

〔農工研技報 214〕
123～133, 2013〕

水田水口におけるモミガラ等を用いた用水中の 放射性Csの除去効果

久保田富次郎* 人見忠良* 濱田康治* 吉岡邦雄**
佐藤睦人** 齋藤 隆**

* 水利工学研究領域

** 福島県農業総合センター生産環境部

キーワード：放射性Cs, 除染, 灌漑水, モミガラ, ゼオライト, プルシアンブルー不織布, 福島第一原子力発電所

I 緒 言

東日本大震災に伴う東京電力福島第一原子力発電所の事故により放射性物質が福島県を中心とした地域に沈着し、広域に放射能汚染がもたらされた。

2012年末現在、放射線量が高い農地では表土剥ぎ取りによる除染が試行されるなど農地除染対策の技術書（農林水産省，2012）に基づいて対策が進められており、やや線量が高い農地では主に水田を対象にゼオライトやカリウムの投入による吸収抑制策など（福島県農業振興課，2012）が試みられていて効果の発現が期待されている。また、ため池においては取水方式の工夫による放射性物質の流出防止策や高濃度底質の除去などが検討されている。

なお、被災地周辺で検出される放射性核種には事故直後には¹³⁴Csおよび¹³⁷Csの他¹³¹Iがあったが、短い半減期のためすでに¹³¹Iは検出されなくなっており、本報では放射性物質として¹³⁴Csと¹³⁷Csのみを扱うこととした。

農業用水の水源地である森林やため池などの除染が進まない中で、渓流水やため池を起源とする農業用水が放射性Csで汚染された場合、多量の灌漑水を導入する水田では農地の再汚染や作物への影響が懸念された。そのため、福島県では、2012年度の水稲作に向けて対策の検討を本格化し、農地管理課では2月末に用排水路の土砂上げ時の留意点と堆積土が用水路や農地に流入しにくい施設運用法について各農林事務所へ指示を行った。それを受けて県北農林事務所では2012年3月6日に管内の自治体や土地改良区に対して農業用排水路とため池の堆積土対策に関する留意事項を伝えた。ここで、水田に関しては、取水口に土砂溜めを設けて上水を水田に取り入れるなど土砂流入防止への配慮が求められている。引き続き4月に入り県北農林事務所では、「農業用水の管理に関する当面の留意事項」についてJAを通じて個々の農家を対象に通知されたが、その中では水田水口や沢水、ため池掛かりの用水路にモミガラをフィルター材と

した対策を行うことが推奨されている。福島県内ではこの他にも様々な対策が試みられている（例えば、稲葉光國，2012）。

このような中で、モミガラ等の吸着・ろ過資材を用いた放射性Cs流入の低減手法は、農家レベルで実践が容易であるため多数試みられているものの定量的な効果の確認はこれまで十分行われていない。そこで、本研究では渓流やため池など水源の汚染に伴って農業用水に放射性Csが含まれることを想定し、その対策の一環として水田水口に設置したいくつかの吸着・ろ過資材による放射性Csの除去効果について検討を行う。本報は試験成果の一部を速報としてまとめたものである。

II 用水中の放射性Csと水田水口対策

1 用水中の放射性Csと水稲への影響

用水中に含まれる放射性Csの形態は、大別すると①溶存態、②懸濁態に区分され、①はCsイオンや溶存性有機物への吸着等として存在し、②はi) 土粒子表面に交換性陽イオンとして存在、ii) 土壌粒子へのフレイドエッジを含む吸着態として存在、iii) 未分解有機物に含有、などが考えられる（Fig.1）。

従って、用水に含まれる放射性Csの除去を目的とする場合、その方法として吸着担体を用いた溶存態Csの吸着除去やろ過資材を用いた懸濁態Csのろ過による除去、さらに懸濁態Csの沈殿除去などが考えられる。

水中のCsを含む物質のうち、水稲に直接吸収されやすく汚染米への寄与の高さがまず疑われるのは水溶性の放射性Csである。例えば、稲の水耕栽培実験（根本，2012a）では土壌を使わない水耕状態で水稲が溶存態の放射性Csを効率よく吸収することが明らかにされている。また、2012年度に実施された伊達市小国地区における栽培試験では、ため池を含む支流域において懸濁態の放射性Csを含む用水を引く限られた水田で高濃度Csを含有する玄米が収穫されている（根本，2012b）。

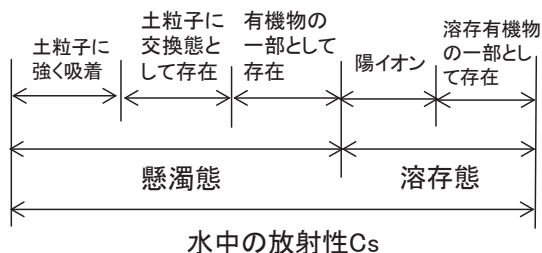


Fig.1 水中の放射性Csの存在形態
Form of radioactive Cs in water

一方、塩沢 (2012) は、観測された用水中のCs濃度を元に圃場におけるCs収支の観点から用水は汚染米の原因ではないとしている。Csは他の陽イオンとは異なり、土壌に強く固定されるため、土壌が存在する環境中では水溶性のイオン態では移動しにくい (塩沢, 2012) とされる。

平成24年度に実施された農業用水の水質調査では、主要幹線用水路において1Bq/Lを超える放射性Csは認められなかったが、一部の支線用水路では1Bq/Lを超える放射性Csが検出されている (東北農政局, 2012)。

2 モミガラ等を用いた水田水口における除染

水田水口における用水除染にモミガラフィルターの使用が推奨されるようになった経緯は前述のとおりであるが、そもそもモミガラを除染に活用するという発想は以下に由来する。

福島県が2011年度に実施した除染技術実証事業 (福島県生活環境部, 2012) の中で、南相馬市の庄建技術 (株) が安価で入手容易なモミガラに着目しそれに放射性物質を含んだ微粒子を吸着させることで水中の放射性物質を低減することを目指し開発されたものである (庄建技術, 2012)。その後、県内各地で試験的に、もしくは農家の自発的な取組として、モミガラ等を用いた用水の除染対策が試みられたが、試行する中で資材の安定的な調達や使用後の資材の管理や処分などに課題があることもわかってきた。今後、この手法の普及に向けて、効果を明らかにするとともに使用済み資材の処理法などの課題解決を図る必要がある。

本研究で想定した水田水口における除染対策は、モミガラやゼオライトをネット状の袋に入れて水口に置き、その中に用水を通水することで水中の放射性Csを除去することを目指すものである。この他、福島県内では、袋状のプルシアンブルー不織布にモミガラなどを入れる事例や、水口付近に沈殿池を設け懸濁物質の沈降除去を図る方法、廻し水路を設け流速が低下する導水路において沈降除去させる方法などが試みられている。

モミガラなどの吸着・ろ過資材を用いる方法の導入では、用水路の水面と田面の水位差の確保が重要である。灌漑に必要な水量を吸着・ろ過資材に通過させるだけの十分な水位差を確保できるか否かは、本対策の導入にお

いて重要な要因の一つである。その理由は、モミガラ等の資材に水を通過させるために必要な損失水頭が通水中に進行する目詰まりによりさらに増大するためである。水位差を確保できない場合には、水路の堰上げや通水断面の拡大などで十分に資材の中を用水が通過するか、または湛水域の形成により懸濁物質が沈殿するよう配慮する必要がある。一方、用水のパイプライン化が完了した地域やポンプで灌水を行う水田では、その水圧または湛水面との水頭差を利用することで灌漑水を吸着・ろ過資材中に通過させることは比較的容易である。

水田水口でモミガラ袋等を用いた用水除染において期待される機構を Fig.2 に示す。ここでモミガラを用いた用水除染において期待されるメカニズムは、溶存態Csのモミガラへの直接的な物理化学的吸着だけでなく、Csを含む懸濁成分のろ過もしくは沈殿の効果を加えた複合的な効果であると考えられる。

ろ過 (例えば杉本, 1992) では、ろ材の間隙径より流入する懸濁粒子が小さければ、ろ層内の間隙中において粒子が沈積する深層ろ過が生じ、ろ材の間隙径と同等かそれ以上のサイズの粒子が来れば、ろ材表面でストレンろ過が生じる。深層ろ過やストレンろ過が続くとろ材の表面にケーキ層と呼ばれる細粒固形分でできた層が形成され (ケーキろ過)、通過する水量 (流量) は減少するもののより清浄なる液が得られる。

以上を踏まえると、モミガラ袋等を用いた除染効果の評価においては、資材への純粋な吸着量だけを見るのではなく、ろ過や沈殿によって除去されるものも含めて実的に管理上持ち出しが可能なもの全体について評価することが望ましい。

III 材料と方法

1 資材の特徴

本研究では、モミガラに加えてゼオライト、くん炭、ならびに吸着バッチ試験のみでプルシアンブルー不織布を試験対象とした。

モミガラは、前述のように福島県除染技術実証事業において河川水等を対象とした除染方法として検討され効果が確認されており、これを契機に県内でモミガラを用

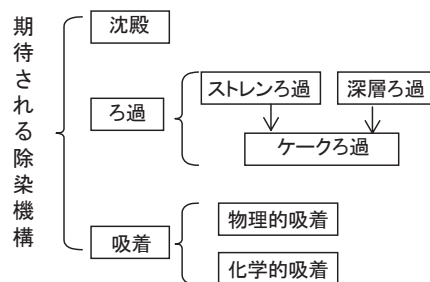


Fig.2 モミガラ袋を用いた対策で期待される除染機構
Decontamination mechanism of irrigation water expected at inlet of paddy field

いた浄化が試みられている。ただし、水田の水口における効果の定量的な検討は途上である。

ゼオライトはトンネル状の空隙構造を持ったアルミノケイ酸塩鉱物の総称（山口ら，2012）で、陽イオン交換能が高いことで知られ農業上は土壌改良資材等として利用されてきたが、高いCs吸着特性が着目され東日本大震災以降は除染に広範に使われている。今回試験に用いたゼオライトは被災地に近く供給も容易と考えられる板谷産クリノプロチロライトであるが、国内には他にもCs吸着速度がより早く分配係数も大きな愛子産モルデナイト（竹下，2012）も賦存する。いずれにせよ国内の資源量は豊富であることからそれらの活用が期待される。

くん炭は、モミガラを炭化したもので、比表面積の増加によるCs吸着効果の増大を意図している。

プルシアンブルーは、18世紀に人工的に合成された青色顔料の一種でCsに対して高い吸着特性を有している。プルシアンブルーはフェロシアン化鉄を主成分とするもので化学的に安定性が高くさらに耐放射線性も高い（竹下，前出）とされ、広く除染資材として使用されている。今回用いたプルシアンブルー不織布は、産業技術総合研究所（2011）により開発されたセシウム吸着材の一つであり、プルシアンブルーと同様の結晶構造を持つ大日精化製の紺青をモダアクリルとポリエステル製の不織布に練り込んで製造された。これは内部空隙が大きく通水性が良好であるという特徴を持つ。

ネット袋に充てんしたこれらの資材を Fig.3 に示す。

2 吸着バッチ試験

試験に供試したモミガラ、くん炭、ゼオライトと現地で使用されているプルシアンブルー不織布を対象として、セシウムの吸着特性を調べる簡易なバッチ試験を以下の要領で実施する。

- ・比較した資材は、①モミガラ (MG)、②くん炭 (KT)、③ゼオライト (細粒, Z1)、④ゼオライト (粗粒, Z3)、⑤プルシアンブルー不織布 (PB) および⑥⑤の資材にプルシアンブルーを塗布していない不織布の6種類とする (Table 1)。
- ・0.1mg/L, 1.0mg/L, 10mg/Lの3種の濃度を持つ非放射



Fig.3 供試した吸着・ろ過資材
Adsorption filtering medium used to experiment
(左からゼオライト, くん炭, モミガラ)

性Csイオン溶液 (CsClと蒸留水から調製) を使用する。

- ・各資材を250mL容のポリ容器に入れ、0.1mg/Lでは200mL, 1.0mg/Lと10mg/Lでは150mLのCsイオン溶液を加え、室温 (21℃) において振とう器を用いて1時間の連続振とうを行う。
- ・振とう後、ポリ容器内の溶液の上澄みを取り0.2μmのメンブレンフィルターでろ過した後、Cs⁺およびK⁺をイオンクロマトグラフで定量する。
- ・本試験の供試量は後述の現地試験における使用量の比を考慮したものでPBとFを除くとほぼ体積が同一となる。

3 現地試験

試験圃場 比較的空間線量率が高く地区内の複数の水田圃場においてH23年度産のコメから暫定基準値 (500Bq/kg) を超える放射性Csが近隣の複数の圃場で検出された福島県福島市内の水田圃場に試験圃場を設定した。放射線量等分布マップ (文部科学省, 2012) によると調査地を含む集水域の空間線量率は地上1mの換算値で1.0~1.9μSv/hである (2012年6月28日時点)。対象圃場の用水は上流約600mに位置する阿武隈川水系の小河川に設置された固定堰から取水され支線用水路を経て圃場に導水される。途中数カ所で山林からの渓流水が横流入する地点があるが、平水時にはほとんど流入は見られない。

試験圃場には、支線用水路上に設置された溜マスに堰板を設置し圃場に導水する (Fig.4)。圃場に導水された用水は電磁流量計 (愛知時計SU50型) および量水堰A (Hフリーム型) により流入量が測定され、その後最大10ヶ所に分岐・給水される。末端の給水量も量水堰B (Hフリーム型) により測定が可能である。また、用水導入部には濁度計と自動採水器を設置し、圃場内には0.5mm転倒升雨量計を設置する。

量水堰Aでは自記水位計で水位を記録し水位流量曲線により流量を算出し、量水堰Bでは水位計または水位の読み取りにより流量を測定する。これらを含む流量や雨量および濁度の測定は、データロガーにより10分毎に記録する。

放射性Csの除去試験 量水堰B (Fig.4) の先に接続する1~10の位置に、除染箱として流出面以外の面に空

Table 1 吸着バッチ試験に用いた資材と供試量
Materials for adsorption test

供試試料	供試量 (g)	備考
MG モミガラ	2.4	福島県伊達市
KT くん炭	2.4	市販
Z1 ゼオライト (細粒, 1-3mm)	14.0	A社 (山形県板谷)
Z3 ゼオライト (粗粒, 3-5mm)	14.8	A社 (山形県板谷)
PB プルシアンブルー不織布	0.55	B社
F 不織布 (6の素材と類似)	0.55	B社

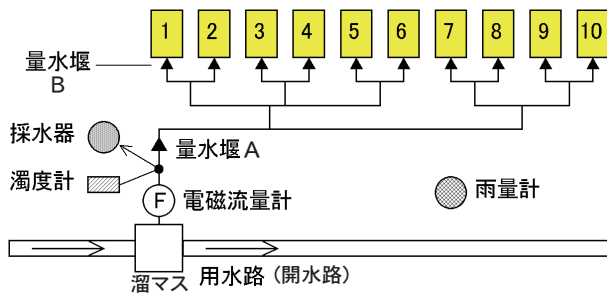


Fig.4 圃場における機器配置
Schematic diagram of field setup

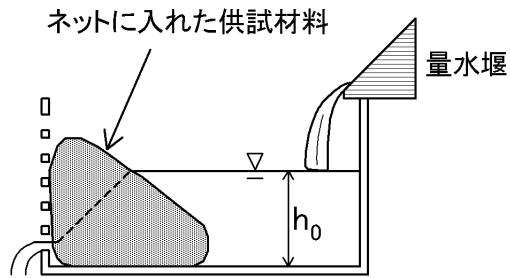


Fig.5 除染箱の断面
Cross section of experimental boxes

いている孔を塞いだプラスチック製コンテナボックス (内寸:長さ49cm, 深さ30cm, 幅33cm) を設置し, そこにモミガラなど吸着・ろ過資材を充てんしたポリエチレン製ネット袋 (長さ60cm, 幅35cm, 約2mmメッシュ) を設置し, 通水することで用水に含まれる放射性Csの除去を試みる (Fig.5, Fig.6)。なお, 量水堰の流出口から除染箱の流出孔までの鉛直距離は約20cmであり, 最大20cm程度の水位差を利用して資材中を通水し, ろ過・吸着を図る。

吸着・ろ過資材として, モミガラ (伊達市産, 放射性Cs濃度68Bq/kg), ゼオライト (細粒:1~3mm, 粗粒:3~5mm, 放射性Cs濃度:検出下限値 (40Bq/kg) 未満), およびくん炭 (放射性Cs濃度54Bq/kg) を試験に供する。これらは吸着バッチ試験の資材と共通である。

試験では, 用水を一定期間通水し, 通水後に吸着・ろ過資材を乾燥させ, その放射性Cs濃度を測定することにより除去量を算定し, 資材による相対的な効果の違いを調べる。吸着・ろ過資材の乾燥に当たっては, まず, 温室内等で天日乾燥を行い, 次に70℃に設定した定温送風乾燥器で乾燥を行う。乾燥した資材は全量を大型ポリ袋に入れて中で均質になるよう十分攪拌混合し代表試料を採取する。モミガラとくん炭では2Lマリネリ容器を用いて, また, ゼオライトではU8容器を用いてGe半

導体検出器により放射性Csを定量する。その際, U8容器を用いた分析では混合したサンプルにおいても測定値にバラツキが見られるので3反復をとりその平均値を採用する。一方, 2Lマリネリを用いた測定では試行的に一つの試料で複数の分析用サンプルを作成し分析したが, 値のバラツキが相対的に小さかったためその後は反復を設けず分析を行った。

IV 結果と考察

1 資材の吸着特性

資材の溶存態Cs⁺イオンの吸着試験の結果を Table 2 に示す。はじめにモミガラについてみると, 吸着質の濃度を0.1mg/Lとした場合にはCs⁺イオンの吸着は認められなかったが, 1.0mg/Lおよび10mg/Lではそれぞれ76%と46%が吸着し, 比較的多くのCs⁺イオンがモミガラに吸着することが分かった。モミガラへの吸着量は, 最大で10mg/Lのときに285mg/kgであった。このとき, K⁺イオンはCs⁺が0.1mg/Lで24mg/L, 1.0mg/Lで32mg/L, 10mg/Lで56mg/LとCs⁺濃度の上昇に伴ってK⁺濃度も上昇した。吸着質の水溶液中には当初K⁺イオンが含まれていなかったことからK⁺は明らかにモミガラ由来であるが, Cs⁺とK⁺に相関性が認められるところをみると, これは



(a) ゼオライトをセットした直後



(b) 試験後の様子. 表面の一部にケーキ層が形成されている.

Fig.6 除染箱
Experimental box

Table 2 資材の吸着特性
Absorption property of materials

吸着質 CsCl 水溶液	資材	質量 (g)	Cs ⁺			K ⁺	
			濃度 (mg/L)	吸着率 (%)	吸着量 (mg/kg)	濃度 (mg/L)	
Cs ⁺	MG	2.4	0.11	0	0.00	24	
	KT	2.4	0.11	0	0.00	10	
	Z1	14.0	0.00	100	1.43	0.2	
	0.1mg/L 200mL	Z3	14.8	0.00	100	1.34	0.4
		PB	0.55	0.03	72	26.1	0.1
		F	0.55	0.16	0	0.00	0.6
Cs ⁺	MG	2.4	0.24	76	47.3	32	
	KT	2.4	0.44	56	34.9	16	
	Z1	14.0	0.00	100	10.7	0.3	
	1.0 mg/L 150mL	Z3	14.8	0.00	100	10.1	0.4
		PB	0.55	0.04	96	261	0.1
		F	0.55	0.97	3	9.5	0.5
Cs ⁺	MG	2.4	5.44	46	285	56	
	KT	2.4	5.67	43	271	24	
	Z1	14.0	0.01	100	107	0.8	
	10 mg/L 150mL	Z3	14.8	0.01	100	101	0.9
		PB	0.55	3.97	60	1645	0.1
		F	0.55	9.31	7	188	1.0

MG: モミガラ, KT: くん炭, Z1: ゼオライト (クリノプチロライト, 細粒 1-3mm), Z3: ゼオライト (クリノプチロライト, 粗粒 3-5mm), PB: プルシアンブルー不織布, F: PB にプルシアンブルーを塗布させていない不織布

モミガラ中に含まれるK⁺の単純な溶出ではなく、一部では陽イオン交換としてCs⁺の吸着およびK⁺の脱着が生じていることが示唆される。くん炭においても概ねモミガラと同様の傾向が認められた。くん炭の単位重量当たりの吸着量はモミガラよりやや少なく、溶液中のK⁺濃度はモミガラの半分以下である。このデータからみると、くん炭ではモミガラより陽イオンの吸着サイトが少ないことが推察される。

ゼオライトの試験では、Z1とZ3のケースで当初それぞれ1~3mmおよび3~5mmであったものが、実験中の振とうにより粒子が崩れ一部は粘土状となった。そのため、比表面積が大幅に増えたものと推察された。ゼオライトの試験結果をみると、Z1とZ3ともCs⁺が0.1~10mg/Lの範囲で全量が吸着された。吸着量は細粒のZ1の方が粗粒のZ3よりやや多かった。これは、相対的にZ1の方が比表面積が大きいことが影響したものと考えられる。また、ゼオライトではK⁺の溶出は見られなかったが、これはゼオライトのイオン交換サイトにK⁺が付加されていなかったためと考えられる。ゼオライトは吸着率の高さから優れているように見えるが、前述のように比表面積の増大による過大評価の可能性がある、今後この点に配慮した試験が必要である。

次にプルシアンブルー不織布についてみると、0.1mg/Lで72%、1.0mg/Lで96%、10mg/Lで60%とゼオライトと比較すると低い。これは1/80程度と限られた質量の影響とみられ、反対に単位質量当たりの吸着量は10mg/Lで1645mg/gと高く3つの濃度レンジを通じてゼオライトの15~25倍である。プルシアンブルー不織布の素材

である不織布のみでは、吸着は0~7%と限定的であった。

2 圃場試験における用水の水質と懸濁物質の特徴

用水に含まれる放射性Cs濃度は、試験期間中またはその前後の測定値を見ると平水時は低く概ね1Bq/L未満(検出下限値未満)であったが、降雨の影響を受けて水中の懸濁物質が増え濁度が上昇したときには1Bq/Lを超えて観測された。

一方、用水中に含まれる懸濁物質の特性を把握するために、除染箱の位置に沈殿槽(Fig.7)を設置して沈降性の懸濁物質を採取した。現地で採取した沈殿物は冷蔵または冷凍で保存し、真空凍結乾燥により懸濁物質の試料を得た(Table 3)。3回の調査で得られた懸濁物質中の放射性Cs濃度は55,000~62,000Bq/kgと比較的類似した濃度であった。これら堆積物中には炭素が8~9%程度含まれ、一般的な土壌と比較すると有機物が多いことが示唆された。また、データとして示していないが、この堆積物1gに250mLの蒸留水を加え1時間の機械振とうを加えても放射性Csの溶出は見られないが、同様の操作を2%硝酸水溶液で行うと上澄み液のろ液(0.2μメンブレン)に放射性Csが検出され、酸に対する可溶性が確認された。これは、堆積物中に水溶性Csはほとんど存在しないが、有機物中に放射性Csが含まれる可能性を示唆する。

このように平水時に用水中の放射性Cs濃度が低くても、Csの沈着量が比較的多い地域においては、懸濁物質の放射性Cs濃度が高いことから、流入時に生ずる沈殿物中の放射性Cs濃度は全般に高いものと考えられる。

なお、現地試験を通じて懸濁物質の収支の観点から検討することが課題として残されているが、現時点で十分なデータが揃っていないため、この点については今後の課題としたい。

3 試験時の条件

いくつかの条件で実施した試験の中で、ここでは9月22日から9月26日にかけて実施したもの(Case 1)と、



Fig.7 たらいをを用いた沈殿物の採取
Collection of sediment with tubs

Table 3 用水から採取された懸濁物質の放射性Cs濃度 (Bq/kg)
Concentration of radioactive Cs in suspended substance within irrigation water

	放射性Cs (Bq/kg)			採取量 (g)	通水量 (m ³)	逆算で 求めた SS(mg/L)	推定平均 放射性Cs (Bq/L)	T-C (%)	T-N (%)	C/N	採取期間 (2012年)
	Cs134	Cs137	Cs134+137								
試料1	22,900	38,200	61,100	23.1	4.9	4.7	0.29	9.0	1.0	9.0	8月12日
試料2	23,400	38,700	62,100	23.8	27	0.89	0.06	9.0	0.94	9.6	8月21-22日
試料3	20,600	34,700	55,300	18.8	7.1	2.6	0.15	7.7	0.80	9.6	9月6日

10月6日から10月19日にかけて実施したもの (Case 2) について紹介する。Case 1では主にモミガラとくん炭の比較を行い、Case 2ではモミガラとゼオライトの比較を行った。

Case 1の実験実施中における雨量および取水量と用水の濁度を Fig.8 に示す。期間中に降雨 (計29mm) があり、9月24日から25日朝にかけて、河川からの取水が停止される状況であった。また、用水の濁度は降雨と共に上昇し、9月23日の夕方には最大50度に達した。河川からの通水が再開された後の濁度は低かった。

ここで、濁度の上昇がみられた9月23日14:00に採取された用水の放射性Cs濃度は2.3Bq/Lであった。

同様にCase 2の実験期間中の雨量、取水量および用水の濁度を Fig.9 に示す。Case 2の期間中においても、降雨はあったが、Case 1で見られたような濁度の顕著な増大は見られなかった。

4 吸着・ろ過材の効果

Case 1ではモミガラの充てん量を3Lから12Lまで4段階に変えるとともに、同様の条件でくん炭と比較した (Table 4)。Table 4では、放射性Cs濃度に加えて、質量を乗じた“回収量”，および量水堰毎の通水量の違いを補正するために通水量比を用いて算定した“回収効率”を算出した。ここで“回収効率”は、モミガラの中で一番回収量が多かった9Lのモミガラのうち流量が小さい

場合を1としたときの相対的な回収性を示している。

まず、吸着・ろ過材の濃度をみると、モミガラとくん炭ではネット袋への充てん量が少なくなるほど、資材の放射性Cs濃度は上昇し、12Lモミガラでは3,600Bq/kgであったが、3Lモミガラおよび3Lくん炭では12,000Bq/kgを超え3倍以上となった。また、回収量ではモミガラ、くん炭ともに9Lが多く、12Lでは資材量の増加にもかかわらず減少し特にくん炭では顕著な減少がみられた。

回収効率をみると、モミガラをネット袋に9L充てんした状態で一番効率よく放射性Csが回収され、くん炭も同様に充てん量を9Lとしたときに一番回収効率が高まったが、モミガラと比較すると総じて回収効率は低かった。モミガラ、くん炭の両方で、充てん量が9Lより多くても少なくとも除去効果は下がる結果が得られた。つまり、使用するネット袋のサイズに応じて放射性Csの回収効率を最大化する充てん量があるものと考えられる。

充てん量が減ると除去効果が減る要因は、資材量の減少が主因であるのに対して、充てん量が増えると除去効果が減る要因は、資材が12Lになるとネット袋に張りが出て除染箱の形に馴染まず大きな隙間ができ、そこに選択的に水が流れる過効率が低下したためと考えられる。

通水量当たりの回収量は、回収量を通水量で除したもので、本対策によって農業用水1L当たりの除去されたバクテリウム数を示す指標である。Case 1において最も効果

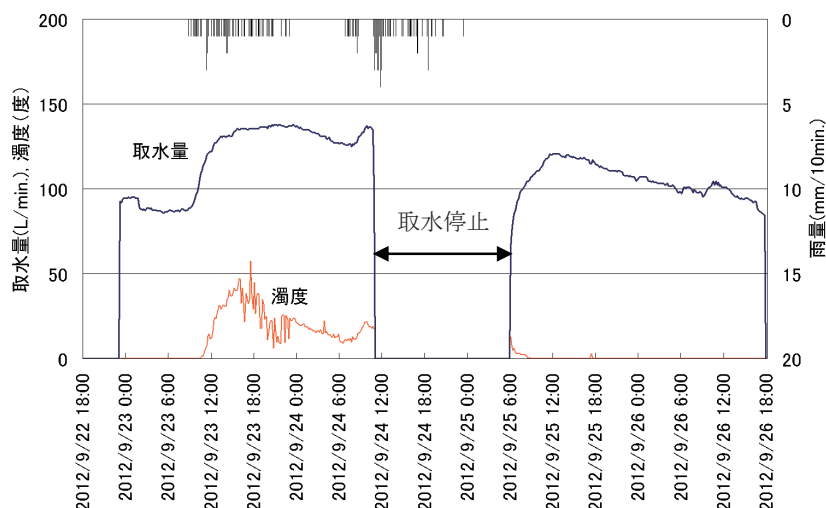


Fig.8 Case1の試験中の雨量・取水量および濁度
Rainfall, intake and turbidity during Case 1

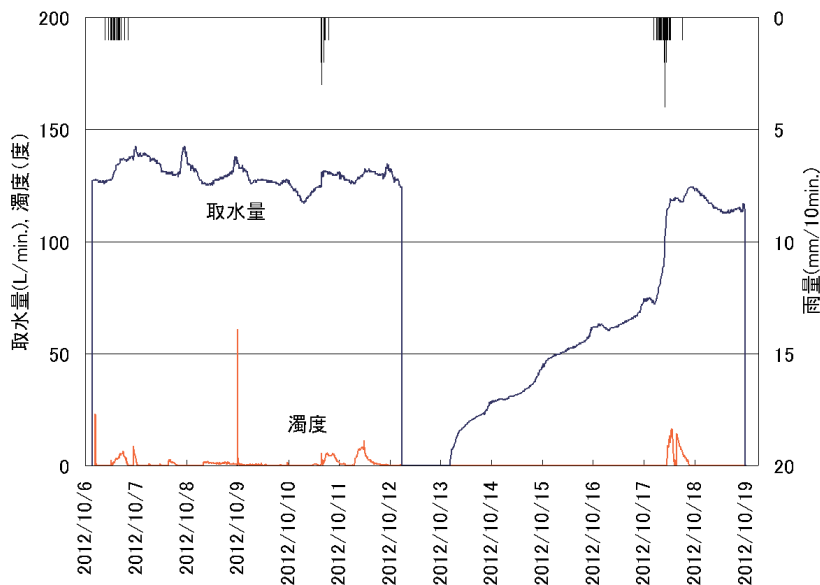


Fig.9 Case 2の試験中の雨量・取水量および濁度
Rainfall, intake and turbidity during Case 2

Table 4 Case 1の結果
Result of case 1

試験期間:2012/9/22-26		モミガラ					くん炭					
資材量	① 体積(L)	3.0	6.0	9.0	9.0	12.0	3.0	6.0	9.0	12.0		
	② 質量(kg)	0.36	0.72	1.09	1.08	1.45	0.31	0.65	0.92	1.14		
		流量設定		中	大	小	中	小	中	大	大	小
③通水時間 71.7h	④ 通水量(m ³)	43	61	35	49	34	45	86	56	35		
	通水量比 ④/35	1.20	1.72	1.00	1.39	0.95	1.28	2.43	1.59	0.99		
	平均流量(L/s) ④/③	0.16	0.24	0.14	0.19	0.13	0.18	0.33	0.22	0.14		
濃度 (Bq/kg)	⑤ Cs134	4,770	3,490	1,930	3,323	1,340	4,600	2,600	2,530	862		
	⑥ Cs137	8,190	5,950	3,310	5,563	2,240	7,500	4,480	4,460	1,435		
	⑦ 放射性Cs ⑤+⑥	12,960	9,440	5,240	8,887	3,580	12,100	7,080	6,990	2,297		
資材初期濃度 (Bq/kg)	⑧ Cs134	26	26	26	26	26	21	21	21	21		
	⑨ Cs137	42	42	42	42	42	34	34	34	34		
	⑩ 放射性Cs	68	68	68	68	68	54	54	54	54		
増加濃度 (Bq/kg)	⑪ Cs134 ⑤-⑧	4,744	3,464	1,904	3,297	1,314	4,579	2,579	2,509	841		
	⑫ Cs137 ⑥-⑨	8,148	5,908	3,268	5,521	2,198	7,466	4,446	4,426	1,401		
	⑬ 放射性Cs ⑦-⑩	12,892	9,372	5,172	8,819	3,512	12,046	7,026	6,936	2,243		
回収量 (Bq)	⑭ Cs134 ⑪×②	1,684	2,504	2,070	3,564	1,903	1,420	1,682	2,304	960		
	⑮ Cs137 ⑫×②	2,893	4,271	3,552	5,969	3,183	2,315	2,899	4,063	1,599		
	⑯ 放射性Cs ⑬×②	4,577	6,776	5,622	9,533	5,085	3,734	4,581	6,367	2,559		
通水量当たり 回収量(Bq/L)	Cs134 ⑭/④	0.04	0.04	0.06	0.07	0.06	0.03	0.02	0.04	0.03		
	Cs137 ⑮/④	0.07	0.07	0.10	0.12	0.09	0.05	0.03	0.07	0.05		
	⑰ 放射性Cs ⑯/④	0.11	0.11	0.16	0.19	0.15	0.08	0.05	0.11	0.07		
回収効率 (モミガラ9L・流量小を1としたときの 通水量当たりの回収量の相対値) ⑰/0.16		0.68	0.70	1.00	1.22	0.95	0.52	0.33	0.71	0.46		

が高い資材と量の組合せはモミガラの9Lであり、そのときの流量は”中”の設定で平均0.19Bq/Lの除去がなされた。モミガラによる回収量は0.11～0.19Bq/Lであるのに対して、くん炭では0.05～0.11Bq/Lと全体的に低かった。

次にCase 2の結果をTable 5に示す。ゼオライトの実験後の放射性Cs濃度はモミガラと比べて全般に低いが、1袋当たりの質量がモミガラの約6倍あるため、回収量はモミガラの概ね1.5倍以上が得られた。回収効率をみ

るとモミガラ1に対して同等程度の流量の場合は、ゼオライトが細粒であっても粗粒であっても1.5程度と高かったが流量が1.7～2.4倍と大きくなると回収効率は1以下に低下した。このように流量が増加すると回収効率が低下する傾向がみられたが、これは浄化機構が主に吸着とろ過によるものと考えると解釈しやすい。すなわち、ある程度以上の流量を超えると吸着質と吸着担体との接触時間の低下がもたらされるとともに、長時間のろ過で生じた資材の目詰まりにより発生するオーバーフローな

Table 5 Case 2の結果
Result of case 2

試験期間:2012/10/6-19	モミガラ	ゼオライト(細粒)			ゼオライト(粗粒)	
		1-3mm			3-5mm	
資材量	体積(L)	9.0	9.0	9.0	9.0	9.0
	質量(kg)	1.08	6.38	6.76	6.75	6.34
通水時間 285.8h	流量設定	小	小	大	小	大
	通水量(m ³)	125	119	303	123	215
	通水量比	1.00	0.95	2.42	0.99	1.72
	平均流量(L/s)	0.12	0.12	0.29	0.12	0.21
濃度 (Bq/kg)	Cs134	1,990	469	707	434	460
	Cs137	3,260	789	1,220	803	859
	放射性Cs	5,250	1,258	1,927	1,237	1,319
資材初期濃度 (Bq/kg)	Cs134	26	0	0	0	0
	Cs137	42	0	0	0	0
	放射性Cs	68	0	0	0	0
濃度増分 (Bq/kg)	Cs134	1,964	469	707	434	460
	Cs137	3,218	789	1,220	803	859
	放射性Cs	5,182	1,258	1,927	1,237	1,319
回収量 (Bq)	Cs134	2,121	2,992	4,779	2,930	2,916
	Cs137	3,475	5,034	8,247	5,420	5,446
	放射性Cs	5,597	8,026	13,027	8,350	8,362
通水量当たり 回収量(Bq/L)	Cs134	0.017	0.025	0.016	0.024	0.014
	Cs137	0.028	0.042	0.027	0.044	0.025
	放射性Cs	0.045	0.068	0.043	0.068	0.039
回収効率 (モミガラ9L・流量小を1としたときの 通水量当たりの回収量の相対値)		<u>1.00</u>	1.51	0.96	1.51	0.87

どで回収効率が低下する。

また、ゼオライトでは使用する資材の粒径や種類の違いによって効果に差異があると考えられるが、今回の試験では、粒径の違いによる影響ははっきりしなかった。ただし、実験中の観察では細粒(1~3mm)のゼオライトを使用した場合、粗粒(3-5mm)のものに比べるとゼオライト袋の設置位置の上流の湛水部の水位が早く上がってしまい、資材上部から用水がオーバーフローする現象がより多く見られた。オーバーフローが発生すると資材を通過しない未処理の水が多く発生してしまうが、今回の分析からは細粒と粗粒との放射性Csの回収性に大差はなかった。

また、通水量当たりの回収量をみると、モミガラおよび流量が多い場合のゼオライトで0.04~0.045Bq/L、流量が少ない場合のゼオライトで0.07Bq/L程度となり、流水中から平均して最大0.04~0.07Bq/L程度が回収されることが確認された。同一資材を用いて放射性Csを回収する場合、流量を小さくした方が放射性Csの回収率は向上すると考えられる。

今回試験に供した3種類の資材の吸着・ろ過材の効果の比較をFig.10に示す。Fig.10は、Case 1とCase 2に共通する9Lのモミガラ(流量-小)の回収効率をともに1として、Case 1のモミガラおよびくん炭の回収効率とCase 2のゼオライトの回収効率を1枚のグラフに統合して示したものである。図中、棒グラフ上に書き込まれた大、中、小は、各除染箱における平均流量を示しており、

小では流量が0.10-0.15L/s、中は0.15~0.20L/s、大は0.20L/sを超える条件で試験が行われたことを示している。流量と回収効率の関係は一概にはまとめられないが、ゼオライトにおける比較やくん炭6Lの結果などをみると、流量が大きくなれば回収効率が上がるという関係ではなく逆に流量が増大すると回収効率は低下するようである。流量との関係についての詳細検討には、調査データの蓄積を待つ必要がある。

V 結言

本報では、農業用水に含まれる放射性Cs除去の一環として、現地を試みられているモミガラ等を用いた除去法について、効果を確認するとともにより効果の高い資材や実施法に関する知見を得るために資材の吸着試験および現地試験を行った。これまでに得られた結果は次の通りである。

- i) 溶存態Csを対象とした吸着試験の結果からゼオライト、プルシアンブルー不織布の吸着量が大きいことが確認され、モミガラ、くん炭においても比較的大きな吸着効果が確認された。
- ii) 現地試験において比較した3資材の中では、回収効率で比較するとゼオライトの効果が最も高く、次いでモミガラ、くん炭の順であった。
- iii) モミガラとくん炭で袋への充てん量が少なくなる

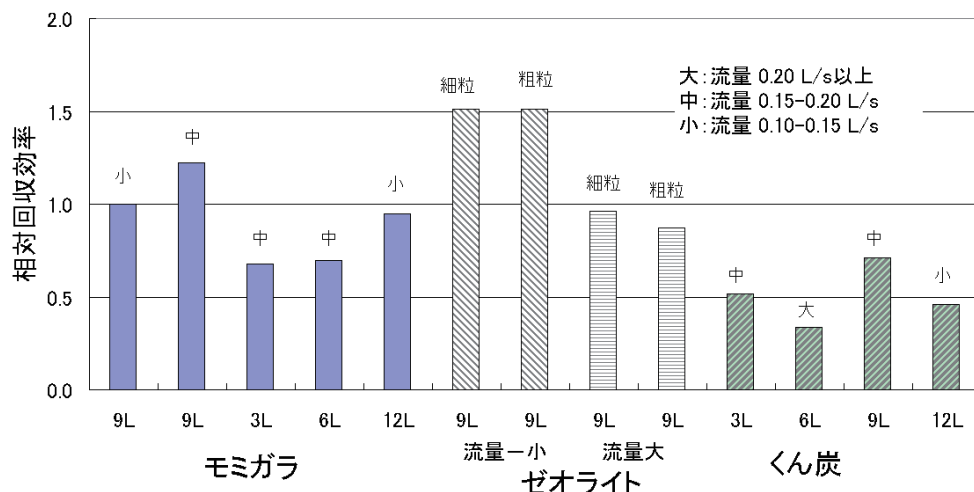


Fig.10 3種類の吸着・ろ過資材の効果の比較
Comparison of effects of adsorption and filtration materials

ほど、吸着・ろ過材の放射性Cs濃度は上昇する傾向がみられた。

- iv) 同じ資材を用いた場合、流量が増加するほど水中の放射性Csの回収効率が低下することが示唆された。
- v) ネット袋のサイズに応じて除去量を最大化する資材の充てん量がある。
- vi) ネット袋表面への付着物や沈殿物に含まれる放射性Cs濃度は全般に高いものと考えられる。

なお、本方法の現地普及に当たっては、使用済みの吸着・ろ過資材の処分方法やその管理体制の確立が課題となる。今後、懸濁物質や各態Csの収支の観点を含めた分析を行うなど多くの分析事例を積み重ねるとともに、より効率の高い用水中の除染対策技術の確立に向けて検討を進めたい。

謝辞：本研究の実施に当たっては農林水産省防災課や東北農政局水利整備課および福島県関連部局に多くのご示唆、ご助言をいただいた。特に福島県県北農林事務所村松秀則主幹には、研究方針や資材提供など様々な面からご助力いただいた。圃場試験では地権者の八巻吉次氏の多大な理解と協力を得た。また、福島県農業総合センター鈴木安和研究員には貴重な試料の提供をいただき、試験実施に際しては農工研の寺川浄司氏の支援を得た。さらに、食品総合研究所濱松潮香研究コーディネーターならびに八戸真弓研究員には低濃度放射能分析で、農工研の中村真人主任研究員には堆積物分析でお世話になった。農工研の原口暢朗上席研究員にはろ過理論についてご指導いただいた。ここに記して謝意を表する。

参考文献

- 1) 農林水産省 (2012)：農地土壌の放射性物質除去技術 (除染技術) 作業の手引 第1版 (H24.3)
- 2) 福島県農業振興課 (2012)：農作物の放射性セシウム対策に係る除染及び技術対策指針 第1版 (平成24年3月26日)
<http://www.pref.fukushima.jp/keieishien/kenkyuukaihatu/gijyutsufukyu/gijyutsutaisakusisinn.html> (閲覧：2012年12月)
- 3) 福島県県北農林事務所農村整備部 (2012)：農業用水の管理に関する当面の留意点について
- 4) 稲葉光國 (2012)：有機農業による除染事業「大豆・ヒマワリ・菜の花プロジェクト」, 東関東大震災後の放射性物質汚染対策, 233-249, NTS
- 5) 根本圭介 (2012a)：第二回放射能の農畜水産物等への影響についての研究報告会資料
<http://www.a.u-tokyo.ac.jp/rpjt/event/20120218.html> (閲覧：2012年12月)
- 6) 根本圭介 (2012b)：第五回放射能の農畜水産物等への影響についての研究報告会資料
<http://www.a.u-tokyo.ac.jp/rpjt/event/20121208.html> (閲覧：2012年12月)
- 7) 塩沢昌 (2012)：水田の放射能汚染と稲への移行, 水土の知, 80(7), 539-542
- 8) 東北農政局 (2012)：福島県内のため池 (3回目) 及び農業用水路における放射性物質の測定結果について (平成24年9月5日, プレスリリース)
<http://www.maff.go.jp/tohoku/press/seibi/suiriseibi/120905.html> (閲覧：2012年11月)
- 9) 福島県生活環境部 (2012)：平成23年度福島県除染技術実証事業実地試験結果
<http://www.cms.pref.fukushima.jp/download/1/jyosen-houkoku0427.pdf> (閲覧：2012年12月)
- 10) 庄建技術株式会社 (2012)：放射性物質除染法解説シリーズ2 水田土壌のための農業用水のモミガラ除染
- 11) 杉本泰治 (1992)：汙過 メカニズムと汙材・汙過助剤, 地人書館, 13-16
- 12) 山口紀子ら (2012)：土壌-植物系における放射性セシウ

- ムの挙動とその変動要因, 農環研報31, 75-129
- 13) 竹下健二 (2012): セシウム汚染水処理システムの開発,
東関東大震災後の放射性物質汚染対策, 233-249, NTS
- 14) 産業技術総合研究所 (2011): プルシアンブルーを利用し

- て多様な形態のセシウム吸着材を開発 (プレスリリース,
2011年8月24日)
- 15) 文部科学省 (2012): 放射線量等分布マップ
<http://ramap.jaea.go.jp/map/> (閲覧: 2012年12月)

平成24年12月13日受理

Removal of Radioactive Cs from Irrigation Water at the Inlet of a Paddy Field Using Chaff or Other Materials

KUBOTA Tomijiro, HITOMI Tadayoshi, HAMADA Koji, YOSHIOKA Kunio, SATO Mutsuto and SAITO Takashi

Summary

The contamination of irrigation water by radioactive substances including ^{134}Cs and ^{137}Cs became an agricultural concern after the Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident that occurred on March 11, 2011. The development of methods for the removal of radioactive substances from irrigation water is crucial for paddy farming. Removing radioactive substances from irrigation water at the inlet of a paddy field by absorption and filtering media such as chaff and zeolite was tried without knowing the effectiveness.

Thus, two kinds of experiments were conducted to confirm the removal effects of absorption and/or filtering by some media. Three kinds of materials, rice husk, carbonized rice husk, and zeolite, were compared in the field study while these materials and a fourth, a Prussian blue coated nonwoven textile, were compared in the laboratory test. The results were as follows.

- i) High adsorption ratios of dissolved Cs were obtained using zeolite and Prussian blue coated nonwoven textile, and the adsorption function was also confirmed in rice husk and carbonized rice husk in simple batch tests in the laboratory.
- ii) The removal of radioactive Cs was most effective in the order of zeolite, rice husk, and carbonized rice husk in the field tests.
- iii) The radioactive Cs concentration in materials rose by decreasing the amount with which the mesh bag was filled with rice husk or carbonized rice husk.
- iv) The removal efficiency of radioactive Cs was decreased by increasing the water flow-through when the same materials were used.
- v) The appropriate amounts of materials for the effective removal of radioactive Cs suitable for the size of the mesh bag to be used could be determined.
- vi) The concentrations of radioactive Cs transported with irrigation water and contained in the accumulating precipitate were high in the study area.

Keywords : radioactive Cs, decontamination, irrigation water, rice husk, zeolite, Prussian blue coated nonwoven textile, Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant