を用いて測定した。まず、 サンプルの重量を測定し、コアサンプルを体積計に入れ、実際のボリュームを測定した。体積計は、 結果を記録し、その結果は体積計からPCへ転送された。次に、コア試料を24時間 105℃で乾燥さ せた。その後サンプルの重量を測定した。

土壌サンプルの細孔径分布は目詰まり技術を適用できるかどうが判断するために重要な要因で ある。広範囲pFメーターを土壌の細孔径分布の測定に用いた。まず、サンプルを量り、その後、 コア試料の底にアドバンテックNo.7ろ紙を敷き。その後、コア試料とpFメーターのセラミックフィ ルターは、飽和させるために24時間蒸留水に浸漬した。 24時間後、試料を秤量し、重量を記録し た。次に、フィルターは、pFメーターに入れ、サンプルは広範囲のpFメーターに入れた。 pFメー ター内の圧力は、試料からの水の除去に関連する試料の細孔径を示す圧力値に応じて調節した。1.3、 1.6、2.0、2.5、3.0、3.5、3.8 pFの値は、75-150µm、31-75 µm、10-30 µm、4-9µm、1~3µm、0.45-1µm と <0.45 µm細孔サイズに相当するとして結果を整理した。サンプルは空気を用いて圧力をかけた。 ただ、3.5と3.8 pFの値については、窒素ガスを空気の代わりに使用した。この場合のサンプルは、 7日間圧力をかけてから水分を測定した。サンプルの重量は、各pF値後に測定した。土壌の細孔径 分布は、適用されるさまざまなpFの値は後のサンプルの重量の違いを用いて決定した。

土層の透水係数は、コアーで得られた土壌カラムを対象に、土壌透水計を用いて調べた。まず、 サンプルの重量を測定し、試料の底にアドバンテックNo7ろ紙で敷いた。その後、コアサンプルは、 水飽和するために24時間蒸留水に浸漬した。表層土壌と深層土壌の予想される透水係数10<sup>-2</sup> cm/s~ 10<sup>-3</sup> cm/sの間であるので、表層から0~10cmと40~50 cmのサンプルの透水係数が定水位法を用いて 測定した。 10~20 cm、20~30 cm、30~40 cm試料である残りの透水係数は、変水位法を用いて測 定した。

粒径分布測定および粘土鉱物の分離は、日本土壌肥料科学会監修「土壌環境分析法」博友社(1997)の第II章2の粒径組成[ピペット法]に従った。分離した粘土鉱物についてはXRD(リガク, MiniFlex) により鉱物種の同定を行なった。

化学的特性の中でpHと電気伝導度を測定した。土壌試料は、風乾した後2mmのふるいでふるいわけした。土壌pHの測定には、約10グラムの土壌を100mLのビーカーに入れた。次いで25 mlの蒸留水を添加し、懸濁液をガラス棒で十分に混合し、1時間後にpHガラス電極上の数値を測定値とした。電気伝導度(EC)の測定では、約10グラムの土壌をボトルに入れた。次いで25 mlの蒸留水を添

加し、懸濁液を60分間振とう機を用いて十分に混合した。1時間後に、電気伝導度計でECを読み取った。

試料名	調整法
作土層土	5/21の20-27 cm層, 9/9の10-20 cm層, 10/13の20 cm層を混合
盤層土	5/21の32-38 cm層, 9/9の20-30 cm層を混合
下層土	10/13の43-49 cm層と60 cm層を混合

表(1)-1 分級試料

# 2) 放射性セシウム (<sup>137</sup>Cs) 汚染の調査

研究対象水田において,福島第一原発事故により飛散した放射性セシウムの汚染状況を把握する ために,土壌,生育する植物(雑草),土壌溶液ならびに流入河川水の<sup>137</sup>Cs濃度を測定した。水 田土壌は,選定した6定点から土壌深度0-10 cmの表層土壌を採取し,<sup>137</sup>Cs濃度の水平分布を調査し た。さらに,土壌深度60cmまでの土壌断面を作成し,土壌深度10cmごとの層位で土壌を採取し, <sup>137</sup>Cs濃度の鉛直分布を調査した。原発事故以来,研究対象水田は避難区域にあたるため稲作は行 われておらず,ヒエ科植物とセイタカアワダチソウが優占している状態にあった。これら雑草の <sup>137</sup>Cs濃度を測定し,その移行係数を算出した。また,研究対象水田が利用する真野川河川水なら びに水田表層土壌を超純水で抽出処理した土壌溶液中の<sup>137</sup>Cs濃度を測定した。<sup>137</sup>Cs濃度は,Ge半 導体検出器により<sup>137</sup>Csの放射線量を7200~86400秒カウントして求めた。

# (2) 微生物鉱物化作用を用いた土壌の不透水層化技術の開発-室内試験

ガラスビーズで模擬的土壌カラムを作製し、微生物の不透水層化効果(bioclogging効果)を観察 した。透水係数の低減に関し、間隙径と粒子径をパラメータとして実土層での結果を考察するため、 直径が0.01、0.05、0.25、0.5、1、2、3mmのガラスビーズを用いて実験した。透水係数はマノメー ターを用いて測定した。方解石生成による沈殿を誘導するために*Sporosarcina pasteurii* ATCC11859 を使用した。この菌の存在下、尿素とカルシウムを添加すると、尿素加水分解の結果としてアンモ ニウムおよび溶存二酸化炭素が生成してpHが上昇する。増加したアルカリ性は炭酸塩鉱物の沈殿 (方解石沈殿)を引き起こす。反応工程及び全体的な反応は次のようにしめされる。

 $\text{NH}_2\text{CONH}_2 + \text{H}_2\text{O} \rightarrow 2\text{NH}_3 + \text{CO}_2$ 

 $2NH_3 + 2H_2O \rightarrow 2NH_4^+ + 2OH^-$ 

 $\rm CO_2 + OH^- \rightarrow HCO_3^-$ 

 $CaCl_2 \rightarrow Ca^{2+} + 2Cl^{-}$ 

 $Ca^{2+} + HCO_3^- + OH^- \rightarrow CaCO_3 \downarrow + H_2O$ 

全体反応:

 $NH_2CONH_2 + CaCl_2 + 2H_2O \rightarrow 2NH_4^+ + 2Cl^- + CaCO_3 \downarrow$ 

細菌の準備は、以下の様に行った。Sporosarcina pasteurii (ATCC11859)を1 LのNH<sub>4</sub>-YE培地に 接種した後、培地は30℃で120 rpmで一晩振とう器に入れた。その後、細胞洗浄を行った。培地を 除去するために、懸濁液を8000 rpmで10分間に遠心分離した、次いで細胞を蒸留水で2回洗浄した (遠心分離10分間8000 rpm)。細胞を100mLの蒸留水に再溶解し、最終的に細胞懸濁液をカラムに 注入する準備ができた。カラム試験には、3 cm直径と10cmの高さを持つ50 mL注射器をカラムとし て用いた。蠕動ポンプは、細胞懸濁液、沈殿溶液とベントナイト懸濁液を注入するために使用した。 沈殿溶液として、0。5Mの塩化カルシウム、尿素溶液を用いた。全ての実験は、細胞懸濁液のフロ ーレートを2 mL/min、沈殿溶液のフローレートを3 mL/minに設定し、22℃で行った。細胞懸濁液は、 カラムにガラスビーズの4細孔容積の量に注入した。 350ml細孔容積の量の沈殿溶液を2日間で注 射した。目詰まり効率が透水係数による減少として表すことができる。微生物の細胞濃度を確認し た、OD<sub>600</sub> 2。25としてカラムに注入した。各細孔容積単位の溶液を注入後、カラム内の細胞の堆 積を計数するために試料を採取した。微生物細胞は、4',6- ジアミノ-2- フェニルインドール (DAPI) で細胞を染色し、蛍光顕微鏡を用いて観察した。

### (3) 野外条件での微生物鉱物化作用による水田土壌の透水係数低下技術の開発

名古屋大学東郷フィールド(愛知県東郷町)の水田土壌を対象として、微生物鉱物化作用による 透水係数低下技術(バイオクロッギング技術、bioclogging技術、微生物の不透水層化技術)の適用 性を評価した。。

### 1) フィールドスケールでの水田への bioclogging 技術の適用実験

#### a. 目的

bioclogging技術を使用して水田の透水係数を低下させることを目的としてフィールドスケール での実験を行った。

### **b.** 材料と方法

名古屋大学東郷フィールドの水田(面積、7m×25m)の水田でフィールドスケールでのbioclogging 技術の適用実験を行った。水田での試験区の設置準備は、2013年9月上旬から2013年11月中旬の間 に行った。最初に、バックホウを使用して、長さおよそ18 m、幅およそ3 mそして深さおよそ0.3 cm の範囲で水田の土壌を掘り起こし、続いて掘り起こした後の地面の表面を平らに均した。6つの木 枠(長さ180 cm、幅180 cm、高さ45 cm)を組み立て、これらの木枠を掘り起こした地面に設置し、 均等に配置した。設置した木枠の平面具合は水準器を使用して確認した。bioclogging処理のための 木枠内に深さ10 cmの土壌レベルを調製するために、バックホウを使用して木枠の内側へ土壌を移 した。木枠の内側の土壌の高さ(深さ)を正確に10 cmへ調整し、さらにその土壌表面を平らにし た。木枠の内側の土壌あ面の平面具合は水準器を使用して確認した。木枠に1から6番の番号を付け、 bioclogging処理試験区をNo. 1、3および5そして対照試験区をNo. 2、4および6に配置した。木枠側 面からの水漏れを防止するために、bioclogging処理に使用した試薬について下記に示した。示した試 薬の量は試験区外側の1つの側面のbioclogging処理に使用した量である。

- i. 6 L の 2% (w/v)の CSL 溶液。試験区外側の 1 つの側面の bioclogginh に使用した CSL の量。
   CSL 溶液を調製するために、CSL とろ過水を 1:23.3 の比率で混合した。CSL 溶液の pH は 3.2 から 3.7 の間だった。消石灰 Ca(OH)<sub>2</sub> で CSL 溶液の pH を 5 から 6 の間に調整した。
- ii. 3.8 kgの Na 型ベントナイト (クニゲル-V1、クニミネ工業)。土壌重量の 5%の Na 型ベント ナイト。
- iii. 1.4 kgの塩化カルシウム二水和物(カルメートR、赤穂化成):上述の CSL 溶液と混合した際

の最終濃度は 1.5 M。

iv. 0.54 kgの尿素(工業用尿素、三井化学):上述の CSL 溶液と混合した際の最終濃度は 1.5 M。

試験区外側の側面の土壌に対するbioclogging処理は2013年9月下旬頃に行った。試験区外側の側面の土壌に対するbiocloggingを次のように行った。試験区外側の側面のすぐ側の土壌をスコップで深さ10cm程度掘り、そこへ上述した量のベントナイト、塩化カルシウム二水和物と尿素をそれぞれ加えて土壌とよく混合した。土壌と試薬の混合物へCSL溶液を加えてよく混合した。このbioclogging処理を、試験区外側の4つの面それぞれに対して行った。

試験区内側の土壌に対するbioclogging処理に使用した試薬について下記に示した。示した試薬の 量は1つの試験区内側の土壌に対するbioclogging処理に使用した量である。

- i. 160 L の 2% (w/v)の CSL 溶液。試験区外側の 1 つの側面の bioclogginh に使用した CSL の量。
   CSL 溶液を調製するために、CSL とろ過水を 1:23.3 の比率で混合した。CSL 溶液の pH は 3.2 から 3.7 の間だった。消石灰 Ca(OH)<sub>2</sub> で CSL 溶液の pH を 5 から 6 の間に調整した。
- ii. 38 kgの Na 型ベントナイト (クニゲル-V1、クニミネ工業)。試験区内側の土壌(深さ 10 cm) の土壌の重量の 5%の Na 型ベントナイト。
- iii. 24 kgの塩化カルシウム二水和物(カルメート R、赤穂化成):上述の CSL 溶液と混合した際の最終濃度は 1.0 M。
- iv. 10 kgの尿素(工業用尿素、三井化学):上述の CSL 溶液と混合した際の最終濃度は 1.0 M。

bioclogging処理試験区内側の土壌に対するbioclogging処理は2013年10月中頃に行った。 bioclogging処理試験区の内側の土壌に対するbioclogging処理を次のように行った。試験区内側の土 壌の表面に上述した量のベントナイト、塩化カルシウム二水和物と尿素をそれぞれ散布し、レーキ で表面土壌と試薬を混ぜて均した。続いて、CSL溶液を試験区内側に加えてを加え、塩化カルシウ ムと尿素を溶解させた。。対照試験区にはCSL溶液と同量のろ過水を加えた。

No.1試験区に対するbioclogging処理を施した直後に台風による大雨があり、No.1試験区に溜まった雨水がオーバーフローして隣のNo.2試験区へ沈殿溶液の流入があった。No.3およびNo.5試験区のbioclogging処理の際には大雨はなく、両試験区での雨水の滞留やオーバーフローはなかった。

Bioclogging処理試験区の内側土壌に対するbioclogging処理後、対照試験区を含む全ての試験区に 土壌の全高(全深)が30 cmになるように土壌を戻した。試験区の外側についても同様に土壌を戻 した。試験区の内側の土壌表面の平面具合は水準器を使用して確認した。

試験区の内側を除いた水田全体に井戸水を加え、水田表面の全体を平面にするために、手押しの 小型代かき機で代かきを行った。その後、水田の土壌を水で飽和させるために、試験区の内側と外 側へ井戸水を加えた。土壌表面に水が常時残っている状態、つまり土壌が水で飽和した状態になる まで、水田から水がなくなる都度、井戸水を加えた。水田土壌で壁を作り、bioclogging処理試験区 と対照実験区(試験区No.1とNo.2、試験区No.3とNo.4そして試験区No.5とNo.6)を一つのセットと して水田を3つの区画に分けた(図(1)-1)。試験区からの蒸発量を調べるために3つのトレイ(大き さ:120cm×60cm×30cm)を水田に設置した。1つのトレイ(大きさ:40cm×30cm×20cm)を水田へ の降水量を調べるために設置した。実験中の水田での温度と湿度を測定するために水田近くに温 度・湿度計を設置した。試験区での水深の高さを測定するために、試験区本枠の縦と横60 cm間隔 をたこ紐でつなぎ、たこ紐が交差する4つ点を測定ポイントとして選んだ。試験区内側を井戸水で 満たした後、試験区の水深測定ポイントの水深の減少を追跡した。水深の測定は、2013年11月下旬 から同年12月下旬の間に行った。



図(1)-1 試験水田の全景

# 2) Bioclogging 技術適用後の水田土壌の理化学性

フィールドスケールbioclogging技術の適用による土壌に対する効果や変化を検証することを目 的とし、bioclogging処理試験区および対照試験区から採取した土壌コアサンプルの透水係数、細孔 径分布と三相分布を調べた。土壌コアサンプルは各試験区の土壌の深さ15~20cmから採取した。

# (4) 微生物鉱物化技術の開発-cold Cs と cold Sr での試験

# 1) 異なる方法によるセシウムとストロンチウムの固定化

CsとSrを固定化する方法を開発するために、微生物的、化学的又は物理的メカニズムを持つ3つの異なる方法を比較した: (1)細菌の活動によって生成された結晶にCsおよびSrの取り込み(好気尿素分解菌によるカルサイト形成; ShewanallaとGeobacter AY株による鉄還元中菱鉄鉱および磁鉄鉱の形成)。 (2)化学反応によって生成されたフェライト中へCsとSrの取り込み。 (3)酸化マンガン、フミン酸、多糖類と粘土材料を含む様々な吸着剤によるCsとSrを吸着。これらの処理後のストロンチウムの生物有効性を逐次抽出処理によって評価した。

# a. 好気性細菌の尿素分解によって生成された方解石への Cs と Sr の取り込み

方解石沈殿を誘導するためにSporosarcina pasteurii ATCC11859使用された。培養は、20グラムの 酵母エキス、10グラムの(NH<sub>4</sub>)<sub>2</sub>SO<sub>4</sub>、およびO。13 Mのトライ酸緩衝液 (pH=9) を含む1Lの培地中 で一晩増殖させた。細胞を遠心分離(12,000×g)で収穫された3回洗浄し、滅菌した純水に再懸濁 した。次に、細胞を含むオートクレーブ処理培地50mlに接種した(リットルあたり):3グラム栄 養ブイヨン、方解石の沈殿のための20グラムの尿素、10グラム塩化アンモニウム、及び2。1グラム のNaHCO<sub>3</sub>。塩化カルシウム(50 mMの)とSr(NO<sub>3</sub>)<sub>2</sub>(100µM)またはCsCl(100µM)を滅菌する と、別々に追加されました。細菌なしでサンプルをコントロールとして調製した。すべてのサンプ ルは、重複していたと、インキュベーションは好気的条件下で3日間30 ℃で行った。

# b. Shewanella Putrefaciens CN32 と Geobacter AY 株による嫌気鉄還元による固定化

Fe鉱物や形成された鉱物によるCsとSrの固定化を調べるために、二種類の鉄(III) 還元細菌を試験した。Geobacter AYは、もともと1,2-DCA脱塩素菌として我々の研究室で単離した。S.putrefaciens CN32は、アメリカ生物資源センター(BAA-453 ATCC番号)から購入した。両方の株は、呼吸のために電子受容体としてのFe(III)を使用できる。鉄還元実験用培地組成を表1に示した。培地は炭酸水素ナトリウムまたは1,4-piperazinediethanesulfonic酸(PIPES)のいずれかで緩衝した。乳酸ナトリウム (10 mM)を電子供与体として添加した。選択されたサンプルで、フィルター滅菌AQDS

(100 $\mu$ M)を電子伝達物質として添加し、3グラムのガラスビーズを追加した。培地20mlを嫌気培養ボトルに分注した後、PIPES緩衝培地にO<sub>2</sub>フリーの-N<sub>2</sub>パージし、または重炭酸緩衝培地にN<sub>2</sub>—CO<sub>2</sub>(80:20)パージしてブチルゴム閉鎖と密封圧着した。

S.putrefaciens CN32は、トリプシン大豆ブロス中で一晩成長 (TSB) 後に遠心分離により回収し、 残留TSBを除去し、滅菌脱イオン水で洗浄し、滅菌嫌気脱イオン水に再懸濁した。細胞をメディア に追加されまして、最終濃度は2-4×10<sup>8</sup> ML<sup>-1</sup>。 Geobacter AYは毎月定義されている嫌気性培地 (AY-培地) に移し、30℃に維持した。培養液1 mlを保存培養から採取され、嫌気的条件下での注射器に よる鉄還元のため培地に接種した。含水酸化鉄は (HFO) は、FeCl<sub>3</sub>。6H<sub>2</sub>O溶液でNaOH中和する ことにより調製した後、塩化物とナトリウムを除去するために、脱イオン水で繰り返しの洗濯に続 いてした。原液の最終Fe (III) の濃度は0。4 Mでしたが、メディアでは40 mm最後のFe (III) の濃 度であった。  $Sr^{2+}$  (330µMまたは200µM) およびCs<sup>+</sup>が (100µM) を選択されたサンプルにそれぞ れ加えた。

Table 1. Medium composition for iron-reduction reaction				
	Iron-reduction reaction			
Components	Bicabonated-	PIPES-	MOPS -	
	buffered	buffered	buffered	
NaHCO <sub>3</sub>	2.52			
NH <sub>4</sub> Cl	0.235	1	0.5	
KH₂PO₄	0.068	0.08	0.2	
NaCl		1	1	
KCI		0.1	0.5	
CaCl <sub>2</sub> . 2H <sub>2</sub> O		0.06		
SL-10 solution	1 ml	1 ml	1 ml	
Se-W solution	1 ml	1 ml	1 ml	
PIPES/MOPS		30 or 10mM	20 mM	
Headspace	$N_2 : CO_2 (80 : 20)$	N <sub>2</sub> (100%)	N <sub>2</sub> (100%)	
100 X Vitamine	200 µl	200 μl	200 µl	
Ti(III)-NTA	200 µl	200 μl	200 µl	
Na lactate	20 mM	20 mM	20 mM	
Hydrous Ferric Oxide	40 mM	40 mM	40 mM	
AQDS	100 µM or No	100 µM orNo	No	
Glass beads	3 g or No	No	No	
Sr	330 µM	200 µM	330 µM	
Cs	100 µM	No	100 µM	

# 表(1)-2 鉄還元反応のための培地組成

# c. 化学反応によって生成されたフェライトへの Cs と Sr の取り込み

鉄フェライトは0。25 Mの100ミリリットルの硫酸第一鉄溶液と100ミリリットルの0.5M塩化第二 鉄溶液を混ぜて、pH 10.5の値に到達するまで0.5MのNaOHを加えることにより激しく攪拌しながら 共沈することにより調製した。フェライト生成する同時にSrとCsの取り込みのために、1.43gの Sr(NO<sub>3</sub>)2または1.25gのCsClをFe(III)の溶液に加えた。生成された鉱物沈澱は、80℃の水浴中で30分 間加熱した。液体および鉱物沈澱中のSrとCsの濃度はフェライト形成の前後でICPて分析した。

Metal fraction		Extractant	Mobility
F1.	Watesoluble	Deionizedwater for 1 h	High.
F2.	Exchangeable	1 M MgCi₂pH 7 for 1 h	High.Changes in major cation compositions
F3.	Carbonatebound	1 M NaOAdHOAc, pH 5 for 6 h	Medium.
F4.	Fe-Mn oxides bound	NH <sub>2</sub> OH.HCIHOAc in acetic acid 25% v/y shaking for 6 h	Medium.Changes irredox conditions may cause a releas
F5.	Organicallybound	0.02M HNQJ/ 30% H2O2 85ºC for 6 h	Medium/highWith time, decomposition/oxidation of organic matter occurs
F6. fixed	Residuabf metals I in crystalline phase	1:5 mixture oHClO₄/HNO₃	Low.Onlyavailable after weathering or decomposition

表(1)-3 逐次抽出法と一般的な分類的目安

# d. 異なる吸着剤による Cs と Sr を吸着

酸化マンガン、フミン酸、水溶性多糖類と粘土材料(ベントナイトやゼオライト)は、SrとCs の吸着する能力をテストするために選ばれた。100µMのSr(NO<sub>3</sub>)2または100µMのCsClは、それぞれ の吸着剤(0。08g)を含む40mlの水に添加した。培養条件は、125 rpmの速度で振って下で行った。 サンプルは培養開始1時間、1、2、3日後に採取した。

## e. 逐次抽出法

微生物や化学反応によって生成されたSrを含む鉱物沈澱またはSrを吸着させたベントナイトを 80℃の空気オーブン中で乾燥させて、乳鉢で粉砕し、ホモジナイズし、必要になるまで4℃で保存 した。Srの逐次抽出はテッシェらの示されたように行った(1979年)。簡単に説明すると、試料0.5g は、次の順序で抽出した: (1) 水溶性Sr溶出のため、4ミリリットルの純水; (2) 交換可能なSr 溶出のために、1 Mの塩化マグネシウム溶液(pH7.0); (3) 炭酸結合のSr溶出のため、4ミリリッ トル1 M酢酸ナトリウム(酢酸によりpH調整5); (4) Fe-Mn結合のSr溶出のため、4ミリリットル 0.04 M NH<sub>2</sub>OH<sub>4</sub>, HCl(酢酸で25% v/v); (5) 有機的に結合したSrについて0.02M硝酸3mlと5ミ リリットル硝酸でpH2に調整の30%H<sub>2</sub>O<sub>2</sub>(6) 結晶相に固定されているSr 溶出のために、5:1の HNO<sub>3</sub>-HClO<sub>4</sub>の混合物。各部分の溶解性および生物有効性を表(1)-3に示した。

### f. 化学物質と鉱物組成分析

この研究ではすべてのSr分析はICP発光分光分析法により行った、分析不確実性はおよそ±3%で ある。すべてのCS分析は、硝酸ジピコリン酸溶離液と陽イオンカラムMetrosep C4-150/4装備して いったイオンクロマトグラフィーによって行われた。酸化還元電位(Eh)とpHの値は、細菌培養 実験の終わり、pHとEh電極を用いて嫌気チャンバー内で部屋の温度で測定した。形成された鉱物 の形態と鉱物組成分析のために、選択したサンプルは、培養後20日目に注射器で培養ボトルから回 収し、7000×gで10分間遠心分離して、嫌気性滅菌水で3回洗浄した。洗浄された鉱物は嫌気チャン バー内の嫌気的条件下で乾燥させた。 X線回折分析(XRD)を沈殿物または形質転換相の鉱物組 成を決定するために使用されていました。エネルギー分散型X線分析装置(EDS)と電子顕微鏡 (SEM)を、鉄(III)還元細菌によって析出沈殿の形態分析のために使用した。

# (5) 微生物鉱物化技術の開発-放射性セシウムを用いた試験

# 1) 粘土鉱物の構造による<sup>137</sup>Csの吸着・脱離特性の違い

#### a. 目的

2:1型層状ケイ酸塩鉱物は、土壌中でのセシウムの強固な吸着サイトとして機能する。セシウムの粘土鉱物への吸着(固定)により、セシウムは容易に土壌溶液中に再分配されにくくなるため、 植物へ移行しにくい形態に変化すると考えられる。

本実験では、放射性セシウムの吸着剤としてvermiculite(製造元が異なる2種類)、bentonite(交換性陽イオンがCa<sup>+</sup>のものとNa<sup>+</sup>のもの、交換性陽イオンの表記がないものの3種類)、zeolite(有効細孔径が4Åと9Åのもの2種)、Kaolin(1種類)、現地土壌(汚染されていない深層土)を用いて、これらの吸着剤の<sup>137</sup>Csに対する吸着率と脱離率を比較し、放射性セシウムの吸着剤としての 有用性を検討した。

#### **b.** 試料と方法

まず、吸着剤をガラス瓶内に秤量し、ガラス瓶に<sup>137</sup>Cs溶液(14300 Bq L<sup>-1</sup>)を10 ml入れた。そし て3日間、室温(18~22℃)で静置し、添加した<sup>137</sup>Csを吸着させた。静置後に、ガラス瓶内の上澄 み液を遠心管に移して遠心分離(5000rpm 20min、3400G)し、その上澄み液をNaIシンチレーショ ン検出器で測定した。<sup>137</sup>Csの吸着率は、<sup>137</sup>Cs溶液の初期濃度(14300 Bq L<sup>-1</sup>)から培養後の上澄み 液の<sup>137</sup>Cs濃度を差し引いた減少率とした。

<sup>137</sup>Csの脱離率は、まず、吸着率の測定用の上澄み液を分取した後の遠心管内の残渣に、1Mの酢酸アンモニウム溶液10mlを混合し、18時間反復振とうした後、上澄み液を遠心分離により採取しNaIシンチレーション検出器で測定した。<sup>137</sup>Cs脱離率は、ガラス瓶内の<sup>137</sup>Csの総量に対するアンモニアで抽出された<sup>137</sup>Cs量の割合をとした。

なお、実験を2回に分けて行ったため、<sup>137</sup>Cs溶液を調製する際の<sup>137</sup>Csの母液(370MBq 0.15ml<sup>-1</sup>) を1µ1秤量する段階での誤差により、2回目の実験(実験2)では<sup>137</sup>Cs溶液の初期濃度が12900Bq L<sup>-1</sup> となった点と、培養温度を後述する微生物鉄還元反応の実験に合わせて30℃とした点が1回目の実 験と異なる。 表(1)-4 <sup>137</sup>Csの吸着・脱離実験に使用した吸着剤の種類と使用量、実験系における固液比

実験1				
adsorbent material	manufacturer	weight (g)	liquid ammounut (ml)	liquid/solid ratios
vermiculite	unknown	0.1	10	100
		0.2	10	60
		0.3	10	33
bentonite	Wako Chemical	0.1	10	100
		0.5	10	20
		1.0	10	10
zeoliteF-9 (9Å)	тозон	0.1	10	100
		0.5	10	20
		1.0	10	10
zeoliteF-4 (4Å)	тозон	0.1	10	100
. ,		0.5	10	20
		1.0	10	10
paddy soil	Fukushima soil	0.1	10	125
	(non-contaminated deep layer soil)	0.4	10	30
		0.7	10	15

Initial conc. of <sup>137</sup>Cs = 14300 Bq L<sup>-1</sup>

incubation temperature = 18-22°C (room temperature)

# 実験2

adsorbent material	manufacturer	weight (g)	liquid ammounut (ml)	liquid/solid ratios
vermiculite	Hirota shop	0.1	10	100
		0.5	10	20
		1	10	10
Na-bentonite	kunimine indutries co.	0.1	10	100
		0.3	10	33
		0.5	10	20
Ca-bentonite	kunimine indutries co.	0.1	10	100
		0.5	10	20
		1	10	10
kaoline	Wako Chemical	0.1	10	100
		0.5	10	20
		1	10	10

Initial conc. of <sup>137</sup>Cs = 12900 Bq L<sup>-1</sup> incubation temperature = 30°C

# 2) 鉄還元細菌(Geobacter)の代謝産物を用いた放射性セシウムの生物利用性抑制効果

# a. 目的

放射性セシウムの生物利用性を抑制するには、セシウムイオンを土壌溶液中に再分配されない吸 着形態で吸着させることが重要である。これまで、2:1型のケイ酸塩鉱物の層間のケイ酸シートに 存在するくぼみ(Siloxane Ditrigonal Cavity: SDC)にセシウムイオンが達すると、セシウムは容易 に再分配されにくい生物的に不活性な状態で固定されることが知られている。

本実験は、セシウムイオンの吸着状態にあるケイ酸塩鉱物を鉄還元菌(Geobacter)の代謝産物 で被覆(包埋)することで、表面吸着している状態の放射性セシウムを土壌溶液中に再分配されに くい擬似的固定化状態にできるかを検討した。

# **b.** 試料と方法

鉄還元菌の培養は、図(1)-2に示す3種類の培地条件で行った。



# 3) 鉄還元細菌(Geobacter AY)の培地における粘土鉱物の結晶構造解析

# a. 目的

2)の実験のGeobacter生育培地中の粘土鉱物(現地非汚染土壌、bentonite、vermiculite、kaolin)の 結晶構造を走査型電子顕微鏡(SEM)で観察し、その表面組成(Si、Fe)を定性分析した。

# b. 試料と方法

AY培地に粘土鉱物を0.5g(AY培地のvermiculiteのみ0.05g)入れて、オキシ水酸化鉄(FeOOH) を添加し、Geobacterを植え付け2週間、30℃で嫌気培養した。これらの培地中の粘土鉱物の表面結 晶構造を走査型電子顕微鏡で観察(×900)し、その表面組成(Si、Fe)をエネルギー分散型X線分 析装置(Energy Dispersive Spectroscopy, EDS)により定性面分析(デシタルマッピング)した。な お、粘土鉱物試料は、培養後に40℃で恒量になるまで乾燥した。また、X線回折による培地内の生 成鉄鉱物の測定も行った。

### (6) イネポット試験における放射性セシウム移行抑制評価

表層土の剥ぎ取りなどによる土壌からセシウム除去は空間線量も下げることができるため、高濃 度に放射能によって汚染された農地などには効果的であるといえる。しかしながら表層の剥ぎ取り 方法は多くの放射性廃棄土を生み出してしまう。また農地の表層土を剥ぎ取ってしまうため、農地 の肥沃度を低下させてしまう恐れがあるため、比較的に放射能の汚染レベルが低い、避難指示解除 準備区域などの農地に対してはあまり効率的な方法であるといえない。本研究では、水田土着の微 生物による鉄還元反応を利用し、放射性セシウムに関し、鉄の粘土鉱物との鉱物化によるイネへの 移行吸収に対する抑制効果を検証することを目的とした。

#### 1) イネポット試験による放射性セシウム移行抑制評価

#### a. 土壤試料

ポット試験では2種類の放射線汚染土壌を用いた。灰色低地土は水田の表層土から異なる深さで 採取された。黒ボク土は0-3cmの表層土を農地から採取した。採取した土は4mmのふるいで小石と 草の根等を取り除き、放射線濃度を均一にするために良く撹拌された。灰色低地土(0-3cm)の<sup>134</sup>Cs と<sup>137</sup>Csの合計濃度は40,300(±1,260)Bq/kg、黒ボク土の<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの合計濃度は15,500(±430)Bq/kg であった。灰色低地土の粘土、シルト、砂の割合はそれぞれ13.1%、15%、71.3%であり、砂壌土に 分類された。XRDより主要な粘土鉱物はハロイサイトであるとされた。含水率は20%、pHは7.6、 電気伝導度は0.06mS/cmであった。黒ボク土の含水比は21%、pHは6.9、電気伝導度は0.17mS/cmで あった。

### b. 粘土、鉄による土壌処理

(ポット試験1,2,3での条件) 粘土は2:1型ケイ酸塩粘土鉱物である、ベントナイト(10g:和光純薬工業株式会社、大阪)とバーミキュライト(10g:商業用バーミキュライト、会社名不明)を 土壌に添加した。鉄はヘマタイト(10g:関東化学株式会社、東京)とオキシ水酸化鉄(10g)を土 壌に添加した。オキシ水酸化鉄は1Mの塩化第二鉄と3Mの水酸化ナトリウムより生成し、沈殿し たオキシ水酸化鉄は蒸留水でpHが10.0、電気伝導度(EC)が0.06mS/cmになるまで洗浄を行った。

(ポット試験4,5での条件) 粘土は2:1型ケイ酸塩粘土鉱物である、ベントナイト(10g:クニボ ンド、クニミネ工業株式会社、大阪)とバーミキュライト(10g:土壌改良資材 バーミキュライ ト、廣田商店、栃木)を土壌に添加した。鉄はヘマタイトとオキシ水酸化鉄を用いた。オキシ水酸 化鉄は37%塩化第二鉄溶液(27mL:アサカ理研、福島)を土壌に加え、炭酸ナトリウム(17g:和 光純薬工業株式会社、大阪)でpH6まで中和し生成した。その後水道水で土壌をECが1.5mS/cmに なるまで洗浄し、炭酸苦土石灰(5.6g:炭酸苦土石灰、株式会社ライム、栃木)を中和のために加 え、処理前の土壌を微生物源として10g(湿重量)加えた。

# i. 施肥

(ポット試験1,2,3での条件) 元肥としてくみあい被覆尿素入り苦土安複合7・555(コープケミカル株式会社、東京、N:P:K=15:15:15)を田植え時に1ポット当たり0.4g(ポット試験1)もしくは0.8g (ポット試験1,2)添加した。ポット試験1では追肥としてくみあい窒素加里化成C6号(セントラル 化成株式会社、山口県、N:P:K=17:0:17)を1ポットあたり0.1g田植えから1ヶ月後に添加した。

(ポット試験4,5での条件) 元肥として良質米専用372号(ジェイ・ティ・エフ、兵庫、N:P:K= 15:17:12)を1ポット当たり0.85g、ケイ酸質肥料として稲穂ケイカル(鹿島ケイ酸株式会社、茨城) を1ポット当たり1.7g田植え時に添加した。

# ii. その他の添加物

ポット試験2、3では電子供与体として酢酸ナトリウム(シグマ アルドリッチ ジャパン 株式 会社、東京)を10g、粘土と鉄の添加と一緒に添加した。

# iii. 栽培条件

水稲用培養土でヒトメボレ(ポット試験1、2)またはアキタコマチ(ポット試験3、4、5)を14 日間栽培後、本試験用のポットにあらかじめ土壌を800g(乾燥重量)しておき田植えを行った。イネ はガラス室、人工気象機Aもしくは人工気象機Bにおいて栽培された。ガラス室は平均気温が27.3℃、 日射量の不足と十分な日射時間を確保するために植物育成用ランプを導入し、日射時間が15時間に なるようにランプを点灯させ、光合成有効放射量(PAR)は219.8µmol/m<sup>2</sup>/sであった。人工気象機A、 Bは温度を30℃に設定し、ランプの点灯時間は15時間になるように設定された。PARは人工気象機 Aで231.3µmol/m<sup>2</sup>/s、人工気象機Bで773.9µmol/m<sup>2</sup>/sであった。また水位を常に1-2cm程度維持できる ように水やりを行った。またそれぞれのポットは光の当たり方を一定にするためにランダムに毎日 位置を変えた。

	コントロール	洗浄土	鉄	粘土	その他	品種
ポット 1		-	ヘマタイト (1%=10g)	ベントナイト (1%=10g)	-	ひとめぼれ
ポット 2	← 2 灰色低地土 (0-3cm) 40300Bq/kg	-	オキシ水酸化鉄(1%=10g)	ベントナイト (1%=10g) バーミキュライト (1%=10g)	酢酸ナトリ ウム (1%=10g)	ひとめぼれ
ポット 3		洗浄処理 1 <sup>*</sup> (灰色低地土(0-3cm)) 26100Bq/kg	-	バーミキュライト (1%=10g)	-	ひとめぼれ
ポット 4	黒ボク土(0-3cm) 15500Bq/kg	洗浄処理 2 <sup>**</sup> (黒ボク土(0-3cm)) 5900Bq/kg	ヘマタイト(1%=10g)	ベントナイト (1%=10g)	-	あきたこまち
ポット 5	灰色低地土(0-5cm) 16000Bq/kg	洗浄処理 2 <sup>**</sup> (灰色低地土(0-5cm)) 14300Bq/kg	塩化第二鉄 (1%=10g)	ハーミイユ クイト (1%=10g)	-	あきたこまち
現地試験	灰色低地土 (0-20cm) 9600Bq/kg	洗浄処理 2 <sup>**</sup> (灰色低地土(0-20cm)) 7100Bq/kg	ヘマタイト (1%=2kg) 塩化第二鉄 (1%=2kg)	ベントナイト (1%=2kg) バーミキュライト (1%=2kg)	-	あきたこまち

表(1)-5 用いた資材一覧

\*洗浄処理1:土壌は固液比1:0.9でナノバブル水によって洗浄した。ナノバブル水は0.1N硫酸でpH4.8-5.2に調整され、さらにクエン酸で2.8-3.0に調整した。土壌中の放射性セシウムは 土壌の分級洗浄処理によって小さい粒子と一緒に取り除いた。洗浄土は専修石巻大学の高 崎教授より頂いた。

\*\*洗浄処理2:ナノバブル水は市販の漂白剤によってpH8.52に調整し、さらに市販の重層によってpH9.1-9.2に調整した後、洗浄処理1と同様に土壌の洗浄処理に使用した。

\*\*\*ポット試験1,2は平成24年度実施したもの。平成25年度に再整理したため併記。

表(1)-6 実験条件一覧

	コントロール	処理 A	処理 B	処理 C
ポット 1		ベントナイト添加	鉄添加	鉄、ベントナイト添加
ポット 2	灰色低地土(0-3cm)	処理 D* (処理 Cと同処理)	処理 E	処理 F
		鉄, ベントナイト添加	鉄, ベントナイト, 酢酸ナト リウム添加	鉄, バーミキュライト, 酢 酸ナトリウム添加
		処理 G	処理 H	-
ポット 3		洗浄土	洗浄土に鉄, バーミキュラ イト, 酢酸ナトリウム添加	_
+">>> 1 **	里ボクナ(0-3cm)	鉄·粘土処理	洗浄処理	洗浄土+鉄·粘土処理
ጥ ማ ዮ 4				
ポット 5**	灰色低地土(0-5cm)	수사 까누구 가고 하고	<b>光法上</b>	ᄽᄷᆂᇆᇱᆘᅶᅚᇷ
現地試験	灰色低地土(0-20cm)	➡	, 洗净工	沈冲工Ⅰ~鉄•柏工添加

\*処理Cと処理Dは同じ処理方法である。

\*\*ポット試験4とポット試験5は現地試験と同様の土壌処理方法を用いた

\*\*\*ポット試験1,2は平成24年度実施したもの。平成25年度に再データ整理したため併記した。

iv. 刈り取り

栽培から1ヶ月後(ポット試験1、2、3、4、5)もしくは2ヶ月後(ポット試験1)に地上から約1cmの 地点で刈り取り、測定用の試料とした。

# v. 放射性セシウム濃度の測定

ポットへの田植えから1ヶ月後もしくは2ヶ月後(ポット試験1)にイネを地面から約1cmの部分 で刈り取り、80℃で24時間乾燥させ、その後粒状にしNaIシンチレーションカウンター(オートウ ェルガンマシステム AccuFLEXγ ARC-7001、ALOKA、東京)で測定時間2時間として稲体のセ シウム濃度を測定した。

# (7) 現地イネ栽培試験による放射性セシウム移行抑制評価



図(1)-3 現地試験の各条件 の区面、A: コントロール、 B: 鉄+粘土、C.洗浄土、 D.洗浄土+鉄+粘土

# 1) 各区画条件

1件区は1.8m×1.8mとし、他処理土壌との混合を避けるために木枠で囲いそれぞれの区画は1.2m

ずつ間隔をあけて配置した。実験区全体は獣害を防ぐために電気柵によって囲った。

# 2) 方法

各区には54株(5幼植物を1株として田植え)のイネを18cm、30cm間隔で2013年6月16日に田植え を行った。河川水を木材チップで濾過したものを灌漑水として使用し、各区画にパイプで供給した。 栽培期間中(2013年6月から10月)の降水量と気温を表(1)-7に示す。栽培期間の飯舘村の平均気温 は25℃であった。光合成有効放射量は8月の平均で2100µmol/m<sup>2</sup>/sであり、各条件区によって光合成 有効放射量の違いはみられなかった。

<b>表</b> (1)-7飯舘村の降水量と気温	
--------------------------	--

	月合計降水量 (mm)	日平均気温(℃)	日最高気温 (℃)	日最低気温 (℃)
2013年6月	74.5	17.6	23.8	12.1
2013年7月	203.0	21.2	26.4	17.7
2013年8月	120.0	23.1	29.8	17.7
2013年9月	181.5	18.5	24.8	13.1
2013年10月	241.0	14.0	18.8	9.7

(出典:気象庁ホームページより

http://www.data.jma.go.jp/obd/stats/etrn/view/monthly\_a1.php?prec\_no=36&block\_no=1130 &year=2013&month=&day=&view=)

## 3) 現地土壤処理

土壌約200kg当たりに、ベントナイト(2kg:クニボンド、クニミネ工業株式会社、大阪)とバー ミキュライト(2kg:土壌改良資材 バーミキュライト、廣田商店、栃木)を土壌に添加した。鉄 はヘマタイトとオキシ水酸化鉄を用いた。オキシ水酸化鉄は37%塩化第二鉄溶液(6L:アサカ理 研、福島)を土壌に加え、炭酸ナトリウム(2000g:和光純薬工業株式会社、大阪)でpH6まで中 和し生成した。その後河川水で土壌をECが1.5mS/cmになるまで洗浄し、炭酸苦土石灰(0.3g:炭 酸苦土石灰、株式会社ライム、栃木)を中和のために加え、処理前の土壌を微生物源として2kg(湿 重量)加え10日間静置後、木枠で囲われた区画に戻され、下層土(15-20cm)と良く混ぜた。



図(1)-4 現地野外試験(福島県飯舘 村) 稲作試験

# 4) 施肥

元肥として良質米専用372号(ジェイ・ティ・エフ、兵庫、N:P:K=15:17:12)を1区画当たり0.17kg、 ケイ酸質肥料として稲穂ケイカル(鹿島ケイ酸株式会社、茨城)を1区画当たり0.34kgとなるよう に0-5cmの土壌を前述の処理のために剥ぎ取られた水田に添加した。



図(1)-5 現地野外稲作試験(福島県飯舘 村)での収穫

# 5) 刈り取りと放射性セシウム濃度測定

田植えから約4ヶ月後に地上から約10cmの地点でイネを刈り取り、2日間天日で乾燥させた。その後穂の部分を切り取り、穂から籾米を取り除き、籾米は籾摺り機で籾殻と玄米に分けられた。根はイネ株を中心として17cm四方、深さ10cmで土ごと採取し、河川水で土を洗い落とし根を採取した。放射性セシウム測定用のイネは各区画の外縁部のイネを除いた箇所のイネを使用した。

茎と葉は80℃で24時間乾燥後に粒状にしNaIシンチレーションカウンター(オートウェルガンマ システム、AccuFLEXγ、ARC-7001、ALOKA、東京)で測定時間2時間として稲体のセシウム濃度 を測定した。籾米、玄米、籾殻は同様に80℃で24時間乾燥後に測定時間24時間としてセシウム濃度 を測定した。

### 6) 現地試験土壌の逐次抽出

現地試験土壌を栽培後に採取して、逐次抽出を行って放射性セシウムの形態を推定した。また、 処理の効果をSEMとEDSで観察した。

# 7) カリ・リン酸の分析

現地土壌および稲体のカリ分析および有効態リン酸の濃度を常法により測定した。

#### (8) 開発技術のコスト評価

ここで開発を進めている技術のコストを、既存技術とともに調べて評価した。除染シナリオについては、既存及び新規除染技術の方法や土壌中のセシウム濃度の初期値や除染完了値を設定し求めた。

#### 1) 現地測定での知見

福島県相馬郡飯舘村佐須での6月5日~18日、7月30日~8月4日、10月6日~11日にわたる実証試験

で得られた知見をシナリオの設定において考慮した。

### a. 空間線量率

8月と10月に佐須の実証試験の水田(7m×19m)の中心と4隅の地上1mの空間線量率を、NaIシン チレーションサーベイメーターを使用して測定した。その結果、湛水下の場合(8月)と落水下の 場合(10月)とでは空間線量率に差がほとんど見られなかった。そのため、湛水による放射線の遮 蔽効果はないものとした。

# b. 空間線量

平成25年10月に農林水産省の農地除染の実証試験が行われた福島県相馬郡飯舘村草野向押で、除 染が行われた水田とその周辺の計78カ所の地上1mの空間線量率を、NaIシンチレーションサーベイ メーターを使用して測定した。その結果、除染が行われた水田(0.55µSv/h)から2m離れた未除染 の土手(1.3µSv/h)では空間線量率が2倍以上高い値を示した。そのため、水田を除染しても住宅 等の生活空間の空間線量率は減少させられないとした。

# 2) 初期値と除染完了値

土壌のセシウム濃度(表層から15cmの平均)において、5000Bq/kgと10000Bq/kgの2パターンの 初期値を設定した。これらは、既存のすべての除染技術が適用できる土壌のセシウム濃度の極小値 と極大値である。また、除染の完了値を土壌のセシウム濃度1000Bq/kg以下に設定し、すべての除 染技術において初期値が除染完了値(施工前後での低減率は初期値5000Bq/kgの場合80%、初期値 10000Bq/kgの場合90%が必要となる)に達するまで除染を行うとした。

各除染技術の除染完了値の達成までの過程を以下に示す。

- 技術A. 表土剥ぎ取り:この技術では、剥ぎ取り厚さを増大させることで低減率を高くすること ができる。また、剥ぎ取り厚さ3cmの場合、土壌のセシウム濃度の低減率は施工前の土 壌のセシウム濃度に依存せず86%~90%とほぼ一定である(農林水産省,2013)。この ことから、初期値5000及び10000Bq/kgの場合、剥ぎ取り厚さを各々3cm、5cmとし表 土剥ぎ取りを行うことで完了値に達するとした。
- 技術B. 水による土壌攪拌・除去:この技術では、繰り返し複数回実施することで低減率を上げ ることが可能である。農水省の実証試験の結果から、低減率と施工前の土壌のセシウム 濃度には相関があると仮定し、初期値 5000 及び 10000Bq/kgの場合、各々13、16 回の実 施で完了値に達するとした。細粒子の排出量も低減率に依存すると仮定し、廃棄土壌量 を算出した。
- 技術C. 反転耕:この技術では表層土と仮想土を反転させ、放射性セシウムを地中に隔離するこ とで土壌中のセシウム濃度を低減させる。ほかの除染技術と比較すると除染による土壌 のセシウム濃度の低減率は低く、農水省の実証試験の結果から低減率を56.9%とした。 このため、反転耕実施後、客土を行うことで除染完了値まで低減させた。客土は汚染濃 度を希釈低減する工法であり、客土量を客土混入率と土壌のセシウム濃度の間にある負 の比例関係(農林水産省,2013)から求めた。
- 技術D. 固定化・洗浄処理(本開発技術):この技術は剥ぎ取った表層 5cm のみを洗浄し、除染 する技術である。このため表層から15cmの土壌のセシウム濃度の低減率を求めるため、

初期値別の仮想土壌モデルを使用した。仮想土壌モデルを、地区別指数関数モデル(農 林水産省,2013)の深度15cmの平均値と各層(1cmごと)のセシウム濃度の比を初期 値に乗じることで作成した。剥ぎ取り洗浄を行った土壌の低減率を80%とし洗浄土をほ 場に戻すと、表層から15cmのセシウム濃度の平均が初期値5000及び10000Bq/kgの場合、 低減率は各々78.7、73.4%となった。その後、除染完了値に達するまで客土を行うこと で除染完了とした。以下の表-2.2.2 に新規及び既存の除染技術の工程を示す。表中の、 除染技術A、B、C、Dは各々、表土剥ぎ取り、水による土壌攪拌・除去、反転耕、固定 化・洗浄処理を示す。

表(1)-8各除染技術の工程

除染技術	技術A	技術B	技術C	技術D
除草注1	実施	実施	実施	実施
-4.54	<ul> <li>・不陸整正</li> <li>・固化剤散布</li> <li>・表土剥ぎ取り</li> </ul>	<ul> <li>・導水路設置</li> <li>・土壌攪拌</li> <li>・濁水処理</li> </ul>	<ul><li>・反転耕</li><li>・整地</li></ul>	<ul> <li>・表土剥ぎ取り</li> <li>・高機能水による</li> <li>洗浄</li> </ul>
除染	•除去土壤搬出	<ul> <li>・沈殿土壌の固化</li> <li>・固化土壌の搬出</li> </ul>		<ul> <li>・濁水沈殿</li> <li>・洗浄水のろ過</li> <li>・土壌の埋め戻し</li> <li>・固定化処理</li> </ul>
客土	なし	なし	実施	実施
廃棄土処理	除草分 <sup>注2</sup> と除染分 <sub>注3</sub>	除草分と除染分	除草分のみ	除草分と除染分

注1:除染される水田は休耕田であるとし、機械による除草を行う

注2:除草に伴い発生する放射性セシウムに汚染された草木類の処理

注3:除染に伴い発生する放射性セシウムに汚染された土壌の処理

### 3) 除染コストの計算

初めに、除染に投入される1)人工、2)エネルギー、3)物質、4)機械の数量をコストに換算する。 既存の除染技術については、農林水産省の農地除染対策の技術書(第3編 積算編)実績歩掛(農 林水産省,2013)に基づき算出した。固定化・洗浄処理については、上述の既存の除染技術の実績 歩掛と今年度行った福島県飯舘村相馬郡での実証試験を参考に歩掛を作成した。

- A工:(労務単価+特別手当)×作業日数により、コストに換算した。労務単価には公共工事の工事費の積算に用いられる国土交通省の平成25年度公共工事設計労務単価(国土交通省,2013)での福島県の値を使用した。なお、時間外の割増賃金や現場管理費(法定福利費の事業主負担額、研修訓練に要する費用等)については対象外とした。また、福島県の除染作業では特別手当として日当1万円が支給されていることを考慮した。
- b. エネルギー:エネルギーの店頭販売価格×使用エネルギー量により、コストに換算した。店 頭販売価格としては、平成25年10月28日の福島県内での軽油、レギュラーの価格を使用し た(ガソリン・軽油価格情報 NAVI: http://oil-stat.com/)。除染に用いられる水の供給源を上 水道とした。福島県福島市水道局の水道料金を参考に、50m<sup>3</sup>を超えた場合の1m<sup>3</sup>当たりの価 格を単位価格とした(265.65円/m<sup>3</sup>)。
- c. 物質:単位販売価格×使用量により、コストに換算した。販売価格には Web での検索値を使 用した。

- d. 機械:建設機械損料(または減価償却費)×使用時間により、コストに換算した。建設機械 損料を国土交通省制定の建設機械損料表から決定した。この表には建設業者が所有する建設 機械等の償却費、維持修理費、管理費等のライフサイクルコストが1時間当たり又は1日 当たりの金額として表示されている。損料表に記載されていない機械(トラクターのような 農用機械)については、購入価格を耐用年数・年間使用日数・1日の使用時間の積で除した ものを減価償却費とし算出した。なお、耐用年数には国税庁が機械ごとに定める値を使用し、 年間使用日数を100(日/年)、1日の使用時間を5(時間/日)と設定した。
- e. その他:除染技術のコストとして、除草用、客土用、廃棄物及び廃棄土処理用のコストも考慮した。現在稲作が行われていない休耕田に対して除染を実施するため、すべての除染技術において除染前に除草を行うとした。客土用のコストを反転耕と固定化・洗浄処理において考慮した。廃棄物及び廃棄土処理用コストを仮置き場や中間貯蔵施設の建設・維持管理コストや中間管理施設までの運搬費(保高、内藤, 2013)から算出し、すべての技術において加味した。

# 4. 結果及び考察

- (1)対象とした飯舘村佐須地区の水
   田土壌の理化学性と放射性セシウム
   (<sup>137</sup>Cs)汚染の調査
- 1) 飯舘村佐須地区水田土壌の理化学
   性
- a. 三相分布

図(1)-6 三相分布図

b. 水分特性曲線





図(1)-7 水分特性曲線

# c. 透水係数

透水係数は深い土層になると相対的に減少したが、40から50cmの間で増加した。

Soil depth	Average Hydraulic Conductivity (cm/s)
0-10 cm	1.81E-02
10-20 cm	1.48E-05
20-30 cm	2.49E-04
30-40 cm	1.77E-05
40-50 cm	1.49E-02

表(1)-9 佐須地区土壌の深さごとの透水係数

# d. 土壤粒径分布

表(1)-10に粒径組成および土性区分を示す。粘土分は採取深度が大きくなるにつれて、減少した。 作土層土、盤層土は砂壌土に分類され、下層土は砂土に分類された。図(1)-8に作土層土と盤層土を 分級して得られた粘土のX線回折パターンを示す。作土層土と盤層土のパターンは類似のパターン であり、既存のpdfデータと比較するとハロサイト系の鉱物と石英が混在していると考えられる。 一方、図(1)-9と10に作土層土の細砂の黄金色の部分をX線回折分析した結果を示す。細砂の方がピ ーク強度が高く、結晶性が高いが、ピーク位置は同様の場所に存在しており、粘土と同じくハロサ イト系の鉱物と石英が混在していると考えられた。表(1)-11に佐須土壌に含まれる粘土鉱物をまと めた。

盤層土 下層土 作土層土 13.1 12.3 3.3 粘土,% 21.9 15.0 11.5 シルト,% 28.0 35.3 30.3 細砂,% 43.3 37.6 36.6 粗砂,% 0.6 3.3 7.9 溶解損失,% 砂壤土 土性区分\* 砂壤土 砂土

表(1)-10 粒径組成および土性区分

\*土壤環境分析法編集委員会編「土壤環境分析法」博友社(1997), p. 25, 図II-3に基づく区分



図(1)-8 作土層の粘土成分のSEM図



図(1)-9 XRD分析結果

(a)作土層土と(b)盤層土の粘土のXRDパターン、および (c)Halloysite-7A、(d) Halloysite-10A、(e)Nacrite-1Md、(f)Quartzのpdfデータ



図(1)-10 XRD分析結果

作土層土の(a)細砂と(b)粘土のXRDパターン、および

(c)Halloysite-7A、(d) Halloysite-10A、(e)Nacrite-1Md、(f)Quartzのpdf $\vec{r} - \beta$ 

鉱物名	化学式	構造等
Halloysite-7A	$Al_2Si_2O_5(OH)_4$	二層構造(1:1型)
Halloysite-10A	$\begin{array}{c} \text{Al}_{2} \text{Si}_{2} \text{O}_{5} \text{(OH)} \\ \text{2H}_{2} \text{O} \end{array}$	二層構造(1:1型)
Nacrite-1Md	$Al_2Si_2O_5(OH)_4$	二層構造(1:1型)

表(1)-11 佐須土壌に含まれる粘土鉱物

佐須土壌の粒径分布を調べた結果、粘土分は3-13%程度であり、採取深度が深くなるにつれて、 減少した。粘土、シルト、砂の3成分の含有率より、作土層土と盤層土は砂壌土に分類され、下層 土は砂土に分類された。粘土のX線回折結果より、粘土鉱物としてハロサイト系の鉱物が存在して いることが確認された。 土壌のpHは5.00~5.62での間であった。土壌の電気伝導度は、0.09-0.23 mS/cmの間にあった。土 壌は弱酸性条件であると判断された。

# 2) 放射性セシウム (<sup>137</sup>Cs) 汚染の調査

土壌断面から現地水田土壌は、土壌深度0~30cm層程度まで作土層が形成されており、土壌深度 30~40cm層に黒色の耕盤層がみられた。また、土壌深度40cm以深の下層土では、直径5cm程度の 石が混在する黒色層となり、この層は対象水田で稲作が行われる以前に沼沢地であった頃に堆積し た層であることが水田所有者への聞き取り調査から推定された。

放射性セシウム汚染は、<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの両方で起こっているが、<sup>134</sup>Csの半減期が短く研究期間の 間に変化してしまうことから、ここでは<sup>137</sup>Csのみ測定した。水田表層土(10cm)の<sup>137</sup>Cs濃度は,4100 から12200 Bq kg<sup>-1</sup>(6940±2930)であった。一方,<sup>137</sup>Cs濃度の鉛直分布では,土壤深度0-3cmの極表 層で20000 Bq kg<sup>-1</sup>以上の高い値が測定された(図(1)-11)。それに対して10cm以深の土壤深度にお ける<sup>137</sup>Cs濃度は,深い土壤層(2012年4月38~40cm層95 Bq kg<sup>-1</sup>,9月40~50cm層79 Bq kg<sup>-1</sup>,10月60cm 層付近51 Bq kg<sup>-1</sup>)で表層土の1%程度の小さなピークが見られたのを除いて,検出限界以下かその 付近の極めて低い値であった。よって,福島第一原発事故によりフォールアウトした放射性セシウ ムの大部分は、土壌表層部で土壌粒子に強く吸着(固定)されていると考えられた。



図(1)-11 土壌断面と放射性セシウム(<sup>137</sup>Cs)の分布

<sup>137</sup>Csの小さなピークがみられた深い土壌層の<sup>134</sup>Cs/<sup>137</sup>Cs比は0.40から0.63であり,作土層の0.53か ら0.61と大差はなかった(表(1)-12)。このことは,盤層から下層土に存在する放射性セシウムが 今回の事故でフォールアウトしたものであることを示している。事故後,フォールアウトした放射 性セシウムが土壌に強く吸着されるまでの短期間に,周辺河川からの地下水浸透などにより深い層 までセシウムが浸透した可能性がある。

真野川河川水や土壌溶液中の<sup>137</sup>Cs濃度はすべて検出限界以下(<1。5 Bq L<sup>-1</sup>)であった(表(1)-13)。 このことは,放射性セシウムが植物にとって容易に吸収できる溶存態で存在しないことを意味し, 植物は生理的作用によって土壌粒子に吸着した形態のセシウムを脱着して吸収していると考えら れた。

Date	Soil layer	<sup>134</sup> Cs	<sup>137</sup> Cs	<sup>134</sup> Cs/ <sup>137</sup> Cs rati	os
	cm	Bq	Bq kg <sup>-1</sup>		
Apr. 2012	0-2	17500	28700	0.61	
	38-40	38	95	0.40	
Sep. 2012	0-10	4930	9020	0.55	
	40-50	32	79	0.41	
Oct. 2012	0-3	14800	27800	0.53	
	60	32	51	0.63	

表(1)-12 表層土と下層土における<sup>134</sup>Csと<sup>137</sup>Csの比

表(1)-13 河川水ならびに土壌溶液中の<sup>137</sup>Cs濃度

Sample	Date	$^{137}$ Cs(Bq L $^{-1}$ )
R. Mano	Jul., 2012	<1.5
	Sep., 2012	<1.5
	Oct., 2012	<1.5
Spring water of R. Mano	Sep., 2012	<1.5
Extracted solution	Oct., 2012	<1.5

# (2) 微生物鉱物化作用を用いた土壌の不透水層化技術の開発-室内試験

# 1) ガラスビーズカラム試験

ガラスビーズカラム試験では、直径0.01、0.05、0.25、0.5、1、2、3mmのガラスビーズで検討し た。ガラスビーズの透水係数は細菌注入し、さらに尿素と塩化カルシウムを注入した後の2日間で 安定したので、注入2日後に測定した。透水係数は直径0.01mmのガラスビーズの場合、3.27x10<sup>-4</sup> cm/s から3.07x10<sup>-5</sup> cm/s までに減少、0.05mmのガラスビーズの場合で4.10x10<sup>-3</sup> cm/s から 2.92x10<sup>-4</sup> cm/s までに減少、0.25mmのガラスビーズの場合で6.72x10<sup>-2</sup> cm/s から 1.10x10<sup>-2</sup> cm/s までに減少、 0.5mmのガラスビーズの場合で1.73x10<sup>-1</sup> cm/s から2.70x10<sup>-2</sup> cm/s までに減少、1mmのガラスビーズ の場合で5.74x10<sup>-1</sup> cm/s から1.92x10<sup>-1</sup> cm/s までに減少、2mmのガラスビーズの場合で6.57x10<sup>-1</sup> cm/s から 2.28x10<sup>-1</sup> cm/s までに減少、3mmのガラスビーズの場合で8.38x10<sup>-1</sup> cm/s から3.70x10<sup>-1</sup> cm/s でに減少しました。言い換えれば、透水係数は、0.01、0.05、0.25、0.5、1、2、3 mmのガラスビー ズが用いって、それぞれ10.65、14.04、6.13、6.41、3.00、2.88、2.26倍減少した。前述したように、 ガラスビーズを用いた実験で低い詰まり効率が大きくなった。逆にいえば、大きなサイズの ガラスビーズを用いた実験で低い詰まり効率と細菌が堆積した。 CaCO<sub>3</sub>の沈殿は小さなサイズの ガラスビーズを用いた実験ではい詰まり効率と細菌が堆積した。 インクガラスビーズを用いた実験ではい詰まり効率と細菌が堆積した。 クガラスビーズを用いた実験ではい詰まり効率と細菌が堆積した。 インクガラスビーズを用いた実験ではい詰まり効率と細菌が堆積した。 インクガラスビーズを用いた実験ではい詰まり効率と細菌が堆積した。 インクガラスビーズを用いた実験ではカ



えられる。ガラスビーズの大きさ(粒径)がbioclogging技術が成功するために重要な要因であると 言うことができる。

図(1)-12 ガラスビーズカラム試験での透水係数変化



図(1)-13 ガラスビーズカラム試験での微生物細胞捕捉密度



図(1)-14 ガラスビーズカラム試験での導入細胞密度の効果



図(1)-15 ガラスビーズカラム試験での導入細胞密度と微生物細胞捕捉密度

# 2) 沈殿溶液を用いた実験

目詰まり効率を改善するために、支持材としてベントナイトを添加した実験を行った。実験でナ トリウムベントナイトを用いた。ベントナイトの量は、充填したガラスビーズの重量の5%に決定 された。 0.05、0.25、3 mmのガラスビーズを実験に使用した。沈殿溶液、細胞懸濁液をこれまで の実験の同様の方法で注射した。ガラスビーズの一つ細孔容積は、ベントナイトに注ぎ、この懸濁 液を注入中に攪拌した。ベントナイト懸濁液は、細胞懸濁液と沈殿溶液をそれぞれ注入した。温度 は、これまでの実験と同じ、22℃であった。透水係数は、沈殿溶液の注入2日間後0.05 mmのガラ スビーズで4.10x10<sup>-3</sup> cm/s から3.65x10<sup>-5</sup> cm/sまでに減少、0.25 mmのガラスビーズで6.72x10<sup>-2</sup> cm/s から5.20x10<sup>-4</sup> cm/sまでに減少、3mmのガラスビーズで8.38x10<sup>-1</sup>cm/sから3.30x10<sup>-3</sup> cm/sまでに減少し た。他の言葉では、目詰まり効率が初期透水係数を比較すると、0.05 mmのガラスビーズの場合14.04 倍から115倍に上昇、0.25 mmのガラスビーズの場合6.13倍から129倍に上昇、3 mmのガラスビーズ の場合2.26倍から254倍に上昇した。結果は、ベントナイトの添加は約10倍と100倍の間で詰まり効 率を向上させることが示された。

# 3) 沈殿溶液、支持材料と栄養源を用いた実験

ウレアーゼ活性とCaCO<sub>3</sub>の形成を促進に対する透水係数の低下を増強するために、酵母エキス (1Lの沈殿溶液あたり2%)を栄養源として沈殿溶液に添加した。実験は、0.05 mmと0.25 mmのガ ラスビーズを用いて行った。ベントナイト懸濁液は、細胞懸濁液と沈殿溶液をそれぞれ注入した。 温度は、これまでの実験と同じ、22℃であった。酵母エキスの添加はCaCO3の形成を強化し、孔穴 を詰まら改善されています。透水係数は沈殿溶液の注入後2日間、0.05 mmのガラスビーズの場合 で4.10x10<sup>-3</sup> cm/s から8.52x10<sup>-6</sup> cm/s までに減少、0.25 mmのガラスビーズで6.72x10<sup>-2</sup> cm/sから 1.85x10<sup>-4</sup> cm/sまでに減少した。それが目詰まり効率が初期透水係数を比較すると0.05 mmのガラス ビーズの場合115倍から481倍に増加、0.25 mmのガラスビーズの場合129倍から363倍に増加してい ると言うことです。沈殿溶液の注入4日間後、目詰まり効率は、2日間の実験を比較すると0.05 mm のガラスビーズの場合481倍から1568倍に増加、0.25 mmのガラスビーズの場合363.12倍から1486 倍にまで上昇した。CaCO<sub>3</sub>の沈殿範囲も酵母が使う実験に拡大した。結果は、酵母エキスの添加は 任意の支持材料と栄養源のコントラストに加えて透水係数の劇的な減少を有することを証明した。

# 4) 沈殿溶液を用いた実験(細胞の種々の濃度)

カラムに導入された細胞を異なる濃度の効果を観察するために、実験は2 mmと3mmのガラスビ ーズを用いて行った。 OD<sub>600</sub>0.15、0.75、とOD<sub>600</sub>2.25異なる細胞濃度が使用された。前の実験と同 じ方法および条件を用いた。図に示すように、低詰まり効率と細菌の堆積は、大きなサイズのガラ スビーズを用いた実験で観察された。ただし、カラムの細菌の数を増やすことは、より高い詰まり 効率をもたらした。

# 5) ガラスビーズカラムと佐須土壌の比較

粒径分布、水分特性曲線から推定した細孔径分布と透水係数を、佐須地区土壌と不透水層化試験 を行ったガラスビーズカラムの間で比較した。その結果、直径0.25mmから0.05mmのガラスビーズ カラムと同等であることがあきらかとなった。水田土壌の透水係数は、10<sup>-5</sup>~10<sup>-6</sup>cm/sが望ましい とされているが、ベントナイトと酵母エキスを尿素と塩化カルシウムに加えることによって、達成 できることが明らかとなった。



図(1)-17 ガラスビーズ カラムの細孔径分布

# (3) 野外条件での微生物鉱物化作用による水田土壌の透水係数低下技術の開発

1) フィールドスケールでの水田への bioclogging 技術の適用実験

6つの試験区をbioclogging処理と対照区を1つのセットとして、3セットで実験を行った。

#### a. 第1セット:No.1 試験区(bioclogging 処理区)と No.2 試験区(対照区)(図(1)-18 a と b)

実験終了時点でのNo.1試験区(bioclogging処理区)とNo.2試験区(対照区)の透水係数はそれぞれ3.08x10<sup>-7</sup> cm/sと1.21x10<sup>-5</sup> cm/sだった。この結果から、No.1試験区(bioclogging処理区)の透水係数はbioclogging処理区の透水係数は対照区と比較しておよそ40倍低下した。

b. 第2セット: No.3 試験区(bioclogging 処理区)と No.4 試験区(対照区)(図(1)-18 c と d)。

実験終了時点でのNo.3試験区(bioclogging処理区)とNo.4試験区(対照区)の透水係数はそれぞれ1.97x10<sup>-5</sup> cm/sと2.45x10<sup>-4</sup> cm/sだった。bioclogging処理区の透水係数は退職と比較しておよそ12 倍低下した。

c. 第3セット: No.5 試験区 (bioclogging 処理区) と No.6 試験区(対照区) (図(1)-18 e と f)。

実験終了時点でのNo.5試験区(bioclogging処理区)とNo.6試験区(対照区)の透水係数はそれぞれ1.74x10<sup>-5</sup> cm/sと2.65x10<sup>-4</sup> cm/sだった。bioclogging処理区の透水係数は退職と比較しておよそ15 倍低下した。







図(1)-18 実験期間中の試験水田での蒸発量、降水量、および透水係数の変化。
 Bioclogging処理区:a) No.1 試験区;c) No.3試験区;e) No.5試験区
 対照区:b) No.2試験区;d) No.4試験区;f) No.6試験区

これらの結果からは、水田の透水係数が12から40倍の間で低下したことを示した。つまり、透水 係数の低下が、10<sup>-4</sup>~10<sup>-5</sup> cm/sから10<sup>-5</sup>~10-7 cm/sの範囲で起こった。

フィールドスケールでの実験を始める前の水田から採取した土壌コアサンプルでの深さ20-30 cmの層の透水係数はおよそ3 x 10<sup>-3</sup> cm/sだった。しかし、 試験区へ土壌を移す前に土壌をロータリ ーで混合したため、対照区の透水係数は混合処理による影響を受けて10<sup>-4</sup> cm/sになったかもしれな い。

対照区のNo.2試験区の場合は、bioclogging処理区のNo.1試験区でのbioclogging処理を終えた後に、 大雨が降ったためにNo.1処理区からのオーバーフローが起こった。我々は、オーバーフローによっ てCSL溶液と試薬がNo.2試験区へ移り、この状況が対照区のNo.2試験区での低い透水係数(10<sup>-5</sup> cm/s) に影響したと考える。

前述のように、No.1試験区でのbioclogging処理を終えた後に、大雨が降ったためにNo.1処理区からのオーバーフローが起こった。その後、水が長い間No.1試験区に残留した。水の存在によってbioclogging反応がポジティブに影響を受けたかもしれない。bioclogging処理区のNo.3とNo.5試験区のbioclogging処理を終えた後では、No.3とNo.5試験区には余分な水は加えられなかった。このため、bioclogging反応は厳密に完了せず、いくつかの土壌のひび割れ(隙間が)がこれらの処理区に生じたかもしれない(残ったかもしれない)。水田土壌の飽和の際に水田へ水を供給したが、この時(11月中旬頃から12月下旬まで)には気温が微生物bioclogging反応の効率を促進するにはとても低かった。

結論として、水田の透水係数は10<sup>-4</sup> cm/sから10<sup>-5</sup> cm/sまで低下した。この結果は、水田の透水係数をbioclogging技術の適用によって10<sup>-7</sup> cm/sまで低下させることができることを示した。

# 1) Bioclogging 技術適用後の水田土壌の理化学性

# a. 土壤の三相分布

表(1)-14. bioclogging処理試験区からの土壌の三相分布(平均値)

Treated test fields	Average	Standard deviation
Actual Volume (cm <sup>3</sup> )	95.44	5.93
Total Volume (cm <sup>3</sup> )	100.00	0.00
Weight (total weight) (g)	200.06	15.36
Sampling Tube Weight (g)	78.08	1.69
Solid Weight (g)	165.51	14.90
Gross Solid Weight (g)	243.59	15.89
True Density (g/cm <sup>3</sup> )	2.72	0.08
Moisture Weight (g)	34.55	3.61
Air Volume (cm <sup>3</sup> )	4.57	5.93
Solid Volume (cm <sup>3</sup> )	60.89	4.89
Liquid Volume (cm <sup>3</sup> )	34.55	3.56
Air Ratio (%)	4.57	5.93
Solid Ratio (%)	60.89	4.89
Liquid Ratio (%)	34.55	3.56
Total Pore Space (cm <sup>3</sup> )	39.11	4.89
Porosity (%)	39.11	4.89
Void Ratio	0.65	0.14
Solid Moisture Percentage by Dried Base (%)	21.02	2.87
Solid Moisture Percentage by Wetted Base (%)	17.33	1.96
Water-Solid Ratio	0.57	0.07
Saturation Percentage (%)	89.37	12.71
Air Percentage (%)	10.63	12.71

 Weight (total weight)は、液体 重量+固体重量を意味する。

 Solid weight は乾燥土壌重量を 意味する。

Gross solid weight はサンプリング管重量+乾燥した土壌の重量を意味する。

Void ratio (間隙比、 e)は、
 e=φ/1-φ、ここでφは porocity(間隙率)
 である。

Control test fields	Average	Standard deviation
Actual Volume (cm <sup>3</sup> )	81.90	11.14
Total Volume (cm <sup>3</sup> )	100.00	0.00
Weight (total weight) (g)	172.93	21.16
Sampling Tube Weight (g)	143.17	113.14
Solid Weight (g)	115.01	33.33
Gross Solid Weight (g)	195.37	29.12
True Density (g/cm <sup>3</sup> )	2.74	0.03
Moisture Weight (g)	29.47	4.99
Air Volume (cm <sup>3</sup> )	18.10	11.14
Solid Volume (cm <sup>3</sup> )	52.44	6.08
Liquid Volume (cm <sup>3</sup> )	29.46	5.10
Air Ratio (%)	18.10	11.14
Solid Ratio (%)	52.44	6.08
Liquid Ratio (%)	29.46	5.10
Total Pore Space (cm <sup>3</sup> )	47.56	6.08
Porosity (%)	47.56	6.08
Void Ratio	0.93	0.21
Solid Moisture Percentage by Dried Base (%)	20.45	1.12
Solid Moisture Percentage by Wetted Base (%)	16.98	0.77
Water-Solid Ratio	0.56	0.04
Saturation Percentage (%)	63.64	20.14
Air Percentage (%)	36.36	20.14

#### 表(1)-15。対象試験区からの土壌の三相分布(平均値)

Weight (total weight)は、液体重量
 +固体重量を意味する。

Solid weight は乾燥土壌重量を意味する。

 Gross solid weight はサンプリン グ管重量+乾燥した土壌の重量を意味す る。

Void ratio (間隙比、e)は、e=φ/1-φ、
 ここでφは porocity(間隙率)である。

# b. 土壤の細孔径分布

bioclogging処理試験区と対照試験区の平均孔径を測定した(図(1)-19)。bioclogging処理後の土 壌では、大きい孔径の割合が減少して小さい孔径の割合が増加した。この結果は、bioclogging処理 により細孔径の低下を達成したことを示した。



図(1)-19 bioclogging処理試験区と対照試験区の細孔径分布

# (4) 各種の微生物固定化技術による Cs と Sr 固定化-cold Cs と cold Sr での実験

### 1) 好気性細菌の尿素分解によって生成された方解石への Cs と Sr の取り込み

理論的には、尿素、カルシウム、尿素分解細菌の存在下、細菌尿素分解の結果としてアンモニ ウムおよび溶存無機炭素の生産におけるpHの上昇でカルサイトが形成される。一晩培養した後に
白い沈殿物がSporosarcina pasteuriiを接種した培養物中に観察された、なお細菌接種しない試料中 では観察されなかった(図(1)-20)。pH値は、実験開始後7から9に増加した。培養開始する前の上 清液中のSrの値と培養3日後の間の値を比較すると、10.5 ppmの初期濃度の93%の減少となった。 しかし、上清中のCs濃度の有意な変化はなかった(表(1)-16)。Srを付加培養3日後のサンプルの顕 微鏡画像は、方解石結晶が析出し、細菌に囲まれたことを示している(図(1)-20)。



図(1)-20 細菌の尿素分解による方解石生成

表(1)-16	細菌の尿素分解によ	る方解石生成の結果起こ	るCsとSrの除去効果
---------	-----------	-------------	-------------

Samples	Sr Conc. in supernatant (PPM)			Cs Conc. in supernatant (PPM)		
	0 day	3 day	Removal rate	0 day	3 day	Removal rate
Controls no bacteria	10.5	10.8	No	15.8	15.7	No
Samples with	10.5	0.7	93%	16.9	16.5	No
bacteria						

#### 2) Shewanalla CN32 と Geobacter AY 株による嫌気鉄還元中の Cs と Sr の固定化

Shewanalla CN32とGeobacter AYによる鉄還元反応のために重炭酸緩衝培地とPIPES-緩衝培地を用 いた。MOPS緩衝化培地はGeobacter AY菌のためにのみ用いた。 Shewanalla CN32を接種した試料 では、異なる2つの緩衝培地に生じた沈殿の種類について明確な効果を有していた(図(1)-21)。 PIPES-緩衝培地で、培養3日後に純粋な黒沈殿析出物は観察された。XRD分析により磁鉄鉱は鉄還 元反応の主要な最終製品として同定した。他のFe(II)含む結晶鉱物は検出されなかった。重炭酸 緩衝培地で、培養一週間後黄緑色の析出物が観察されたものは、菱鉄鉱である可能性が高い。100μM のAQDSは両方の菌のHFOの還元を促進したが、効果はGeobacter AY株ではるかに重要だった。 PIPES緩衝液の濃度(10 mMまたは30 mM)は、菌株鉄還元上重要な効果を持たないように見えた。 MOPS緩衝化培地を使ったGeobacter AYの接種した試料は、培養1ヶ月後に赤みを帯びた粘着性析 出物が観察された。鉱物学的組成物は、XRDにより分析した。上記のサンプルから上澄み中、含 水酸化鉄に吸着されおよび形成された沈殿中に組み込まのSrとCs濃度を分析した(表(1)-17、表 (1)-18)。菱鉄鉱は、重炭酸緩衝培地を使ったShewanalla CN32の接種した試料で形成された。Sr の87%が、これらのサンプルの上清から削除された。 Sr の58%が菱鉄鉱結晶に組み込まれた。 AQDSまたはガラスビーズの添加は、それぞれ94および93%にSrの除去効率を増加させた。取り込 まれたSrは、それぞれ、66および61%に増加した。同様に、Srの70%はMOPS緩衝培地を用い Geobacter AYによって上清から削除された。菱鉄鉱形成中のSr固定化の結果と対照的には、Srはマ グネタイトの形成中に組み込まれなかった。上清からのCsの最良除去効率(90%)は、MOPS緩衝

媒体とGeobacter AYサンプルで観察された。しかし、重炭酸塩緩衝培地でGeobacterとShewanallaサ ンプルの両方は、Csの除去が非常に低い効率を示した。また、Csは菱鉄鉱の形成中に結晶構造の 中に組み込まれることが観察されなかった。



B: PIPES-buffered sample

汊

(1)-21	異なる	培養条	件での	異な	る	沈殿物生成	Ż
--------	-----	-----	-----	----	---	-------	---

表(1)-17 Sr immobilization under different conditions during iron-reduction reaction

No AQDS and No glass beadsIn supernatant12.7%Adsorbed by Fe(III)29.0%87%	Jvai
glass beads Adsorbed by Fe(III) 29.0% 87%	
In precipitates 58.0%	
Shewanlla CN32 + Uith AODS In supernatant 5.6%	
Bicarbonate-buffered with AQDS, no Adsorbed by Fe(III) 28.0% 94%	
medium + HFO grass beads In precipitates 66.0%	
With glass heads no In supernatant 6.5%	
AODS Adsorbed by Fe(III) 31.9% 93%	
In precipitates 61.5%	
Shewanlla CN32 + With In supernatant 87.0%	
PIPES-buffered with AQDS, Adsorbed by Fe(III) 13.0% 13%	
medium + HFO In grass beaus In precipitates 0.0%	
Geobacter + No AODS and No In supernatant 29.3%	
MOPS-buffered Adsorbed by Fe(III) 26.3% 70%	
medium + HFO In precipitates 44.0%	

表(1)-18 Cs immobilization under different conditions during iron-reduction reaction

Samples	Other factors	Cs fractions	Percentage	Cs removal rate
Shewanlla CN32 +	With AODS no	In supernatant	84.9%	
Bicarbonate-buffered	glass beads	Adsorbed by Fe(III)	15.0%	15%
medium + HFO	<b>5</b> <sup>1</sup> <b>1</b> <sup>0</sup> <b>5</b> <sup>1</sup> <b>1</b> <sup>0</sup> <b>1</b> <sup>1</sup> <b>1</b> <sup>0</sup> <b>1</b> <sup>1</sup>	In precipitates	0.0%	
Geobacter AY +	No glass boods no	In supernatant	80%	
Bicarbonate-buffered	AODS	Adsorbed by Fe(III)	16%	20%
medium + HFO	ngbb	In precipitates	4%	
Geobacter AY +	No alora hooda no	In supernatant	10%	
MOPS-buffered	AODS	Adsorbed by Fe(III)		90%
medium + HFO		In precipitates		

# 3) 化学反応によって生成されたフェライトへの Cs と Sr の取り込み

化学反応によるフェライト生成プロセスの場合は、はるかに高いのSrとCs初期濃度(Srの1136 ppmとCsの9480 ppm)を使用した。フェライト形成時の上清からのSrとCsの除去率はそれぞれ約87%及び64%であった(表(1)-19)。 Csは沈殿析出物では1%未満であった。また沈殿析出物で見つかったSrは、初期値の約77%であった。

Initial Con. in Con. in supernatant Removal rate Recovery rate supernatant after ferrite process 87% 89% Samples with Sr 1136 ppm 145 ppm Samples with Cs 9480 ppm 3447ppm 63.6% 37%

表(1)-19 化学フェライトプロセスによるCsとSrの除去

# 4) 異なる材料による Sr と Cs の吸着

試験した吸着剤の5種類のうち、ベントナイト、ゼオライトは、Sr吸着の高速かつ高い率を示した (図(1)-22A)。Srの95%以上がベントナイトによってほぼ直ちに吸着し、ゼオライトによる2days で吸着削除した。同様の結果は、Cs追加サンプルで観察された(図(1)-22B)。除去効率は、吸着 剤量の増加とともに増加した。フミン酸、カルボキシメチルセルロース、およびMnO<sub>2</sub>のはSrとCs を吸着することが有意な効果を示していませんが。ゼオライトは、水にハード留まる多孔質結晶構 造を持つアルミノ珪酸塩鉱物である。これは、Csの高い陽イオン交換容量及び選択性を有する。 ゼオライトの交換サイトは、アルミノケイ酸塩のフレームワークのチャンネルや空洞内に配置され ています。Montmorilloniteはベントナイトの主成分で、化学式は (1/2Ca,Na)(Al,Mg,Fe)4(Si,Al)8O<sub>20</sub>(OH)4·nH<sub>2</sub>Oである。ベントナイトの特性はAlO4とSiO4の負電荷の骨 格構造内に大規模な相互接続チャネルに起因している。天然ゼオライトとベントナイトは、多くの 場合、金属汚染除去するために効果的安価な吸着剤としても使用されている。ベントナイト、ゼ オライトのSEM像を図(1)-23に示す。





図 (1)-23 走査型電子顕微鏡による ベントナイトとゼオライトの観察



# 5) 逐次抽出法

逐次抽出は、モビリティと生物有効性の理解に有用である。生物学的利用能は、金属の溶解度に 関連して、順序で減少:水溶性>交換>炭酸>のFe-Mn酸化物>有機>残留とされている。なお残留す る画分に含まれる金属は、生物が利用できない金属と考えられるものである。

好気微生物の方解石沈殿処理した後、Srの大部分(>50%)が炭酸塩と関連していた(図(1)-24)。 嫌気条件下菱鉄鉱形成処理した後、Srの約90%がFe-Mn酸化物に結合した。化学反応フェライトプ ロセスの後、沈殿で見つかったSrの80%以上は交換可能なSrを表す。ベントナイト試料中の間は、 Srが比較的均等に交換、炭酸塩および残留分画と関連していた。

これらの結果は、処理後Srの大部分は潜在的に利用可能な形で残っていたものの、ベントナイト は、菱鉄鉱形成とフェライトプロセスと方解石プロセスより、Srの溶解性および生物有効性の現象 に効率が高かった。経済的には、ベントナイトは、広く利用可能で自然粘土化合物のような低コス トが利点である。化学フェライトの生産のための温度を上昇させる、微生物の方解石の生産とコス トのために酸素や栄養を供給するエネルギーコストは、これら2つのメソッドのin situへの応用を 限られたもにしてしまう。このケースでは、嫌気性微生物の菱鉄鉱沈殿プロセスは、Srの除去のた めの安価な代替品として考えることができる。

この研究では、それらの生物学的利用能を減少させることによって土壌や水から放射性核種除 染するために、安価で効果的な方法を開発することを目的とした。私たちの研究で試験したさまざ まな処理法は、液相からのSrを除去する高い能力を示した。しかし、Csの除去のために、微生物の 方解石の形成と菱鉄鉱の形成は明らかな影響は認められなかった。ベントナイトの添加は、低コス トの利点と、方解石、菱鉄鉱、フェライト沈殿法よりSrの生物学的利用能を低下させるのより良い 効率を持っていた。



図(1)-24 各種の方法で固定化したストロンチウムの異なる抽出画分への分布

#### (5) 微生物固定化技術の開発 – 放射性セシウムを用いた試験

# 1) 粘土鉱物の構造による<sup>137</sup>Csの吸着・脱離特性の違い

<sup>137</sup>Csの吸着率は、vermiculiteで86~97%、bentoniteで85~91%、zeoliteF-9で91~98%、zeoliteA-4 で89~99%、深層土で97~100%、vermiculitで80~97%、Na-bentoniteで57~59%、Ca-bentoniteで99 ~100%、Kolinで95~98%であり、Na型bentoniteで明らかに低い吸着率であった(図(1)-25)。ま た、吸着処理後の吸着剤の<sup>137</sup>Cs濃度と吸着剤量との関係(図(1)-26)をみると、吸着率の低い Na-bentoniteを除いてy=134030x<sup>-0.9728</sup>の式によく近似された。

<sup>137</sup>Csの脱離率は、現地土壌を中心に、vermiculiteで低く、kaolinとbentoniteで高かった(図(1)-25)。 <sup>137</sup>Csの粘土鉱物にたいする吸着は、ケイ素四面体シートとアルミニウム八面体シートの層間が水 素結合により強固に閉じている1:1型のケイ酸塩鉱物であるkaolinにおいても、2:1型のケイ酸塩鉱 物と同様に高かった。一方、脱離は、実験に用いた鉱物の中でkaolinが最も高くなった。このこと から1:1型のkaolinでも表面吸着による高い吸着能をもつが、層間に固定されるサイトは存在しない ため2:1型のケイ酸塩鉱物と比較して脱離能は高いと考えられた。

bentoniteは、2:1型のケイ酸塩鉱物の中で吸着率が低く、脱離率が高く、この傾向はNa型のbentonite で顕著であった。一般的に、アルミニウム八面体シートでの同形置換の割合の高いbentoniteは、溶 液中で層間が開きやすく膨潤した状態になりやすい。このことは、他の2:1型ケイ酸塩鉱物で層間 に達した<sup>137</sup>Csが層間が閉じることで固定されるのに対し、bentoniteでは層間が開いているため固定 化されず、層間に<sup>137</sup>Csが達しても液相中にイオン態として遊離する割合が高いことを示唆する。 また、Ca型とNa型を比較すると、膨潤性の高いNa型でこの傾向が顕著であったことからもこのこ とは支持される。



図(1)-25 <sup>137</sup>Csの吸着・脱離実験における各画分の割合



図(1)-26 吸着<sup>137</sup>Cs濃度と粘土質量の関係

vermiculiteは、同形置換がケイ素四面体シートに存在する割合が高く、またセシウムイオンが達 すると層間が閉じるフレイド・エッジ・サイト(FES)の存在により特徴づけられる。本実験でもイ オン交換態で抽出される割合が低く、固定態画分の割合が最も高いといえた。 以上から、粘土鉱物にたいする<sup>137</sup>Csの吸着は、膨潤性の高いNa-bentoniteを除いて高かった。一 方、脱離は、<sup>137</sup>Csが表面吸着したkaolinでは高く、固定化されたvermiculiteでは低くなった。この ことから、放射性セシウムの生物利用性は、吸着剤の膨潤性、吸着部位の違いにより影響されると いえた。

# 1) 鉄還元細菌(Geobacter)の代謝産物をもちいた放射性セシウムの生物利用性抑制効果 a. AY 培地を用いた実験における生物利用性の抑制効果

培地のみと培地+Feでの<sup>137</sup>Csの吸着率は、現地土壌とbentoniteで80%以上と高かったのに対し、 vermiculiteでは63%(平均値)と低かった(図(1)-27)。一方、AY培地+Fe+Geobacterでは、現地土 壌とbentoniteでGeobacterbacterを植え付けていない条件と比べて大きく変動しなかったが、 vermiculiteにおいては97%と大きく増加し、全条件の中で最大となった。このことは、vermiculite では鉄還元細菌の生育により放射性セシウムの吸着能が上がることを示唆する。<sup>137</sup>Csの溶存態と しての脱離率(水抽出処理)は、非常に小さかった。Geobacterの生育による効果は、現地土壌と bentoniteでは見られなかった。一方、vermiculiteを混合した培地での水溶性画分は、培地のみで9.7%

(平均値)、培地+Feで6.2%であったのに対し培地+Fe+Geobacterでは1.2%とその値は大きく減少した。このことから、vermiculiteを<sup>137</sup>Cs吸着剤として用いる場合には、鉄還元細菌を活性化させることで、土壌中での溶存態としての<sup>137</sup>Csの存在量を減少できる可能性がある。

溶存態画分と同様に、Geobacterの生育による効果は、現地土壌とbentoniteではみられなかったの に対し、vermiculiteでは、培地のみでの25%(培地+Feでは24%)から培地+Fe+Geobacterでは9.9% まで大きく減少した。

一方、表面吸着の割合(水溶性画分とイオン交換態画分)の高い現地土壌やベントナイトでは、 生物利用性の低下はみられなかった。このことは、表面吸着だけでなく層間に固定された放射性セ シウムの一部もイオン交換態や水溶性画分として脱離されていることを示唆する。vermiculiteでみ られた生物利用性の抑制は、表面吸着した放射性セシウムを固定化したのではなく、固定化されて いた放射性セシウムをより再分配されにくい状態に変化させたものと考えられる。

以上のように、バーミキュライトと鉄還元反応を組み合わせることで、土壌中の植物可給態としての<sup>137</sup>Cs量を少なくできる可能性が示唆された。

#### b. non-carbonate 培地を用いた実験における生物利用性の抑制効果

<sup>137</sup>Csの吸着率は、実験条件に関わりなく2:1型の粘土鉱物(bentoniteとvermiculite)と比較して1:1 型の粘土鉱物であるkaolinで明らかに低くなった(図(1)-28)。これは水素結合により層間が強固 にとじたkaolinでは<sup>137</sup>Csの吸着は表面吸着のみであり、<sup>137</sup>Csを選択的に層間に固定できるサイトを 持つ2:1型の粘土鉱物と比較して競合イオンの影響が強く現れることを示唆する。

AY培地のvermiculiteでみられたような生物利用性の抑制効果は、non-carbonate培地ではなく、 むしろ鉄還元反応により<sup>137</sup>Csの脱離能は高くなる傾向にあった。このことは、炭酸イオンの存在 しない環境において抑制効果が期待できないことを意味しており、シデライト(FeCO<sub>3</sub>)の生成が 生物利用性の抑制には重要であると考えられる。

## c. carbonate 培地を用いた実験における生物利用性の抑制効果

<sup>137</sup>Csの吸着率は、粘土鉱物の種類にかかわりなくnon-carbonate培地よりもcarbonate培地で低く、 carbonate培地は放射性セシウムを固定しにくい環境にあるといえた。生物鉄還元反応による放射性 セシウムの生物利用性の抑制効果は、non-carbonate培地でみられたように<sup>137</sup>Csの脱離能が高まることはなかったが、vermiculiteにおいてもAY培地ほどの顕著な効果はみられなかった。



図(1)-27 Geobacter AY 株の生育・非生育環境での吸着剤(水田土壤、ベントナイト、バーミュキュライト)に対する<sup>137</sup>Cs の吸着・脱着特性の比較(A は水田土壤、B はベントナイト、C はバーミュキュライトを<sup>137</sup>Cs 吸着剤として用いた。また、AY は AY 培地 20ml に対して粘土鉱物 0.5g を加えた試料、AY+FeOOH は AY 培地 20ml に対して粘土鉱物 0.5g と 0.4M オキシ水酸化鉄 1ml を加えた試料, AY+FeOOH+Geobacter は AY 培地 20ml に対して粘土鉱物 0.5g と 0.4M オキシ水酸化鉄 1ml を加えた活料, AY+FeOOH+Geobacter AY 培地 20ml に対して粘土鉱物 0.5g と 0.4M オキシ水酸化鉄 1ml を加えた後、Geobacter AY を植菌した試料を示す。非吸着画分は吸着実験で吸着剤に吸着されなかった画分、水溶性画分は吸着剤に吸着後、純水で抽出された画分、イオン交換態画分は吸着材に吸着後、NH4<sup>-</sup>イオンで抽出された画分、固定態画分は抽出処理により抽出されなかった画分を示す。)



図(1)-28 Geobacter AY株の生育・非生育条件での吸着剤(カオリン、ベントナイト、バーミ ュキュライト)に対する137Csの吸着・脱離率 (Iは炭酸イオンを含まない培地の結果 を示し、IIは炭酸イオンを含む培地での結果を示す。上から順に、Aはカオリン、Bは Ca型ベントナイト(クニボンド、クニミネ工業)、CはNa型ベントナイト(クニゲル、 クニミネ工業)、Dはバーミュキュライト(農業改良材)を137Cs吸着剤として用いた。 また、Controlは培地2mlに粘土鉱物0.5gを加えた試料、+FeOOHは培地に粘土鉱物0.5g と0.4Mオキシ水酸化鉄1mlを加えた試料,+FeOOH+Geobacterは培地に粘土鉱物0.5gと 0.4Mオキシ水酸化鉄1mlを加えた後、Geobacter AYを植えつけた試料を示す。137Csは、 初期濃度1800 Bq L-1になるように標準液1mlを添加した。非吸着画分は超純水で抽出さ れた画分、イオン交換態画分はNH4-イオンで抽出された画分、固定態画分は抽出処理 により抽出されなかった画分を示す。)

表(1)-20 炭酸塩添加培地における *Geobacter* AY.の生育・非生育条件での吸着剤に対する <sup>137</sup>Cs の吸着・脱離率(%)

吸着剤	培養条件		a.固定態画分	b.イオン交換態画分	c.水溶性画分	吸着画分(a+b+c)	非吸着画分
kaolin	培地のみ	1 2	11 13	9.5 9.6	1.7 2.3	22 25	78 75
		3	16	8.9	2.3	27	73
	+FeOOH	1	18	9.5	3.1	30	70
		3	12	9.3 10	3.2	26	74
	+FeOOH	1	13	9.7	2.7	25	75
	+Geobacter	2 3	4 11	11 9.9	3.3 3.1	18 24	82 76
Ca-	培地のみ	1	68	22	1.2	91	9.2
bentonite		2	53 74	32 19	1.1	87 94	13 5 9
		•				• •	0.0
	+FeOOH	1	69 73	21	1.2	91	8.7
		Ĩ	67	23	1.4	92	8.3
	+FeOOH	1	71	22	1.2	93	6.5
	+Geobacter	2	67 72	23	1.3	91	9.1
Ne-	焙地のみ	() ()	49	15	27	93	8.9
bentonite	12 12 03 07	ø	57	15	24	95	4.9
		3	59	14	14	88	12
	+FeOOH	1	42	21	20	83	17
		2	50	16	32	98	2.1
			20	10	10	00	40
	+FeOOH	1	57	17	26	99	0.8
	+Geobacter	Š	61	17	23	99	1.3
vermiculit	e培地のみ	1	94	4.0	0.9	99	1.5
		2	89	4.3	0.9	94	6.2
		3	93	3.9	0.7	98	2.0
	+FeOOH	1	95	2.3	0.4	98	1.9
		3	96	3.0	0.0	99	1.2
		•	00	2.5	0.2	00	1.2
	+FeOOH	Û	94	3.0	0.6	98	1.9
	+Geobacter	3	94	3.4	0.5	98	2.5

# 3) 鉄還元細菌(Geobacter AY)の培地における粘土鉱物の結晶構造解析

#### a. AY 培地

電子顕微鏡図による結晶構造の観察では、vermiculiteで粘土鉱物の表面が質感が異なるものに覆 われている部位がみられたが、土壌とbentoniteでは視覚的に明らかでなかった(図(1)-29)。EDS による定性面分析では、粘土鉱物の種類に関係なく鉄が濃い領域で粘土鉱物起源である珪素のピー クが薄いことから粘土鉱物の表面が鉄で覆われている部位があると考えられた。

# b. non-carbonate 培地

電子顕微鏡図では、vermiculiteの表面に質感の異なる部分がみられた。また、定性面分析では、 vermiculiteで鉄の濃い領域と珪素の薄い領域が一致し、鉄による被覆が確認された(図(1)-30)。 一方、vermiculite以外の鉱物(kaolin、Ca-bentonite、Na-bentonite)では、鉄に被覆された部分は確 認されず、鉄は測定領域の全体に薄く分布した。

# c. carbonate 培地

電子顕微鏡図では、vermiculiteの表面に質感の異なる部分がみられ、その領域は鉄による被覆が

確認された(図(1)-31)。全ての培地条件(AY培地、non-carbonate培地、carbonate培地)において、 vermiculiteでのみその表面を鉄が被覆されている領域が見られた。vermiculiteは表面に微生物によ り生成される鉄好物を凝集しやすい粘土鉱物であると考えられる。



図(1)-29 AY 培地+FeOOH+Geobacter での走査性電子顕微鏡図とデジタルマップ解析(特定 X線地図)



図(1)-30 non-carbonate 培地+FeOOH+Geobacter での走査性電子顕微鏡図とデジタルマップ 解析(特定 X 線地図)



図(1)-31 Carbonate 培地+FeOOH+Geobacter での走査性電子顕微鏡図とデジタルマップ解析 (特定 X 線地図)

# d. X 線回折 (XRD)

non-carbonate培地ならびにcarbonate培地に生成する鉄鉱物をXRDにより測定したが、培地による 違いも、*Geobacter*の生育による違いも明らかではなかった(図(1)-32、図(1)-33)。



図(1)-32 炭酸塩未添加培地中の XRD 分析結果(2週間培養後に遠心分離により沈殿物を採取し乾燥させたものを分析した)



図(1)-33 炭酸塩添加培地中の XRD 分析結果(2週間培養後に遠心分離により沈殿物を採取 し乾燥させたものを分析した)

# 4) 微生物固定化技術における反応機構のまとめ

微生物鉄還元反応による放射性セシウムの脱離の低下は、セシウムの固定サイトを多く持つバー ミキュライトでのみ測定され、バーミキュライトの表面は部分的に鉄で被覆されていることが走査 型顕微鏡(SEM-EDS)による表面観察と元素分布測定により明らかになった。一方、炭酸イオン (NaHCO<sub>3</sub>)が入っていない培地では、脱離を抑制する効果はみられなかった。このことから、放 射能汚染地域において微生物鉄還元反応を放射性セシウムの封じ込め技術として適用するには、鉄 還元反応で生成した2価鉄を炭酸イオンと反応させてシデライト(FeCO<sub>3</sub>)を生成することが重要 であると考えられた。

# (6) イネポット試験における放射性セシウム移行抑制評価

1) イネポット試験による<sup>137</sup>Cs 移行抑制評価

# a. ポット試験1



15 60 10 **高さ(**cm) 40 分けし数 コントロール 5 20 マトナイト 鉷 **-**鉄+ベントナイト 0 0 0 7 14 21 28 35 0 7 14 21 28 35 時間(日) 時間(日)

図(1)-34 鉄とベントナイトを添加した条件でのセシウム移行抑制効果

図(1)-35 鉄と粘土を添加した土壌でのイネの成長(1ヶ月)



図(1)-36 鉄と粘土を添加した土壌でのイネの成長(2ヶ月)

ベントナイトのみ添加土壌、鉄のみ添加土壌、ベントナイトと鉄の両方を添加した土壌において、 茎葉への放射性セシウムの移行に対する抑制効果を検証した。1ヶ月、2ヶ月の成長期間ともに、鉄、 ベントナイト処理各区で抑制効果が観られた。各条件においてイネの成長に差は認められなかった。

## b. ポット試験 2

鉄とベントナイト、鉄とバーミキュライトを添加した土壌に更に酢酸ナトリウムを添加し放射性 セシウム移行抑制効果を検証した。酢酸ナトリウムを添加した処理Fと処理Eにおいてイネ高さが コントロールより低く、分けつ数も少なく、成長阻害が認められた。



図(1)-1 鉄、ベントナイト、バーミキュライト、酢酸ナトリウムを添加した条件でのイネへの放射性セシウム移行抑制効果



図(1)-38 鉄、ベントナイト、バーミキュライト、酢酸ナトリウムを添加した条件でのイネ の成長

c. ポット試験3

洗浄土に鉄とバーミキュライトと酢酸ナトリウムを添加し、洗浄土における放射性セシウム移行 抑制効果を検証した。洗浄土の土壌放射性セシウム濃度は洗浄処理によって減少していた。洗浄土 を使用した処理Gと処理Hおいてイネ高さがコントロールより低く、分けつ数も少なく、成長阻害





図(1)-39 洗浄処理による土壌の放射性セ シウム濃度の低下

図(1)-40 洗浄土と鉄、バーミキュライト、酢酸ナトリウムを添加した条件でのイネへの放射性セシウム移行抑制効果



図(1)-41 洗浄土と鉄、バーミキュライト、酢酸ナトリウムを添加した条件でのイネの成長

# d. ポット試験4

黒ボク土を使用し、黒ボク土に対する鉄と粘土添加によるセシウム移行抑制効果を検証した。土 壌の放射性セシウム濃度は土壌洗浄処理と鉄の洗浄処理により、各条件において減少が認められた。 洗浄処理条件と洗浄土+鉄+粘土処理条件においてイネの高さが低く、分けつ数も少なく成長阻害 が認められた。



図(1)-42 洗浄処理による土壌の放射性セシウム濃度の低下



図(1)-43 黒ボク土と洗浄土に鉄と粘土添加によるイネの放射性セシウムの移行抑制効果



図(1)-44 黒ボク土と洗浄土に鉄と粘土添加による条件でのイネの成長

# e. ポット試験5

現地試験と同様の処理土壌を用いて、ポット試験における現地試験の再現性を検証した。土壌の 放射性セシウム濃度は土壌洗浄処理と鉄の洗浄処理により、各条件において減少が認められた。鉄 +粘土処理条件においてイネの成長阻害が認められた。



図(1)-45 洗浄処理による土壌の放射性セシウム濃度の低下



図(1)-46 灰色低地土と洗浄土に鉄と粘土添加によるイネの放射性セシウムの移行抑制効果



図(1)-47 灰色低地土と洗浄土に鉄と粘土添加による条件でのイネの成長

# (7) 現地イネ栽培試験による放射性セシウム移行抑制評価

## 1) イネへの放射性セシウムの移行

現地における鉄と粘土添加による放射性セシウム移行抑制効果を田植えから刈取までイネを栽 培し検証した。土壌、根、茎+葉、もみ米、玄米、籾殻の重量と放射性セシウム濃度を測定した。



また、栽培中のイネ植物長、分ゲツ数を観察した。





図(1)-50 灰色低地土と洗浄土に鉄と粘 土添加による茎と葉の放射性セシ ウムの移行抑制効果

![](_page_56_Figure_6.jpeg)

図(1)-52 灰色低地土と洗浄土に鉄 と粘土添加による玄米の放射 性セシウムの移行抑制効果

![](_page_56_Figure_8.jpeg)

図(1)-49 灰色低地土に対する洗浄、鉄と 粘土添加による根の放射性セシウ

![](_page_56_Figure_10.jpeg)

図(1)-51 灰色低地土と洗浄土に鉄と粘土 添加による籾米の放射性セシウム の移行抑制効果

![](_page_56_Figure_12.jpeg)

図(1)-53 灰色低地土と洗浄土に鉄と 粘土添加によるもみ殻の放射性 セシウムの移行抑制効果

![](_page_57_Figure_1.jpeg)

図(1)-54 灰色低地土と洗浄土に鉄と粘土添加による条件でのイネの成長 50

![](_page_57_Figure_3.jpeg)

図(1)-55 灰色低地土と洗浄土に鉄と粘土添加による条件での収量に与える影響(g/株)

土壌の放射性セシウム濃度は土壌洗浄処理と鉄の洗浄処理により、各条件において減少が認めら れた。茎+葉、もみ米、玄米、籾殻への放射性セシウム濃度には有意差がなかった。イネの高さと 分けつ数から各条件のイネの成長阻害は認められなかった。また各乾燥重量にも大きな違いは認め られなかった。

# 2) セシウム逐次抽出試験

現地試験の終了後に土壌を採取して逐次抽出を行い、セシウムの形態を推定した。フラクション 1(水溶性)で抽出された放射性セシウムはコントロールで0.1%,鉄+粘土処理条件は0.1%,洗浄処 理条件は0.1%,洗浄土+鉄+粘土処理条件は0%であった。フラクション2(イオン交換態)で抽出さ れた放射性セシウムはコントロールで1.1%,鉄+粘土処理条件は0.4%,洗浄処理条件は0.8%,洗 浄土+鉄+粘土処理条件は0.1%であった。フラクション3(炭酸塩態)で抽出された放射性セシウム はコントロールで0.4%,鉄+粘土処理条件は0.4%,洗浄処理条件は0%,洗浄土+鉄+粘土処理条 件は0%であった。フラクション4(酸化物態)で抽出された放射性セシウムはコントロールで4.4%, 鉄+粘土処理条件は3.8%,洗浄処理条件は2.3%,洗浄土+鉄+粘土処理条件は0.8%であった。フ ラクション5(有機物態)で抽出された放射性セシウムはコントロールで1.8%,鉄+粘土処理条件は 2.2%,洗浄処理条件は1.0%,洗浄土+鉄+粘土処理条件は0.7%であった。フラクション6(残留態) で抽出された放射性セシウムはコントロールで37.2%,鉄+粘土処理条件は34.2%,洗浄処理条件 は20.6%,洗浄土+鉄+粘土処理条件は18.4%であった。どのフラクションにおいても抽出されな かった放射性セシウム(非抽出性Cs)はコントロールで55.0%,鉄+粘土処理条件は58.9%,洗浄処理 条件は75.2%,洗浄土+鉄+粘土処理条件は79.5%であった。

![](_page_58_Figure_2.jpeg)

図(1)-56 鉄と粘土の添加が土壌からの放射性セシウムの抽出に与える影響(現地試験)

![](_page_58_Figure_4.jpeg)

図(1)-57 鉄と粘土の添加が土壌からの放射性セシウムの抽出に与える影響(現地試験)

鉄と粘土を加えた土壌の土粒子表面を、鉄と粘土を加えていない土壌をコントロールとして土 粒子の表面と比較し観察した。SEMによる表面構造の観察では、コントロールと処理をした土壌で は視覚的な違いは観察できなかった。EDSによる定性面分析では鉄のピークが濃く、ケイ素のピー クが薄い部位が処理をした土壌で観察できたが,同様にコントロールでもそのような部位が観察で きたため,それらは鉄と粘土を添加した影響ではないと考えられる。

鉄と粘土を添加した土壌を用いたXRDによる解析の結果からは、微生物による鉄還元反応にお ける鉄鉱物(マグネタイト、シデライト、ビビアナイト)はどの培養期間の土壌からも検出する事は 出来なかった。

#### 3) カリおよびリン酸の影響

土壌および稻体中のカリウム濃度には各条件間で有意差が無かった。鉄+粘土添加処理土壌にお いてイネがカリウムの吸収不足によってセシウムをより多く吸収した可能性は小さいと言える。

#### 4) 放射性セシウムの水稲移行性に関する考察

#### a. イネへの放射性セシウムの移行係数

各ポット試験と現地試験におけるイネの土壌からの放射性セシウム吸収抑制効果を移行係数 (Trasfer factor:TF)を用いて比較を行った。移行係数は以下のように定義される。

# 移行係数(Trasfer factor: TF)= 植物体乾重当たりの放射性セシウム濃度(Bq/kg dry)

# 土壌の放射性セシウム濃度(Bq/kg dry)

各ポット試験におけるコントロールの平均移行係数は0.0086(±0.0065)であった。この値は以前に 報告されたポット試験での移行係数0.116よりも若干低い値となった。現地試験ではコントロール において玄米への移行係数は0.006であり、過去の報告とほぼ同じ値となった(TF:0.008)。本研究で のポット試験と現地試験の移行係数は妥当な値であったと考えられる。

鉄と粘土を添加した処理条件において、移行係数は処理D(ポット試験2)(TF:0.010)と成長阻害が 認められた鉄+粘土処理(ポット試験5)(TF:0.64)をのぞき、処理C(ポット試験1)(1ヶ月後 TF:0.0075, 2ヵ月後 TF;0.0030)と鉄+粘土処理(ポット試験4)(TF:0.0076)はポット試験のコントロールの平均 移行係数(TF:0.0086)よりも低い値となった。処理D(ポット試験2)ではコントロールの平均移行係数 よりも高かったが、ポット試験2のコントロールの移行係数(TF;0.014)よりは小さかった。現地試験 では、鉄+粘土処理条件の移行係数(TF:0.013)は現地試験のコントロールの移行係数(TF:0.016)より も低かった。以上のことから、鉄と粘土添加処理によって土壌からイネの茎と葉への放射性セシウ ムの移行を抑制できると言うことが示唆された。

現地試験でのコントロールと鉄+粘土処理条件のもみ米と籾殻の移行係数を比較すると、茎と葉 の場合と違い、鉄+粘土処理条件の各移行係数はコントロールよりも大きかった。玄米の移行係数 に有意な差が認められなかった。洗浄土+鉄+粘土処理条件においては茎と葉、もみ米、籾殻、玄 米のすべてにおいて移行係数はコントロールよりも大きな値となった。以上のことから現地試験で は鉄+粘土添加による米(もみ米、籾殻、玄米)への放射性セシウムの吸収抑制は観察されず、また 洗浄土に鉄と粘土添加処理をした場合は放射性セシウム吸収抑制に逆効果であるということが明 らかになった。

放射性セシウムの吸収は植物の品種によって異なり、葉菜類、果菜類また穀類で高いとされてい る。本研究ではポット試験1、2、3ではヒトメボレを使用し、ポット試験4、5と現地試験ではアキ タコマチを使用した。それぞれコントロールの移行係数の平均はヒトメボレで0.0105(±0.0071)、ア キタコマチで0.0086(±0.0072)であった。両移行係数間には有意な差は認められず、現地試験とポッ ト試験では品種の違いによる移行係数の違いはないと考えられる。

	根	茎と葉	もみ米	玄米	もみ殻
コントロール	0.0490	0.0161	0.0012	0.0006	0.0011
鉄+粘土処理	0.1348	0.0129	0.0020	0.0007	0.0023
洗浄処理	0.0431	0.0100	0.0014	0.0007	0.0012
洗浄土+鉄+粘土処理	0.0761	0.0327	0.0042	0.0024	0.0053

表(1)-1 現地試験における鉄と粘土の添加がイネの各部位の移行係数に与える影響

## b. 逐次抽出

現地試験土壌のフラクション4(酸化物態)の抽出率はコントロールで5.0%,鉄+粘土処理条件は 3.8%、洗浄処理条件は4.4%、洗浄土+鉄+粘土処理条件は1.1%であり、鉄と粘土を添加した条件か らの抽出率は添加していない条件よりも低い値となった。フラクション4では鉄酸化物に吸着して いるセシウムが抽出されるとされているため、以上の結果からは、鉄添加によって生成された鉄酸 化物にはセシウムが吸着していないと言うことが明らかとなった。また非抽出性Csはコントロー ルで55.0%,鉄+粘土処理条件は58.9%であり鉄と粘土の添加により非抽出性Csの増加が確認され た。同様に洗浄処理条件は75.2%%、洗浄土+鉄+粘土処理条件は79.5%であり鉄と粘土の添加によ り非抽出性Csの増加が確認された。

ポット試験1、2ではフラクション2(イオン交換態)の抽出率は、鉄と粘土を添加した条件におい てコントロールよりも低い値を示した。またそれらの条件においては放射性セシウムの吸収抑制が 認められた。また現地試験においても鉄+粘土処理条件においてフラクション2の抽出率がコント ロールよりも低く、茎と葉への放射性セシウムの吸収抑制が認められた。イオン交換態のセシウム は植物による利用性が高いと考えられるため上記の結果は妥当であると考えられる。また鉄と粘土 の添加によりイオン交換態のセシウムの抽出を抑制することができ、結果として植物による放射性 セシウムの吸収が抑制できたと考えられる。現地試験の逐次抽出の結果を踏まえるとイオン交換態 にで抽出されるべきであったセシウムは鉄と粘土の添加により非抽出性Csに分画されたと考える 事が出来る。

![](_page_60_Figure_6.jpeg)

図(1)-58 鉄と粘土の添加におけるフラクション2(イオン交換態)の抽出率の低下とイネの 放射性セシウム濃度の関係

# c. ポット試験と現地試験の結果の違い-塩化第二鉄によるセシウムの抽出

ポット試験と現地試験の両方で塩化第二鉄を使用した。しかしポット試験では塩化第二鉄の溶液 を中和しオキシ水酸化鉄とした後に土壌に加えられた。現地試験では塩化第二鉄溶液を土壌に中和 する前に加えられた。その後、塩化第二鉄は土壌と一緒に中和処理を行った。本処理方法は農家自 身による処理方法を提案することを目的としているため、現地試験では中和の処理を別々には行わ ず、土壌に直接添加し中和処理を行った。現地の土壌は塩化第二鉄溶液によってpHが2.6まで低下 した。つまりこの状態は土壌のセシウムが酸性の条件によって抽出されている状態であると考える こともできる。そのため現地試験において鉄+粘土処理条件ではポット試験ほど茎と葉の放射性セ シウム濃度の減少率が大きくなく、また洗浄土+鉄+粘土処理条件ではコントロールよりイネ中の 放射性セシウム濃度が高くなった。洗浄土+鉄+粘土処理条件ではナノバブル水を含んだ洗浄土に 鉄を添加している。ナノバブル水は土壌中のセシウムの洗浄率を向上させるために漂白剤と重曹を 加えてある。そのためより土壌中のセシウムの洗浄率を向上させるために漂白剤と重曹を 加えてある。そのためより土壌中のセシウムが抽出されてしまったと考えられる。ポット試験4、5 は塩化第二鉄は現地試験と同様に、土壌に中和の前に加えられた。ポット試験4では鉄+粘土処理 条件においてイネの放射性セシウム濃度はコントロールよりも高く、ポット試験5においては洗浄 土+鉄+粘土処理条件のイネの放射性セシウム濃度もコントロールよりも高く、現地試験と同様の 鉄の添加方法を行ったポット試験4、5においても現地試験と同様の傾向が観察できたと言える。

# d. 放射性セシウムの吸収抑制のメカニズムー粘土によるセシウムイオンの吸着

土壌中の粘土のセシウムの吸着サイト量はイネによるセシウム吸収に影響する因子の一つであ る。 特にフレイドエッジサイトはセシウムの吸着選択性がカリウムの1000倍とされている。 しかし ながら現地試験において、バーミキュライトとベントナイトを土壌に添加したのにも関わらずセシ ウムの吸収抑制は観察できなかった。現地試験では塩化第二鉄の中和を粘土を加えた土壌と一緒に 行っているため、年度はイオン強度が高い土壌中に加えられていたことなる。そのため粘土の吸着 サイトが他の陽イオン、たとえばFe等で吸着されてしまい、Csが吸着されなかった可能性がある。 粘土の吸着サイトの量は陽イオン交換容量(cation exchange capacity:CEC)で表すことができる。ベ ントナイトのCECは一般に0.75meq/g程度であり、またバーミキュライトのCECは0.46meq/g程度で ある。現地試験では塩化第二鉄溶液は土壌に加えられ河川水中にFe<sup>3+</sup>とCl<sup>-</sup>として存在していた。 そして塩化第二鉄のcmol/kg は162.3/3mgで54.07mgである。土壌中の塩化第二鉄の濃度は 1000mg/100g(=2kg/土壤200kg)。ここでCECのFe<sup>3+</sup>による飽和度は以下のように計算できる。ここ で塩化第二鉄の濃度は1000(mg/100g)。ベントナイトのCECは74.6meq/g、バーミキュライトは 46.3meq/100g(1me=1cmol/kg)。従って、Fe<sup>3+</sup>による飽和度は14.7%となる。一方で10,000Bq/kgの土 壤中の<sup>137</sup>Cs<sup>+</sup> は20<sup>-9</sup> cmol/kg に相当する。この分の<sup>137</sup>Cs<sup>+</sup>が土壌に添加したベントナイトとバーミキ ュライトに吸着するとCECの飽和度は1.7×10<sup>-11</sup>%となる。つまり、もしFe<sup>3+</sup>が全て粘土に吸着され たとしても、まだ土壌中の<sup>137</sup>Cs<sup>+</sup> が吸着するサイトは十分に残っていたと言うことになる。また CECに占めるフレイドエッジサイトは2%程度であるとされている。従って、添加したベントナイ トとバーミキュライトのフレイドエッジサイトの量は121cmol/kgとなり、<sup>137</sup>Cs<sup>+</sup>が十分吸着できる 量のフレイドエッジサイトが存在していたこととなる。以上のことより添加した粘土の量はセシウ ムの吸着に十分であったと言える。また逐次抽出の結果では、非抽出性Csのが鉄と粘土の添加条 件で増加しており、この結果も粘土がセシウムを吸着した結果を表していると考えられる。

# e. 鉄酸化物によるセシウムの吸着

ポット試験と現地試験では粘土鉱物をセシウムの吸着剤として、鉄は微生物による鉄還元の元と して加えられた。鉄酸化物は負電荷に帯電しているため陽イオンのセシウムを吸着することができ るその吸着力は弱くイオン交換反応によって簡単にセシウムは脱着してしまう。そのためセシウム イオンの吸着は粘土鉱物だけではなく鉄酸化物によっても起こると考えられる。粘土鉱物のフレイ ドエッジサイト(FES)にセシウムが吸着するのには時間がかかると考えられるので、セシウムは粘 土鉱物ではなく鉄酸化物の表面に先に吸着していた可能性がある。ポット試験ではセシウムが粘土 鉱物と鉄酸化物に吸着し、結果としてイネのセシウム吸収抑制が起こったと考えられる。一方で現 地試験では鉄酸化物に吸着したセシウムが、ポット試験よりも長い栽培期間のため、脱着しその脱 着したセシウムがイネによって吸収されてしまった可能性がある。結果として鉄+粘土処理条件で はポット試験ほどのセシウム吸収抑制効果が観察できず、また洗浄土+鉄+粘土条件では土壌にセ シウムを洗浄する目的で使用されたナノバブル水が含まれている状態で、鉄を添加しており、より 多くのセシウムが抽出されており同時によりおおくのセシウムが鉄酸化物に吸着したと考えられ る。結果としてより多くのセシウムが脱着し、セシウムの吸収抑制が観察できなかったと考えるこ とができる。現地試験では鉄と粘土を同時に土壌に加えたが、鉄酸化物によるセシウムの吸着を避 けるために、先に粘土のみを添加したほうが適切だったかもしれない。

# f. 鉄還元による pH の変化

実験室による鉄還元菌(Shewanella piezotolerans WP3)の培養実験では培養に伴いコントロールと くらべてpHの増加が確認されている。本研究でも、現地試験において、鉄+粘土処理条件のpHが 実験終了時においてコントロールと比べて、初期のpHはどちらも同じだったのも関わらず、増加 していることが認められた。またSEMとXRD観察用のサンプルにおいても培養30日後のサンプル でコントロールと比較するとpHの増加が確認された。pHの増加は鉄還元とマグネタイトとシデラ イトの鉱物化に有利に働く条件であるとされている。そのため本研究の現地試験でも鉄還元に有利 な条件に変化していたと推察できる。しかしながら土壌と加えた鉄の比は1:100であったため、XRD で観察できるほどの量の鉄酸化物(マグネタイト、シデライト、ヴィヴィアナイト)は鉱物化して いなかったと思われる。

			рН
		初期pH (田植え前)	4ヶ月後pH (稲刈り後)
	コントロール	4.9	6.7
ᅚᄆᆊᆊᆕᅻᄩᆇ	鉄+粘土	5.1	7.5
北地动帜	洗浄土	4.9	6.6
	洗浄土+鉄+粘土	4.8	6.8
			30日後
ᅂᇞᇷᅘᅖᆊᆞᆛ	コントロール	-	6.2
SEMI 観奈用 リンフル	鉄+粘土	-	7.9

表(1)-22 鉄と粘土の添加による pH の増加

## g. 微生物による鉄還元反応を用いた放射性セシウム吸収抑制方法の可能性

放射性セシウムの吸収抑制は1ヶ月間においては観察できた。そのため本技術の1つの可能性としては、1ヶ月以内に収穫できる農作物においては本技術によって放射性セシウムの吸収抑制が期待できる。また茎と葉への放射性セシウムの吸収抑制は1ヶ月と4ヶ月後にも観察された。従って鉄と粘土を添加する本技術は葉菜類や茎菜類に対する放射性セシウムの吸収抑制に効果的であると考えられる。特に葉菜類の移行係数(0.049)は玄米の移行係数(0.0047)よりも高いといった報告がある(Tsukadaら 2007)。なので本技術は葉菜類により効果的であると考えられる。しかしながら鉄添加後の洗浄が不十分であると、鉄添加によるECの増加により植物の成長阻害が起こるため、本技術は農作物にはあまり適していないかもしれない。

もし微生物による鉄還元と鉱物化が、我々が期待したとおりに放射性セシウムと起こったとする と、放射性セシウムの吸収は、特に現地試験において、より抑制されたと考えられる。本研究から は微生物による鉄の鉱物化はXRDなどによっては観察されなかったが、放射性セシウムの吸収抑 制は観察された。そのためもし鉄の鉱物化が観察されるほど起こっていたとしたら、より放射性セ シウムの抑制が起こり、非抽出性Csの分画が増加すると考えられる。しかしながらイネは鉱物に 強く固着したカリウムを吸収できることが知られており、セシウムの場合も同様に、鉱物に強く固 着しているセシウムも吸収できると考えられる。そのため本技術はイネよりも、鉱物に強く固着し ているセシウムを使うことができないと考えられる他の植物に対してより有効であると考えられ る。

処理から4ヶ月たった土壌でも、セシウムの抽出性は鉄と粘土の添加によって抑制することができ、特に洗浄土に対しては鉄と粘土の添加によって非抽出性Csの分画がコントロールと比べて大幅に増加した。従って本技術は、汚染土壌の保管施設等からの二次汚染を防ぐために汚染土壌に対して適用できると考えられる。

#### h. 今後の課題

鉄を添加した土壌からのセシウムの抽出性の時間的変化、特に鉄を添加した直後の土壌からのセ シウムの抽出性を、セシウムが土壌もしくは鉄酸化物にどう吸着しているのかを明らかにする必要 がある。

現地試験ではポット試験とは鉄の添加と中和の順番が異なったため、イネのへのセシウム吸収が 抑制ができなかったと考えられる。しかしながら、セシウムの抽出性は低下しているため、ふたた びこの土壌でイネを栽培すれば、イネのセシウム吸収が抑制できると考えられるため、再び現地試 験もしくは現地試験土壌を用いてイネの栽培を行う必要がある。

#### 5) 放射性セシウムのイネ移行性に対する抑制効果に関するまとめ

微生物による鉄還元と鉱物化反応を用いた土壌からイネへの放射性セシウム吸収抑制効果をポ ット試験と現地試験と土壌のセシウム逐次抽出実験より検証した。土壌からイネの葉と茎への放射 性セシウムの移行は鉄と粘土の添加により抑制することができることがポット試験と現地試験よ り認められた。しかしながら、現地試験土壌のセシウムの抽出性が低下しているのにも関わらず、 現地試験では土壌から米へのセシウムの移行を抑制することができなかった。セシウムの吸収抑制 と土壌pHの増加は観察されたが、微生物反応による鉱物を観察することはできなかった。玄米中 の放射性セシウム濃度は処理をしていなくても基準値以下であった。

#### (8) 開発技術のコスト評価

図(1)-58に汚染レベルの異なる水田土壌での推定される除染コストを示す。1経営体が所有する 1.6ha当たりの場合では、この値を16倍する。除染コストの内訳は、除草用、除染用、追加除染(客 土用)、廃棄土処理用の4つで示した。汚染初期値5,000Bq/kgでは反転耕で、汚染初期値10,000Bq/kg では表土剥ぎ取りで最もコストが小さくなった。初期値によらず水による土壌攪拌・除去で最もコ ストが大きくなった。この結果は、農林水産省が示した、技術の推奨基準(5,000Bq/kg以下の農地 には反転耕を、10,000Bq/kg以上の農地には表土剥ぎ取り)に一致する。

除染コストの内訳は技術ごとに大きく異なった。表土剥ぎ取りでは、効率よく放射性セシウムを 除去できる一方で大量の廃棄土が発生するという特徴通り、他の技術での除染用と客土用の合計よ りも大幅に除染用のコストが小さく、廃棄土処理用のコストが最も大きかった。水による土壌攪 拌・除去では、表土剥ぎ取りのはたべ大幅に廃棄土を減らすことができるという特徴通り、廃棄土処 理用のコストは表土剥ぎ取りの場合での20%前後であった。一方で、除染効率を上げるためには繰 り返し複数回の実施が必要であり、初期値によらず10回以上実施したことで除染用のコストが増大 した。しかし実際は、3回以上の実施から土壌のセシウム濃度はほとんど減少しない(農研機構, 2012)。そのため、10回以上実施するという計算は非現実的であり、また4回目以降の除染用のコ ストが過大に評価されていると考えられる。反転耕では、廃棄土が生じないという特徴通り、廃棄 土処理用コストが最も小さかった(除草に伴い発生した草木類の廃棄物処理用のコストのみを計 上)。一方で、除染率が低い為、客土用のコストは最も大きかった。本開発技術である固定化・洗 浄処理では、少水量で高い浄化率が得られるという特徴通り、水による土壌攪拌・除去に比べ除染 用のコストは著しく小さかった。また、この除染用のコストの3分の1程度(130万円程度)が放射 性核種の固定化処理コストであるため、洗浄コストは非常に小さいといえる。

初期値間の比較では、土壌中のセシウム濃度が大きくなることで、技術間の順位が入れ替わった。この要因は、追加除染の客土用のコストである。初期値10,000Bq/kgでは除染完了値に達するために90%の低減率が必要であるため、反転耕と固定化・洗浄処理の除染の場合は、除染に加えて大量の客土が必要であった(客土量:反転耕502.2m³/10a、固定化・洗浄処理255.4m³/10a)。一方で、表土剥ぎ取りでは剥ぎ取り厚さを増大させることで、低減率を大きくすることができるため、客土用のコストは不要であり、剥ぎ取った廃棄土処理用のコストが20%程度増大するだけだった。

![](_page_64_Figure_5.jpeg)

図(1)-59 水田 10a 当たりの除染コスト(左図:初期値 5000Bq/kg、右図:初期値 10000Bq/kg) (除染技術は各々、A 表土剥ぎ取り、B 水による土壌攪拌・除去、C 反転耕、D 固定化・洗 浄処理、E 除染なしを示す。)

## 5. 本研究により得られた成果

# (1)科学的意義

- 1) 漏水水田に対する処理技術:名古屋大学附属農場の漏水水田(透水係数 10<sup>-4</sup> cm/s)を対象として、土壌微生物の持つウレアーゼ活性を、ベントナイト(目の粗い孔を防ぐ)、塩化カルシウム、尿素(カルサイト形成)およびコーンスティープリカー(微生物基質)を加えることによって、微生物活性の低い冬期でも透水係数を低下させ、水田で理想的と考えられる透水係数 10<sup>-5</sup> cm/s~10<sup>-6</sup> cm/s を 1 ヶ月程度で達成できることを明らかにした。これによって、粘土粒子の移行による放射性セシウムの輸送を防ぐことが可能となった。
- 2) 鉄酸化物の効果の評価:水田土壌に広く存在する鉄還元細菌を使って、強還元条件下で鉄酸化物を還元可溶化し、可溶化鉄(II)と土中の陰イオン、あるいは可溶化鉄(II)と酸化鉄の化学反応により不溶性のシデライトやマグネタイトを生成させ、土壌粘土のコーティングすることを試みた。コーティングは、シデライトが土壌粘土の中でもバーミキュライトで見られる一方、ベントナイトに対するコーティング効果は低かった。反応期間に長期を要することが示唆された。
- 3) 植物移行試験:土壌中の放射性セシウムは、バーミキュライト、ベントナイト、鉄酸化物を 用いた処理によって抽出されない形態(イネ移行しない画分)となることが明らかとなった。 この効果は、イネポット試験(1-2ヶ月)で確認された。しかし、野外試験(4ヶ月)での玄 米への移行性に対しては、無処理土でも移行性が低かった(基準の100Bq/kg未満)ため、有意 な効果が観られなかった。2年以上が過ぎ、水田土壌に降り注いだ放射性セシウムは既に強 固に吸着して植物吸収率が低下したのかもしれない。なお、処理時に土壌を酸性化すると、 イネ移行性がやや高まったことから、処理時のpHには注意が必要である。
- 4) サブテーマ 2の成果と組み合わせて、5,000Bq/kg 程度の放射性セシウムで汚染された水田 土壌であれば、農家がトラクターで行える安価な水田再生技術を開発した。その工程は以 下の様である:(i)漏水の大きな水田の場合は微生物によるカルサイト形成による漏水防止 処理を下層土および畔畦に対して行う。(i i)水田表層土5cmをトラクターで剥ぎ取る。(iii)

灌漑水路から水田に引き込 む水口で 50cm 以上厚さの ある木質チップ槽によって 放射性セシウム付着懸濁物 をろ過して取る (99.9%以上 の除去率)、(iv)チップ槽浄 化水から高浸透性水(ナノ バブル水を酸性化した物) を作成し、剥ぎ取り土壌の 洗浄を行う(洗浄効率 30% の代掻き洗浄~洗)刺率 80%の洗浄-沈殿槽からなる 洗浄装置)。(v)洗浄土壌の粘

![](_page_65_Figure_8.jpeg)

土・鉄処理(バーミキュライト、ベントナイト、コロイド酸化鉄)による残留放射性セシウム の土粒子内への封じ込め反応実施(これは半年以上養生した方が良い)。

5) また、当初の目的に付随して、農地の除染を行っても空間線量は下がらないことから通 い農家の形態をとって農業を再開することしかできないことが示唆された。また水中の 懸濁物の放射性セシウム汚染レベルが高く、土壌を除染しても山林から流下する懸濁物 によって再び汚染される可能性が明らかとなった。住民が戻るためには、空間線量の原 因となっている山林を削って谷を埋めるような大規模土木工事を行う必要があること が示唆された。

#### (2) 環境政策への貢献

#### <行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

# <行政が活用することが見込まれる成果>

現在、緊急課題となっている福島県相馬郡飯舘村の水田の除染に対し、現地の住民を活かした除 染の進め方に関して研究開発を進めるとともに意見交換を行い、放射性セシウム汚染農地の復興政 策への選択肢を用意した。このサブテーマでは、特に以下の点の活用が見込まれる。

- 1) 無処理土壌でもイネへの移行性が低いことから、水田汚染レベルが 10,000Bq/kg 程度までは 無処理で水稲栽培しても玄米中の放射性セシウム濃度が基準(100Bq/Kg)を超えることは 殆ど無い。即ち、作付け条件をゆるめても良いことが示唆される。ただし農地除染しても 空間線量は低下しないので、農家自身の外部被曝を低下させるために通い農業の形態が良 いと考えられる。また、収穫物の全量検査態勢を確立し、規定の線量未満のものだけを出 荷することができる体制を整なければならないと考えられる。
- 2) 汚染土壌を農地外に持っていくのではなくて、農地の土粒子自体に封じ込めることによって、廃棄土壌の排出量の減量化を行う事ができることが明らかとなった。汚染土の処理という2次的問題を小さく出来るので、税金投入量が少なくてすみ、地元農家の早い帰還に繋がることが期待される。

#### 6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

## 7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

#### <論文(査読あり)>

特に記載すべき事項はない。

<その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない。

# (2) 口頭発表(学会等)

- Akatsuka, T., Suzuki, D., Eryürük, K., Tsuchiya, T., Yang, S., Takasaki, M., Fukushima, M., Abe, T., Usui, T. and Katayama, A. Horizontal and vertical profiles of radiocaesium in a contaminated paddy soil due to Fukushima nuclear power plant accident, First International Symposium on Advanced Water Science and Technology (ISAWST-1), November 11-13, 2012, Noyori Conference Hall, Nagoya University, Nagoya, Japan (poster)
- Yang, S., Eryürük, K., Akatsuka, T., Suzuki, D., Sawada, K. and Katayama, A. Comparative study on the methods to decrease Strontium bioavailability 第 12 回アジア太平洋廃棄物専門家会議 (SWAPI)、於:中央大学2013年2月26-28日
- Eryürük, K., Yang, S., Akatsuka, T., Suzuki, D., Tsuchiya, T. and Katayama, A. Reduction of hydraulic conductivities of glass beads using *Sporosarcina pasteurii*, Water and Environment Technology Conference 2013, Tokyo University of Agriculture and Technology, Koganei, Japan, (Hybrid)15-16 June 2013
- Tsuchiya, T., Akatsuka, T., Yang, S., Eryürük, K., Suzuki, D., Takasaki, M., Sawada, K., Fukushima, M., Abe, T., Usui, T., Katayama, A. Suppression of bioavailability of radioactive Cesium from soil to rice plants, International Symposium on EcoTopia Science 2013, December 13-15, Nagoya, Japan
- 5) Akatsuka, T., Yang, S., Tsuchiya, T., Eryürük, K., Suzuki, D., Sawada, K., Takasaki, M., Fukushima, M., Abe, T., Usui, T., Katayama, A. Decrease of the plant-available radiocaesium using the iron compounds and clay minerals of 2:1 layer type, International Symposium on EcoTopia Science 2013, December 13-15, Nagoya, Japan (poster)
- 6) Eryürük, K., Akatsuka, T., Suzuki, D., Tsuchiya, T., Yang, S. and Katayama, A. Determination of Physical Characteristics of Contaminated Soil of a Paddy Field in Fukushima Prefecture, International Symposium on EcoTopia Science 2013, December 13-15, Nagoya, Japan (poster)

#### (3) 出願特許

片山新太、赤塚徹志、Kagan Eryuruk、楊素銀、澤田佳代、土屋貴之、鈴木大典: 特願 2013-199193
(2013 年 9 月 26 日出願)「金属元素の封じ込め方法」出願者:名古屋大学

# (4) シンポジウム、セミナー等の開催(主催のもの)

 名古屋大学オープンレクチャー「放射能汚染土のはなし」2013年3月20日、名古屋大学 理学部坂田平田ホールおよび環境学研究科(片山新太、澤田佳代、鈴木大典)

(オープンレクチャー全体では 250 名、本分科会では 30 名が参加)

# (5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

(6) その他

特に記載すべき事項はない。

# 8. 引用文献

特に記載すべき事項はない。

# (2) 放射能汚染土壌の飛散防止と洗浄に関する生物処理実用システムの開発

石卷専修大学理工学部

高崎みつる

<研究分担者>

石巻専修大学理工学部

福島美智子・阿部智顕

<研究協力者>

石巻専修大学理工学部

臼井利典

平成24~25年度累計予算額:25,413千円

(うち、平成25年度予算額:12,626千円)

予算額は、間接経費を含む。

#### [要旨]

土壌-水比を1~3程度で放射性セシウム汚染水田土壌を効率よく洗浄できる方法を確立した。 本技術の特色は、水田土壌セシウム洗浄・脱着に、高浸透性水(弱酸性ナノバブル水)を用いて洗浄 水量を少なく洗浄できることを可能にした点にある。代掻き除染では30%程度、洗浄-沈殿槽を用 いれば80%程度の除染効果が得られた。この高い効果は、放射性セシウムが吸着した微細粒子ごと 洗浄水として捨てる分級を組合せたことによって達成された。また、現地の灌漑水を、現地木材チ ップ(50cm厚)でろ過すれば、現地用水路中に含まれる放射性セシウム汚染懸濁物を除去するこ とができ、それによって土壌洗浄用の高浸透性水を作成することが出来る事が確認できた。また、 土壌洗浄水も沈殿槽と木質チップろ過槽を通すことで、除染水田から用水路に戻すことなく処理出 来ることもわかった。本技術は、除染後の水田土壌を水田へと還元するが、除去できなかった残留 放射性セシウムが作物へ移行することを抑止する微生物鉱物化手法と組み合わせたこと、などが特 徴となっている。木質系チップ濾床の効果は、セシウムの流域内再汚染を効果的に抑止するだけで なく、里山と山林の生態系保全と、環境保全を考え、除伐・間伐を除染工程に組み入れている点に も特徴がある。

微細濁質粒子として、空気洗浄と逆流洗浄を合わせた浮上分離での微細濁質分別を行った後の処 理で鉄系凝集剤を用いた沈降分離効果は既往の実績に頼った。土木工事では沈降性の悪い土壌由来 高濁度水処理に鉄系凝集剤を用いた沈殿槽での重力沈降がよく使われてきた。その効果を取り込む ことで、高濃度セシウムの洗浄・脱着効率は著しく上がった。

一方、分級洗浄に伴う越流水や土壌上澄み排水中のCs含有微細濁質処理には課題が残った。現 在行き先の定まらない除染後仮置き土も大幅減容は可能だが、どこまでCs汚染土壌減容が出来る か、これは今後の課題として取り組む必要がある。

[キーワード]

放射性セシウム、高浸透性水、土壌洗浄、木質チップろ過、微細懸濁粒子

# 1. はじめに

福島原子力発電所から飛散したセシウムやストロンチウム等の放射性核種によって広範囲に放 射能汚染土壌が生じ、この対策が急務となっている。これまで重金属汚染農耕地(例:カドミウム 汚染水田)では排土客土による対策がとられてきたが、土壌の確保が難しいことから、客土を伴わ ない方法による農耕地再生方法の確立が求められている。同時に、放射性核種で汚染された排土の 大量発生も大きな問題となっており、排土量の少ない対策が望まれている。さらに、現地では完全 な土壌除染は難しく、残留する放射性核種の2次的拡散の防止も望まれている。社会経済的には、 大手ゼネコンによる大がかりな除染を実施しても、除染はしたが肥沃度の低下した土地が農家に返 されるに過ぎず、農地再生を実施する農家に別の経済的援助が必要となるという課題が残る。その ため、農家自身で農地除染を行うことによって、除染費用が農家に渡る仕組みも必要となっている。

そこで、本研究では、農家がトラクターと簡易な装置程度を用いれば実施出来る除染および水稲 (イネ)移行抑制技術の開発を行うこととした。これまで放射性核種の汚染水田におけるイネ移行 試験は、1960年~1970年代の核実験フォールアウトの影響評価の研究で実施され(渋谷政夫編「土 壌汚染の機構と解析」産業図書、東京、1979)、ストロンチウムは作物吸収され易いこと、セシウ ムは通常は土壌(特に粘土画分)に固定化されるが水田条件では、アンモニウム態窒素がセシウムと 置換し、セシウムが遊離してイネに吸収されることが明らかにされている。そこで、植物移行性の 高い放射性核種を粘土画分とともに洗浄除去し、洗浄後に残留する放射性核種を微生物鉱物化反応 によって固化(固定化)して、放射性核種のイネへの移行を防ぐ技術を開発することを目的とした。 本申請研究で用いる洗浄・固化反応は、これまでに部分的には開発されているが、それらをシステ ムとして実農用地に応用した例は無い。従って、現地で適用する上で必要な仕様(洗浄効率、水田 肥沃度への影響、イネへの低移行係数)を達成するための条件を明らかにすることを目的とした。

このサブテーマ「放射能汚染土壌の飛散防止と洗浄に関する生物処理実用システムの開発」では、 土壌中にある放射性核種を効率よく除染する洗浄方法の開発を行った。また、同時に、そこで用い る洗浄水の確保の手段の確立を行った。

#### 2. 研究開発目的

本研究では、汚染土の飛散防止、洗浄、固化(放射性核種の固定化)処理を行う生物システムの 実用化開発を行って、現地土壌を農耕地として再生することを目的としている。本生物処理システ ムは(a)原位置処理が可能で、(b)従来の農作業に沿った工程によって実施可能であることの2点を満 たすように開発し、農家が自身で浄化を可能とするものである。

このサブテーマでは、高浸透性水を利用した高効率の現地土壌洗浄法を開発するとともに、洗浄 液を浄化するための木材チップや粘菌等の微生物を用いた洗浄システムを開発し、散逸を防止する 方法を確立することを目的とする。

## 3. 研究開発方法

#### (1) 土壌抽出洗浄工法の設計と最適化に関する実証実験-室内試験

#### 1) 実験目的

![](_page_71_Picture_1.jpeg)

図(2)-1 実験対象 飯舘村佐須水田(未耕作地)

実験は福島県飯舘村北部の佐須地区で行った。当地は原発事故後の避難地区に指定されている 農地は何代もの所有者の努力の歴史の中で作られた貴重な『土壌』であって、その重要性を尊重 することを基本としたものである。このような除染方針の設定で、実験の先に見いだす除染の工法 とその最適化技術では、極力『耕作土を圃場に戻す』となった。この方針は、放射線汚染土壌の除 染作業/洗浄&脱離を終えた後の処理後の土に対しても同じ考え方で処理出来る可能性を持つも とである。土壌は、それ自体農家にとって非常に大切なものである。今回の被災と事故では津波被 災のエリアも含め、広範囲に『土』不足が懸念されている。

環境省はH24年1月に「除染に伴う除去土壤等の量と減容化に関する質問主意書」を提出し、その中で、除染対象となる場所を「追加被曝線量年間5ミリシーベルト以上」とした場合福島県内の 汚染土壌量は9000万立方メートル、除染対象となる場所を「追加被曝線量年間1ミリシーベルト以 上」とした場合汚染土壤は4億立方メートルと概算できる、と記述されていることを根拠としてい る。これは表層5cmを対象として算出している。

このような背景と経緯を踏まえ、実証実験では、

- 除染作業に必要な投入エネルギーを極力減らす
- 除染作業を凍結期以外も行え、除染処理速度(土量)の大きなスケールアップ可能なシス テム構築

を目的とした。

#### 2) 試料と方法

## a. 土壌試料の準備

実験対象の水田は原発事故後から1年以上耕作放棄されていた。周辺を里山に囲まれた場所で、 実験開始時の空中線量は2µシーベルト(S)/hから3µS/hの範囲だった。土壌の放射線量は地表面から 3 cm の深さまでの表層で28700Bqkg<sup>-1</sup>(<sup>137</sup>Csのみの測定)、10cm以深では10 Bqkg<sup>-1</sup>オーダまで放射線 量の下がる分布を示していた。試料土壌は、雑草を刈り取った後の水田から人力で表層2-3 cm程 度を丁寧に採取した試料(土壌試料1)、と、トラクター剥ぎ取りの表層土のものを用いた(土壌 試料2)の二つとなる。採取した土壌は、300g程度の場合、初期値のバラツキが大きく、実験効果 の比較が困難であった。その為、撹拌用ミキサーで十分な撹拌(約1時間)を行い、試料として用 いた。




図(2)-2 土壤試料採取水田

図(2)-3 土壌表層の剥ぎ取り(深さ最大 5cm-2cm の例)

#### b. 高浸透水性の作製

実験に使った高浸透性水は、実験対象の水田に隣接した農道横を流れる真野川の水をポンプで汲み上げ、図(2)-4に示すヘッドタンクに移し河川中を流れてくる微細濁質の影響を重力沈降で取り除き(1昼夜重力沈殿)、その後、図(2)-5に示す高機能水製造装置によって作成した。



図(2)-4 ヘッドタンク



図(2)-5 高機能水製造装置

pHは7.0-7.8で水温(10月)は10℃であった。真野川の水を用いて作製した高浸透性水だけによる水 素イオン濃度変動の影響を検討した。また、高浸透性水をベースに、クエン酸、家庭用洗剤オレン ジオイル等を添加した洗浄水を作製して、洗浄効果を調べた。

## c. 高浸透性水による洗浄試験-室内試験

実験土壌として、飯舘村雑木林の表層を採取し、小枝と落葉を篩い分けた後実験に供した。前 処理として、あらかじめ105℃で12時間乾熱滅菌を行い、土壌中の生きた微生物の影響を排除た。 それから、エックス線用フィルムを感光させた。処理後のエックス線用感光フィルム感光レベルは [22210]を示し、これを初期値とした。

一方、汚染土壤10gをシャーレに採り、比較系以外の3系は高機能水で水分供給を行う。これは、 土壌に加える粘菌が乾燥に弱い為、細胞性粘菌活性低下を防ぐ為である。実験系は4系で、各系は 7日間静置を行った。 系1;高浸透性水で水分供給し土壌、系2;死滅させた細胞性粘菌セルを加 えた土壌(粘菌細胞外壁に付着する多糖類などがセシウムを吸着する可能性を見る)、系3;生き た細胞性粘菌セルを加える、系4;比較系 水道水洗浄。操作は、図1に実験全体のフローズを示 す静置7日後の各系土壌を、遠沈管に取り高浸透水を加え軽く浸透させ、その後3000rpm 30分の遠 心分離後に上澄みと土壌部を取り出した。

上澄みを濾過し細胞性粘菌をろ紙上に補足し、ろ紙と洗浄後の土壌を105℃で2時間乾燥後、土 壌試料を各々5g取り出した。エックス線用感光フィルムは湿気が誤差になるため、ろ液は吸着シー トに1日漬け105℃、2時間乾燥した。乾燥後、暗室にて6日間フィルムを感光させ、画像処理し、画 像処理ソフトで各実験系の感光レベルを測定した。



図(2)-6 実験のフロー図

#### d. 細胞性粘菌の効果

粘着性の強い水田土壤は、含水率によって『密な粘土状の粘土状団子塊』を造る。これは原発事 故以降耕作されていない半乾燥状態の水田表層土の特徴でもある。すでに良く知られているように、 土壌へのセシウム吸着・付着は土壌表層近傍の微細粒子に特徴的に多く確認されてきた。剥ぎ取り 作業や撹拌、分別作業中、粘土状の粘土状団子塊が出来ると微細粒子を粘土状団子塊から分離、分 散させることは容易でない。除染効率を上げるには、洗浄水と接する土壌の比表面積を上げたいが、 粘土状団子塊はそれを阻害する。ここでは、細胞性粘菌のもつ特異な粘土状団子塊の分散効果に着 目し、工学的応用が可能か実証実験前に検証することとした。予備実験は、飯館村佐須地区の実験 土壌を試料に、実験系1;土壌に河川水を掛けた系、実験系2;土壌にペプトン主体の培地だけを 掛けた系 実験系3;実験系2に細胞性粘菌を散布した系で土壌状態の変化と土壌の柔らかさなど の手応えを(感覚的に)比較した。

次に、土壌分散効果を数値で表し評価を行った。本学(学校法人専修大学、石巻専修大学)では 大学定める規定により、学内への放射性汚染土壌等の持ち込みは禁じられている。そこで実験に用 いる土壌を放射線汚染土壌では無く、普通の土壌とした。ここでの実験目的は、細胞性粘菌などに よる土壌の分散効果確認である。粘土状団子塊形成要因は、土壌の微細粒子と含有水分であって、 目的へのアプローチ方法に放射線の有無は無関係であり、現地土壌で実験を行わなかったことが土 壌分散への細胞性粘菌などへの関与を探る上で、矛盾したものにはならない。実験系は3系で、系 1 は蒸留水を用い、土壌へ水分を供給、系2は細胞性粘菌効果の比較系で、粘菌培養液のみを土壌 に供給し、土壌中で発生する微生物の影響を受ける系とした 系3は、細胞性粘菌を培養液ととも に土壌に散布した系とした。10ml程度の土を9サンプル採取し、これにそれぞれ3つずつ、

実験系1;約10mlの蒸留水、

実験系2;細胞性粘菌用の培地であるHL5(組成は別記)、

実験系3;HL5中に約1×10<sup>7</sup>cells/mlで細胞性粘菌が懸濁された細胞懸濁液を加えたもの を用意した。各実験系はそれぞれ直径9cmのシャーレに入れ、遮光して(暗条件)、20℃で2週 間の培養を行った。培養後、試料を50mlの遠心管に移し、蒸留水を約10ml加えて激しく振盪した 後、6時間遠心管を垂直に立てて静置した。沈殿の様子を撮影し、土壌の分散化は沈降土壌表層部 (微細粒子部)と沈降土壌下層部(微細粒子以外)とに分離した総厚を測定し比較した。なお、培

地組成は以下の通りとした。

培地組成(HL5の組成)

HL5 (Axenic Medium) (1 liter) Stock Center Recipe

5 g proteose peptone, 5 g thiotone E peptone, 10 g glucose, 5 g yeast extract, 0.35 g Na<sub>2</sub>HPO<sub>4</sub>·7H<sub>2</sub>O<sub>5</sub> 0.35 g KH<sub>2</sub>PO<sub>4</sub>, 0.05 g dihydrostreptomycin-sulfate

#### (2) 現地土壤除染実証実験-設計と最適化

#### 1) 現地除染実証実験の全体アウトライン

飯舘村佐須地区での除染実証実験に先立ち、現実に実行することを前提に具体的な除染イメージを想定した。この基本イメージは、セシウム洗浄・脱離を高浸透性水ベースに進めるといった本 業務内容の特長を最大限に生かす上で大切になってくる。

高浸透水性の役割を整理すると以下のようになる

- 土壌微細粒子の深さ方向粒径分布の速やかな分散促進 土壌の撹拌しやすさを支える
- 微細粒子相互間への洗浄水の侵入、浸透促進効果
- 洗浄に用いる助剤や洗浄液の溶かしやすさと、洗浄溶液利用の際の土粒子表面のセシウムとの接触効率の促進効果

放射性セシウム分布は、土粒子サイズの小さな画分にセシウム吸着しやすい。佐須地区での現地 実測データでも、後述するように放射性セシウムは、土壌のごく薄い表層部に集中的に吸着し、放 射性セシウムを多く吸着する微細濁質は少ないことがわかった。除染後の粒径の大きな土壌は農地 へ還元できる可能性が示されている。

除染作業で作業する側からの目線で無く、被災地住民の目線から見ると、水田も畑も「耕作土壌 は大切な宝物」である。この被災地住民、特に農地除染で対象となる農家の目線では、「耕作土壌 をなるべく失いたく無い」といった気持ちは本音でもある。以上の観点から、本業務で行っていく 除染実証実験の目的は以下のように設定した。

○ 除染後に土壌表層近傍の大切な肥沃土を再度安全に水田に戻せること

この目的を可能にする除染システム構築の基本は、以下のようになる。

○ 高濃度放射性物質(セシウム)吸着微細土壌粒子の選択的除去と液相への効率的な移動

#### 2) Cs 付着土壌の分級操作時の浮遊懸濁物(SS)浮遊助剤と潤滑(滑り)効果の影響に関して

# a. 概要と目的

高浸透性水によって土壌付着Csを分級することで除染を進めようとする手法は、昨年度報告書で その概要と結果を記した。本年度は、昨年度実績に基づいた分級に関与する影響要因として、発泡 性のある液相中での微細濁質浮遊分離効果の検証と、液相と混合した土壌粒子の滑り易さを助け、 土壌粒子に付着した微細な土粒子を剥がし易くする潤滑(滑り)効果への展望をはじめに検討した。

これは、大気中から来たCsの土壌付着の順序は、最初にサイズの大きな団粒構造を持つ土壌粒 子表面にいきなり付着することは考えづらいと思えたからである。サイズの大きな団粒構造を持つ 土壌粒子表面には、微細な径の土壌や、フミン質等の微細粒子が付着していると考えられる。吸着 し易さ順番を考えると、比表面積や構造的にCs吸着の要因が揃っていて、サイズの大きな土粒子 よりCs吸着により有利な微細濁質がCsを受け取ると思える。この過程は実際現地土壌の観測に基 づく粒径別環境調査の結果からも支持されている。 このような状況で、高浸透性水での撹拌洗浄操作で、何故Csの減少が起こったか考えると、以下の様な仮定が生まれる。

- i. 本質的な除染ではなく、土壌中で Cs 含有微細濁質の分離(分級)効果で見掛け上放射能 が減少した
- ii. 高浸透性水は、粒子間に浸透し易い為、サイズの大きな土粒子表面に付着した微細な粒子との間に水が浸透し、電気的・物理的に相互粒子間の結びつきが弱くなり、より低い粘性係数でも動き易い微細粒子が流され、洗浄水中へと分離された

#### 等である。

このような仮定の延長に立つと、サイズの異なる土粒子間の剥離を促進する効果には、潤滑作用 のある成分が有効で、これは殊にケイ素やカルシウムなどのへの洗浄効果のある成分が有効であろ うと考えられる。この条件で、安価な材料にはクエン酸(C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>7</sub>)が適合する。洗浄の過程で重 要な粒子表面に働く渦動粘性や、粒子本体を動かす粘性係数も重要になる。これには小さな泡と上 向流を伴う泡の両方が有効と思える。微細気泡効果の検証は出来なかったので、ここでは炭酸ガス による発砲によって、微細濁質の浮遊を助ける手法を試した。 微細濁質に多く付着している(と 思える)Csを剥離させ、分級するシステムの基礎概念の検証は、洗浄工程で土壤微細粒子を反応 槽からの越流によって1次工程は終了する。

# b. 実験方法

分級操作時の浮遊懸濁物(SS)浮遊助剤と、潤滑(滑り)効果の影響を検討する実験系として、 以下のような系を用意した。

1系:高機能水に SS 浮遊助剤の炭酸と、潤滑剤としてクエン酸を加えた系

2系:高機能水に炭酸を加えた系

3系:高機能水に潤滑剤としてクエン酸を加えた系

4系:高機能水のみ

実験時の固-液比は1:1とし、水の相対量は少ない。佐須試験水田の表層土を各実験系に予め 2L ずつ入れ、その後実験条件の洗浄水を2L ずつバケツに入れて後洗浄撹拌を行った。洗浄撹 拌は柄付き風呂撹拌棒で行った。1回の洗浄(撹拌)時間は1系当たりおよそ5分で、1系から 4 系全ての洗浄(撹拌)終了後、およそ10分静置時間後の高濁度懸濁水(上澄み)を、横から 試料の層状態を見ることの出来る別容器に受け、その沈殿物(約数時間から12時間後の沈殿) を試料として採取しCs分析に供した。

試料は、沈殿物表面(極薄い1mm以上、2~3mm 未満の粘土状細粒土壌)とその下の層の2 層に分けてサンプリングを行った。試料採取にはスパーテルを用いた。薄層採取は沈殿層の成層 状況を観察しながら注意深く行い、採取後試料はU9カップに保存した。表面試料の採取に引き 続き、表面すぐ直下の沈殿物層の採取物もU9カップに保存した。

それぞれの実験系では、洗浄撹拌操作後の高濁水懸濁状況は異なっていた。大きく分けると、 沈降性が悪く微細濁質の多い群が、高機能水に潤滑助剤としてクエン酸を加えた系だった。沈降 性の良い群は、クエン酸を加えていなかった実験系となった。

3) 分級操作(撹拌洗浄)固-液比の検討

## a. 概要

水田等のCs含有土壌の除染洗浄システムを構築するには、幾つかの角度からシステムの整合性 を判断する必要がある。その中の一つに、線条体焦土と洗浄液の割合、固-液比がある。 研究に おいては、固-液比の比較は質量で行われているが、実際の作業では土壌の含水率は天気状況や季 節などで容易に変化し、しかも全体的に同じような土壌として扱うことの出来ない、泥団子の形成 も深刻な課題になる。

ここでは、上記課題を反映し、分級操作(撹拌洗浄)工程で分かり易い目安となる、容積で表現 した「固-液比」で扱った。しかし容積で表現した「固-液比」は、液相側が大きく変化しない のに比べ、固相側の質量/容積の変化が大きい。この実験では、剥ぎ取り除染対象となる0cm から5cmの水田表土を剥ぎ取り、風乾で扱い易い状況の土壌を対象に実験を進めている。実験使 用土壌の含水比は(室内乾燥土壌と試料土壌の比較で)、およそ28%から32%であった。試料 の含水比は、試料採取深さで異なっていた。

#### **b.** 実験方法

「固-液比」の変化と撹拌洗浄後土壌中のCs変化の比較実験は、『2-2。 Cs付着土壌の分級操作 時のSS浮遊助剤と、潤滑(滑り)効果の影響に関して』の結果を参考に進めた。先の実験では、 2013年度までの実験で可能性が示された「固-液比」1:1での分級操作(撹拌洗浄)を行って来 た。ここでは、「固-液比」を「1:1.5」、「1:2」、「1:3」、「1:4」に調整した。「固-液比」の分級操作=撹拌洗浄効率への影響評価は、1回洗浄後の土壌中残留Csを対象にCs除去率と、 2回洗浄後のCs除染率で比較した。実験開始時の室内乾燥条件下での乾燥土壌放射能はCs(134+137) 27500Bq/kg 同様に湿潤状態で測定した試料土壌放射能は、Cs(134+137) 19700Bq/kgとなっていた。

「固-液比」の影響評価実験は、全2回の分級操作(撹拌洗浄操作)から検討している。

1回目分級操作=撹拌洗浄は、高浸透性水のみで行った。

2回目分級操作は、4つの実験系列上位2系列を対象に行った。 2回目の分級操作=撹拌洗浄には、土粒子相互の潤滑剤としてクエン酸を用いた。

#### 4) 分級操作による Cs 除染洗浄工法の全体システムに関して

#### a. 目的

水田土壌付着Csを選択的に取り除dき、他の系に移すことは、土壌に付着/吸着したCsを脱着に よって分離取り出しする手法でも、様々な分級操作でも共通している。ここでは、土壌付着Csの 形態を考え、洗浄槽中で行う固-液分離と土壌粒径によるCs吸着特性を考えた分級操作によるCs除 染洗浄工法を行うこととした。

全体システムは、サイズの大きな土壌表面に付着した微細土壌粒子と一緒にCsは動くと想定している。これは、水田のように、ケイ酸やカルシウム等さらにフミン質の多い土壌成分に強固にくっついたCsは容易に剥がそう(脱離させよう)とすると、多大なエネルギーが必要になりそうだ、といった想定に基づく。

ここで紹介する分級操作は、投入エネルギーが低く、結果的に適切なCs除去能を示す手法となる。この手法(工法)でのCs除去は、仮置きしてある表層剥ぎ取り汚染土の洗浄にも有効で、除 染後の土は、そのまま水田へと還元できることを前提にシステムを構築した。

#### b. システム構成

主なるシステムは全4段階である。

- i. 除染洗浄水(分級洗浄水)に使う高浸透性水
- ii. Cs 汚染土壌の洗浄=分級の主工程である洗浄槽
- iii. 洗浄槽から越流した高濃度 Cs 含有高濁水の凝集・沈殿システム
- iv. iii から漏れた Cs 含有濁水を抑留するチップ濾過層
  また、
- v. i から iv を結ぶパイプライン、ポンプ類、電源関係などメインシステムを支えるシステム構 成要素も大切になる

#### c. 高浸透性水製造装置とシステム構成

i. 高浸透性水製造システム

現在は製造能力約420L/分(約25<sup>5</sup>)/時間)が主流となっている。約25<sup>5</sup>)の水を創る為 のエネルギーは、概略7Kw以下となる。(受水槽への送水ポンプ動力を除く) 高浸透性水製造に 用いる原水には、河川水、地下水、湖沼/ダム湖水など、プランクトンレベルを超える大きさを超 えないない夾雑物であれば通水出来る。また、空気や二酸化炭素などのガス供給により、容易に微 細気泡の混ざった水を供給可能。

#### ii. 洗浄槽

洗浄槽では、固-液比 1:1(容積比)で土壌と高浸透性水を撹拌する。水田剥ぎ取り土は、含水比によっては容易に泥団子になる。泥団子を分散させる際に有効な高圧噴射システムの併用も現実的には大切になる。高圧噴流ポンプは、1MPsから5MPsの範囲が有効。 洗浄槽中の水は上向流速2~3 cm/分で流れ、微細濁質は洗浄槽上部より越流する。洗浄槽より越流して系外排除されたCsを除染Csとしている。高圧噴流ポンプの吸水には、後述のチップ濾過層濾過水が利用出来る。

# iii. 凝集·沈殿槽

洗浄水槽から越流したCs含有高濁度水は、そのまま水系に流すことは出来ない。濁質およびSS 除去の第一段階では、無機の高濁度水凝集効果に優れる鉄系凝集剤の利用と、沈殿によって行う。 この部分は、多くの環境プラントや土木工事実績がある。その為、本研究で新たな実験は行ってい ない。本工程で、洗浄水槽を越流したCs含有高濁度水のおおよそ99%以上の沈殿除去が期待出来 る。なお、沈殿堆積物中のCs含有粘土は、廃棄物として処分するか、他の処理によって安定させ る必要がある。

#### iv. チップ濾過層

鉄系凝集剤によって沈殿槽中に抑留されたCs含有高濁度水は、そのほとんどは沈殿成分として 重力圧密後系外排除される。残りの極僅かな一部は再浮上などにより凝集・沈殿槽から漏洩してい くのが常である。そこで、濁質およびSS除去の仕上げ(セーフティーネット)として、土壌微細 濁質への濾過効率に優れた木質チップ濾過層を用いる。チップには周辺山林の木片を用いた。

#### 5) 分級操作による Cs 除染洗浄工法

#### a. 概要:分級操作フローチャート作成による課題抽出

実用規模を想定した高浸透性水利用分級洗浄方式でのCs除染作業工程フローを、本実験ミニプ ラントを例に図3-1に記す。 分級洗浄工程に入る前の原水取水からチップ濾過、高浸透性水作成 までの流れは、後ほど図で説明する。 分級洗浄処理の工程では、最初に予め洗浄対象とする土壌 のセシウム(134+137) Bq/kgを測定し、処理前土壌中Cs放射線量として扱った。処理進行に伴う Cs収支では土量(質量)を考慮している。

高浸透性水を利用した今回実用規模想定の分級洗浄対象土壌は湿潤重量15kgとした。分級洗浄 に用いる反応槽の大きさは、「固-液比」は容積比「1:1」でよいので、今回実験(含水率より) の場合、容積20Lで足りることになる。

今回の実験では、洗浄土量に合わせたこまめな反応槽等の準備は出来なかった。300L桶と30L桶の中から分級洗浄の規模に合う桶の選択を行った。30L分級洗浄工程は、最終的に分級洗 浄によるCs高含有土壌の除染システムの最適化の検討終了後のフロー工程となっている。ここに 示した30L分級洗浄工程は本フローに従う分級洗浄は全ての実験を経て検討した最適手法とし た。分級除染に用いる「原水」は、実験仮実験施設のある飯舘村佐須地区を流れる真野川源流の水 をポンプアップして用いた。

#### (3) 木質系沪床による濁質抑留効果

1) 背景と目的

高浸透性水をベースとしたセシウム洗浄・脱着技術は、大きくふたつに分けられる。セシウムを 土壌から洗浄脱離する前段処理と、洗浄後のセシウム回収を行う後段処理である。本章では、後段 処理に関する微細濁質除去とセシウム除去の関係を明らかにする。

水田土壌には畑に比べより多くの微細濁質が表層土近傍に含まれていることは良く知られてい る。結果のセクションで示す様に、本原発事故で飯舘村に降り注いだ放射性セシウム等は、土壌の ごく表層の薄い箇所に集中的に集積している。除染技術の考え方として、多くのセシウムを含む土 壌微細粒子内に吸着したセシウムを脱離させる方向で除染を進めるといった考えは基本となるだ ろう。しかし、この方法で除染を進める場合、土壌粒子から脱着・脱離したセシウムが再び他の土 壌粒子に吸着される再吸着現象が起こることを否定出来ない。この場合見かけ状の除染効果は、エ ンルギ-投入に対し低くなっていく。この手法では、土壌吸着セシウムに対して究極的な極限状態 (環境)で脱着・脱離を進めない限り、脱着・脱離セシウムは吸着場所を移していくだけの「堂々 巡り」を繰り返す可能性が考えられる。

これに対し、微細濁質へ吸着または付着したままのセシウムを洗浄することで除染を進める考 え方もある。これは、仮にセシウムが土壌に吸着しても、吸着セシウムを脱離させる考え方と逆で、 比表面が圧倒的に大きい微細粒子表面に吸着するセシウムを、微細粒子ごと取り除く考え方である。 その時の除染効率は、微細粒子除去とセシウム除去とは基本的に一体と見なせるので、微細濁質を 選択的に分離できる割合がセシウム除染効率に大きく影響することになる。この手法では、洗浄・ 脱離したセシウムが周辺微細濁質に再吸着しても、微細濁質全体で除去されるため、除染に余分な エネルギー投入は必要なくなる。

土壌微細粒子は、原発事故で発生する以前から農業用水や、河川、ダム湖等で長期間沈まずに 浮遊する性質をもつ濁り成分といった見方がされている。しかし、これまで、濁質長期化の解決方 法として採用されている除去技術は無かった。これに対し、高崎らは火山地帯を集水域に持つ鳴子 ダムの濁質長期化解決に向けた現実的対処手法の開発を行ってきた。原発事故でセシウム吸着割合 の大きな微細濁質を微細濁質粒子として取り除いた場合、洗浄懸濁液の固 – 液分離操作を行うこと が必然となる。そこで、放射性セシウム含有微細濁質粒子の除去を目的として、水域の濁質長期化 解決手法技術を応用した。



図(2)-7 桶型濾過槽と水路型濾過槽

実験には、1<sup>+</sup>>水槽を改良した濾床と、長さ4m×幅0.9m×深さ0.5mの水路型濾床を用いた(図(2)-7)。 水路型濾過槽は、2系があり、濾床平均厚さ25cmと、50cm を用意した。1<sup>+</sup>>水槽の濾床厚は平均 40cmとした。本実験の最も大きな特徴は、沈木をチップ化して濾材に用いている点である。沈木 チップは、水中静置すること2週間程で沈降し、濾床として用いることが可能となる。

# 2) 水田灌漑用の木質チップ濾過による実証試験

#### a. チップ濾過の役割

チップ濾過は、濁水長期化解決を目的に開発された濾過システムになる。濁水長期化とは、宮城 県鳴子ダム流域の大雨に伴い発生する出水時のダム流入水の濁りが原因となる現象で、1ヶ月から3 ヶ月続く濁りの長期化問題となっていた。鳴子ダムに長期間浮遊している微細濁質(鳴子ダムでは 主に微細なシラス)を効率良く、安定して抑留出来るシステムとして、すでに国土交通省東北地方 建設局鳴子ダムでは実験済みで、実用化を視野に入れた濾床も考えられて来た。阿武隈山地流域水 田土壤除染時の表層剥ぎ取り土壤を洗浄もしくは分級洗浄するようなケースを考えると、土壌由来 濁質に吸着しているCsを流域に出さない努力は大切になる。

ここまでの取り組みの中で、実証実験規模の分級洗浄で発生する微細濁質は除染対象の20%以上 になる可能性が示されている。除染対象土量が大きいので、その全量を濾過対象とすることは、濾 過システムの特性や使用目的と離れてしまう。濁度2000度以上のかなり高濃度な懸濁SS濾過 を濾過単独で直接受け入れるシステムには様々な無理が在る。本来は、沈殿分離槽単独か、沈降分 離性を上げる傾斜板沈殿池など、もしくは、鉄系凝集剤と沈殿池の利用などと併せ、重力沈降等で 除去しきれない濁質を濾過する手法が望ましいと考えるのが一般的だ。

実証試験の中では短期間であったが、沈殿静置後の濾過水を直接受け入れた現場実験を行った。 b. チップ濾過システム概要

手作り濾過層の概要は、濾過層厚約50cm、下降流濾過で、濾過層目詰まり時には逆洗可能な 配管を考え設置した。濾材に用いたチップは実験水田周辺の広葉樹からチッパーを用いて作ったも のを濾過層上部50cmに、濾床下部は濾過用のチップを支える支持層兼濾過用チップとしての杉 材から得たサイズの大きなチップ層の2層構造になっている。

チップ濾材は水に一週間から二週間ほど(チップ片の乾燥状況で変化)浸漬させることで水中に 沈むようになり、濾材としての機能発現に至る。濾層の水理学的滞留時間(HRT)は約6分から7 分程度にバルブで調整している。



図(2)-8 手作り濾過槽 深さ90cm 濾過槽下部には 濾過槽周囲の杉材で作った大形チップを上部の小サイズ チップ濾材支持層として厚さ約10cmにセット。



図(2)-9 濾過槽下部構造は、集水管のみ。杉材大形チッ プは集水管の周辺と上部を覆う様に敷設。集水管は、濾材 の逆洗時には洗浄水突出管として働く。



図(2)-10 濾過の主役となる広葉樹から現地作成したチッ プ濾材。写真は水に2週間以上浸漬した後のチップで水に沈 降する状態になっている。本濾過実験の濾材はこのサイズの チップを用いた。従来チップ実験で用いて来たものより小さ く、形状も異なっている。

# c. 疑似現場チップ濾過槽による小サイズチップの濁質抑留実験

図(2)-11に示す実験装置は、分級洗浄時に越流水や排水として出てくる微細土壌粒子の抑留特性 を評価する為に用いた透明アクリル濾過塔一式である。濾過塔内径は10cm、長さ150cmで、濾層厚 は1系45cm、2系60cm としている。定圧濾過で、濾過速度は1系が63m/日から74m/日、 2系では68m/日から83m/日の範囲だった。この濾過速度は、緩速砂濾過(4~6m/日)、急 速砂濾過(120m~240m/日)と比べ既往の緩速砂濾過と急速砂濾過の中間となるものだった。濾 過速度は濁質抑留進行で変化する。濾過速度調整は濾過塔流出口の流量調整で行った。

この装置による濾過実験に用いた濁質は、予め用意しておいた洗浄前土壌で、これを高圧噴流で 分散させ上澄みを原水に用いた。濾過槽内充填チップ(図(2)-10)は、これまで鳴子ダム実験など で使ってきたサイズより小さい。

原水は実験装置下部の桶に入れ連続通水実験を行い、濾過塔内濁質抑留の進行に伴い、原水タン

クには少しずつ高濁度原水を加え、濾過塔流入濁度の低下を防ぎながら実験を継続できるよう心が けた。本実験での評価対象は、従来と異なるチップサイズ、チップ形状の木片を濾材に用いた時の 濾過特性となる。チップ形状の差異が濾過特性に影響するか否かを既往の実験と比較した。分級洗 浄時に発生する微細濁質付着Cs除去がサイズの小さなチップ濾過層を通過する際、濁質抑留特性 と共にどのように鉛直方向で変化するかを検討した。



図(2)-11 チップ濾層深さ方向の濁質抑留特性を見る為に 用意した直径10cm、長さ2mの透明濾過塔による疑似実験 装置

# (4) 土壌抽出洗浄工法の設計と最適化

除染では全体の除染効率を高め、高濃度に濃縮したセシウムの最終処分量を減ずることは必須 の課題となる。それ以外にも除染システムの最適化を考案する上で、重きを置く点は、最終的な排 水中に含まれるセシウムの行き先への配慮が有る。また、阿武隈山地の生態系を豊かにし、環境面 から山の恵みを生かしていく努力も大切に思える。これらを考慮に入れた除染システムを考察した。

阿武隈山中の広範囲に降った放射能の除染作業は、表土5cmの剥ぎ取りを主体とした方式であ る。本報告は、水田土壌の除染は勿論、除染作業後に各地に仮置きされている放射能汚染土壌の減 容化も見据え、除染作業で発生した廃棄土壌の洗浄による農地還元=再利用を目指した実践的な土 壌洗浄手法に関したものである。

本年度研究を進めるにあたり、除染システム構築の前提には、以下の点を阿武隈山中の放射能汚 染地域の特色として捉え、それを反映した除染システム構築を行っている。

- a. 大量の土量を相手にセシウム除染が必要だが、処理作業は基本的に輸送手段を必要としない、 除染対象水田近傍や、剥ぎ取り土壌の仮置き場などで行うオンサイト処理とする。
- b. オンサイト処理の課題として、以下の基本姿勢に従う
  - i. 除染に利用出来る水資源は可能な限り少ない量で行う。水の再利用可能な除染シス テムを構築する
  - ii. 除染作業時の必要エネルギーは、可能な限り削減する。多大なエネルギーを必要とす るシステムは避ける。
  - iii. 可搬式または、移動の容易なシステムである

#### 5. 結果及び考察

(1) 土壌抽出洗浄工法の設計と最適化に関する実証実験―室内試験

# 1) 高浸透性水の特性

表(2)-1 高機能水洗浄効果と微生物の働き

土壌	洗浄効果	生きた粘菌	死滅粘菌
水道水	高機能水洗浄	微生物効果	微生物効果
9390	972	700	1161

高機能水の洗浄と、微生物の働きを予備的に検討したこの実験は十分なものではない。だが感光 フィルムによる測定は、他の研究者にも用いられ、全体的な放射線減衰の傾向を見定めることは可 能である。表(2)-1に示す実験結果から高浸透性水と、細胞性粘菌(湿潤条件は高浸透水で与えた) 系は、水道水に比べ高いセシウム洗浄(脱離)効果を示した。

#### 2) 土壌抽出洗浄工法の設計と最適化に関する実証実験-室内試験

#### a. 高浸透性水のみの洗浄実験;原水水質の影響

実験は、混合撹拌で採取土壌中に吸着したセシウムの分布を均質化したものを用いた。洗浄に用いた水は、現地真野川の表流水である。表流水水質は、水素イオン濃度が早朝から昼、夜におよそ pH7.0からpH7.8と変化幅が大きかった。実験開始時(10月)の水温は10℃台だった。

水素イオン濃度は、土壌中の界面電位への影響が大きい。除染作業を行う場合、現地の水が必ず しも安定したものでない場合、その影響を検討し、現地河川水または、用水が利用出来る除染サイ トでの根拠を明確化することも必要となる。この現地事情から洗浄/脱着実験に先立ち最初にセシ ウム洗浄や脱着に当たって、高浸透性水だけによる水素イオン濃度変動の影響を検討した。







図(2)-13 高浸透性水だけの洗浄効果

図(2)-12に示すグラフは実験に用いた3つの水で除染実験対象とした土壌1kg当たりに換算した Cs137+134合計濃度を示す。土壌はミキサーで撹拌し、均一化をはかったが、実験に用いた土壌中 セシウム濃度はこの実験使用土壌で、6%から8%の濃度差が見られた。この濃度差は、除染のレ ベルや、成果をセシウム濃度の絶対値で評価することを難しくしている。図(2)-13には高浸透性水 だけで洗浄した時のセシウム洗浄効果を示したが、この結果を客観的に判断するには誤差の影響を 排除出来ないので困難であった。

これらの洗浄実験は、固液比1:2で、500mL容器を用いて実施した。洗浄時間は15分、 静置2時間後、静かに上水を引き抜き、沈殿部と分けた。



図(2)-14 洗浄実験静置状態 上澄み採取直前 (左からその1、その2、その3)

図(2)-13中の表記「洗浄静置上澄み」は、図(2)-14の上澄み部(その1~3)に対応している。 図 (2)-13中の表記「洗浄後土壌」は、図の沈殿部を一旦取り出し、強く撹拌混合し均一にした後、放 射線量の測定に供したもので、代表値である。



図(2)-15 高浸透性水洗浄除染率

図(2)-15は、実験に用いた原水の違いがセシウム洗浄効果にどう表れたかを除染率%で示したものである。実験結果を除染率%で表すと、水1と水3では共に32%となった。水2の場合では35%となった。このように、原水水質の変動は、実際には実験系由来の誤差の範囲に収まる程度と考えられた。ここまでの実験系はいずれも高浸透性水だけで洗浄を行った結果である。

この結果を予備実験結果と比較すると、高浸透性水の洗浄効果に、予備実験時に認められた程大きな除去効果は見られなかった。この原因は、フィルム感光法とNAI放射能分析装置の違い以上に、 土とセシウムの結合状態が時間経過によって大きく変化したためと考えることが出来た。

予備実験に用いた土壌は、原発事故後半年に採取したもので、一方、ここで取り上げている本実 験の土壌は(採取場所は異なるが)予備実験から更に1年が経過して採取した水田土壌であったこ とも原因であろう。

原発事故後1年半を経過した時点の汚染土壌を対象にした実験結果は、「水」だけの洗浄では洗 浄効果に限界があることを示した。この結果は、原発事故後半年以内の土壌を試料とした実験結果 と異なっていた。この時点では、「水」だけで洗浄するセシウム洗浄・脱着・脱離方法には大きな 効果が期待出来ないといった残念な結果となった。

#### b. 高浸透性水をベースとした洗浄・脱着 (基礎実験)

そこで、高浸透性水が他の物質を良く溶かす性質に期待し、以下のような実験系を用意し、その 効果を検証した。

- 系1: 佐須真野川水を高浸透性化後、クエン酸(C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>7</sub>)添加し約4時間静置後、上水を分取 (微粒子込み)
- 系2: 高浸透性化後、家庭用洗剤オレンジオイルを4:1で添加し、約4時間静置後、上水を 分取(微粒子込み)
- 系3:高浸透性化後、水酢酸(CH<sub>3</sub>COOH)を添加 ※(pH7以下に下がらず)し、約4時間 静置後、上水を分取(微粒子込み)



図(2)-16 高浸透性水をベースとした除染効果発現初期実験



図(2)-17 高浸透性水をベースとした除染効果発現初期実験、各実験系の除去率

図(2)-16には高浸透性水をベースとした除染効果発現初期実験の測定結果を、図(2)-17は高浸透 性水をベースとした除染効果発現初期実験核実験系の除去率をそれぞれ示す。除去率は、クエン酸 を使った系1では38%、洗浄効果を上げるため洗剤系を用いた系2では33%、セシウム除去を 酢酸添加(土壌に優しい)で試みた系3では30%となった。この結果は、系1のクエン酸の効果 は他の系より幾らか高かった。クエン酸を入れた実験系で幾らか効果が発現したことから、酸性で 洗浄効果が発現すると云った一般論に従って、高浸透性水によるセシウム洗浄/脱着効果の検証を 続けた。

#### c. 高浸透性水をベースとした洗浄・脱着手法の確立

上述した実験を何回か試行錯誤した結果、河川水を高浸透性水に変えこれをベースとして安定 したセシウム除去へ至る実験条件に辿り着いた。高浸透性ベース洗浄水の作り方は以下のような条 件の時に安定したセシウム洗浄/脱着効果を発現した。

効果の高い洗浄水:強酸(硫酸など)で弱酸性(pH4.3~5.1)を作成し、更にクエン酸C<sub>6</sub>H<sub>8</sub>O<sub>7</sub>

を添加しpH2.4程度まで下げたもの

この実験条件の範囲で行ったセシウム洗浄/脱着効果が実験系1~実験系3に、酸性側へ振るこ とで洗浄効果を上げる考えと逆に、アルカリ側へ振った場合の変化を実験系4に、それぞれ示す。 また、洗浄効果そのものが、原発事故後時間経過を経た土壌に使えるのか粘土状団子塊に直接オレ ンジオイルを添加し、良く練り混ぜた実験系を用意し、これを実験系5とした。洗浄実験の後、静 置時間半日を経た時点での上水と沈殿部の状態を図(2)-18に示す。



図(2)-18 安定した洗浄効果確認実験での洗浄後静置6時間を経て固液分離 状態の試料洗浄1回目 左:系1から右:系5

実験には1Lビーカーを用いたテーブルテストで固液比は1:1にして実験した。洗浄は2回行 い、洗浄後には6時間の静置時間を設けた。静置後、上水と沈殿部を分離し。2回目洗浄の操作は 1回目洗浄の終わった沈殿部を洗浄土壌として用いている。実験時の水温は4.7℃から5.7℃、原水pH 7.4 である。



図(2)-19 洗浄1回目の洗浄土壌放射線量

図(2)-19に洗浄1回目の洗浄土壌放射線量を示す。図中黒棒に示すのは土壌中の放射線量を、ス クラッチの入った棒が、洗浄液側の放射線量をそれぞれ示す。系4は欠損値である。

この図から、水温が4℃から5℃と冬期河川水温環境下でも、セシウムの洗浄・脱着がいずれの 系においても進んでいる傾向が明らかに示されている。この洗浄結果を、元々の実験試料とした土 壌中放射線量と比べ、物質収支をとった結果を図(2)-20に示した。図(2)-9には洗浄2回目の洗浄土 壌放射線量を示すが、この実験では、1回目洗浄後、静置時間の中で、下部に沈殿した土壌粒子を 再び洗浄している。



図(2)-20 洗浄1回目の洗浄時の物質収支



図(2)-21の洗浄2回目の土壌放射線量は、どれも1万ベクレル/kg以下の値を示していた。この中 で特に低い放射線量を示した実験系4は、酸性側へ振ることで洗浄効果を上げる考えとは逆に、ア ルカリ側へ振った場合の実験系であった。このようにアルカリ側での1回目洗浄結果を高浸透性水 ベースにしたセシウム洗浄・脱着は最も良い除染効果を示した。系5の酸性側にも、アルカリ性側 にも振らずに洗浄効果だけに特化させた実験系の結果は、この中では低い除染効果を示している。 しかし、土壌中のセシウムが強固に土壌構造と結合したと考えられる1年半以上を経た被曝後条件 下の実験において、この結果は大きな意義を示唆した。土壌粒子中で、沈降性が悪く上水懸濁水中 の微細濁質に多くのセシウム吸着が起こっていたことである。図(2)-18中右端の上水部と沈殿部の 見分けのつけづらい実験系がオレンジオイル洗剤除染実験系で、図に見られるよう、多くの微細濁 質は上水として除去された。除染作業で、効率良くセシウムを土壌中から洗浄・脱着・脱離させる 鍵は、「土壌中微細濁質をどれだけ上手に分散させられるか、またはどれだけ土壌粒子個々と洗浄 液とを混合させられるか」である。

図(2)-22に1回目洗浄と2回目洗浄を行った際の上水と沈殿物各々のセシウム線量物質収支を示した。図(2)-23には1回目と2回目洗浄によるセシウム除去率を示す。2回目洗浄除染結果は、1回目 ほど除染効率を上げるものではなかった。物質収支から見ると、1回目より2回目洗浄時に全体の物 質収支に整合性が見られなくなった。これは実験が1過程毎に別の容器に移すバッチ実験系である こと、現地実験であるため、設備の整った実験室と異なって、実験進行でバッチの移行に伴う誤差 が最少となる作業が極めて困難であり多くの残留物が壁面や底面に残ったまま実験が行われたこ と、などが原因に挙げられる。 実験誤差要因は、実際の作業が一連の連続的な流れの中で行われ る場合にはほとんど無くなると思える。 図(2)-22に示す物質収支誤差は、ここでは実験容器壁面 や底面に残った微細懸濁成分などがいかに多くのセシウムを含有していたかを表す例と見ること が出来そうだ。



#### d. 高浸透性水ベース洗浄・脱着手法と効果の小括

全ての実験は、除染作業終了後に土壌を水田へ戻すことを前提とした中で行われている。実証実験の結果、最大76%の除染効果を得た。最終的な除染効果は高浸透性水ベースのセシウム洗浄・脱着時の条件で異なるが、5500ベクレル/kgから8700ベクレル弱・kgの範囲の放射線量を示した。この値は全てが農地1万ベクレル/kg以下となっている除染基準には合致している。

この除染結果は2回洗浄の結果であるが、実験は水温5℃以下でも行い、上記除染率を得ること ができた。図(2)-23に示す除染結果は、薬品等の使用に頼る割合が極めて小さく(薬品代のランニ ングコストが小さい)、装置に熱エネルギーを加える・多大な撹拌エネルギーが必要・などがいら ない条件下で可能な除染結果である。このように高浸透性水をベースにした除染作業は、絶対的な セシウム除去率を評価軸とするとそれほど優れていると評価出来ない。本システムは、洗浄・脱着 後の土壌の水田への還元と、還元した水田中土壌で放射線の植物移行をブロックする働きに特長が ある。本報告書では以上の特長を持つ除染システムを、安価なランニングコストで運転出来る実証 実験ベースデータを得ることが出来たことを示すことが出来た。

除染作業の見えない壁は、土壌中の水分コントロールかもしれない。水田土壌には微細濁質が多 く含まれ、容易に団子状態を形成した。これは、土壌中含有水の働きとなる。これは実際水田土壌 の除染を進める上で、大きな課題となる。

## 3) 細胞性粘菌による土壤分散効果実験 (除染作業上の問題;土壌団子対策)

実験結果は試行錯誤の中で本報告書の段階に至る結果を導けたことを示す。その中で、数値で示 すことの出来ない土壌付着セシウム除染作業の鍵といえる要因は『除染の隠された鍵の課題』とし て述べざるを得ない。 その鍵は、除染作業時に発生する剥ぎ取り土壌の団子化(粘土の塊発生化)である。この土壌団 子は、セシウム洗浄や脱着工程での除染効率を低下させる原因となった。土壌の団子化(粘土の塊 発生化)は、剥ぎ取り土壌中の水分含有率によって容易に発生した。土壌剥ぎ取り作業時にほこり の立たないような水分含有土壌では、土壌の団子化は良く発生する。一旦土壌団子が形成すると、 空気中での篩い分けや、スラリー混合機での撹拌などは、ますます団子状態形成を進めることにな る。土壌の分散化を前提とした全ての除染作業の効率はそこで停止し、そこから先へ進めない。

このような団子状態が発生すると、高浸透性水での洗浄や脱着操作を行っても、土壌団子は幾分 小さな粒子軍団の塊になるだけで、塊全体で動く特徴を示す。その為、微細粒子は土壌中で濁質分 に取り込まれたまま分離されない。当然の結果ではあるが、この状況下でセシウム濃度を下げるこ とは無理になる。

本報告書で、隠れた除染の立役者を紹介するなら、団子状態の土壌を分散化し、除染効果を上げる働き者の細胞性粘菌であった。

#### a. 除染作業上での現実的課題

除染作業を考えると、作業効率は、除染速度(単位面積当たり作業必要時間)、重機異存割合、 除染全体システム運用の容易さと除染に必要な動力(電力)、薬剤、などランニング経費、除染速 度や、除染作業の一人当たり効率(人区)などで決まっていく。以下に、除染作業の現実的課題を 述べる

- その1; 現行では、除染対象が表層5cmとなっているが、表層5cmの剥ぎ取りに、転圧は必要かなど考える必要もある。転圧は作業効率安定方向には良いが、実際の処理土量を 大きく増やす。これは農民の宝=耕作表土の損失を大きくし、民意に反する。農家は 自分の農地表面をトラターで上手に剥ぎ取ることが出来て、そこで失われる土量は少 ない。処理コストも低減出来る。
- その2; 表土剥ぎ取り作業時の含有水分由来の土壤団子発生対策。土壤団子が出来てしまうと、 空中での篩い分け作業、混和作業、水溶液中での洗浄・脱着・脱離作業の効率は著し く低下する。微細粒子に多くの放射性物質を持つ土壌の分散状態は、現実的な篩い分 けや、洗浄・脱着などの工程を持つ除染作業効率を大きく悪化させる。実際に、土壌 分散状態は洗浄・脱着による本報告書の除染効率にもっとも大きな操作要因となった。

#### b. 細胞性粘菌による課題解決実験

予備実験は、飯館村佐須地区の実験土壌を試料に、実験系1;土壌に河川水を掛けた系、実験系 2;土壌にペプトン主体の培地だけを掛けた系 実験系3;実験系2に細胞性粘菌を散布した系で 土壌状態の変化と土壌の柔らかさなどの手応えを(感覚的に)比較した。

図(2)-24に示す容器最上列は、粘土状団子塊をU9容器底に敷き河川水を入れて2週間20℃の恒 温で培養した実験系列、真ん中の列は、粘菌培養に使う培養液を入れた実験系、一番下の列は、粘 菌培養に使う培養液と粘菌を入れた実験系になる。最上列の河川水だけの系では、粘土状団子塊の 上(表層)に水が浮き、光を反射している。培地のみを入れた中央列は、培地中の栄養が土壌細菌 やカビの生長を促し微生物叢が出現していた。最下列にも中央列と似た傾向が示されたが、中央列 で出ていた強い異臭は、かなり弱まっていた。中央列と最下列では表面に水は無く、微細物コロニ ーが観測された。この試料を薬匙で押すと、粘土状団子塊の柔らかさは、最下列の細胞性粘菌を培 地と共に入れた実験系でもっとも良い感触だった。中央列にも粘土状団子塊と比べ柔らかさは十分 に出ていた。粘土状団子塊で微生物叢が発達した実験系と異なり、河川水実験系での柔らかさは、 実験時に容器に入れた時とあまり変わらなかった。

図(2)-25は、実験後の各実験系容器を横から見た図になる。右は河川水のみを入れた実験系、中 央が培地のみの実験系、右は培地と細胞性粘菌を入れた実験系になる。河川水だけを粘土状団子塊 に入れた実験系は、土壌と水とに完全に分かれている様子を見ることが出来た。培地を入れただけ の中央列と、培地に細胞性粘菌を植種した左列では書かせん水だけを入れた右列に比べ、土壌部分 が膨張している様子を観察出来た。土壌部の膨張は微細粒子と土壌粒子間に微生物群衆が形成され た為の結果と見ることが出来る。



図(2)-24 佐須水田表層土の粘土状塊の微生物による分散効果1

粘着性が強く、含水率によって『密な粘土状団子 塊』を造る水田土壌は、Cs吸着微細粒子の分離、 Cs脱離は極めて困難・ 除線(Cs移動)効率を上げるには、洗浄水と接する 比表面積を大きくする必要がある。 土壌分散効果向上への粘菌や、有機物(培地) 添加後の土壌微生物の働きは、明瞭だった



図(2)-25 佐須水田表層土の粘土状塊の微生物による分散効果2



図(2)-26 佐須水田表層土粘土状塊の実験系別遠心分離後の上澄み

図(2)-26にはこの実験後に行った遠心分離後の上澄みを実験系別に示した。最も色の濃い左容器

には、培地だけを粘菌塊に加えた実験系の遠心分離上澄み、最も色の薄い中央容器は河川水だけを 入れた実験系の上澄み、右容器は培地と細胞性粘菌を一緒に加えた実験系の遠心分離上澄みとなる。 図に見られるように、培地を入れた左容器と、培地に細胞性粘菌を入れた右容器は上澄みの色には 大きな変化が認められた。容器中の色は、使われなかった培地のカラーで、細胞性粘菌の増殖に使 われた為培地色が薄くなったと判断出来た。

図(2)-27には、各実験系列の上澄み採取前の遠沈管下部の状況を示す。右端遠沈管は培養液に細胞性粘菌を加えた試料でが、下部は沈殿部に隙間が空き、隙間間に溶液部が見られる。左端の培養液を入れた試料にも、隙間に溶液部が見られた。中央の遠沈管は河川水だけの実験系試料だが、遠沈管下部に隙間は見えない。隙間に挟まれた溶液相は、遠沈の重力加重に耐える土壌粒子以外の働きによって形成されていることは確かである。土壌分散効果を数値的に示すことは出来ないが、粘土状団子塊は細胞性粘菌の増殖で明らかに柔らかくなり分散効果を発揮していることは、この実験でも確認出来た。



図(2)-27 各実験系列上澄み採取前の遠沈管下部の状況

#### c. 細胞性粘菌の土壤分散効果実験

予備実験の結果は感性的な評価と視覚的な確認となった。 そこで、ここでは、土壌分散効果 を数値で表し評価を行った。

実験系1;約10mlの蒸留水、

実験系2;細胞性粘菌用の培地であるHL5(組成は別記)、

実験系3;HL5中に約1×10<sup>^</sup>7cells/mlで細胞性粘菌が懸濁された細胞懸濁液を加えたもの をそれぞれ3サンプルずつ用意した。各実験系はそれぞれ直径9cmのシャーレに入れ培養を行っ

た。合計9サンプルを実験系列毎に分け比較撮影した図を図(2)-24に示す。

採取した土壌は砂が多く、それらはすばやく沈殿して沈殿部下層を形成する。その上により細か い粒子が層となり、沈降時間が長くなると、その上にさらにシルト層が沈殿すると思われる。添付 図の実験2では、蒸留水を加えたものについて、すでに沈殿しはじめている様子が写っている。今 回沈殿時間が6時間と短かったため(遠心分離も試みたが、自然沈殿と比べると層の乱れが生じて しまい、今回はあえて自然沈殿とした。最上層のシルト層については測定せず(絶対量が少なく測 定誤差が大きくなるため)、下層の砂の多い部分と、その上層のより粘土質の層の厚みを遠心管目 盛りから容積として読み取り(エクセルの表中の単位はm1)、下層に対する上層の比を比べた。



図(2)-28 畑土壌に混ぜた培養後の変化 左;蒸留水 中央;培地のみ 右;培地+細胞性粘菌

土壌を恒温培養後にシャーレから回収する段階で、すでに蒸留水だけを加えたものは、さらさら した土壌状態であったのに対し、培地、あるいは、培地と粘菌を加えたものはクリーム状になって おり、明らかに分散性が高まっていることが確認できた。これを反映するように、図で(目で)確 認出来るように、3つのシリーズとも、蒸留水(左)を加えたものは重力沈降に従った粒子沈降の 様子が示されていた。培地(中)、あるいは、培地プラス粘菌(右)を加えた実験系列では、上層 の容積が増加している。図を拡大して見ると、上層にもより大きな粒子混在の様子が確認出来た。 これは、静置に伴う重力沈降の常識では起こり得ない現象であった。畑土壌に混ぜた培養後の変化 に示された3つの実験系の静置時間経過後の変化は、畑土壌で水田土壌に比べ微細な土粒子割合が 小さな土壌群であっても土壌分散効果が発現している様子を示している。

表(2)-2 重力沈降後の沈殿部表層を(上)、下層を(下)とした時の上下層容積比

(蒸留水)上/下比	(培地)上/下比	(培地+粘菌)上/下比
0.11	0.26	0.29
0.29	0.40	0.32
0.16	0.45	0.64

重力沈降後の沈殿部表層の上下層容積比(表(2)-2)で見比べると、培地と培地に細胞性粘菌を散 布した実験系での土壌分散効果が明確に示された。

除染実証実験によって粘土状団子塊を分散する効果の確認は、図(2)-28の結果となる。現実の除 染工法として、除染対象土壌の剥ぎ取り前の段階で培養液(実際には有機性排水で十分と思える) を散布する効果を確認することは興味深い。さらに、培養液と細胞性粘菌を散布する系の効果の除 染効率への影響も確認しておく必要がある。

# 4) 土壌抽出洗浄工法の設計と最適化に関する実証実験―室内試験のまとめ

高浸透性水をベースにすることで、水温5℃の冬期間でも、おおよそ60%以上、セシウム洗浄・ 脱着による除去率最大76%の成果を得た。この除染率を安定して得るには、粘土状団子塊の土壌 分散効果が鍵と見なせた。

粘土状団子塊の土壌分散効果を上げる工学的手法には有機性排水散布と、それに加え細胞性粘菌 の散布効果が大きいといった結果を得ることが出来た。実際の除染作業では、有機性排水を除染対 象土壌に散布し、保湿条件を与え(マルチなど)培養期間1週間から2週間後に高機能水による洗 浄・脱着を行うことで上述した除染効果が基本的に「水洗浄」で可能となる。ここで得られた除染 効果は、粘土状団子塊の分散効果によって助けられた結果と云うことも出来そうだ。

本除染技術は、高浸透性水によるセシウム洗浄・脱着工法は、運転工程に加熱用の熱エネルギー 投入の必要が無いこと、工程が明快単純であり通常の水処理プラントと似ている点が特長となる。 本技術は除染作業従事者にとって、手本となる上水処理システムや産業廃水処理システムと共通性 のあるひな形の存在を意味する。全く新しい技術とテクニックを必要としない点は、作業効率など にも影響すると考えても良いだろう。

#### (2) 現地土壤除染実証実験-設計と最適化

#### 1) Cs 汚染土壌の分級操作時の浮遊懸濁物(SS)浮遊助剤と潤滑(滑り)効果に関して

#### a. 結果と考察

洗浄撹拌後の高濁度懸濁水(上澄み)を別容器に移した後に試料採取行った。試料採取を行っ た洗浄後高懸濁水を別容器に移した後の試料採取で注意深く得た沈殿物量は、表面成層した微細 粒子沈降成分の量を概ね表すとみなすことが出来る。これは、実験系別の洗浄後高懸濁水中に残 った微細濁質質量を反映している。微細濁質だけを選択採取した各実験系の洗浄回数と表面試料 湿潤重量の結果を図(2)-29に示す。



# 図(2)-29 分級洗浄1回から4回ま での高濁水上澄み沈殿物質

洗浄回数によって発生する微細濁質量は実験系毎でバラツキの大きく、洗浄回数が進むと SS 発生量が変化する傾向が示された。

全体として撹拌洗浄後の沈降性の悪いクエン酸添加系は、高懸濁水中に SS 量が多い。洗浄回 数を重ねるとこの系は徐々に微細濁質 SS 量が減少していった。一方沈降性の良かったクエン酸 を加えていない系は、洗浄回数3回目に微細濁質量が最大となった。どちらの実験系も洗浄4回 目の高懸濁水中 SS は減少していた。この実験を参考にすると、固-液比1:1の条件で撹拌洗浄を 行う分級操作では、4回の注水⇒排水操作が必要との知見が得られた。

図(2)-30には、撹拌洗浄で舞い上がった高懸濁水を洗浄操作終了後、約10分静置した後に移した容器の沈殿物表面に成層した微細濁質を、合計4回の撹拌洗浄後に採取した重量の総和を示す。

この結果からは、最も微細濁質の少なかった二酸化炭素を高浸透性水に溶かした水で分級操作 を行った場合、二酸化炭素とクエン酸両方を加えた洗浄系に比べ、3 割程度微細濁質発生量が少 なくなる方向性が示された。



図(2)-30 各洗浄条件下での分級Cs 除去;沈殿物表面(微細濁質)

図(2)-31 は分級の為に洗浄液を入れ撹拌洗浄を毎回5分/回で行った後の洗浄後高懸濁上澄み 全体に含有された Cs 量の変化を示した。高浸透性水だけで分級操作を行った系に含まれた Cs が 高くなっているのは、試料中 Cs が高いが、試料全量が少ないことで湿重1kg に換算した際の見 掛け上 Cs が大きくなった為である。

洗浄後に試料表層の粘土状微細濁質を除く土壌全体の Cs は二酸化炭素+クエン酸で分級した 実験系で9,000 Bq/kg 除染率72%、炭酸を高浸透性水に溶かした系では9,800 Bq/kg 除染率70%、 高浸透性水にクエン酸を加えた系が 10,600 Bq/kg 除染率 67%、高浸透性水のみでの分級系で 10,100 Bq/kg 除染率 69%となった。このように、各実験系の除染率にはそれ程大きな違いが無い。





図(2)-31 各実験系で分級操作(洗浄) の進行に伴う洗浄水中高懸濁水全体の 放射性 Cs 濃度推移

図(2)-32 4回の分級・撹拌洗浄終了後の 洗浄後土壌(表面薄層は微細濁質の層中 放射性 Cs を、表面直下層には洗浄後土壌 全体を撹拌した試料中放射性 Cs を示す)

分級操作時に加える SS 浮遊助剤と潤滑(滑り)効果がある程度判明した。 しかし、この 傾向は他の似た条件でも同じように確認出来るか、実際に Cs 除染を分級操作で進めようとする 過程では確認する必要がある。

確認の為の追加実験は洗浄回数を全3回として、分級操作(撹拌洗浄)後の、固-液分離工程

(上澄み移流工程)で3時間程の静置時間を置き、静置後の上澄みを静かに抜去り、後に残る沈 殿物のCs含有濃度の高さが評価出来る表面(極薄層)採取して測定した。3回の分級操作(撹拌 洗浄)後の洗浄後土壌は全体的によく混ぜ合わせ「洗浄後土壌」として測定した。その結果を図 (2)-7に示す。この実験結果から、先行実験で得られたCs分級への効果の確認を行った。

表(2)-3に追加実験で用意した実験系を示す。

図(2)-33 に示した実験結果は、追加実験の分級操作(撹拌洗浄)後の高懸濁水が沈殿した薄い表 層に含有する Cs 含有と、3 回洗浄後に全体を均一になるようよく混和した「洗浄後土壌 Cs」と なる。固-液比は先行実験同様 1:1 である。なお、追加実験は、先行実験と「撹拌洗浄」条件は土 壌と洗浄液との反応時間が短く、反応の緩やかな方向へ変化させている。各実験系列1回当たり の撹拌洗浄時間は1分未満、3回合計3分未満で、撹拌強度は先行実験より弱く、いわゆる急速 撹拌的な剪断流の大きく働く撹拌は行っていない。実験系列4の洗浄液は、先行実験と比べ、洗 浄液を用いるタイミングが異なり、2 回目の洗浄時に潤滑所剤としてクエン酸添加液を入れてい る。

追加実験において実験系列3の高浸透性水を用いた分級操作(撹拌洗浄)で生じた高懸濁水中 SSに高いCs含有量が示されている。実際には試料採取の対象となる微細な濁質層の占める容積 が他の実験系列より少ない。このような傾向は、「洗浄後土壌Cs」に現れ、最もCs分級効果の 大きな実験系は、系列4となった。

表(2)-3 分級操作時の SS 浮遊助剤と、潤滑(滑り)効果

法海同粉	run_1	rup_2	rup_2	run 1
加护回致	run i		run o	run <del>4</del>
1回	CO2	クエン酸	高浸透性水	高浸透性水
	クエン酸			
2回	クエン酸	クエン酸	高浸透性水	高浸透性水
				クエン酸
3回	高浸透性水	高浸透性水	高浸透性水	高浸透性水



図(2)-33 分級操作時の SS 浮遊助剤と、潤 滑(滑り)効果追加実験結果(図中1回か ら3回まで;表面の表記は、撹拌洗浄後の 高懸濁 SS を沈殿させて採取した試料内容 が沈殿層極表面薄層(1~3mm)であること を表した)

# b. 分級操作時の SS 浮遊助剤と、潤滑(滑り)効果まとめ

分級時に懸濁する微細粒子 SS 浮遊を助ける助剤では二酸化炭素による気泡を、大きな土粒子 表面に付着していると思える微細 Cs 吸着粒子の引き剥がし効果を助ける目的の潤滑剤にはクエ ン酸を用いた添加実験を行った。その効果を、分級に伴い発生する撹拌洗浄時に舞い上がる越流

追加実験;再現性の確認で用意した実験系

水中 SS 発生量などを含め全体的に評価するには、助剤の除去率寄与だけでなく、Cs 分級工程中 での SS 発生量や、助剤を使う為の装置追加やコストも問題になる。

三つの観点から全体を眺めれば、本実験で得られた優れた分級システムには2つの実験系列を 挙げることが出来る。一つは「高浸透性水に二酸化炭素」を組み合わせた分級システムで、図(2)-3 から図(2)-6 に示した先行実験に示されたものだ。「高浸透性水に二酸化炭素」組み合わせ条件下 での Cs 除去率 70%ではあったが、撹拌洗浄から 10 分静置後の洗浄槽中 SS が最も低い。この実 験を本格的な現地システムにスケールアップする上でも SS 浮遊助剤の準備は二酸化炭素や空気 の微細気泡を高浸透性水作成時に混入させるだけですむ。追加機器はガス/空気とレギュレータ と配管だけの極簡易なプラス a である。このように SS 浮遊助剤の容易は容易で、クエン酸など を混和するより簡易さで大いに勝る。

#### 2) 分級操作(撹拌洗浄)固-液比の検討

#### a. 結果と考察

実験結果を図(2)-34に示す。 実験結果は、Csを含む水田土壌の除染を分級による「固-液分離」 で進める本研究の延長を考える場合、一般的に吸着や脱着/脱離で使われる「固-液比」よりかな り固相割合の大きな、つまり小さな「固-液比」の反応槽で十分に機能する可能性を強く示す結果 となった。



図(2)-34 1回目分級洗浄(高浸透性水)2 回目分級洗浄酸洗浄(クエン酸)時の分 級洗浄後土壌中 Csの除去率%

前節までの実験には、「固-液比」を「1:1」としていた。本実験結果から、分級洗浄による除染 システムに助剤の助けを借りれば、除染作業の行われる現地の土壌条件が変化する場合にも、作業 手順状「固-液比」の目処は、概ね「1:1」で十分であると表現出来ることが分かった。これは分級 作業を進める土壌が、乾燥していても、湿潤状態であっても、洗浄効率に極端な変化が起こらず、 洗浄液の多い方向に「固-液比」を振れば図(2)-8中の「固-液比」が「1:3」や「1:4」に示さ れるように効率低下の発生リスクが大きくなることを示す結果と云えそうだ。

#### b. 分級操作(撹拌洗浄)固-液比の検討のまとめ

本節では、現地作業で含水比の変化等には無関係に、高浸透性水を利用する分級洗浄方式で放 射性Cs除染を進める場合、「固-液比」は「1:1」でよい。

#### 3) 分級操作による Cs 除染洗浄工法の全体システムに関する検討

#### a. 工法としての検討

仮置きCs汚染土壌のオンサイト処理も視野に入れた高浸透性水を用いたCs汚染分級洗浄工法の概要と課題をまとめた。図(2)-35~図(2)-50には、最終的な実験結果を得る過程で行った300Lタ

ンクでの「固-液比」1:0.9で行った回分式の分級洗浄実験の様子を示した。

実験用原水は使用の都度真野川源流に設置して河川水をポンプアップし、チップ濾過槽(図(2)-35)へと送水し、濾過層を通過しCs含有微細濁質を含まない濾過水をその後の水利用の原水として用いた。流量の少ない低水位の河川水は透視度が高く、SSや濁度も低い状態だったが、降雨後増水時には、高濁度で様々な形態のSSも流下して来た。チップ濾過槽通過濾過水濁度や色度には濾過開始からしばらくは僅かに木質系チップ溶出の色が含まれていた。しかし濾水中マリネリ 1L容器で放射性セシウム検出限界(概ね3~6Bq/kg)未満であった。



図(2)-35 原水中SSの放射線量削減に用いた、手作 りチップ濾過槽(黒い角形1<sup>+</sup>」槽) 濾過水は高浸透 性製造装置(写真3-4建屋の中)へとポンプで送ら れる。本実験施設の高浸透性製造システムの処理水 量は1時間約1<sup>+</sup>」。

【課題】濾過層に常に河川水や地下水を用いるこ とは出来るのか?分級洗浄の水は無限で ない



図(2)-36 原水濾過後の水⇒高浸透性水へ調整(図右)⇒ヘッドタンク注水(図左)

【課題】複雑な高浸透性水製造システムを一体化し、より高速処理(時間当たり流量の大きい) 処理が必要。また秋期以降気温が下がった環境では、図3-4(右)の右下に見える、二酸 化炭素高圧ボンベのレギュレータが減圧時に凍結し、微細気泡による浮上分離が行えな くなる。凍結防止の対策は必要



図(2)-37 高浸透性水作成後分級洗浄水を300L分 級洗浄槽のリザーバータンクへ送水。

【課題】 処理系の水回りが分散化していると余計な 人手が要る



図(2)-38 予め実験圃場の「水田」表層 5 cm~10 cmを剥 ぎ取り、実験用土壌試料として保存。 剥ぎ取り土壌保 存は土壌上面をブルーシートと防水シート2枚で覆った が、小さな雑草が繁茂。

【課題】処理対象土壌は、本実験で使用したよく混合 した乾燥土壌ではないことも多い

図(2)-39 水田剥ぎ取り土壌のハンドリングを含水比の 高い条件で行うと、土壌が容易に泥団子塊へと変化する。 一旦泥団子塊となった土壌を洗浄工程で短時間に液相中 に分散させることは極めて困難だった。晴天続きの作業 や、高湿度環境で袋詰めされた土壌を対象に行う泥作業 で、泥団子塊対策は現実的に大切な課題である。

【課題】Cs除染処理で、現実的な課題の一つが、処理前 =分級洗浄槽投入土壌の「泥団子塊」をどうし たらよいか

図(2)-40 分級洗浄用の300Lタンクへ分級洗浄に使 う高浸透性水を注水しているところ。分級洗浄槽の本体 は写真のように極めて簡潔。

【課題】分級洗浄槽は簡潔だが、システムー式はハンド リングに手間が掛かり面倒

図(2)-41 含水率の小さな乾燥している土壌は、泥団子 塊にならない。しかし注水や撹拌工程で、泥団子塊へと 変化する。本システムの「固-液比」は1:1が基本だ が、「固-液比」の小さな分級洗浄方式でことに泥団子 塊の発生が起こり易い。

「泥団子塊」対策の解決策

図3-1その1フローチャートに上部に示すように、「泥 団子塊対策」は高圧噴流ポンプによる噴流で解決出来 た。







図(2)-42 分級洗浄工程の第一段階、Cs汚染土壌搬入終了。 300L分級洗浄槽の周囲には、洗浄時に発生するCs含有高 濁度懸濁水の漏出を抑止するため、高さ15cmの防水壁を 用意

【課題】300L桶を使った実用化実験では、Cs含有高懸濁 排水の処理系(パイプライン)未完成だった。実 験は回分式で行ったが、連続流で桶縁からSS越流 する系の効果へ反映は難しい

図(2)-43 空気洗浄の様子。エアー源には浄化槽用のブロア ーを利用 写真撮影時は、上向流に伴う連続的な微細濁質の 越流までを行っていない。

この写真は、「固-液比」を1:0.8から1:0.9まで高浸透 性水を注水し、空気洗浄約10分の後上澄みをバケツで200 L槽へと排出する回分処理の様子。回分式の分級洗浄操作は1 セット合計3回の分級洗浄とした。

【課題】反応槽表面から分級洗浄操作を行うのは、液状化 した土壌と水の抵抗を受け力が要る。

図(2)-44 高浸透性水の注水 洗浄土壌への注水時には、土 壌間隙中に含まれた空気が泡となって水表面に出現

【課題】大量の土壌を処理する場合、表層からの注水では 下層土壌へは速やかな浸透は難しい

図(2)-45 空気洗浄による分級洗浄操作では、空気先端が全面に当たるようゆっくり動かしている。

【課題】空気洗浄だけで土壌を全体的に混合撹拌すること が十分に出来ているのか? この方式では底層程 撹拌が困難だった

> 分級効果を十分に発揮出来る混合撹拌条件は、こ の程度の撹拌でよいのか?

> 洗浄後土壌の状況を見ると泥団子塊が出来てい て、土壌の微細粒子が泥団子に取り込まれていた ので、この方式での撹拌は却下





図(2)-46 空気洗浄をおよそ10分行った後、静置10分 程を経て、Cs含有高懸濁SSをバケツで汲み出した。汲み出 したCs含有高懸濁SSを入れた200Lタライ。

【課題】水を使った分級洗浄操作では、固液分離の効率が 生命線となる。連続的な越流工程で処理を進めた 場合にも、分級洗浄タンク上部から越流しない成 分は洗浄後土壌の上澄みとして残る。洗浄後の分 級洗浄槽の中で、土壌の上澄み⇒高懸濁物の液相 を効率良く排水する手段は必須。

> 土壌の上澄み⇒高懸濁物の液相の排水を、洗浄直 後に素早く終わらせることが出来るとCs除去率 の上昇に効く反面、洗浄後土壌の系外排除=洗浄 時土壌減少率増加の要因。

図(2)-47 分級洗浄終了後にCs含有高懸濁SSを汲み出した 後の反応槽。分級洗浄後土壌は、反応槽上部では土壌相互 に「泥団子塊」化現象は見られず分散していた。 「泥団 子塊」化現象は、反応槽下部に選択的に見られた。

【課題】「泥団子塊」現象の解決は、高圧噴流による土壌 塊破壊と分散で講じることが出来る見通しが立っ た。しかし、高圧噴流に土壌塊破壊と分散時に生 じる流れで、対象とする反応槽全体の分級洗浄が 可能か疑問?高圧噴流に土壌塊破壊と分散時に生 じる流れで分級洗浄可能な土壌量(「固-液比」固 定の条件で)の限界をどう評価すれば良いか? 分級洗浄槽中の土壌全体を混合撹拌するに足る撹 拌条件の検討も必要。⇒未だ検討は出来ていない が、数多い既往先行例に学ぶ

図(2)-48 分級洗浄終了後にCs含有高懸濁SSを汲み出した 後の反応槽の表面近傍土壤中Cs測定の為土壤採取を行っ た。表面は微細な粘土層が残る。

【課題】微細な粘土状土壌は、分級洗浄操作後に高濃度懸 濁水SSとして洗浄後土壌沈殿層の上澄み水にあ ったもの。微細粘土状土壌中のCs含有量を測定 し、越流で系外排除しきれない易浮遊性(微細な) SSの排出システム検討は大切。





図(2)-49 分級洗浄終了後にCs含有高懸濁SSを汲み出した後の反応槽から土壌中Cs測定の為土壌採取を進めると、土壌中に混入した草が出現。草は土壌撹拌時の障害になり土壌の混合撹拌を阻害する。

洗浄水と混合撹拌し易い粒径の細かな土壌は、分級操作後 に洗浄後土壌層の上方へ集まる。この層に「泥団子塊」は見 られない。「泥団子塊」は、分級洗浄槽の底の方に堆積する 洗浄後土壌に形成される。

【課題】スクリーン等で、表面剥ぎ取り土壌を分級洗浄する 前に、予め草や根等の異物を剥ぎ取り土壌中から篩 い分けするシステムが現実的には必要になる。



【課題】この実用化実験への試みで行った予備実験成果は、 反応槽最下部(底部)の洗浄後土壌は、「泥団子塊」 周辺に洗浄された土壌の混ざる結果を示した。この 時点でまだ高圧噴流は用いていないが、高圧噴流効 果と、混合撹拌方式の検討の組み合わせ効果で、1 回の分級洗浄に要する十分な作業時間を短縮出来る か(この実用化実験では約30分)検討を行う。



#### b. 抽出された工法上の課題の整理

実施条件 実験使用反応槽 300L桶

土壌;飯舘村佐須の水田表層5cm剥ぎ取り

「固-液比」=1:0.9 土壌200Lに対して水180L

分級洗浄には高浸透性水を用いている。

図(2)-51には、実用化を目指しシステム構築の検討過程に行った分級洗浄実験時に測定した、分 級洗浄過程の反応槽上澄みに含まれるCsと難沈降性の極微細な濁質に含まれていると推測出来る Csを示した。図から、洗浄過程の1回目、2回目には、1日の静置沈殿期間を経ても200Bq/kg以下と 土壌中Csに比べて低いCsが検出された。この図を基に分級洗浄全体のシステムを考えると以下の 要点が浮かび上がった。

	-	0 10	0 15	0 200
洗浄1回				
洗浄2回				
洗浄3回				RUN1
洗浄2回途中				RUN2
洗浄3回途中				

図(2)-51 分級洗浄工程過程で液相側の高 懸濁水中 SS を沈殿(静置期間約1日)さ せた上澄みに残った Cs





図(2)-52 2回の300L桶分級洗浄過程にお ける液相(高懸懸濁SS)中SSに含まれたCs (Bq/kg);静置約1日後の沈殿相採取

図(2)-53 2回の300L桶分級洗浄終了 後、反応槽に残った洗浄土壌の深さ方向Cs 分布

分級洗浄後越流水や分級洗浄排水の後処理を、重力沈殿に任せることにはCsレベルは低いもののリスクがある。また、静穏条件下での1日沈殿の難しい場合や、沈殿地内の流れ特性による沈殿成分の流出も考えられ、これらは水圏へのCs漏出リスク要因となる。

図(2)-52は分級洗浄過程の液相を採取して得られる高懸濁水中のSSを1日沈殿させて得た沈殿分離SSに含まれるCs含有量を測定した結果となる。

分級操作の進行に従った液相側高懸濁水中に含まれるCsの変化が読み取れない。この結果をこ こまでのテーブルテストの結果と比べるとその乖離は大きい。この予備実験手法には大きな問題が 潜んでいるか、複数の問題の絡んでいることを示唆している。

分級操作の進行に従った液相側高懸濁水中に含まれるCsに時間経過に伴う現象が見られないといった結果は、図(2)-53の分級洗浄後土壤Cs鉛直分布でより明らかとなった。分級洗浄後に残る高 懸濁水中SSに含まれる高いCsは、洗浄後土壤表面に沈殿し、特異的に高いCsを示す傾向を確認し て来た。また、分級洗浄時の撹拌効果が投入土壌全層に及ぶ場合、洗浄後土壌表面の極薄い微細濁 質層を除き、Csは比較的安定した洗浄後土壌としてのCs含有量を示す。しかし、深さ方向のCs含 有量は、バラツキが大きく、深さ方向に安定した放射線量を示さなかった。むしろ、実験系列1に は下層ほどCs上昇傾向さえ見られた。

この結果は、o混合撹拌が不完全だった o泥団子塊形成の影響 o微細濁質が分級洗浄工程で、 上澄み層に移行していないなど複数の要因が絡んだ為の失敗とみなせた。

#### c. 高浸透性水を利用する分級洗浄工法における課題

i. 課題1:分級洗浄の水は無限でない

河川水や地下水等、分級洗浄に使う原水は必須でありその確保は重要なポイントになる。場合に よっては、給水トラックなどで水を運ぶケースもあるだろう。 分級洗浄時の「固-液比」は1:1と水の割合は低いが、乾燥土壌を処理する例では土壌へ水が 吸われることで、処理土壌の見掛け容積と、分級洗浄時に注水する(必要)水量は必ずしも1:1 とならず、必要水量が多く要るケースもあった。

この課題解決へは、分級洗浄利用水の再利用が有効であるが、水再利用を支える根拠となるのが 図(2)-23である。図(2)-23には、分級洗浄工程の2回目最初排水以降(図中には;洗浄2回途中 と 記した)の分級洗浄処理水中の高懸濁物質の上澄みにはCs含有の無い(検出下限以下)であるこ とが示されている。

この事実から、本課題への解決策で提唱する水の再利用は分級洗浄処理2回目以降には、Cs含有の無い水として再利用が可能と判断出来た。1回目から2回目までの洗浄水は、凝集沈殿とチップ濾 過などの過程を経た後の検討が必要だが、後述する「チップ濾過処理水」中のCs含有は(ブレイ クスルーの起こった1回を除き)検出限界以下だったことを参考に出来る。

システム全体としての必要水量は以下のように計算できる

①【(高浸透性水利用分級洗浄システムのライン全体を満たす水量) - (分級洗浄槽水量)】 +

②【分級洗浄槽で操作1回必要水量×分級洗浄回数;の必要水量】

$$+$$

③【分級洗浄反応槽へ土壌搬入後最初の注水時に起こる高浸透性水の土壌給水による減少水量】 +

④【分級洗浄システムのライン全体からの損失水量】

このうち、②+③+④ の維持水量はシステム運営上で最低限必要な水量確保ラインとなる。 今回本格的な高浸透性水利用分級洗浄システム全体の作成は行わなかったが、除染実証レベルで の予備実験と、その後の実験を踏まえ「固-液比」もそのままとすれば、除染対象土壌1m<sup>3</sup>に対し、 3回分級洗浄を行うとすれば、概ね3.5m<sup>3</sup>(この内 0。5m<sup>3</sup>は洗浄初回投入土壌への吸水量)の 水量が必要となる。うち3m<sup>3</sup>×1割(分級操作時土壌表面に残る水量)=差し引いた水量は継続的 に確保の必要な水量となる。

従って;土壌1m<sup>3</sup>処理当たりのシステム最低必要水量は、概ね

水 0.8 m<sup>3</sup>/土壤 m<sup>3</sup>

になると予想出来た。投入土壌の分級洗浄工程終了(分級洗浄槽への土壌投入から排出)までの必 要時間は工程表に従えば、およそ1時間となる。

この条件で、剥ぎ取り土壌仮置き場や除染対象地で分級洗浄によるCs除去&土壌の減容化を行 うとき、土壌日処理量を100m<sup>3</sup>を想定すれば、概略の必要敷地面積100m<sup>3</sup>で1<sup>1</sup> 処理システ ム12系列 から13系列の設置が可能。

土壤日処理量100m<sup>3</sup>

作業時間8時間/日 時間当たり必要水量 100m<sup>3</sup>/時

1日必要水量800m<sup>3</sup>/日の条件と計算できた。

#### ii. 課題2 「泥団子塊」現象の解決

「泥団子塊」現象は、分級洗浄工程では注水直後から発生する。一方、水田のような粘土系土壌

の多い場所の表面剥ぎ取りでは図(2)-54に見られるような状況で確認出来、かなり頻発している現 象である。

「泥団子塊」現象を起こした土壌を水処理する場合、どのような処理であっても、「泥団子塊」 が分散しなければCs除染効果は装置本来の持つ性能を下回るだろう。



図(2)-54 表土の剥ぎ取り時に見られる、土壌と、土壌の「泥団 土塊」

微生物処理に細胞性粘菌効果は、水田等粘土系土壌の表面剥ぎ取り土壌で多発する「泥団子塊」 形成土壌の分散化に由来することを述べた。しかし細胞性粘菌による泥団子消滅効果の発現までに は手間暇が必要となる。阿武隈山地で細胞性粘菌を使った微生物処理を実施する課題には、時間(適 温で最低4日程度)の制限と培地や種菌培養などに関わる人手の確保、除染コスト上昇などが挙げ られる。これを新たに表面剥ぎ取り後の汚染土壌や仮置き場剥ぎ取り土壌へ適用する場合、広い敷 地面積と、温度管理出来る培養条件の必要性など、全体とて負の効果要因の増える可能性にも考慮 を向ける必要がある。多くの試行錯誤の末の解決策は、「泥団子塊」直接破壊への高圧噴流利用と なった。

実用化規模での実証実験として水田土壌のCs除去手法を、高浸透性水での分級洗浄として取り 組んだ本年度は「泥団子塊」形成が分級洗浄による作業最中に起こることも確認出来た。除染対象 土壌の装置投入から注水操作時または、分級洗浄の為の撹拌等エネルギー入力後の装置内土壌に 「泥団子塊」現象は発生していた。

これらの状況を背景に、「泥団子塊」そのものの破壊と、「泥団子塊」形成を抑止する分級洗浄 方式の検討を重ねことが実用化規模での実証実験では大きな柱となった。

実験では高圧噴流圧力は、1 MPsから最大6 MPsの範囲で、多くの場合概ね5 MPs程度で十分で あった。高圧噴流ポンプの吸水は、チップ濾床通過濾過水の利用で十分である。30L桶を使った 15kg土壌分級洗浄実験では、実験対象土壌全てが強固な「泥団子塊」であった。

そのような条件下で高圧噴流ポンプ利用「泥団子塊」潰し=分散化は、ノズル先端から直接噴流 を「泥団子塊」へ当てる必要があった。この操作を自動的に進めるのは、分級洗浄槽の下部構造の 凹部に向いて高圧噴流ノズルが(必要個数は要検討)当たるような構造にすることで、分散化し粒 径の小さくなった土壌は上向流に乗って上方の液相部へ移動⇒沈降性の大きな「泥団子塊」は分級 洗浄槽の下部構造の凹部へと移動を繰り返すことで、土壌の分散化は進んでいく。

装置形状の具体案・詳細例などは、本システム化が現実的になった時からでも十分対処可能とな るだろう。

# iii. 課題3 分級洗浄操作時に発生する易浮遊性(微細な)SS 中含有 Cs が除染能に及ぼす影響の評価/高懸濁の液相の効率的排水の意義の評価

実用化規模での実証実験では、分級洗浄工程でCs減少の操作で行った液相側への易懸濁物質(微

細土粒子)中に含有されたCsは、洗浄後土壌より高いものの、洗浄回数の繰り返しによって変化 する傾向を示していない。これは、分級洗浄工程の進捗と除染対象土壌全体のCs低下とがリンク しないことに繋がるように思える。実用化規模での実証実験はCs減少%が低く、洗浄後土壌のCs 分布にも大きなバラツキが示された。

水を使った分級洗浄操作では、固-液分離の効率が生命線となる。分級洗浄を連続的な越流工程 で進めれば、処理槽上部から越流する高懸濁成分中に、サイズが小さく浮遊性の高い微細濁質が含 まれ系外排除される。全ての易浮遊性微細濁質が系外排除される訳でなく、その一部は洗浄後土壌 の上澄みとして残る。従って洗浄後の分級洗浄槽の中で、土壌の上澄み⇒高懸濁物の液相を効率良 く排水し、除染効率を上げる手段は大切になる。

機械システムの設計段階に必要になる情報としては、土壌の上澄みになる液相=高懸濁物排水を、 どのような流れ条件(速度など)と時間内で終わらせようと考えるのか、なども必要になる。もし、 液相=高懸濁物排水を洗浄直後に素早く終わらせることが出来るとCs除去率の上昇に効く。反面、 洗浄後土壌表面で起こる巻上がり(掃流や摩擦速度)が関与して、不必要な洗浄後土壌の系外排除 =洗浄後土壌の減少は増えてしまう。

さらに、分級洗浄工程では、工程の進捗に伴う液相側へ微細濁質/SSとして移行するCsは減衰 していくような分級洗浄操作でなければ、全体的な効率上昇は望めない。実用化規模での実証実験 で問題となったこの課題は、課題2;「泥団子塊」現象の解決とも密接に関わる。

厳密に考えれば本課題は課題2だけでなく、分級洗浄によるCs含有土壌の除染システム全体の 生命線となる事象になる。「泥団子塊」の解決策だけはでない。機械装置システムの中身も関与す る。すなわちCs除去を目的とした分級洗浄工程で謎でもあり、躓となっている要素解決後に評価 することとした。Cs除去を目的とした分級洗浄工程の謎と躓の課題解決は、ハンドリングが容易 であることも重要な要素となる。

ここまでの実験では様々な理由から、テーブルテスト・実用化規模での実証実験双方とも、基本 は回分式実験で行ってきた。その最も大きな理由は、Cs除去に関わる個々の要因の解明無しに連 続流れの実験系に持ち込むのは、実験結果の評価が難しくなることだった。そこで実験条件の変更 が簡単で、個々の要因を明確に評価する際、その検討の容易な回分実験での検討を優先させたこと である。



ここまでの知見を参考に、図(2)-55には2Lビーカによる回分式実験で得た分級洗浄操作の繰り 返しに伴う液相の懸濁SS中放射能を示した。

> 図(2)-55 分級除染効果確認のテーブルテスト 結果

> 分級洗浄回数に伴う上澄み高懸濁SSの含有Cs放 射線量 実験対象土壌放射能は、湿潤条件下で 19700 Cs(134+137)Bq/kg

この実験は、「固-液比」1:1で、系列毎に洗浄条件の変化を与えている。5分を基準に設置し

た各分級洗浄操作の後、約5分の静置時間をおき液相=上澄みの高懸濁SSを洗浄後土壌の巻上がりや 移流が起こらないよう細心の注意を払い、1000 mLビーカーへと移した。ビーカー中の高懸濁SSは、 翌日上澄みを注意深く捨て、u-9カップへ採取し放射能分析を行っている。

図(2)-56は、実験条件の異なる4つの実験系列の全てに分級洗浄の進捗に伴った分級洗浄過程で 「液相=上澄み中の高懸濁SS」含有放射能は連続して減衰していく様子が明確に示された。これは、 「泥団子塊」形成が無く、分級洗浄時の撹拌が土壌層全体に及ぶ、といった基本条件が守られた結 果である。分級洗浄方式に多少の差異はあっても、この基本が守られていればCs除去効果は、分 級洗浄回数に伴い減少することは、本除染システム開発に当たって、大切な条件となった。

図(2)-55に示すテーブルテスト結果を実証実験へと繋ぎ、連続流で越流させ分級洗浄した場合の 除染効果を図(2)-1に示す。30L桶での実験は、連続流実験で行った。従って、回分実験時のように 洗浄回数に応じた液相側高懸濁SSに含有されたCsの濃度変化を見ることは難しい。



図(2)-56 分級洗浄効果確認の30L 実証試験 2回の分級洗浄操作後、越流水中SSと処理槽 下に沈殿堆積した洗浄後土壌の表層(1mm~ 2mm層)を含む鉛直Cs分布 洗浄後土壌の除染率:実験系1:68%、実験系 2 :65%

実験結果は、分級洗浄工程終了後に桶(処理槽)下部に堆積した液相側の排水の間に土壌表面へ と沈む微細濁質の ○極薄い土壌表面層、分級洗浄終了に実質的に液相と土壌相の境界であった、 ○極薄い土壌表面層の直下土壌、分級洗浄操作で完全混合が行われていたかの目安となる○桶底層 土壌と洗浄後土壌全体をよく混合撹拌した後、数カ所でサンプリングした土壌をさらに混和しU-9 カップに移して分析した○洗浄後土壌を、分級洗浄工程の終了間際に越流した「液相=上澄み中の 高懸濁SS」含有放射能を○越流終了液相 実験に用いた試料土壌放射能と併せて示している。

#### 4) 分級操作による Cs 除染洗浄工法

基本概念はここまでの内容と同じであるが、この実験では幾つか予備実験の知見を活かせない状況が起きた。

○ 微細気泡を高浸透性水に混入出来ない【二酸化炭素高圧ボンベの調圧器(レギュレータ)故 障】

O 分級洗浄槽以降に続く⇒凝集沈殿槽⇒チップ濾過槽相互の配管接続は行っていない

上記理由から、実験過程で越流水を採取し Cs 測定は行った。測定後に越流水中 SS と洗浄後土壌の壁面付着分は廃棄したため、見掛け上分級洗浄に伴う土壌減量率は大きくなる。

# a. 試験方法

ここまでに得た知見を形にした実証試験は以下のような手順で行った。

i. 分級洗浄槽は30L桶を用いた。

- ii. 予め分取しておいた分級洗浄対象の剥ぎ取り表土(15kg)は、剥ぎ取り時の「泥団子
  塊」が強固に形成されていた。
- iii. 分級洗浄対象土壌を分級洗浄槽に入れた所、容積およそ十数リットルだった。容器の変 更が出来なかったため、本実証試験は「固-液比」をこれまでの1:1から、越流水量1 0L確保を優先し「固-液比」はおおよそ1:2で行った。
- iv. 分級洗浄槽中では、「泥含土塊」対策で導入した高圧噴流ノズルを底層面近傍で作動させ、「泥団子塊」崩しを行った。必要時間はおよそ10分以内であった。
- vi. 「泥団子塊」を桶に投入する・注水は行わない⇒
- vii. 高浸透性水を原水に、高圧噴流ポンプを5MPsで稼働。最初から直接「泥団子塊」を噴 流で粉砕する・高圧噴流ポンプ突出水だけを注入水とする分級洗浄系である⇒
- viii. 桶内部水位は徐々に上昇し、桶の下部では上向流速3cm/分弱だが、桶の径が広がるに 連れ上向流速は減少。越流する上部では上向流速が2cm/分以下に減少。この上向流に 乗って、分散した土壌成分中、舞い上がり易い微細濁質が液相中に高懸濁 SS の形態で 浮遊⇒
- ix. やがて越流が起こる。越流液相成分は120L角形桶に移流。⇒※高圧噴流ポンプ停止
- x. 桶から120L角形桶へと分級洗浄時に移流した越流液相成分を5分から15分以内に 採取
- xi. 分級洗浄桶(高懸濁 SS の上澄み)は高圧噴流ポンプ停止から約5分静置・その後静か に(桶底層土壌の巻上がりに注意し)桶上澄み=残った液相部を「貯留槽」として用意 した他の桶へと移す。
- xii. 分級洗浄桶から液相部を「貯留槽」へと排水後、洗浄後土壌のサンプリングを行う。サンプリングは、土壌表層の極薄い表層部と、表層部を含む残りを混和した土壌の2試料対象で行った。
- xiii. 高圧噴流ポンプ停止から約20分から40分後に、貯留槽として用意した桶に移した分 級洗浄後桶の上澄み高懸濁 SS を深さ方向にサンプリングする。
- xiv. 高圧噴流ポンプ停止40分から1時間までに貯留槽として用意した桶に移した分級洗浄 後桶の上澄み高懸濁 SS を静かに混ぜ(沈んだ SS の巻上らないよう)サンプリング
- xv. 高圧噴流ポンプ停止の翌日、貯留槽として用意した桶に移した分級洗浄後桶の上澄み高
  懸濁 SS の24時間静置沈殿後試料を静かに混ぜて(角形水槽底に沈んだ SS の巻上らな
  いよう)サンプリングする。

なお、viからxivまでの操作は、1回2系列で3回繰り返し、3回の分級洗浄操作を行った。

#### b. 高浸透性水利用実証実験規模分級洗浄試験の結果と考察

高圧噴流ポンプからの水のみが分級洗浄槽への注入水となる実証実験系で液相側へ舞い上がる 懸濁物質は、微細な土壌粒子が多く含まれていた。この結果はここまでに得た知見と同じであった。 1回目分級洗浄操作時に舞い上がった微細土壌粒子で、分級洗浄工程中に桶の上部から越流し、1 20L角形水槽へ移流した成分にも土壌粒径による沈降速度の違いは起こる。1回目分級洗浄操作 終了から5分の静置後に分級洗浄槽の上澄みとして残った高濃度懸濁態SSを貯留槽へと移し、分 級洗浄操作終了約1時間未満に測定した深さ方向のCs鉛直分布は、貯留槽底層部だけが上層や中層 より低いCs(2000Bq/kg)となっていた。それ以外に深さ方向の変化は目立たない。 対象土 壌によって分級洗浄時越流水中Cs濃度は静置した時間経過によって底層へ沈降し易いSSと、懸濁 したままのSSに分かれる。対象土壌では分級洗浄後1時間程度未満であれば高濃度懸濁態SS貯留槽 中の重力沈降は図(2)-57に示す程度で、底層部が低い以外それほど神経質になる必要は無いだろう。



図(2)-57 分級洗浄時 1 回目終了時の洗浄槽上 澄み(液相)を5分静置後、他の容器に移し、 20分から40分静置沈殿させた後、その上澄み 層を深さ別に採取したCs測定結果

分級洗浄でCs除染を進める上で大きなポイントが図(2)-57に示されている。分級洗浄後、土壌表 層(1mmから2mm程度の極薄い層)には、高濃度のCs測定結果が示されている。分級洗浄1回目 終了時、土壌表面の極薄い層の下の土壌全体の示すCsレベルは、分級洗浄終了後に槽の上澄みと して残った高濃度懸濁態SSを受けた貯留槽タンク底層と同程度のCsであった。

問題点は2点で、

- i. 越流成分には、分級洗浄時の乱流で巻上る土壌粒子中に比較的沈降し易い大きさで Cs 含有の大きく無い成分も含まれていた。 さらに
- ii. 分級洗浄操作終了後の5分から15分に易浮遊性の高懸濁 SS(上澄み)を引き抜いた にも拘らず、洗浄後土壌表面に高い Csを含む薄層が残った。

この結果は更なる分級洗浄によるCs除染に生かす基礎情報として大切になる。分級洗浄工程での固-液分離は、作業過程で土壌中Csが液相側へ分離することで進行する。その一部は分級洗浄槽中から越流による移流成分中に、残りは、分級洗浄終了時に槽上澄み中に残った高濃度懸濁態SSの形態中に存在する。



図(2)-58 分級洗浄過程で越流した高濃度懸 濁態 SS に含まれている Cs の洗浄回数に伴う 変化

分級洗浄槽中からの越流中に含まれて系外排除されたCsは120L角形水槽中に保持される。図 (2)-58は分級洗浄を繰り返す中で、越流水が120L受け槽に溜まった状態で保持された越流水中の高 濃度懸濁態SS含有Cs測定結果である。

選択的に高いCs濃度を持つ微細濁質の存在と、当該微細濁質成分が分級効果で分画できれば、
土壌中Cs除去もその原理で行え、水分級でのCs除染効果が表れる。図(2)-2には、洗浄初回の越流 水中には25000Bq/kgを超えるCsの移流成分の在ったことを示す。越流水中に見られた他の 試料に比べ明らかに高かったCs移流成分の値は、分級洗浄2回目以降、3回目に掛けた操作時に示 されたCs減少傾向に実験系列による違いを示した。系列1;青桶系では2回目分級洗浄から3回目 分級へと減少傾向は続いたが、実験系列2;赤桶系では分級洗浄2回目と3回目に越流水中Cs変化は ほとんど見られない。





図(2)-59 分級洗浄時 1 回目終了時の洗浄槽 上澄み(液相)を5分静置後、他の容器に移 し、約24時間静置沈殿させた後、その上澄み 層を深さ別に採取したCs測定結果

図(2)-60 分級洗浄時 1 回目終了時の洗浄槽 上澄み(液相)を5分静置後、他の容器に移 し、40分から60分静置沈殿させた後、その 上澄み層を深さ別に採取した Cs 測定結果

図(2)-59と図(2)-60は、共に図(2)-58に引き続く経過時間約1時間後と24時間後の洗浄槽上澄み(液相)中Cs値を示している。両図から1回目の分級洗浄終了後に槽中の上澄み沈殿を移した容器の中で1時間経過時点での高懸濁SSと、24時間経過した時点の高懸濁SSに含まれるCsに大きな変化が無いと云った結果が示されている。

両図の結果にと図(2)-58の結果を併せて考えると、分級作業で分散化した微細土壌粒子は、1時 間以内に起こる沈降沈殿で液相中懸濁物質に含まれたCsは変化する。しかし、重力沈降で浮遊成 分と、沈降成分に分離する限界は約1時間以降には働かない。

図(2)-61と図(2)-62から図(2)-63に実証実験規模分級洗浄システムの結果を示す。高浸透性水で分 級洗浄の回数を重ねる毎に、洗浄後土壌中のCs濃度は低下している。試料採取は以下の方法に従 った。土壌表面から底層まで全体を数回混合撹拌し、全体から数カ所をランダムに選び試料サンプ リングを行った。





図(2)-61 高浸透性水を用いた分級洗浄時の 洗浄後土壌放射能 Bq/kg に及ぼす洗浄回数の 影響

図(2)-62 高浸透性水を用いた実証実験規模 分級洗浄システム結果 乾燥重量当たり土壌 で見たCs (Bq/kg dry)減少 分析はゲルマニ ウム分析計による;名古屋大学エコシステム 研究所 片山新太教授 赤塚徹志氏より提供

図(2)-63 高浸透性水を用いた実証実験規 模分級洗浄システム結果 土壌中放射性セ シウム総量で見た Cs Bqの減少結果。 分析 はゲルマニウム分析計による;名古屋大学エ コシステム研究所 片山新太教授 赤塚徹 志氏より提供

実験系列1(青桶系)、実験系列2(赤桶系)の分級洗浄回数増加は、図(2)-59、図(2)-60に示さ れている分級洗浄時終了時の洗浄槽上澄みを静置させ測定した液相側高懸濁SS含有Csに青桶系と 赤桶系に大きな違いはない。しかし図(2)-56に示されるよう分級洗浄工程中の桶から越流する高懸 濁SSに含有されていたCsに図(2)-60と対比する結果が示唆されている。すなわち越流成分の赤桶系 と青桶系比較では、赤桶系により高濃度なCs含有が確認されている。一連の結果からは、分級洗 浄土壌中Cs濃度を決める要因として、越流する液相に除染能を決定する大きなウェイトのある可 能性が示唆された。

図(2)-63に示した様に、洗浄後土壌乾燥させてゲルマニウム分析器で測定した最終的なCs除去率 (図(2)-62から算出)は、高圧噴流ポンプ圧力の低かった青桶系で80%、赤桶系では87%となった。

分級洗浄方式による除染方法の弱点の一つには、除染工程で越流土壌に由来する土壌減量を挙げ られる。

図(2)-61,-62,-63に見られる様に今回の実証実験規模分級洗浄試験では、土壌減少量が大きくなった。この値には、操作終了から土壌試料サンプリング時、試料サンプリング後の洗浄土を回収しな



かった影響も含まれているが、その誤差は数%のオーダーであろう。

図(2)-64 実証実験規模分級洗浄システム高 浸透性水を用いた実証実験規模分級洗浄シ ステム結果 土壌中放射性セシウム総量で 見た Cs Bqの減少結果。 分析はゲルマニウ ム分析計による;名古屋大学エコシステム研 究所 片山新太教授 赤塚徹志氏より提供

#### c. 物質収支に関して

実証実験規模分級洗浄試験を終え、分析データに基づく解析過程での謎が解明出来ず、物質収支 は成立しなかった。最も大きな疑問は越流流出過程で系外排除されたCsをサンプリング試料測定 値で計算した場合、【分級洗浄後土壌のCsに比べ】全く計算が合わないことであった。最も極端 な例として、図(2)-58に示される越流水中に含まれ、系外排除されるCsの分級洗浄効果を考えてみ る。



図(2)-65 分級洗浄工程1回洗浄後の越流水を 3日以上静置させた液相中のCs;ほとんど沈殿 しない極微細濁質の懸濁水試料のCsを検出 (1Lマリネリ容器で測定)

初回分級洗浄時の越流水中の液相中⇒高懸濁SSに含まれた Cs=28,000Bq/kg が測定されている。 越流水中のCsと分級操作終了後の土壌上澄み排水の値を、計算すると、1回目分級洗浄後土壌のCs を計算すると、12,000Bq/kg を超える計算値となり、実測値の1.5倍以上のCs減少が起こっている ことになる。このように、実験時の物質収支は、観測値から計算することが出来なかった。

この原因には、分級過程で土壌表面に吸着したCsの中で、極めて微細な濁質分画(比表面積と、 液相内移動の自由度が大きい)が存在。

- 土壤吸着 Cs の一部が、分級洗浄工程で一時的(極短時間内)脱着の可能性
- 一時的(極短時間内)脱着成分の周辺濁質への再吸着;比表面積の大きな微粒子程 有利

濁質表面極近傍の微視的環境下で起こるCs脱着・吸着の繰り返し反応の可能性も考えられる。また高圧噴流で分散する際に生じる微細濁質がどのような役割を果たすか、脱着や再吸着を介した系 外排除への寄与も考える必要はある。

## d. 高浸透性水利用分級洗浄システムの課題とまとめ

分級洗浄方式の今後の課題は安定した除染効率維持と土壌減量の減少になる。分級洗浄操作の越 流時上向流流速や、分級洗浄操作終了後に洗浄後土壌の上澄み中微細濁質を含む排水方法がこれま で示唆された除染と土壌減少抑止要因だろう。これらの再検討は、更なる安定した除染効率維持と 土壌減量の減少に結びつくだろう。

高濃度濁質の沈殿効率を上げる機械システム(例えば傾斜板沈殿装置など)の導入などによる効 果検討も有効になりそうだ。

これまでの積極的な除染作業成果;表層剥ぎ取り後に溜まった膨大な汚染土壌処理を、オンサイトで効率良く進めることが出来るかは、処分場問題にも絡む要因になりそうだ。

ここで提示した分級洗浄システムの除染効果を維持出来れば、除染後土壌を農地に再還元し天地 返し等で水田などが再利用可能になるだろう。

洗浄土壌分級洗浄システムでの洗浄効果を維持し、土壌減少量を小さくする方向に進める意義は大 きいように思える。

#### (3) 木質系沪床による濁質抑留効果

#### 1) 木質チップ濾床による濁質抑留効果

#### a. 微細濁質除去率と抑留量

図(2)-66に濾床厚の異なるチップ濾床濾過の処理前と処理後の濁度を示す。 図中●印は原水濁 度となる。チップ濾床濾過前後の濁度は、濾床厚40cmから50cmの実験系で、およそ濁度20 度(20mg/L)以下でほぼ安定した流出濁度変動を示した。流出水の濁度はチップ濾床厚が薄く なると、連動して大きな値となっていく傾向を示している。最も厚いチップ濾床でも、原水濁度の 急激な上昇時には処理濁度も上昇した。

図(2)-67には、図(2)-66に対応した微細濁質除去率を濾床厚毎に整理してある。二つの図から、 どの濾床厚の実験系も除去率そのものはあまり安定した傾向を示していない結果が分かる。除去率 の変動と濾床厚の厚さには明確な関係が見当たらず、この実験系では濾床の厚さは毒質状居にそれ ほど影響していない。これは、原水が濾過層に入る流下点で洗掘が生じていたことが原因だろう。 通水開始から27目に起こった急激な原水負荷の上昇時に、除去率低下は起こったが80%の除去 率を示していた。このように全体としては、微細濁質除去率は濾床厚が厚くなる程上昇する関係が 示された。

除去率で考えるか、累積抑留量で考えるか、考え方の違いは大きい。除染作業後のセシウム再汚 染・拡散を抑止するには、除去率根拠の設計を、複雑な工程管理、維持管理性を選べば抑留絶対量 の大きな設計が有利となる。

二つの相反する考え方の元になる原理は、濾床内の濾過抵抗だ。濾過抵抗は流入濁質が濾過床内 部に抑留された為に大きくなるだけでない。チップを濾材に用いる濾床の一つの特徴は、物理的抑 留機構が砂や各種プラスチック系濾床と異なっている点を挙げられる。木質系素材は濾材そのもの に活性炭のような空隙が多いこと、濾層になった時チップが均一な計上でない為、濾材同士が作り 出す濾床内部複雑な空隙が出来ることなどである。濾床内部の空隙と濾材内部への微細粒子取り込 みに加え、水に馴染んだチップ濾材は表面にぬるぬるした代謝産物を出すようになる。空隙を流れ てくる微細濁質は、この「ぬるぬる効果」により架橋作用のような働きでチップ表面に補足される。 生物化学的な働きに助けられ、チップ濾床内を通過する濾過継続時間は、見かけ上他の濾過に比べ 短い場合が多い。





図(2)-68 沈木濾過濾床中に抑留された微細濁質成分の累積量;乾燥重量(SSg)で表示

## b. 濾床内部の流れ特性と微細濁質抑留機構

図(2)-69にはネットで落ち葉を防ぎ、流水桝で草と葉の濾過層流入を抑止した水路のトレーサー 実験結果を、図(2)-70は、チップ濾床表面に河川原水中を漂ってくる流れ葉や草などが入らないよ うにした水路のトレーサー実験結果を示す。二つの図の違いは、濾床表面で濾過閉塞が進む図(2)-69 では、濾床内を流れるピーク流量に至る時間が2分40秒後に来るがその後30秒間ピーク流量が 流れ続ける平らな頂点を示していること、濾床表面に落ち葉などの堆積の無い、濾床表面濾過閉塞 の発生を押さえた実験系は奇麗な山形曲線でピーク流量を通水開始から3分10秒後の1点だけ で示した。

ピーク流量を迎えた後の流れの差異も二つの図に明らかである。濾床表面で濾過閉塞が進んだ条

件(図(2)-69)は、ピーク流量が流れた後の減衰曲線はピーク流量前と似た形状でない。これは正 規分布に乗らない減衰曲線となった。濾床表面に落ち葉堆積が無く濾床表面濾過閉塞発生を抑制し た実験水路の結果ではピーク流量を挟みほぼ正規分布となる曲線を示した。

一般的な砂濾過は、砂層表面のごく薄い箇所だけが濁質補足に役立ち、濾床内部の深さ方向に濁 質抑留はそれほど期待出来ないことが知られてきた。チップ濾床をセシウム高濃度吸着微細濁質の 補足に用いることを前提として想定すると、抑留機構の違い、濾床内部の水の動きをさらに知る必 要がある。セシウム含有高濁質抑留量の大きさ、流域への再汚濁を小さくする二つの接点の最適化 は出来るか? が課題となる。そこで実験に用いた濾床からの流量低下が大きく、ほぼ濾床内が目 詰まりしていると看做せた段階で、トレーサー実験と、濾床表面から深さ方向の微細濁質抑留量を 測定した。濾床内が目詰まりしていると看做せた段階で行ったトレーサー実験の結果を図(2)-71に 示す。縦軸はトレーサーのイオン濃度指標である電気伝導度(mS/m)を、横軸は通水時間(分)をそれ ぞれ示す。形状の異なる水路に同じチップ濾材で濾床を設け、河川水通水を続けるとやがて濾床に は抑留物質が増加し、濾過流量は減少し濾過閉塞が進行していく。この状態でトレーサー実験を行 うと、濾床の新しい時に比べ、イオン濃度曲線の示す山形ピークは潰れていく。

図(2)-71に示した濾過閉塞の近い矩形水路のトレーサー実験結果は、図(2)-69や図(2)-70に比べ山 形のピークが見られない。図(2)-71中で立ち上がりの強いイオン濃度曲線は水路形状が縦×横=1: 1.3程の1<sup>+</sup>,水槽を改良したものである。同様になだらかにピークが増加していく山形のイオン濃 度曲線は水路形状が縦×横=1:4.4程の長軸方向の長い長方形水路のトレーサー結果となる。





図(2)-69 ネットで落ち葉を防ぎ、流水桝で草と葉の濾過層流入を抑止した水路

図(2)-70 落ち葉の影響と流水中を流れる草葉の影響を受ける水路



図(2)-71 濾過閉塞の近い矩形水路のトレーサー実験結果

この図に示されるように、イオン濃度曲線の山形は、図(2)-69や図(2)-70と比べれば全く異なった推移を示した。これは濾床内で目詰まりが進むと、空隙の大きなチップ濾床の中で濾過層内の水は抵抗の弱い箇所へと流れを変えて進み、チップ濾床内をさまよいながら流れ出ていくのであろうと察することが出来る。

水路(濾過床)の長軸方向に対する幅の比率(縦横比)が全く異なると、濾床内部の水の流れに 影響する結果が図(2)-71には示されている。この実験の流入端は長軸方向の片側だけに設けたが、 水路長が長くなれば、チップ濾床のように浸透性の良い濾過層では流入端側から微細濁質の抑留や 目詰まりが進行し、それが徐々に流入端から遠い箇所へ移動していくこともある。その場合、トレ ーサーの山形はピークをなかなか明確に示さなくなるだろう。

チップ濾床内を濁質と流れはさまよいながら移動していくような現象が起こっていると予想した濁質抑留機構の検証は、濾床内へ取り込まれた微細濁質の抑留量の深さ方向分布測定結果から行 鵜こととした。図(2)-71より、縦、横比の違いは濾床内流れに特性に影響する傾向が示されたこと から、この実験は全て1<sup>15</sup>水槽で行っている。

#### c. チップ濾床内部深さ方向の微細濁質抑留

図(2)-72、図(2)-73は、それぞれ同じチップ、同じ形状をしたチップ濾床で、チップ濾床厚だけが5cmほど異なる2つの実験系の濾床に抑留されていた微細濁質を深さ毎に取り出し測定した結果である。

チップ濾床は2ヶ月以上の濁質抑留期間を経て、濾過閉塞が近いと判断した状況下でのサンプリ ングを行った。サンプリングでは、微細濁質抑留によって固くしまった濾床をレーキによって少し ずつ剥ぎ取っている。一回の剥ぎ取り厚さは力加減で異なる為、同じ深さのサンプリングを行うこ とは出来なかった。縦軸の深さ方向がバラツイているのはその為である。

サンプリングでは、1<sup>1</sup>>水槽全面を対象に長軸方向と短軸方向をそれぞれ3分割づつに分けた合計9カ所からおよそ各1L程度のチップ濾床を掘り出した。深さ方向1層当たりチップ濾床に抑留 されていた微細濁質の評価はこの1群のチップを対象に行っている。



図(2)-72 チップ濾床厚およそ40cm水路での微細濁質濾過進行に伴う(濾過閉塞 の近い条件で採取した)濾床深さ毎に抑留された微細濁質SS量



図(2)-73 チップ濾床厚およそ45cm水路での微細濁質濾過進行に伴う(濾過閉 塞の近い条件で採取した)濾床深さ毎に抑留された微細濁質SS量



図(2)-74 チップ沪床厚およそ40cm水路に抑留された微細濁質を強制 剥離させた時の単位チップ沪床面積当たりの抑留SS重量



図(2)-75 チップ沪床厚およそ45cm水路に抑留された微細濁質を強制剥 離させた時の単位チップ沪床面積当たりの抑留SS重量

チップ抑留微細濁質の取り出しは、大型バケツ中に各深さ方向に採取した1群のチップを入れ、 水道水入れ、十分な撹拌を何度か行った。撹拌して洗浄したチップはザルに移した。この繰り返し を3回行う3回洗いで得た洗浄水中の微細濁質をSSとして測定している。

図(2)-74、図(2)-75から、チップ濾床内に抑留された微細濁質は深さ方向の分布がばらついていること、抑留が特定の深さに集中していない、などの共通の特性を見いだすことが出来る。トレーサー実験で、イオン濃度曲線のピークに至る段階、ピーク以降のテーリングに正規分布と異なる様相が表れたのは、チップ濾床中の抑留ムラと濾床内部の濾過抵抗の違いが原因していることが示唆された。図(2)-74と図(2)-75は、図(2)-72、図(2)-73に対応した、各層当たりで剥離した抑留微細濁質を単位面積(m2)で表現し直し、二つの実験水槽の深さ方向全体で、どれほどの微細濁質抑留が起こったかを表した図となる。計算ではチップを実測し、比重1.09から1.11の結果を反映させた。チップ濾床厚およそ40cm水路では微細濁質がSSとして87kg/m<sup>2</sup>抑留されていた。またチップ濾床厚およそ45cm水路には、109kg/m<sup>2</sup>の微細濁質がSSとして抑留されていた。この抑留量は、微細濁質を固液分離対象にする濾過システムとして大きな値と評価出来た。

## d. セシウム高濃度含有微細粒子の固液分離【阿武隈山地での木質系チップ濾床の効果】

チップ濾過を行う実験前後のチップ状態を、図(2)-76に示す。図のチップは広葉樹主体チップで ある。使用前と比べ実験終了時にはチップが脆く、脆弱な状態に変化し木から土へと土壌化が進ん でいるように感じられた。

セシウム汚染水田土壌などを洗浄・脱着処理をすると、溶液中で沈降性の悪い微細濁質は容易 に沈殿しない。この性質を利用した洗浄方法と沈殿分離の組み合わせは、単純で分かりやすい除染 システムの洗浄部となるだろう。流れにのって移動しやすい微細濁質を含む洗浄水の固液分離手法 には、濾過が一般的と云える。濾過の課題は様々だが、ほん業務では、阿武隈山地の特徴を考慮し、 木質系チップ利用の提案を行った。

阿武隈山地には多くの樹木が茂り、過ぎ等植林された里山も多い。 山の樹木は手入れが悪いと 材木としての商品価値低下や、根入れの悪さから地滑りの原因や保水力低下繋がる。里山や森の生 態系にも影響は大きい。除伐や間伐を行わない生い茂ったままの樹木間には光や風が通りづらくな る。これは森林全体の生態系を弱くする原因になるとも考えられる。

樹皮にはセシウム吸着は見られても、樹幹にその影響は無い。これらの現況を合わせて考え、里 山や森の除伐、間伐を積極的に進め、浄化技術に繋げる考え方も「有り」だろう。このような阿武 隈山地全体を活かすバックグランドから、チップ濾床によるセシウム高濃度含有微細濁質除去は、 叶った除去技術と思える。



図(2)-76 濾過実験前後の濾材使用木質チップ

#### e. 木質系濾床による濁質抑留効果小括

セシウム洗浄と脱着工程で出てくるセシウム高濃度含有微細濁質を、木質系チップを利用した濾 過床によって個-液分離する手法の具体化を目指した。

木質系チップは濾床として用いるには、およそ2週間程度のチップ浸漬工程が必要となる。 浸 漬後のチップは 比重1.09から1.11と水中で沈み浮上することは無い。浸漬後のチップ濾床 は、通常の均等係数が規定されている上水用砂濾過の濾過特性とは全く異なる微細濁質抑留機構を 示した。チップ濾床の微細濁質抑留の特徴は、深さ方向に抑留の極大層を示さず、深さ方向全体で 抑留を進めるに見られた。チップ濾床への微細濁質抑留量は、濾床厚さによって異なった。実験範 囲では SSとして87kg/m<sup>2</sup> から 109kg/m<sup>2</sup> の負荷を受け入れていた。

## 2) 水田灌漑用の木質チップ濾過による実証試験

#### a. 実験結果と考察

現地仮設置の大形濾過槽への原水は、佐須地区を流れる真野川の源流からエンジンポンプでポン プアップした後、大形水槽へ送水した濾過槽通過して灌漑水としている。本実験では河川中を流れ る濁質に付着したCsを測定し、濾過によるCs除去能の評価を行っている。図(2)-77には真野川が濁 っていた時に行った何度かの濾過能評価実験の測定時の、原水中Csと濾過水Csを示す。原水Csの 高い値は、強い雨で、源流河川の濁りが大きくなった時のCsを示している。高濁水時の河川水= 濾過実験の原水をマリネリ1L容器に入れCs測定する時の写真を示す。このサンプル分析図にはマ リネリ容器中でも川の濁りの様子がはっきり伺える。★印の測定時にだけ濾過水中へのCs漏出/漏 洩が確認されたが、その他の観測日にはCsの漏出/漏洩はすべて検出下限以下であって確認出来な かった。

鳴子ダム濁質の抑留浄化実験時には、連続的な水と濁質供給条件の下でチップ濾過実験を行うこ とが出来たが、本実験では、川の濁りが連続的に起こっていて、濁りを連続して濾過することは出 来なかった。実験艦即時以外のチップ濾過槽は、常に上水を張った状態で維持していた。図(2)-24 に見られる濾過水中へのCs漏出/漏洩は、濾過水の水に溶けたCsでは無く、濁質に付着/吸着してい るCsが濁りと一緒に濾過水中へ出て来た為に起こる現象となる。濁質に濾過層で濁度が抑留されな いで通過したか、すでにチップ濾過層中に抑留していた濁質が通水によってチップ濾過槽から出て 来たのか原因は不明である。

不連続的通水条件で濁質濾過を行うケースでのブレイクスルー(濾過破綻)は、連続的な通水条件に比べて起き易いことは想像出来る。 同じようなチップ濾過層を用いた鳴子実験例では、濁度の清澄化への寄与が大きく、砂濾過等より濁り成分(濁質、SS)抑留量が大きいこと、濾過速度も大きく取れること、等の理由で現実的濁度解決手法として期待出来る方向性が示されている。その例を参考にすると、不連続的な清澄化=濾過を行うような運転はなるべく避けることがCsの流域拡散を防ぐ為に大切になると云える。高い濁質負荷を一気に掛けることも、不連続的な濾過システム稼働条件となる。

チップ濾過槽の安定した稼働条件を支えることで、図(2)-77に示すようなCs漏出/漏洩問題リスク を減らすことは出来るだろう。 その為には、分級洗浄工程から越流・排出された高濁度圏濁水を 沈殿池経由または凝集剤混和の後に凝集沈殿による濁質除去システムの併用が望ましい。





図(2)-77 現地に設営したチップ濾過層の原水と濾過水中の Cs 測定結果。Cs(134+137)は NAI 検出器による1Lマリネリ容器を用い、測定時間10時間以上の条件で測定。 図中; 黒棒は原水の Cs を示し、原水に対応する試料は、原水採取後の約10分から1時間内に 2回から3回採水し、Cs測定に供した。右の図は、マリネリ1L容器に入れた、高濁水 時の真野川河川水。

## 3) 疑似現場チップ濾過槽による小サイズチップの濁質抑留実験

分級洗浄時に越流水や排水として出てくる微細土壤粒子を想定した濾過を継続し、濾過閉塞以前 ではあったが濾過速度低下などを根拠に通水を停止した。通水停止後の濾過塔内部の濁質抑留の進 んだチップを上部から5cm間隔に剥ぎ取り、チップ厚5cm毎の濾過層中に抑留SSを採取した。抑 留濁質の定量的判断は難しいため、濾過槽内の濁質抑留量はSSとして評価した。図(2)-78にチップ 厚5cm毎の濾過層中抑留SS量を深さ方向に示す。実験結果の大きな特徴は、濁質抑留は濾過層上 部から下部に向かい小さくなる傾向を示していることである。比較として鳴子ダム実験では、チッ プ濾過槽SS抑留量の深さ方向には大きな差異が認められなかった。鳴子実験で用いたチップを図 (2)-52に示す。図で分かる様に、チップには、サイズのバラツキが大きい。長径は数cmを超えるも のから、1~2cm程のチップも多く、平均化されていなかった。形状は全体的に「短い枝状」「大 きな針状」とでも表現出来るような長径>>短径を示していた。

鳴子ダム実験と比べ、今回用いたチップはサイズが小さく、形状バラツキも小さかった。 その 結果SS抑留は、濾層下部(濾層チップ厚;1系45cm、2系60cm)まで進行していたが、深さ方 向抑留量には減衰傾向が明確に示されていた。この結果は、基本的に既往の濾過に見られる、濾材 サイズと深さ方向抑留傾向の関係と同じような挙動と見ることも出来た。

実験停止時のSS抑留量は、濾層厚45cmの1系は20g弱; 2626g/m<sup>3</sup> チップ1リットル当たりのSS 抑留量が743g/L、層厚60cmの2系では23g弱;3040g/m<sup>3</sup> チップ1リットル当たりのSS抑留量が 860g/Lとなった。鳴子ダムでの実験では、濾過閉塞までの運転継続後に測った極限のSS抑留量を今 回と全く同じ測り方で計測した結果が約80g/Lとなっていた。今回用いた小さなサイズのチップ 濾過層は、最終的なSS抑留能は、鳴子実験のおよそ10倍大きかった。

この実験装置で行ったチップ濾過層中へのSS抑留特性と抑留量が、大形濾過槽と同じであると すれば、チップ濾過で抑留可能な濁質やSSは通常の濾過より多くなる。そのような場合、濾過閉 塞の回復が既往の「逆流洗浄」または、「逆流洗浄」に「空気洗浄」で可能か課題である。さらに 洗浄後に発生する大量のCs含有微細濁質の後処理問題も課題として残る。



図(2)-78 チップ濾過層深さ方向に抑留された SS 量(g)変化。図 5-5 に示した実験用濾過 塔に大形濾過槽と同じチップを充填した濾過実験結果。

## 4) チップ濾過のまとめと課題

- a. Cs 抑留特性は Cs 付着/吸着濁質の濾過除去特性に準じて考えた; チップ濾床は単純な濾層 構成の実験であり、ブレイクスルーの発生も見られた。しかし全体には概ね Cs 含有濁質を 効率良く抑留していた。チップ濾床は除線土壌洗浄濁質削減処理の仕上げ利用に適するだろ う
- b. チップ形状の影響に関しては、予備実験使用チップ形状【針状;長軸>>短軸 & 個体サ イズのバラツキは大】では、微細濁質抑留は濾床上下にほぼ無関係に進行していた。 今回 使用の濾材チップは、四角の平板状でサイズ差の小さな濾材、また小さなサイコロ型濾材で あった。この二つを組み合わせは、深さ方向の濁質抑留量に減衰傾向を示し、鳴子ダム濁質 抑留実験時のチップと異なる結果だった。しかし、微細濁質抑留能力は本実験使用のチップ も優れていた。
- c. 課題:分級操作で発生する大量の Cs 含有濁質の処理には、鉄系凝集剤などを利用する凝集
  沈殿前処理(本実験では未検討)が必要だろう(除去率 99%以上は可能との実績報告が多い)。
  後段でチップ濾床仕上げの2段階構成が安全と思える。
- d. チップ濾過層は既往の砂濾過に比べ、濾層深さ方向にも多くの濁質抑留が可能になるので、 濾過閉塞時の洗浄方法の検討や、洗浄後に発生する大量の Cs 含有微細濁質後処理問題への 対処も必要となる。

## (4) 土壌抽出洗浄工法の設計と最適化

## 1) 土壌付着・吸着セシウム洗浄工法の全体像

除染では全体の除染効率を高め、高濃度に濃縮したセシウムの最終処分量を減ずることは必須の 課題となる。それ以外にも除染システムの最適化を考案する上で、重きを置く点は、最終的な排水 中に含まれるセシウムの行き先への配慮が有る。 また、阿武隈山地の生態系を豊かにし、環境面 から山の恵みを生かしていく努力も大切に思える。



土壌洗浄槽を導入した生物処理実用システム除染

## a. 除染工程

除染工程で使う水は、高浸透性水製造装置を通り、除染装置へ入る。除染装置は、浮上分離によって逆洗撹拌に空気洗浄も加える洗浄方法で、浄水場で行われている急速砂濾過層の目詰まり発生時に行う逆流洗浄と同じと考えて良い。ポイントは、洗浄後セシウム濃度の低い土を水田へ戻す点である。除染装置の最終段階に、もう一つの除染装置である木質系チップ濾床濾過となる。二つの除染装置の間には予備沈殿槽(凝集剤混和槽と沈殿槽)を入れる。はじめの洗浄工程で上向流での空気洗浄を合わせた撹拌が行われる。最終段階で注水しながら逆流洗浄を行うので、微細濁質は次の凝集剤混和槽へ越流していく。その土粒子量は、およそ剥ぎ取り土壌全体の10%から30%程度になることが、土壌分析と実験から確かめられている。この除染土量が高濃度セシウム含有土粒子として越流すれば、固液分離の土量も膨大になる。この量の土量を、チップ濾過装置だけで固液分離していくには、膨大な敷地(濾小面積)が必要であり、運転管理の点からも、凝集沈殿無しには処理出来ないと考えられる。

## b. 鉄系凝集剤混和と凝集沈殿ピット

沈殿ピットに高濃度セシウム含有土壌を効率良く沈める手法は多くの土木工事の濁水対策で行 われてきた。大掛かりな土木工事で出る排水中、濁質サイズが小さく高濁度の場合には鉄系凝集剤 を使った凝集沈殿も行われてきた。

濁水対策で多くの実績に支えられてきた鉄系凝集剤を用いる場合、運転管理が適切なとき、濁度 除去率99.9%は難しいことでないといった実績も知られている。膨大な土量を処理する際、除染装 置①からの流出土量が1割から3割であれば、土壌洗浄槽からの流出土量は膨大である。流出土量 をさらに1%から1ppmのオーダーへと落とすことが出来ると、処理後の排水が流域を再汚染する リスクを減ずることが出来るだろう。このような考え方で、予備沈殿槽(鉄系凝集剤混和槽と沈殿 槽)を設けることとした。

## c. 洗浄後土壌の水田還元と鉄系業種剤の関係

沈殿ピットに溜まった微細粒子の総量は処理土量の1割から3割と膨大な量となる。水田表層土

図(2)-79 洗浄槽とろ過槽からなる除染工程アウトライン

や仮置き場の土中濃度を勘案すると、沈殿槽を経たセシウム濃度がおおよそ10倍になった土は、 まだハンドリングのしやすい範疇にあるだろう。鉄系凝集沈殿の混和によって、セシウム高濃度含 有微細濁質は沈降性が良くなり、速やかな沈殿除去を期待出来る。沈殿除去終了後の上澄み中には 凝集操作の常で、未反応の凝集剤が残留している。はじめの除染装置で微細濁質を浮上分離した後 に残る洗浄済み水田土壌は微細濁質を含まない水田土壌となる。また表層土の一部のセシウム高濃 度含有微細濁質を除去するで、土中の放射線量が下がることを述べてきた。

洗浄後土壌にも幾らか放射線量は残っているが、これを水田の稲作で作物へと移行させないよう にする『セシウム移行ブロック技術』は、サブテーマ(1)で開発している。『セシウム移行ブロッ ク技術』では、土中に鉄分を供給する効果が明らかにされている。そこで、鉄凝集剤の残留成分を 沈殿ピットから、はじめの除染装置へと返送し、洗浄済みの水田土壌を搬出する際に混和すること で、残留分は膨大な土壌と反応して水中から除去され、洗浄後の水田土壌は水田へと戻されるまえ に、稲へのセシウム移行を抑止する効果のある鉄分供給を受けることとなる。

このように、鉄系凝集剤の混和に引き継ぐ沈殿ピットと沈殿ピット上水の返送といった一連の流 れは、セシウム洗浄・脱着工程全体の処理効率と作業性を上げるだけでなく、水田に戻した洗浄済 み土壌中から稲へのセシウム移行を抑止するブッロックシステムがより容易に働くように変更す ることになる。

## d. 洗浄水の処理

洗浄工程流出土壌 比重

1.6

1.7

20 & 30 %

1次処理流出Vm3

100

150

沈殿槽から流出した水に含まれる高濃度セシウム含有微細濁質はチップ濾過槽へと送られ、凝集 未反応の沈殿ピット上水へ返送される。

#### 2) 除染作業最適化の検討

## a. 除染工程作業量イメージ

除染作業の洗浄・脱着除去工程を大まかに見渡し、除染作業最適化を検討した。

表(2)-4に、除染作業イメージで、1ヘクタールの除染作業を想定し、水田土壌の表層剥ぎ取り 厚を5cmとした作業条件を記す。剥ぎ取り水田土壌の密度や洗浄の条件と流出土壌量、沈殿ピッ トでの濁質除去率は表(2)-5、表(2)-6にそれぞれ示す。ここでは、洗浄槽内に残る洗浄後土量をこ こでは水田へのリターン土量と等しいして計算した。

対象面積	土工工程
1ha	剥ぎ取り厚5cm
m2	m3
	剥ぎ取り土量
10000	500
10000	500

表(2)-4 土壌剥ぎ取り量

容積

m3

100

150

洗

リク

表(2)-5 除染装置①流出土量など

除染装置 ①洗浄工程(2回洗い)

1次処理流出SS 1次処理流出土量

重さ

ton

160

255

350	99.9	149.85	255
400	99	99	1600
m3 `/+景	沈殿ピット除去率	沈殿ピット堆積土量	チップ濾過負荷SS
争土搬入	%	m3	ton/ha
		容積	重さ※SS ⇒(kg)
		沈殿ビット工程	

#### 表(2)-6 凝集剤混和後の沈殿工程

沈殿ピット	濾過工程	チッ	プ濾床流出水=流域	裶水
効果	1段除去率	SSkg∕1ha		
%	HRTは1段約5分	除染システム排水中SS(微細濁質質量)		
除去率		濾過1段	濾過2段目	濾過3段目
99	濾過除去率80%	320	64	12.8
99.9	濾過除去率80%	51	10.2	2.04
99	濾過除去率90%	160	32	6.4
99.9	濾過除去率90%	25.5	5.1	1.02

表(2)-7 最終流出微細土壌の推定

チップ濾床は目詰まり/濾過閉塞の起こる(流量低下が著しくなる)前に予め浸潤させ、濾床に 使えるよう用意しておいたチップと交換する必要が有る。表(2)-6からは、チップ濾床流出水中の SSがおよそ1kg/1haであれば、実験結果から、濾過への負担は小さく、現実的になると想定で きる。濾過閉塞前に取り出したチップ濾床は、現行では乾燥後焼却処分を考えている。

## b. 除染工程の課題

ここまでは、除染(洗浄・脱着)作業全体の効率を時間当たり処理可能量といった概念で考えて きた。最終的な除染作業への評価は、除染洗浄作業のスピードだけでなく、周辺環境への配慮も重 要になる。表(2)-7に示す最終流出微細土壌の推定は、除染(洗浄・脱着)作業終了後に濾床から排 水として流域水系へ出ていく微細濁質質量の推定値を示した。表面剥ぎ取り5 cmの水田土壌を表 中の条件下で除染(洗浄・脱着)した場合の結果である。濾過システムの多段化の効果と同時に、 凝集沈殿過程での除去率が、最終的なセシウム除染に大きく影響する結果となっている。

除染作業に重機を使う現行方法では、水田表層土を上手に剥ぎ取るため、予め表面に転圧を掛け、 剥ぎ取る手法が行われている。除染工程の土量評価等では、処理対象土量が計算され、次に密度が 影響し、最終的に容積評価の土量と、セシウム再汚染を評価する場合に使う質量に分けて考えるこ とが必須である。転圧は、土壌密度を上げ、土壌洗浄効率の低下が表層土の締め固め(転圧)で簡 単に進行する。これは、最終的な除染効率を落とすだけでなく、除染後の流出水中から流域へと排 出していくセシウムを増やすことになってしまう。

## 3) 除染工程最適化検討のまとめ

放射線汚染土壌からセシウムの洗浄・脱着を経て、最終的な排水、排出物中のセシウム動態まで を想定した中で、各システムの時間的効率と環境負荷を最小にしていく効率との接点につき検討を おこなった。考え方の基本は、水田表面の微細濁質に多くのセシウムが付着・吸着されている事実 である。

洗浄・脱着工程に搬入される土量はおびただしい量となり、その中で1割から3割の土壤量が洗 浄・脱着の過程で後段処理に回ると想定し、後段処理を検討した。後段処理には、里山環境や森林 生態系の保全にもなる、除伐、間伐した樹木のチップ化濾床濾過を提言してきた。しかし、後段全 体の受け入れ土量は膨大な量となる。そこで、最終排水の安全性と、処理工程全体の除染効率上昇 などを合わせて考えた。洗浄・脱着工程から受け入れる高濁水に鉄系凝集剤混和による凝集効果を 沈殿ピットの重力沈降による固液分離効果に加えることが必要である。鉄系凝集剤の沈殿効果を合 わせた段階で、微細濁質負荷は、およそ1/100以上から1/1000程度へ減少できると想定出来た。洗 浄・脱着工程の最終段階にあるチップ濾床へのセシウム輸送量は凝集沈殿効果の影響で小さくなり、 チップ濾床への負荷から見ると、概略1haあたり数m<sup>2</sup>程度の面積で濾過可能となるといった見通し が付けられた。

## 6. 本研究により得られた成果

## (1)科学的意義

- 1) 土壌中の放射性セシウム洗浄:河川水の水田灌漑および洗浄水処理を目的として、放射性セシウム含有微細粒子濁質物を抑留する木材チップ濾過槽(チップ槽厚>40cm)を用いて、懸濁物 99%以上除去に成功した。放射性セシウムは、おおむね検出限界以下であった。灌漑水用には、チップ濾床は少なくとも一作期間は継続して用いることができることを明らかにした(通常の上水などに、用いられる砂濾過に比べ、濁質抑留能力は濾槽全体で濁質抑留を進行させる特長)。周辺の里山、森林の樹木伐採時に発生する木材を利用することが期待される。また、洗浄水を直接的に木材チップ濾過槽に導入するのではなく、その前に沈殿槽を設けることの必要性が明らかとなった。また、その沈殿槽で用いる鉄系凝集剤は、セシウムの植物移行ブロック技術とも組み合わせて使えることが期待される。
- 2) 河川水中の放射性セシウム除染:河川水から作製した高浸透性水をベースに酸(硫酸、ク エン酸、炭酸)を加えた洗浄水を福島県飯舘村佐須土壌に 1:0.9~1.3 の低土水比で加え、 粘土画分等の細粒とともに放射性セシウムを除去する方法で、放射性セシウムの 30%(野 外代掻き除染)~80%(室内試験)の除去率を達成した。ただし、80%の達成には丹念な 粘土画分の除去が必要となる。除染作業時間は、1回洗浄 20分から 30分を3回程度で洗 浄が可能である。ただし、処理対象土が頑固な泥団子状態の場合には処理時間の延長も必 要となる。分級操作に必要な水は、循環と再利用が可能であることを確認した。
- 3) サブテーマ1と合わせて、5,000Bq/kg 程度の放射性セシウムで汚染された水田土壌であれ ば、農家がトラクターで行える安価な水田再生技術を開発した。ここでは、(i i)水田表層 土 5cmをトラクターで剥ぎ取る。(iii)灌漑水路から水田に引き込む水口で 50cm 以上厚さの ある木質チップ槽によって放射性セシウム付着懸濁物をろ過して取る(99.9%以上の除去

率)、(iv)チップ槽浄化水か ら高浸透性水(ナノバブル 水)を作成し、剥ぎ取り土 壌の洗浄を行う(洗浄効率 30%の代掻き洗浄~洗浄効 率80%の洗浄-沈殿槽からな る洗浄装置)が可能である ことを明らかにした。

4) また水中の懸濁物の放射性 セシウム汚染レベルが高い ことを見出しており、土壌 を除染しても山林から流下 する懸濁物によって再び汚



染される可能性が明らかとなった。空間線量の原因となっている山林を削って谷を埋める ような大規模土木工事を行う必要があることが示唆された。

## (2)環境政策への貢献

## <行政が既に活用した成果>

特に記載すべき事項はない。

## <行政が活用することが見込まれる成果>

現在、緊急課題となっている福島県相馬郡飯舘村の水田の除染に対し、現地の住民を活かした除 染の進め方に関して研究開発を進めるとともに意見交換を行い、放射性セシウム汚染農地の復興政 策への選択肢を用意した。

- 1) 5,000Bq/kg 程度の汚染土であれば、広範な除染に使える安価な除染技術を確立した。また、 地元住民(農家)が自分でトラクターを使って除染できる技術-除染作業が仕事になるた め、除染費用を地元民への賃金として出すことが可能となり、住民の元気づけとなって早 期帰宅を目指すことが出来る。
- 2) また水中の懸濁物の放射性セシウム汚染レベルが高いことを見出しており、土壌を除染しても山林から流下する懸濁物によって再び汚染される可能性が明らかとなった。懸濁物の水田への流入を防ぐ対策が必要である。また、収穫物の全量検査態勢を確立し、規定の線量未満のものだけを出荷することができる体制を整なければならないと考えられる。

## 6. 国際共同研究等の状況

特に記載すべき事項はない。

## 7. 研究成果の発表状況

(1) 誌上発表

## <論文(査読あり)>

特に記載すべき事項はない。

## <その他誌上発表(査読なし)>

特に記載すべき事項はない。

## (2) 口頭発表(学会等)

 Akatsuka, T., Suzuki, D., Eryürük, K., Tsuchiya, T., Yang, S., Takasaki, M., Fukushima, M., Abe, T., Usui, T. and Katayama, A. Horizontal and vertical profiles of radiocaesium in a contaminated paddy soil due to Fukushima nuclear power plant accident, First International Symposium on Advanced Water Science and Technology (ISAWST-1), November 11-13, 2012, Noyori Conference Hall, Nagoya University, Nagoya, Japan (poster)

- Tsuchiya, T., Akatsuka, T., Yang, S., Eryürük, K., Suzuki, D., Takasaki, M., Sawada, K., Fukushima, M., Abe, T., Usui, T., Katayama, A. Suppression of bioavailability of radioactive Cesium from soil to rice plants, International Symposium on EcoTopia Science 2013, December 13-15, Nagoya, Japan
- Akatsuka, T., Yang, S., Tsuchiya, T., Eryürük, K., Suzuki, D., Sawada, K., Takasaki, M., Fukushima, M., Abe, T., Usui, T., Katayama, A. Decrease of the plant-available radiocaesium using the iron compounds and clay minerals of 2:1 layer type, International Symposium on EcoTopia Science 2013, December 13-15, Nagoya, Japan (poster)

(3)出願特許

特に記載すべき事項はない。

## (4) シンポジウム、セミナーの開催(主催のもの)

特に記載すべき事項はない。

## (5) マスコミ等への公表・報道等

特に記載すべき事項はない。

## (6) その他

特に記載すべき事項はない。

## 8. 引用文献

特に記載すべき事項はない。

# Development of Biological Treatment System Antiscattering, Removing, Immobilizing Radionuclei in Soil

Principal Investigator:	Arata KATAYAMA
Institution:	Nagoya University, EcoTopia Science Insitute
	Furo-Cho, Chikusa, Nagoya 464-8603 Japan
	Tel: +81-52-789-5856 / Fax: +81-52-789-5857
	E-mail: a-katayama@esi.nagoya-u.ac.jp
Cooperated by: Ishinomaki	Senshu University

[Abstract]

Key Words: Radio cesium, Paddy soil, Washing and immobilization, Microbial mineralization, Nano-bubble water, Wood chip filtration, Transfer to rice plant, Performance by tractor

Because of the accident of Fukushima Nuclear powerplant upon the earthquake 2011, radionuclei have been released, and a huge area was contaminated. Farmland remediation is one of the urgent issue to be handled. Because of the defficiency of soil for landfill, we need to develp the technology to remediate the farmland without introduction of new soil. The remediation process carried out by general constructors has caused the significant decrease in the fertility of soils. Thus, the remediation method that can be handled by farmers are desirable.

In this study, we have conducted the research to develop the biological treatment system that can be mostly performed by tractor. The targeting farmland was set at paddy field. The treatment system is aimed to have antiscattering, removing and immobilizing radionuclei in soil. This treatment system composed of the following four steps: (1) Microbial calcite formation to clogg the subsurface soil of paddy field which prevent the escape of radionuclei as soil particle and also improve the performance as paddy field, (2) Soil washing with highly-infiltrating water provided as nano-bubble water, (3) water treatment with wood chips to prevent the scattering of clay particles with irrigation of paddy field, and (4) microbial iron mineralization to enhance the immobilization of remaining radionuclei in the soil particles, which prevents the radionuclei uptake by plants.

The in situ experiment demonstrated that microbial calcite formation at the subsurface soil successfully reduce the hydraulic conductivity of paddy field from  $10^{-4}$  cm/s to  $10^{-6}$  cm/s with the help of bentonite, CaCl2 and corn steep liquor. Soil washing

with nano-bubble water with weak acids or alkaline was carried out as small particle sorting process, which resulted in the reange from 30% in efficiency in the style of rotary hallow to 80% in the washing-sedimentation reactor. The soil to water ratios ranged from unity to three, which was remarkably small and advantageous to treat large amount of soils. The irrigation water was successfully cleaned using the filtration with wood chip. Microbial iron mineralization increase non-extractable radiosecium in soil, which effect was confirmed with the rice plant uptake test. However, in the field experiment at Fukushima, the contamination level of rice grain was so small that there was no significant difference in the treated soils.

This biological treatment system would be useful to remediate the radionuclei-contaminated paddy field in Fukushima prefecture.