

令和元年6月28日現在

機関番号：12608

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2017～2018

課題番号：17K17716

研究課題名(和文) 森林環境中の植物系廃棄物からの放射性Cs回収プロセスの開発と再資源化可能性の探究

研究課題名(英文) Development of Radioactive Cs Recovery Process from Plant-based Waste in Forest Environment and Exploration of Recyclability

研究代表者

高橋 秀治 (Takahashi, Hideharu)

東京工業大学・科学技術創成研究院・助教

研究者番号：50625960

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,100,000円

研究成果の概要(和文)：森林環境の除染のため、福島第一原子力発電所事故により放射性セシウム(Cs)で汚染された落ち葉の除去・伐採・枝打ち等が行われている。除染により発生する植物系廃棄物の量は莫大であり、保管場所の確保の難しさから、廃棄物の減容化や再資源化が求められている。そこで、本研究では、亜臨界状態の水で植物系廃棄物を洗浄することでCsを分離し減容する手法を検討し、さらには、Cs分離後の廃棄物の再資源化の可能性を探索した。

研究成果の学術的意義や社会的意義

本研究で得られたCs分離技術により、分離された「Cs」は安定に最終処分(保管)することが可能となり、国が抱える減容化や最終処分の課題に対してブレークスルーを起こし得る。また、本研究により、汚染植物系廃棄物の低分子化によるCs分離メカニズムが示唆された。そして、本研究で得られた植物系廃棄物の再資源化の可能性により、福島県の森林地帯における汚染植物系廃棄物の再資源化のみならず、福島県内外に存在する莫大な量の未利用間伐材等の未利用バイオマスの資源化についても期待できる。以上より、本研究で得られた研究成果は学術的意義や社会的意義があると評価できると考える。

研究成果の概要(英文)：In order to decontaminate the forest environment, removal of fallen leaves, tree felling, pruning contaminated with radioactive cesium (Cs) by Fukushima Daiichi Nuclear Power Plant accident are being conducted. The amount of plant-based waste generated by decontamination is enormous, and it is required to reduce the volume and recycle the waste due to the difficulty in securing a storage place. Therefore, in this research, we examined the method of Cs separating and reducing the volume of the waste by washing the plant-based waste with subcritical water, and, investigated the possibility of recycling the waste after Cs separation.

研究分野：原子力熱流体工学、原子力化学工学、廃棄物処理・処分

キーワード：廃棄物減容化 廃棄物処理 廃棄物再資源化 バイオマス 反応・分離工学

## 様式 C - 19、F - 19 - 1、Z - 19、CK - 19 (共通)

### 1. 研究開始当初の背景

福島第一原子力発電所の事故により広範囲の森林地域が放射性セシウム (Cs) で汚染された。森林地域については現状では住居等の近隣地域や人が日常的に立ち入る地域に限定して除染が行われている。限定された地域の除染でさえ、発生する植物系廃棄物は莫大な量となり、仮置き場や中間貯蔵施設等の保管場所の保管容量の逼迫が心配されている。現状、Cs が吸着した状態のまま植物系廃棄物は保管されているが、減容化・安全性向上のためには汚染物からの Cs 分離は不可欠である。また、亜臨界状態の水の加水分解作用により植物系廃棄物は低分子化され糖類が生成されることになれば、生成された糖類を回収できれば発酵・蒸留過程を経てバイオエタノールを得ることが可能となる。その他の残渣は 8000Bq/kg 以下 (10 万 Bq/kg の汚染植物系廃棄物を想定し 92% の Cs 分離率) まで線量低減されれば土木資材として再利用され得る。そこで、本研究では、汚染した植物系廃棄物から Cs を分離する技術を開発し、ガラス固化体の形態で安定保管する技術を概念検討するとともに、Cs 分離後の廃棄物の再資源化の可能性を探索することを試みた。

### 2. 研究の目的

本研究では、Cs 汚染植物系廃棄物から Cs を分離する技術を開発しガラス固化体の形態で安定保管する技術を概念検討するとともに、Cs 分離後の廃棄物の再資源化の可能性を探索する。植物系廃棄物のモデルとして福島県に多く存在する広葉樹・針葉樹の部材、稲わらを選択し、模擬汚染廃棄物からの Cs 分離・糖類生成実験を実施し、(1)Cs 分離および糖類生成に有効な水熱分解条件の検討、(2)植物系廃棄物からの Cs 分離メカニズムの検討、(3)ガラスを用いた Cs の固定化の検討、(4)実規模の連続プロセスの概念設計と実用性評価を行うことを研究目的とした。

### 3. 研究の方法

研究目的で述べた 4 つの研究課題を展開し、高 Cs 分離・高糖類生成の両方を満たす水熱分解条件を実験的に明らかにした。並行して、植物系廃棄物からの Cs 分離メカニズムを検討した。また、水熱分解法で分離された Cs をガラスで固定化する方法に関して概念検討した。以上の結果を踏まえて、最後に、実規模の連続プロセスを概念設計し、規模・減容効果など実用性の観点から本技術进行评估した。

### 4. 研究成果

#### (1) Cs 分離および糖類生成に有効な水熱分解条件の検討

植物系廃棄物のモデルとして広葉樹の木屑 (コナラ、産地：福島県南部・栃木県北部・茨城県北部、チェーンソーによる伐採で発生した木屑)・針葉樹の木屑 (スギ、産地：福島県奥会津、板材採取のためのカンナ掛けで発生した木屑)、稲わら (産地：宮城県登米市) を選択した。木屑、稲わらは 5mm 程度の長さで裁断し風乾し試験に用いた。模擬汚染廃棄物からの Cs 分離・糖類生成試験を実施した。Cs 分離・糖類生成試験における水熱分解は既設の水熱分解装置 (MMJ-500、容量 500mL、オーエムラボテック株式会社製) および、既設の压力容器・ヒーター分離式の水熱分解装置 (容量 120mL、TPR1-N2-120、耐圧硝子工業株式会社製) を用いて実験を行った。また、半流通式水熱分解装置 (試料回収部) (図 1) を設計・依頼製作し試験に導入することで高 Cs 分離性・糖類生成特性が見込める条件探索の効率化をおこなった。植物系廃棄物の種類や添加量、処理温度などの水熱分解条件と Cs 分離率 (=水熱分解処理後の液相への移行 Cs 量/廃棄物中の初期 Cs 量 × 100 [%])、そして、糖類生成 (水熱分解処理後の液相での糖類生成量) の関係を調べることで、「高 Cs 分離・高糖類生成の両方を満たす水熱分解条件」を実験的に明らかにした。

安定同位体  $^{133}\text{Cs}$  を吸着させた模擬汚染植物系廃棄物 (図 2) を用いた実験により検討を進めた。水熱分解処理前後の固相・液相中の Cs 濃度は誘導結合プラズマ発光分光分析装置 (ICP-AES、ICPE-9000、島津製作所)、誘導結合プラズマ質量分析計 (ICP-MS、ICPMS-2030、島津製作所) を用いて分析した。糖類生成量の分析は高速液体クロマトグラフ (HPLC、LC-20AD、島津製作所) によって行った。



図 1 半流通式水熱分解装置 (試料回収部)



図 2 模擬汚染植物系廃棄物  
(Cs 吸着量：約 4~9 mgCs/g)

植物系廃棄物として杉の木屑を使用し、処理温度を 100 から 250 までと変えた場合において Cs 分離率を調べた結果を図 3 に示す。水熱分解試験に使用する水の添加量は 100mL とし、植物系廃棄物の添加量は水に対して液固比 200 mL/g とした。さらに、25 の蒸留水で液固比 10 mL/g で表面に付着した Cs を追加洗浄した。蒸留水による追加洗浄で分離した Cs も含めて Cs 分離率を算出した（以下、Cs 分離評価では、すべて蒸留水による追加洗浄操作を行い Cs 分離率の算出を行った。）結果として、処理温度を高くすることで Cs 分離率は増加する傾向を得た。つづいて、添加バイオマスの種類による影響をみるために杉の木屑、コナラの木屑、稲わら、比較のために、セルロースの試薬を使用し、処理温度を 250 とした場合において Cs 分離率を調べた結果を図 4 に示す。水熱分解試験に使用する水の添加量は 100mL とし、植物系廃棄物の添加量は水に対して液固比 200 mL/g とした。さらに、25 の蒸留水で液固比 10 mL/g で表面に付着した Cs を追加洗浄した。結果として、針葉樹の杉の木屑の場合において最も高い Cs 分離率を得た。

植物系廃棄物の量による影響をみるために杉の木屑を選び、木屑の量を液固比で 200 mL/g から 800 mL/g と変えて水熱分解試験を行った場合において Cs 分離率を調べた結果を図 5 に示す。処理温度は 250 とした。さらに、25 の蒸留水で液固比 10 mL/g で表面に付着した Cs を追加洗浄した。結果として、液固比が高いほど Cs 分離率が増加する傾向を得た。

また、植物系廃棄物と水の液固比を 200mL/g とし、処理温度 250 にて水熱分解処理を行い、さらに、25 の蒸留水で液固比 10 mL/g で表面に付着した Cs を追加洗浄した処理後の液相中の糖を HPLC で定量した。グルコース生成量、キシロース生成量は、それぞれ、杉のグルコース量、コナラのキシロース量で割り無次元化し比較評価した（図 6）。結果として、グルコースについては杉、キシロースについてはコナラが水熱分解した際に最も多量に生成されていることがわかった。また、同じ植物系廃棄物において処理温度によってその糖の生成量が異なることが確認された。

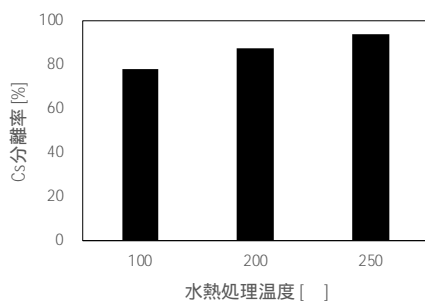


図 3 処理温度と Cs 分離率の関係

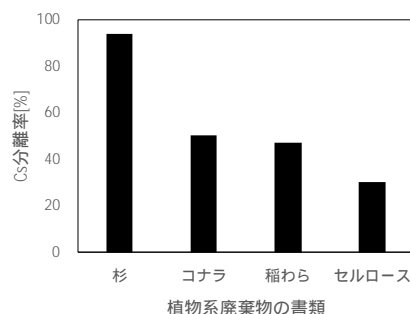


図 4 植物系廃棄物と Cs 分離率の関係

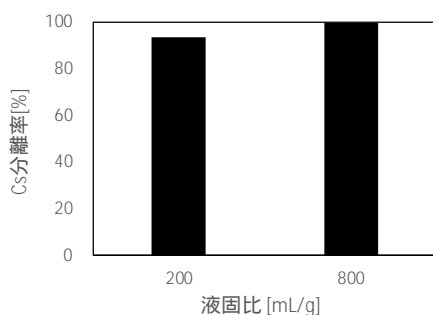


図 5 植物系廃棄物液固比と Cs 分離率の関係

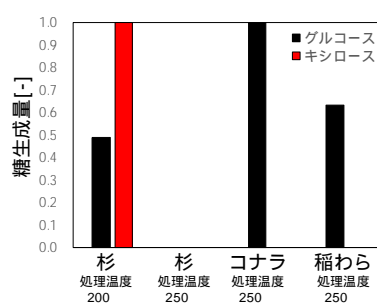


図 6 植物系廃棄物から生成された糖の生成量

## (2)植物系廃棄物からの Cs 分離メカニズムの検討

亜臨界状態の水の加水分解作用による「植物系廃棄物の低分子化」に伴う廃棄物の溶解が Cs 分離を引き起こすメカニズムとなると予想していたが、植物系廃棄物の低分子化の現象が水熱分解処理前後の植物系廃棄物試料を HPLC で同定、定量することで確認でき、また、一方で植物系廃棄物を水熱分解した際には糖以外にも有機酸が生成されていることが過去の申請者の科研費の報告書[1]にて確認されており、Cs の分離に植物系廃棄物の低分子化が影響していることが定性的に確認できた。

## (3)ガラスを用いた Cs の固定化の検討

Cs に対して選択的吸着特性を有するアルミノシリケート複合構造型高珪酸ガラス[2(申請者らが別途開発を進める方法)]を用いれば、多元素が存在する液相中においても、水熱分解法で分離された Cs を選択的に吸着させ、加熱しガラス固化体を作製することが可能である。ただし、発熱に応じた含有量を考慮する必要がある。詳細は資料[2]をご覧ください。

#### (4) 実規模の連続プロセスの概念設計と実用性評価

これまでの知見に基づいて、実規模の連続プロセスを概念設計し、規模、減容効果、廃棄体としての安定性、再資源化について実用性の観点から本技術を評価した。

本基礎試験結果を基に高濃度 10 万 Bq/kg の Cs 汚染植物系廃棄物 1 万 m<sup>3</sup> を対象としてバッチ式処理（液固比 200 mL/g、繰り返し処理）を鑑みると分離した Cs を申請者らが別途開発を進める方法で吸着・固化すれば、およそ数千分の 1 から数万分の 1 まで高減容化が期待できるが、必要な総水量が 200 万 ton と莫大であり、加熱コストは高額となる。水の再利用も含め水熱分解処理の連続化（流通式）の研究開発が今後の課題である。また、亜臨界状態の水の加水分解作用により植物系廃棄物は低分子化され糖類が生成されることが確認されたので、生成された糖類を回収できれば発酵・蒸留過程を経てバイオエタノールを得ることが可能となる。その他の残渣は 8000Bq/kg 以下（10 万 Bq/kg の汚染植物系廃棄物を想定し 92% の Cs 分離率）まで線量低減される見通しを得たので、土木資材として再利用され得るが、Cs 分離と同様に必要な総水量が 200 万 ton と莫大であり、水の再利用を考慮した水熱分解処理の連続化の研究開発が今後の課題となるであろう。

#### < 引用文献 >

[1] 高橋秀治、農林系・廃棄物系バイオマスを用いた汚染土壌からの放射性セシウム新規分離技術の開発、課題番号：15K20987、2016

[2] 東京工業大学、「平成 28 年度 除染土壌等の減容等技術実証事業（その 5）金属イオン含有亜臨界水による土壌分級物中の Cs の高速イオン交換回収と高減容ガラス固化」報告書、JESCO、2017

#### 5 . 主な発表論文等

〔雑誌論文〕(計 0 件)

〔学会発表〕(計 0 件)

〔図書〕(計 0 件)

〔産業財産権〕

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

〔その他〕

ホームページ等

東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所 竹下研究室

<http://www.nr.titech.ac.jp/~takeshita/>

東京工業大学 科学技術創成研究院 先導原子力研究所 木倉研究室

<http://www.nr.titech.ac.jp/~kikura/?lang=ja>

#### 6 . 研究組織

(1) 研究分担者 なし

(2) 研究協力者

研究協力者氏名：竹下 健二

ローマ字氏名：TAKESHITA Kenji