



PROFILE

西嶋 茂宏

昭和27(1952)年生。1978年大阪大学大学院工学研究科原子力工学専攻修士課程修了。1982年大阪大学大学院工学研究科原子力工学専攻博士課程修了。同年大阪大学産業科学研究所放射線応用加工部門助手。1993年大阪大学産業科学研究所エネルギー材料研究分野助教授。2001年大阪大学環境・エネルギー工学専攻量子線生体材料工学領域教授。低温工学・超電導学会関西支部幹事、電気学会、日本原子力学会。

磁気分離を用いた セシウム汚染土壌の減容化

Volume Reduction of Cesium Contaminated Soils by Magnetic Separation

秋山 庸子、三島 史人、西嶋 茂宏*

大阪大学大学院 工学研究科 環境・エネルギー工学専攻
(〒565-0871 大阪府吹田市山田丘 2-1)

Yoko AKIYAMA, Fumihito MISHIMA, and Shigehiro NISHIJIMA*

Division of Sustainable Energy and Environmental Engineering,
Graduate School of Engineering, Osaka University
(2-1 Yamadaoka, Suita, Osaka 565-0871, Japan)

Summary

A large amount of soils contaminated by radioactive Cs are discharged by the decontamination works after the nuclear accident, and there is urgent need for the volume reduction technologies. We have investigated the possibility of volume reduction method by combination of wet classification and magnetic separation, which can collect high-dose 2:1 type clay minerals selectively. One of the important requirements toward practical use is to reduce the radiation dose of sand gravel and 1:1 type clay minerals to the reusable level. Two issues prevent the soil from sufficient dose reduction; one is that sand gravel and 1:1 type clay minerals also adsorb Cs ions, and the other is that organic components such as humic substances aggregate the soil particles which degrades the separation accuracy. We proposed a physical and chemical pretreatment with low environmental burden. Polishing the soil in the low-concentration potassium fertilizer strips off the surface of sand gravel and migrates Cs ions to 2:1 type clay from other soil components. In addition, mixing with potassium carbonate solution, which is used as food ingredient, dissolves organic polymers in the soil. We succeeded to migrate Cs and dissolve humic substances by the treatments.

Based on the results, we applied the classification and magnetic separation methods to actual contaminated soils in Fukushima. The soil can be separated into the low-dose and high-dose portions by separation of 2:1 clay. The low-dose soil after the separation achieved the clearance level or the dose that can be used for road materials with 30 cm cover soil, which shows the feasibility of effective volume reduction. This technique is prospective as one of the effective volume reduction techniques with low environment load.

Key Words: Magnetic separation, Soil classification, Radioactive cesium, Clay minerals, Volume reduction

1. はじめに

事故後約5年が経過しようとしている福島第一原子力発電所の周辺地域では、住民の帰還に向けて精力的に除染作業が進行している。その一方で、除染に伴う大量の除染廃棄物の発生が問題となっており、その減容化手法の開発が急務となっている。環境省の推定によると、焼却などの減容化処理をした場合でも約1,600万~2,200万 m^3 の除染廃棄物が発

生すると試算されている¹⁾。その大部分を占めるのが、表土剥ぎ取り作業に伴って発生する除染土壌である。このため、除染廃棄物の中でも土壌の減容化が重要である。

除染土壌の減容化手法として考えられている手法の一つとして分級がある。これは比表面積の小さな砂れきと大きな粘土質に分ける技術であるが、Csは土壌成分の表面に付着していると考えられるので有効な手段である。しかしながら分級後

*Corresponding author: TEL: 06-6879-7896, FAX 06-6879-7889, E-mail: nishijima@see.eng.osaka-u.ac.jp

であっても、粒径の大きな砂れきの線量が十分に低下せず、低線量土壌を再利用が可能な線量まで低減できない場合がある。また農地などの粘土質に富む土壌については十分な減容化ができないという問題がある。そこで、効果的に線量低減と減容化を行うための手法として、土壌分級と磁気分離を組み合わせた新たな手法を提案し、この手法をさまざまな土質の土壌に適用可能とするため、環境低負荷で簡便な前処理方法を検討している^{2,3)}。本稿では新たな手法の提案に至った減容化手法の研究開発の背景と経緯を踏まえ、新規手法についてのこれまでの研究成果の概略について述べる。

2. 土壌減容化技術開発の経緯と課題

汚染土壌の減容化とは、少量の高線量土壌と大量の低線量土壌を作ることに他ならず、低線量土壌を再利用可能なレベルまで線量を低減させることが肝要である。低線量化の目標値としてはクリアランスレベルである100 Bq/kg、あるいは覆土等30 cm以上の条件で道路資材等に再利用可能な3,000 Bq/kgが考えられる。土壌減容化の手法としてこれまでに報告されている主な技術としては、土壌分級^{4,5)}と熱処理によるCsの昇華⁶⁾が挙げられる。土壌分級には湿式分級と乾式分級があり、湿式分級のほうが比較的線量低減効果は高く周囲への飛散の心配も少ない。しかしながら、いずれの分級手法においても上記の線量低減の目標値が必ずしも達成できているわけではなく、特に土質が線量低減率に大きく影響している。一方熱処理による手法では、土質に依存せずクリアランスレベル程度まで線量の低減が可能である。しかし、セシウム化合物のほとんどが昇華する1300℃以上に加熱する必要があるために大量のエネルギーを必要とし、また飛灰にセシウムが含まれるために飛散防止の機構が必要である。

そこで、著者らは比較的環境負荷の少ない分級、特に湿式分級の手法を用いて各種土壌の線量を更に低減するための前処理・後処理手法を検討してきた。分級による線量低減率が十分でない理由として、2つ挙げられる。1つは、砂れきの表面にも弱くセシウムが吸着しているため、砂れきとシルト・粘土を単に分離しただけでは十分に線量低減ができないこと、もう1つは、実汚染土壌が腐植等の有機物を含んでおり、特

に農地などの有機物に富む土壌では粒子どうしの凝集が起こって分級精度を低下させることである。

これらの課題を解決するため、分級の前あるいは後に土壌洗浄や分散の工程を取り入れることが検討されてきた。土壌洗浄は化学的手法と物理的手法に大別される。前者は酸などの洗浄剤を用いてCsを水相に脱離させ吸着剤を用いて回収する方法、後者は物理研磨、超音波洗浄、スクラバーなどが挙げられる。化学的手法では塩酸や有機酸などの酸や酢酸アンモニウムなどのイオン交換性の洗浄剤による洗浄が主であり^{7,8)}、高い線量低減率を得ることができる。特に酸溶液中での高温高压条件での処理を行うことで粘土鉱物に強く吸着したCsをも脱離可能である^{8,9)}。粘土からもCsを脱離できれば分級も不要となる可能性もあるが、これらの手法は連続大量処理に工夫を要することや環境負荷が大きくなる可能性があるため、課題が残る。一方で物理的洗浄^{4,10)}は環境負荷を抑えながら一定の効果を得られるものの、Csの再吸着などの影響により化学的手法に比較して線量低減が十分でなかったり、研磨粉の発生に伴って減容率が低下する場合がある。

以上、既存技術を概観すると、地域住民の合意形成や環境負荷の低減と、線量低減率や減容化率の向上がいわばトレードオフの関係にあり、減容化技術の現場での適用に向けてはこれらを両立する技術が求められている。それに加えて、減容化システムとしての実用化に際しては処理速度やコストも適切であることが求められる。これらを総合して検討した結果、物理的減容化手法である湿式分級と磁気分離を組み合わせ、さらにこれらの前処理方法として、後段の処理を効果的に実施し得る環境負荷の少ない方法を採用することにした。ここで、湿式分級の後工程として用いる磁気分離は、粒子径や比重の類似した粘土・シルトの混合物からCsを強く吸着する特定の粘土鉱物のみを選択的に分離できる唯一の方法と考えられる。以下に各工程での具体的な処理方法の検討について述べる。

3. 提案する減容化手法の概要

本研究で提案する湿式分級と磁気分離を用いた減容化手法の一連の流れをFig.1に示す。本手法は、前処理、湿式分級、

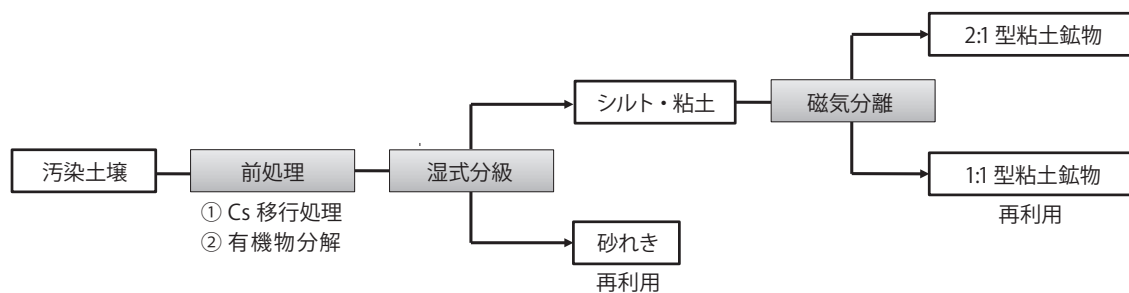


Fig.1 提案する汚染土壌の減容化手法の流れ

磁気分離の3つの段階に大きく分けられる。

第1段階の汚染土壌の前処理ではCsの移行処理と有機物の分解を行う。Csの移行処理として物理的移行と化学的移行を同時に行う。物理的移行は湿式ボールミルによる物理的研磨、化学的移行はカリウムを含む溶液によるイオン交換によって行う。この処理により、砂れき表面のCsを含む研磨層がシルト・粘土分に移行すると同時に、砂れきや1:1型粘土鉱物に弱く吸着していたCsイオンが吸着能の高い2:1型粘土鉱物にセシウムが移行して濃縮される。このとき、アルカリ性を示し食品添加物にも用いられる炭酸カリウムを用いることで、土壌の凝集の原因となっている有機物を同時に分解することができる。なお、同様の効果を有する手法であればボールミルに限定するものではない。

第2段階として、前処理後の土壌懸濁液について粒径の違いを利用した湿式分級を行い、高線量の粘土と低線量の砂れきに分離する。前処理によってCsはシルト・粘土分、特に2:1型粘土鉱物に濃縮されており、この粘土・シルトの占める割合は一般的な土壌において重量比で10～20%程度であるため、分級により減容化が可能である。

最後に第3段階として、分級後の粘土・シルト分に対して磁気分離法を適用することで、2:1型粘土鉱物の選択的分離を行う。分級後の細粒分のうち粘土分には、構造の異なる2:1型粘土鉱物と1:1型粘土鉱物の2種類が存在し、1:1型に比べてパーミキュライト等の2:1型粘土鉱物が多くCsを強固に吸着する性質を持っている。また、Table 1に示すように、2:1型粘土鉱物は一般的に常磁性を示し、1:1型粘土鉱物は反磁性体を示すため、磁氣的性質の違いによって分離が可能である。また分級後の細粒分には粘土鉱物に加えてシルトも含まれるが、シルトは石英や長石などのシリカやアルミノシリケートから成り、これらはいずれも反磁性を示す。常磁性体微粒子を効率的に回収するために、数Tの強磁場を発生できる超電導磁石を利用する。当該磁気分離法によって2:1型粘土を選択的に回収することで、湿式分級で排出される高線量土壌をさらに減容化できることが期待できる。また、2:1型粘土はCsを強く吸着するので、Csを安全に保管するためにも利用できると考えている。このことが、2:1型粘土を分離するもう一つの目的である。

各段階での減容化率について概算すると、一般的な土壌では、砂れきの占める割合が重量比で80～90%程度であることから、物理的研磨によって若干の減容率の減少はあるもの

の、分級の段階で汚染土壌を初期重量の約10～20%に減容化できる。さらに、分級によって分離された高線量の粘土・シルト分のうち半分が2:1型粘土鉱物であるとすれば、磁気分離の段階では最終的に初期重量の5～10%程度に減容化できることが見込まれる。

提案する上記の減容化技術で特徴的な事は、化学薬品の使用を極力避けるとともに飛灰等の飛散を考慮する必要のない、地域の住民の方に受け入れやすい技術であることである。以降では、まず模擬実験によって土壌の化学的前処理によるCs移行と有機物分解について検討した結果を述べる。次にその結果に基づいて福島県内で実汚染土壌を用いた前処理、湿式分級および磁気分離の一連の処理を行うことで線量低減と減容化の効果を検証した結果を述べる。さらにこれらの結果に基づいて、当該技術の実用に向けての可能性について検討する。

4. 土壌の前処理方法の検討

(1) 提案するCs移行と有機物分解の新たな手法

ここでは分級の前処理方法として、物理的手法と化学的手法を組み合わせた放射性Csの移行、および粒子の凝集を解消するための有機物分解方法の検討結果について述べる。

まずCs移行の物理的手法とは、ボールミルなどの物理的研磨によって砂れき表面を剥離する手法である。分級された砂れき画分の線量が十分に下がらない原因として、砂れき表面の空孔に高線量の粘土粒子が付着することで間接的にCsが吸着していること、あるいは砂れき表面の吸着サイトに直接イオンとして吸着したCsが残留していることが考えられる。本手法によって、砂れき表面に付着した高線量の粘土粒子を剥離するとともに、Csを吸着した砂れき表面を研磨によって削り取ることが可能である。ここでは砂れき画分に吸着しているCsを砂れきの研磨粉とともに粘土・シルト画分に移行させるという意味で、ここは物理的移行と呼んでいる。一方、化学的手法とは低濃度のカリウムを含む肥料あるいは食品添加物の溶液中に分級前の土壌を浸漬・攪拌することで、Csを砂れきやシルト分や1:1型粘土鉱物等のイオン交換性吸着サイトから、2:1型粘土鉱物のCsを強く固定化する吸着サイトに移行させる手法である。既存研究によりCs⁺イオンはK⁺イオンにイオン半径が近いこと、カリウム塩水溶液により効率的にイオン交換性のCs⁺イオンを脱離させることができることが知られている¹¹⁾。さらに¹³⁷Csを添加した著者らの予備実験により、イオン交換により脱離したCs⁺イオンが2:1型粘土鉱物に再吸着することが確認されている¹²⁾。これらの結果を元に、Csを水相を経由して2:1型粘土鉱物に吸着させる処理である。

次に、土壌中有機物のアルカリ溶液による分解について述べる。土壌中には落葉、落枝をはじめとした動植物の遺体として有機物が存在しており、その多くは土壌中の動物や微生物によって徐々に分解される。しかし、その一部は黒色の難

Table 1 代表的な粘土鉱物の体積磁化率

	体積磁化率 (-)
カオリナイト (1:1型)	7.0×10^{-4}
パーミキュライト (2:1型)	-6.0×10^{-4}



Fig.2 砂とバーミキュライトの¹³⁷Cs存在割合の変化
(a) 移行処理前、(b) 移行処理後

分解性高分子化合物として土壌に残留する。この高分子化合物は腐植と呼ばれ、その化学的性質によりフューミン、フミン酸、フルボ酸に分けられる。これらの腐植は農地の土壌にとっては欠かせない物質であるが、分子量が大きい物質であるため、粘土やシルト等の細粒分を互いに凝集させたり、砂れきの表面に細粒分を付着させたり、分離装置内壁等に付着することで、土壌の線量低減のための分離効率を低下させる。土壌中の有機物は主として糖、フェノール、アミノ酸が結合したものであり、フミン酸、フルボ酸は塩基による化学的な作用で分解することが知られている¹³⁾。

化学的移行と有機物の分解には洗浄液が必要であるが、本手法では、周辺環境への負荷の低減とコストの削減を鑑み、食品添加物に用いられる炭酸カリウム (K_2CO_3)、あるいはカリ肥料として用いられる塩化カリウム (KCl) を用いることを検討した。いずれもイオン交換によるCs移行に用いることができるカリウム源であるが、特に炭酸カリウムは、 Cs^+ とイオン半径の類似した K^+ を含むことに加え、溶液が塩基性を示す。このため、 K^+ の化学的作用で2:1型粘土鉱物への放射性Csの移行を行うと同時に溶液pHを塩基性にし、土壌中の有機物を分解することができる。

著者らが提案する減容化手法では、ここまで述べてきたすべての前処理、すなわち物理的移行、化学的移行、有機物分解の3つの処理を1つの工程で同時に行うことができる。カリウムを含むアルカリ性の溶液に汚染土壌を懸濁させて研磨処理することで、砂れきの物理的移行処理、イオン交換を利用したCsの化学的移行処理、および有機物の分解を同時に行う。次に、この土壌懸濁液について粒径の違いを利用した湿式分級を行い、高線量の粘土と低線量の砂れきに分離する。さらに高線量の粘土・シルトを磁気分離して、さらに高線量の粘土と低線量の粘土に分けるというプロセスである。ここではまず模擬実験によるこれらの前処理手法の検討について述べ、その後、福島で行った土壌分級から磁気分離に至る一連の減容化処理について述べる。

(2) 炭酸カリウムによるCsの化学的移行

まず放射性Csを用いて調製した模擬汚染土壌を用いて、カリウム溶液中での砂れきからのCs脱離挙動と粘土鉱物に対する吸着挙動について検討を行った。バーミキュライトと砂の混合物から成る模擬汚染土壌に¹³⁷Csを吸着させ、それぞれ炭酸カリウム水溶液中で1時間の振とう処理した。Fig.2に処理前後の存在割合を比較した結果を示す。Cs存在割合は、移行処理前の砂と粘土鉱物が吸着している¹³⁷Csの量の和を100%として算出したものである。砂からは初期吸着量の約77%のCsが脱離された(このため移行処理後では砂には全体の9%のCsが存在する)。一方でバーミキュライトのCs吸着量は洗浄前よりも増加し、砂から脱離されたCsのうち約66%がバーミキュライトに移行したという結果が得られた(砂から脱離したCsは全体に対しては29%であり、そのうち66%が移行したため、全体量としては19%のCsが砂からバーミキュライトに移行したことになる)。モデル実験では一部が溶液に移行しているが、さらに時間をかければバーミキュライトへのCs移行は助長され、水層のCsは減少するものと考えられる。この結果から、炭酸カリウム水溶液を用いた移行処理により、砂れきからのCs脱離による線量低減が可能であること、2:1型粘土鉱物へのCs吸着は不可逆なものであること、また湿式分級と磁気分離によって最終的に分離する2:1型粘土鉱物に、砂れきから脱離させたCsを移行・濃縮することが可能であることが確認された。

(3) 炭酸カリウムによる有機物分解

次に、炭酸カリウム水溶液による有機物の分解の効果の検討を行った。有機物を含んだ東北地方の土壌に近い模擬土壌として黒土(有機物含量は重量で18%)を用いた。濃度の異なる炭酸カリウム(K_2CO_3)溶液を調製して黒土を浸漬させ、所定時間振とうした。その後、懸濁液中の粒子の粒度分布をレーザ回折/散乱式粒子径分布測定装置を用いて調べ、対照実験として蒸留水中で同様に振とうした場合と炭酸カリウム水溶液中で振とうした場合の粒度分布を比較した。

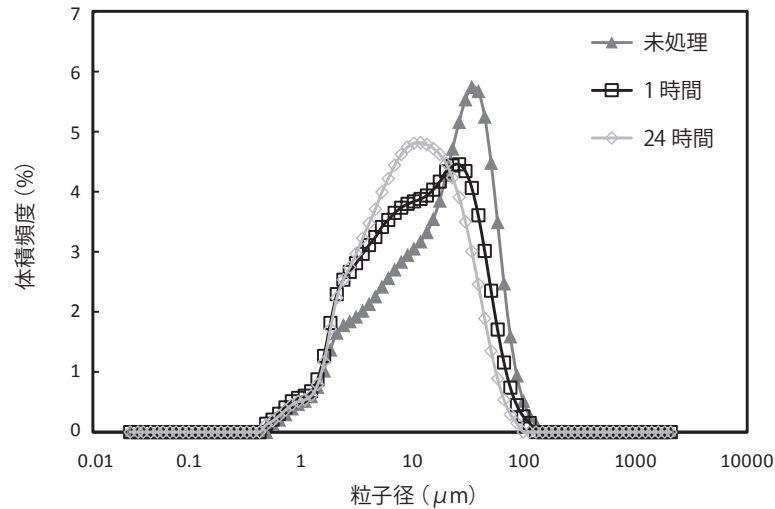


Fig.3 蒸留水と0.01 mol/L 炭酸カリウム中で振とう後の黒土の粒度分布

Fig.3に、振とう前後の黒土の粒度分布を示す。炭酸カリウム中で振とうした場合は、蒸留水に比較してピークが粒子径の小さい方にシフトし、全体として粒子径が小さくなっていることが分かる。この結果から土壌中有機物が炭酸カリウムにより分解され、粒子の凝集が解消されていることが確認できた。試薬のフミン酸を用いたモデル実験により、炭酸カリウムによってフミン酸が溶解し、フミン酸の固形分が減少することも確認している。

これらの実験結果から、カリウムイオンによるCs移行の際にカリウム源として炭酸カリウムを用いることにより、Cs移行と同時に有機物も分解し、土壌粒子の凝集を解消できる可能性が示された。現在、炭酸カリウムによる凝集解消の効果と分級-磁気分離による分離効率の向上のための最適化を検討中である。

5. 実汚染土壌を用いた前処理と湿式分級の効果の検証

上記の予備実験の結果を踏まえ、物理的・化学的移行処理と湿式分級による線量低減と減容化の可能性について、実汚染土壌を用いた検証を行った。実汚染土壌は、福島県内の仮置き場にて、自治体等の特別な許可を得て採取したものを使用した。仮置き場での土壌サンプリングの様子と、実験に用いた土壌をFig.4に示す。

大型ボールミル装置を用いて、物理的移行のみ、およびそれに化学的移行を組み合わせた場合の線量低減効果を検討した。この実験ではまずセシウムの化学的移行のみに着目するという理由と、現地実験での周辺環境への影響への配慮のため、移行処理に用いる水溶液としてほぼ中性を示す塩化カリウム(KCl)肥料の溶液を用いた。

Fig.5に、物理的・化学的移行の評価結果を示す。なお図



Fig.4 仮置き場での土壌サンプリングの様子と実験に用いた土壌

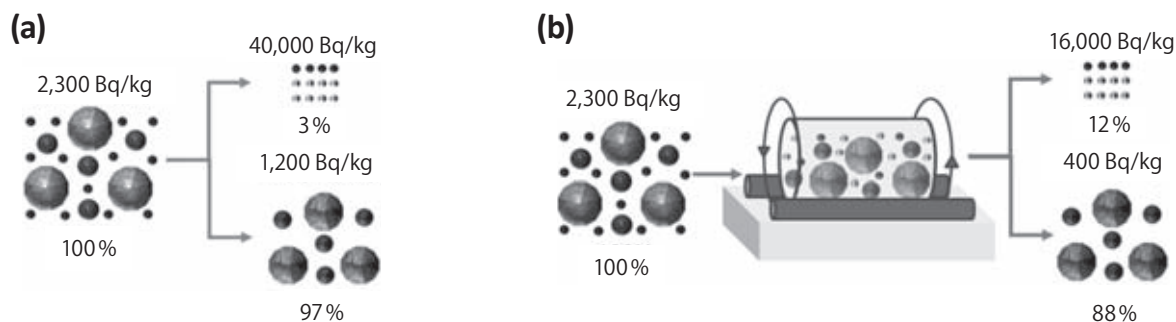


Fig.5 物理的・化学的移行処理前後の重量比率と処理前後の線量
(a) 分級のみ、(b) 物理的・化学的移行処理後

中の土壌線量 (Bq/kg) は概算による目安値である。この図から分かるように、今回対象とした土壌では、砂れきの比放射能をクリアランスレベルに近い数百 Bq/kg まで低減することができることが明らかになった。処理前後の重量変化から、砂れきをそのまま再利用できるとした場合は、減量率は重量で 88% と試算される。また研磨のみの場合と比較してイオン移行を用いた場合はさらに線量が低減されることも確認され、物理的・化学的移行の組み合わせの有用性が示された。化学的移行の効果をさらに向上させるため、濃度や移行時間などのさらに詳細な検討を行っている。

6. 模擬汚染土壌・実汚染土壌を用いた磁気分離の効果の検証

(1) 磁気分離法を用いた粘土・シルト分の減容化の考え方

前章の結果から、前処理と湿式分級により、再利用可能な線量レベルの砂れきと、高線量の粘土・シルトに分離可能であることが示された。しかし、実際に仮置き場に保管されている土壌には、庭や農地の土壌など、粘土・シルト分が多いものも存在し、その場合は十分な減容化率が得られない。粘土・シルト分に含まれる成分のうち、セシウムは特に粒子径の小さい粘土画分に濃縮されることが分かっており、さらにその粘土の中でも 2:1 型粘土鉱物中に強く吸着していることが知られている¹⁴⁾。土壌中に存在する 1:1 型粘土鉱物と 2:1 型粘土鉱物は、比重や粒子径が類似しているために比重分離や分級が困難であり、これらを分離できる有力な手法は、磁化率の違いを利用した磁気分離法である。Table 1 に示したように、1:1 型粘土鉱物は反磁性、2:1 型粘土鉱物は常磁性を示すため、磁気的性質の違いを用いて、後述する磁場条件の調整により分離することが可能である。そこで、まず分級により砂れきと粘土・シルトに分け、その次の段階として粘土・シルト分に磁気分離法を適用して粘土鉱物の中からセシウムを強く吸着する 2:1 型粘土鉱物を分離し、さらに減容化を図る方法を検討した。

これまで著者らは、1:1 型粘土鉱物であるカオリナイトと 2:1 型粘土鉱物であるパーミキュライトを混合したモデル土壌を作

成し、磁気分離の基礎的な検討を行ってきた。このモデル土壌は代表的な東北地方の土壌中の粘土を模擬したものであり、二種類の粘土鉱物を混合したものである。これら 2 種の粘土鉱物の磁気的性質の違いを利用して、超電導ソレノイド磁石、および超電導バルク磁石を用いた高勾配磁気分離を行うことにより、それぞれの成分に分離が可能である¹⁵⁻²⁰⁾。実用レベルで想定している超電導高勾配磁気分離装置の概要を Fig.6 に示す。

磁気分離法には開放勾配型磁気分離 (OGMS: Open Gradient Magnetic Separation) と高勾配磁気分離 (HGMS: High Gradient Magnetic Separation) の 2 種類がある。OGMS は磁石自身が持つ磁場を利用して磁気分離を行う手法であるが、磁場勾配が小さいため、得られる磁気力が小さいという短所がある (磁場勾配の意味については後述する)。

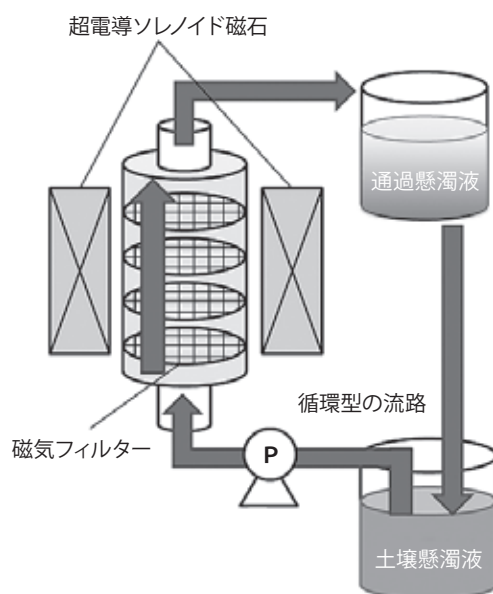


Fig.6 超電導ソレノイド磁石を用いた磁気分離減容化システムの概念図

一方 HGMS は、磁場の中に強磁性細線から成るフィルターを配置することにより、細線の周囲に高勾配磁場を発生させることで粒子に強い磁気力を作用させ、粒子を捕捉する手法である。HGMS の長所は、OGMS で分離が困難な常磁性物質も分離が可能であり、高速大量の連続処理が可能であること、磁気フィルターの逆洗によりフィルターの再利用が可能であることが挙げられる。

常磁性体の分離のために重要なことは、できる限り大きな磁気力を分離対象に作用させることである。磁気力は外部磁場が作用することで対象物に働く力である。磁場中の粒子が外部磁場から受ける磁気力 F_M は式 1 で示される。

$$F_M = V(\mathbf{m} \cdot \nabla) \mathbf{B} \dots \dots \dots \text{(式 1)}$$

ここで、 V は磁性体の体積、 \mathbf{m} は粒子の磁化、 \mathbf{B} は粒子の位置における磁束密度である。この式から、対象物質の体積が小さくなると磁気力が小さくなることが分かる。つまり粘土鉱物のような粒子径の小さな粒子に対しての磁気力は基本的には小さなものとなる。粒子の半径を r_p とし、磁気力 F_M を 1 次元表記で表した磁気力を式 2 に示す。 χ は物質の磁化率、 μ_0 は真空の透磁率である。この式から、磁気力が磁場勾配(式では磁束密度勾配)に比例することが理解できる。また、磁場に関連した項は磁場(磁束密度)と磁場勾配の積であるため、これを磁場積と呼ぶ。この磁場積が大きいほど磁気力が大きいことになる。このため、微小粒子である粘土の磁気分離には、磁場積を大きくする必要があることになる。

$$F_M = \frac{4}{3} \pi r_p^3 \frac{\chi}{\mu_0} B \frac{dB}{dx} \dots \dots \dots \text{(式 2)}$$

一方、流体中の分離対象粒子に作用するドラッグ力 F_D を式 3 に示す。ここで、 \mathbf{v}_f は流体の速度、 \mathbf{v}_p は粒子の速度、 η は抵抗係数、 r_p は分離対象の粒子半径である。この力は磁気力に対抗する力であり、粒子半径の一乗に比例する。一方、磁気力は粒子半径の三乗に比例するので、粒子半径が小さくなるにしたがってドラッグ力の方が相対的に大きくなり、磁気分離が難しくなると言える。粘土鉱物の磁気分離の難しさはここにあり、本減容化システムにおいて適切な磁場積設計が重要となる理由である。

$$F_D = 6\pi\eta r_p (\mathbf{v}_f - \mathbf{v}_p) \dots \dots \dots \text{(式 3)}$$

分離対象を分離するためには、ドラッグ力よりも大きな磁気力を作用させる必要がある。分離条件を式 4 に示す。

$$F_M > F_D \dots \dots \dots \text{(式 4)}$$

磁気分離によって粒子が捕捉される時は、分離対象粒子の

速度 \mathbf{v}_p が 0 となることから、式 3 は式 5 のように近似できる。

$$F_D = 6\pi\eta r_p \mathbf{v}_f \dots \dots \dots \text{(式 5)}$$

式 5 に式 2 を代入することで得られる流体の速度は、式 6 は磁場に関連した速度という意味で“磁気速度”と呼ばれ、対象粒子の分離可能な最大の速度である。この式に示されるように、分離可能速度は粒子半径の 2 乗に比例する。このことは、粒子半径が小さくなると磁気速度が急速に小さくなることを意味する。また、この磁場速度は磁場積にも比例する。高い磁束密度を発生できる超電導磁石を用いることで磁束密度は大きくすることができる。一方、磁場勾配であるが、磁場領域に強磁性体を配置すると、強磁性体が磁化(小さな強い磁石ができることに相当)し、高勾配磁場を実現できる。この強磁性体を磁気フィルターと呼ぶ。通常のフィルターと異なりフィルターの目開きは粒子より大きくできるため、圧力損失が少なく処理速度を大きく取れる特徴を有する。この磁気フィルターを利用する磁気分離法を、高勾配磁気分離法と呼ぶ。このように超電導高勾配磁気分離を用いることにより、常磁性粒子に作用する磁気力を大きくすることができ、2:1 型粘土鉱物のような常磁性体でも分離が可能となる。

$$v_f = \frac{2}{9} \frac{\chi_p r_p^2}{\mu_0 \eta} B \frac{dB}{dx} \dots \dots \dots \text{(式 6)}$$

(2) シミュレーションと模擬実験による 2:1 型粘土鉱物の磁気分離条件の検討

上記の検討をもとに、2:1 型粘土鉱物であるバーミキュライトを磁気分離するための条件を検討した¹⁷⁾。有限要素法を用いて磁場解析と流体解析を行い、磁気フィルターを構成する磁性細線近傍の磁場・流速分布を求めた。上記の式(1)と式(5)を用いた磁気力とドラッグ力の合力からバーミキュライト粒子について運動方程式を立て、時間発展で解くことで粒子軌跡計算を行った。この軌跡をもとに磁性細線 1 本に対する粒子捕獲半径を求め、それをもとに、磁場中に配置したフィルター全体としてのバーミキュライトの分離率を求めた。この際、分離前の粒子の粒度分布の測定結果に基づき、各粒子径の個数頻度を考慮した粒子軌跡計算を行った。その結果の一例を Fig.7 に示す。

また上記の方法で求めた分離率を実験的に確認するために、バーミキュライト粒子の高勾配磁気分離実験を行った。粒径 75 μm 未満のバーミキュライトを用いて固液比 1:300 の土壌懸濁液を調製した。超電導ソレノイド磁石(JMTD-10T100ES、ボア径 100mm)を用いて、最大中心磁束密度 2、5、7 T を印加し、磁気フィルター(SUS430、線径 0.34 mm、外径 36 mm、メッシュ数 20)を 5 mm 間隔で 30 枚設置して、流速 3 cm/s で懸濁液を流入させて高勾配磁気分離を行った。

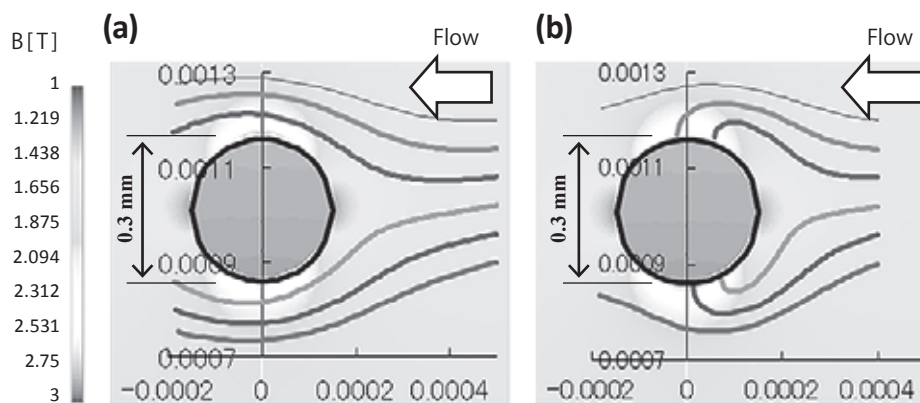


Fig.7 ワイヤ周囲の粒子軌跡計算の結果
(a) カオリナイト、(b) バーミキュライト¹⁷⁾

Table 2 各磁束密度における分離率の計算値と実測値²⁰⁾

磁束密度	分離率 (計算値)	分離率 (実測値)
2 T	82	75
5 T	92	90
7 T	94	97

Table 2 に計算結果と実験結果を比較して示した。磁束密度の増加とともに分離率は増加し、5 T 以上で 90 % 以上の高い分離率が得られた。また各磁束密度における分離率の計算値と実測値は良い整合性を示したことから、粒度分布を考慮した粒子軌跡計算に基づく分離率算出によってバーミキュライトのおよその分離率を予測できることが確認できたと見える。

実土壌においてはシルト・粘土の混合物の中からバーミキュライトを選択的に分離する必要があるため、次の段階として 2:1 型粘土鉱物であるバーミキュライトと 1:1 型粘土鉱物カオリナイトの混合試料からのバーミキュライトの選択的分離の検討を行った。上記と同じ磁気分離条件で、粒径 75 μm 未満のバーミキュライトとカオリナイトを 1:1 の重量比で混合し、固液比 1:150 の模擬土壌懸濁液について高勾配磁気分離を行った。分離後のバーミキュライトとカオリナイトの比率は、紫外可視分光スペクトルによって求めた。混合系での磁気分離前、磁気フィルター捕捉分、および通過分のそれぞれの組成を Fig.8 に示す²⁰⁾。

フィルターに捕捉されたバーミキュライトは投入量の 97 % であり、粘土混合物から磁気力を用いて選択的にバーミキュライトを分離することに成功したといえる。実土壌では有機物の影響で異なる種類の粘土やシルトが互いに凝集していることが予想されるが、前処理によって粒子の凝集を解消することで、実土壌においても選択的にバーミキュライトを分離することが可能であることを示唆するデータと言える。

(3) 実汚染土壌の磁気分離による線量低減効果の検討

上記の模擬汚染土壌の実験結果に基づき、著者らは現在、超電導磁石を用いた高勾配磁気分離を実汚染土壌への応用を順次進めているが、まず、永久磁石を用いた高勾配磁気分離を実施した。

2:1 型粘土鉱物の土壌中からの選択的分離による線量低減の効果を確認するため、福島県内で採取した土壌を用いて、現地で永久磁石を用いた高勾配磁気分離実験により減容化と線量低減の実験を行った。湿式分級により分離した粘土・シ

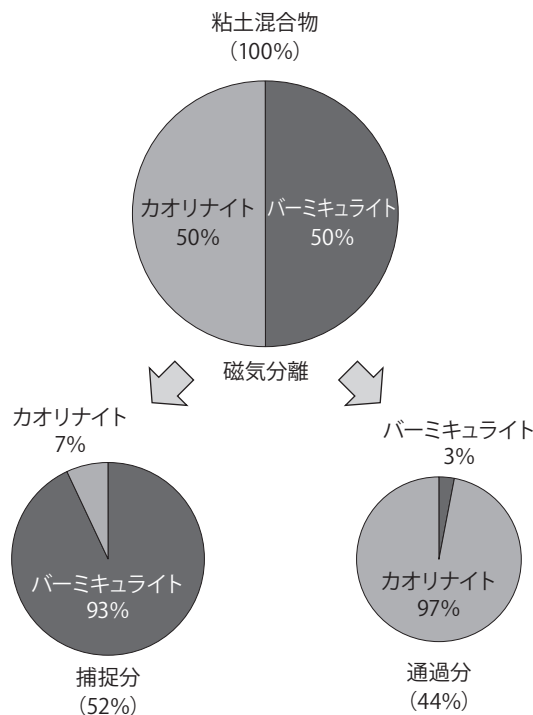


Fig.8 粘土鉱物混合系からのバーミキュライトの磁気分離結果²⁰⁾

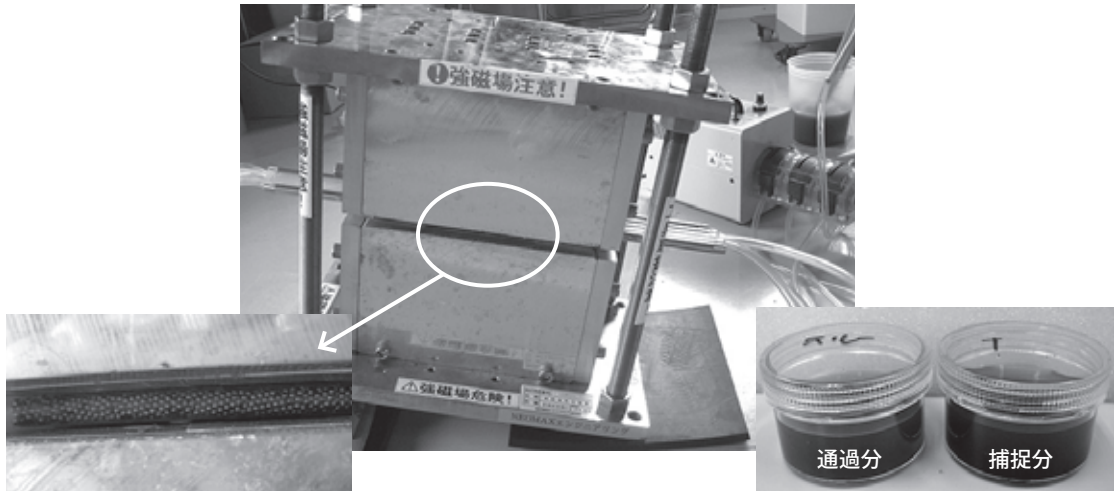


Fig.9 永久磁石による汚染土壌の磁気分離実験

ルト懸濁液(粒子径 75 μm 以下)に対して高勾配磁気分離を実施した。高勾配磁場を形成するため磁気フィルターとして鉄球を使用し、磁場発生源として対向型永久磁石(最大磁束密度 3 T、ネオマックスエンジニアリング株式会社)を利用して土壌の磁気分離を行った。永久磁石を用いた磁気分離装置を Fig.9 に示す。

磁気分離前、捕捉分、通過分のそれぞれの放射線計測を行った結果を Table 3 に示す。今回実施した永久磁石での磁気分離条件では、磁束密度が最大 3 T と低いこと、狭い分離領域におけるメンテナンス性を考慮して直径 2 mm の鉄球を磁気フィルターとして用いたため、十分高い磁場勾配が形成されていないことなどの不利な条件ではあったが、磁気分離法という物理的手法のみによって約 50% の線量低減率が得られた。減容化率は 10% にとどまったが、これは、磁気フィルターとして用いた鉄球の充填率が高かったことによるフィルターの閉塞の影響が大きいと考えられる。そのため、超電導ソレノイド磁石を用いる場合の実用的な磁気フィルターとしては、磁性細線を用いたメッシュフィルターを採用することになっている。メッシュフィルターと超電導ソレノイド磁石を用いた体系では、より大きな磁気力を粒子に作用させることが可能になり、またフィルター設計により閉塞を防ぐことも可能であるため、更なる線量低減と減容化率が得られると期待できる。現在、超電導磁石を用いた汚染土壌の減容化を計画している。

Table 3 磁気分離法による粘土・シルト分(< 75 μm)の除染効果

	線量率 (cps/g)	重量 (g)
分離前	14	2.6
捕捉分	15	2.3
通過分	7	0.3

7. まとめ

仮置き場から中間貯蔵施設への搬入が開始され、汚染土壌の減容化の必要性が高まっていく中で、周辺住民や周囲環境への負荷を最小限にしながらも高い減容化率と線量低減率が得られる実用的な手法が求められている。このような社会的要請に答えるため、環境負荷が小さく大量処理が可能な手法を考案し、その実現性について検証した。

今回提案した環境低負荷の洗浄液を用いた有機物分解と Cs 移行の前処理、および物理的手法である土壌分級と磁気分離の各工程で、効果的に減容化できることを実証できたと言える。今後は次の段階として、処理規模を大きくした場合の問題点の洗い出し、連続運転における装置洗浄等のメンテナンス性、環境負荷をさらに低減させるための洗浄液の再利用等の検討を行っていく。

謝 辞

本研究の一部は環境省総合推進費「セシウム動態解析に基づく除染シナリオの構築と磁気力制御型除染法の開発」(5Z-1301)、および新技術開発財団 東日本大震災復興支援特定研究助成 2014 によって行われた。

参 考 文 献

- 「除染土壌などの中間貯蔵施設について」, p.10, 環境省除染情報サイト (https://josen.env.go.jp/chukanchozou/material/pdf/dojyou_cyukan.pdf), 2015 年 11 月閲覧.
- 行松 和輝, 野村 直希, 三島 史人, 秋山 庸子, 西嶋 茂宏: 磁気力制御を用いたセシウム汚染土壌の減容化に関する研究 ~磁気分離条件の検討~. 第 91 回 2015 年度春季低温工学・超電導学会講演概要集. 50 (2015).
- 秋山 庸子, 関谷 一輝, 野村 直希, 三島 史人, 西嶋 茂宏: セシウム移行処理による汚染土壌減容化手法の検

- 討. 第4回環境放射能除染研究発表会要旨集. 28 (2015).
- 4) 中島 卓夫, 田川 明広, 松生 隆司, 大山 将, 林 茂郎, 高馬 崇: 放射性セシウム汚染土壌の洗浄処理に関する検討. 鴻池組技術報告 2012, 1-8 (2012).
 - 5) 神坐 圭介, 富塚 千昭: 汚染土壌乾式除染・減容技術. 富士電機技報. **86**, 148-161 (2013).
 - 6) 平成23年度「除染技術実証試験事業」の結果概要(資料11-1, 内閣府原子力被災者生活支援チーム), 回転加熱によるセシウム昇華技術 (<http://www.env.go.jp/jishin/rmp/conf/04-mat22.pdf>), 2015年11月閲覧.
 - 7) 井出 一貴, 三浦 俊彦, 神徳 敬, 高田 尚哉: 放射能汚染土壌の分級洗浄処理. 大林組技術研究所報. **76**, 1-6 (2012).
 - 8) 三倉 通孝, 金子 昌章, 竹内 努: 土壌浄化に貢献する汚染物質の除去・分解・封じ込め技術. 東芝レビュー. **70**, No. 5, 33-37 (2015).
 - 9) 竹下 健二, 高橋 秀治, 稲葉 優介, 宗澤 潤一: 高効率・高減容セシウム回収システムの構築 (Cs吸着濃縮回収からCs単体ガラス固化体まで) (1) システムの概要と減容効果. 第4回環境放射能除染研究発表会要旨集. 19 (2015).
 - 10) 毛利 光男: スクラビング・フローテーションを用いた土壌洗浄法による放射性物質汚染土壌の効率的な浄化と減容化. 建設の施工企画. **12**, 65-71 (2012).
 - 11) 山口 紀子, 高田 裕介, 林 健太郎, 石川 覚, 倉俣 正人, 江口 定夫, 吉川 省子, 坂口 敦, 朝田 景, 和穎 朗太, 牧野 知之, 赤羽 幾子, 平舘 俊太郎: 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 (2012).
 - 12) 吉田 有輝, 三島 史人, 秋山 庸子, 西嶋 茂宏: 土壌におけるセシウムの微視的動態に関する研究. 環境放射能除染学会誌. **3**, 65-72 (2015).
 - 13) 山口 紀子, 平舘 俊太郎: 土壌中における腐植物質の蓄積機構. 土・水研究会資料. **24**, 39-46 (2007).
 - 14) A. Nakao, Y. Thiry, S. Funakawa, T. Kosaki: Characterization of the frayed edge site of micaceous minerals in soil clays influenced by different pedogenetic conditions in Japan and northern Thailand. *Soil Sci. Plant. Nutr.* **54**, 479-489, (2008).
 - 15) S. Igarashi, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama, S. Nishijima: Fundamental study of cesium decontamination from soil by superconducting magnet. *Physica C: Superconductivity and Its Application*. **494**, 221-224 (2013).
 - 16) S. Igarashi, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama, S. Nishijima: Study on magnetic separation for decontamination of cesium contaminated soil by using superconducting magnet. *Physica C: Superconductivity and Its Application*. **504**, 144-147 (2014).
 - 17) K. Sekiya, H. Kuwahara, Y. Yoshida, S. Igarashi, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama, S. Nishijima: Study on decontamination of contaminated soils by magnetic separation. *IEEE T. Appl. Supercon.* **24**, No. 3, 3700205 (2014).
 - 18) Y. Yoshida, K. Sekiya, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama, S. Nishijima: Study on volume reduction of contaminated soil by radioactive cesium using magnetic separation. *IEEE T. Appl. Supercon.* **25**, No. 3, 3700505 (2015).
 - 19) 行松 和輝, 野村 直希, 三島 史人, 秋山 庸子, 西嶋 茂宏: 磁気分離法を用いた汚染土壌減容化に関する研究. 第4回環境放射能除染研究発表会要旨集, 29 (2015).
 - 20) K. Yukumatsu, N. Nomura, F. Mishima, Y. Akiyama, S. Nishijima: Study on volume reduction of cesium contaminated soil by magnetic separation. 24th International Conference on Magnet Technology. (MT-24), 4OrAA-13 (2015).

2015年11月9日 原稿受付

和文要約

除染作業により放射性Csで汚染された土壌が大量に生じ、その減容化手法の開発が急務となっている。そこで湿式分級と磁気分離を組み合わせることで、土壌成分の中で多くのCsを強固に吸着する2:1型粘土鉱物のみを選択的に回収し、汚染土壌を減容化する手法を検討してきた。本手法の実用化のためには、砂れきや1:1型粘土鉱物等の他の低線量土壌を再利用可能な線量まで低減させる必要がある。そこで、分級・磁気分離の前処理として、カリ肥料溶液中での研磨処理によって物理的・化学的に砂れきと1:1型粘土鉱物から2:1型粘土鉱物へのCs移行を行った。また土壌中の有機物を分解して土壌粒子の分散性を向上させるため、食品添加物に用いられる炭酸カリウムにより溶液を塩基性にすることで有機物を分解することを試みた。これらの結果に基づき、福島県内にて実汚染土壌を対象に湿式分級と永久磁石による磁気分離を行ったところ、粒径と磁化率の違いにより、土壌から高線量の2:1型粘土鉱物を選択的に分離することで、高線量土壌と低線量土壌に分離できることが確認された。本手法は、周辺環境への負荷を抑えた効果的な減容化手法として期待される。