

**科学研究費助成事業 研究成果報告書**

平成 28 年 6 月 10 日現在

機関番号：12201

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2014～2015

課題番号：26630479

研究課題名(和文)磁気分離を活用した放射能汚染された下水汚泥の効率的な除染技術の創成

研究課題名(英文)Development of efficient decontamination process of radioactive sewage sludge by magnetic separation

研究代表者

酒井 保蔵 (SAKAI, YASUZO)

宇都宮大学・工学(系)研究科(研究院)・准教授

研究者番号：70186998

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)：磁気分離による放射性セシウム汚染汚泥の除染技術を検討した。原発事故による放射性セシウムは最終的に土壤中の常磁性パーミキュライトに保持され、雨水により下水中に流入し、汚泥に捕捉される。最大磁束密度1Tのマグネットバーを用いた磁気カラムに汚染汚泥を通すことで、カラムに保持される少量の放射性セシウム濃縮汚泥と大部分の除染汚泥に分離できた。実汚泥では0.37Bq/Lから5.4Bq/Lまで濃縮され1/15まで減容することができた。

研究成果の概要(英文)：A new decontamination process by application of magnetic separation was investigated using radioactive cesium contaminated sewage sludge. The radioactive cesium which was adsorbed on paramagnetic vermiculite in the soil is carried into sewage sludge by rain water and trapped in the sludge. By using the magnetic column with a 30cm magnet-bar (1T maximum magnetic flux), the contaminated sludge was able to be separated to a small amount of cesium concentrated sludge and large amount of decontaminated sludge. The contaminated actual sludge of 0.37Bq/L was concentrated to 5.4 Bq/L. As a result, the volume of contaminated sludge was able to be reduced to 1/15.

研究分野：水処理工学

キーワード：除染 下水汚泥 磁気分離 放射性セシウム 放射能汚染 パーミキュライト

### 1. 研究開始当初の背景

福島原発の事故で環境中に広範囲に放出された放射性物質として、放射性ヨウ素とセシウムが挙げられる。放射性ヨウ素は半減期が8日と短いため、現在では消失しているが、放射性セシウムの一つであるセシウム137は30年の半減期をもち、数百年オーダーの監視が必要である。高温で蒸散した放射性セシウムは空気で冷やされて微粒子となり、雨に溶解したり、降下して地表を汚染した。これらの放射性セシウムは雨水に溶けて移動し、一部は植物や動物に取り込まれ、残りは河川に流入したり、地下に浸透した。セシウムは土壤に吸着しやすい性質をもち、地表面から数センチ以内の浅い土壤にほとんどが吸着されるといわれ、最終的に、土壤中の層状粘土物質の層間に強固に吸着されると報告されている。土壤中の粘土物質に吸着されたセシウムは降雨によって粘土と共に流され、下水中に混入すると、下水処理施設で汚泥中に捕捉される。放射性物質の河川への流出が抑制される一方で、下水汚泥に蓄積された粘土物質は余剰汚泥として引き抜かれる汚泥の放射能汚染の原因となっている。放射能汚染された汚泥は、焼却処理できず、また輸送も難しいため、下水処理場に多量に保管されて問題となっている。この汚染汚泥は200Bq/kg以下まで除染すれば、建設資材などとして、資源利用することが可能となり、適切な除染方法の開発が期待された。研究代表者は、パーミキュライトが常磁性物質であり、強力な磁石で吸引分離できることから、汚染汚泥を磁気分離することでパーミキュライトを汚泥から取り除き、除染を行なうことを考えた。加圧下、100以上で加熱する水熱処理や、アルカリなどの薬剤による汚泥からのセシウム溶出法が提案されているが、濃縮・減容率が十分でなく、汚泥を溶解する方法では、放射能汚染された高濃度の有機廃水が発生するため二次汚染の恐れがあるなど問題があった。磁気分離で除染が可能であれば、薬剤や高圧・高温を必要とせず、省エネルギーであるだけでなく、汚染汚泥を、磁気力だけで、放射能物質を多く含む少量の汚染汚泥と大部分の除染汚泥に分離でき、除染による二次汚染のリスクもほとんどないと考えられた。

### 2. 研究の目的

研究代表者は、常磁性のパーミキュライトを磁気力で下水汚泥から分離することができれば、二次汚染の少ない下水汚泥の除染方法となると考えた。本研究の目的は、様々な工業プロセスで強力な磁気分離装置として利用されているマグネットバーを用いて、放射能汚染汚泥の磁気分離による除染が可能であることを原理的に示すことである。本研究では、まず、放射能汚染された土壤を活性汚泥に添加することで模擬汚染汚泥を調整し、マグネネットバーで分離して、実験条件

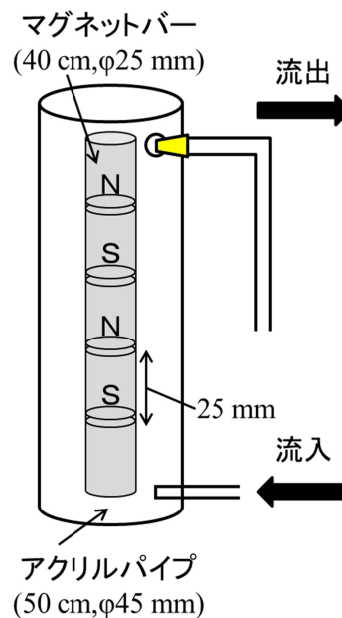


図1 磁気分離装置の概念図

や磁気分離装置を検討した。次に、実汚染汚泥を用いて、分離実験を行ない、磁気分離による除染プロセスの可能性を検討した。

### 3. 研究の方法

実験装置を図1に示す。磁気分離装置は、アクリル樹脂製の円筒(長さ50 cm、φ45 mm)に最大磁束密度が約1 Tのマグネットバー(40 cm、φ25 mm)を挿入し上下を固定し密封したものである。マグネットバーは円柱状のネオジウム磁石を円板状のヨークを同極同士を密着させてステンレスパイプ内に挿入したもので、市販品をそのまま用いた。アクリル円筒容器の上下に流出、流入口を取り付け、磁気分離カラムとした。チューブポンプにより、模擬汚染汚泥または実汚染汚泥を一定流量でカラム内に上向流で流し、マグネットバーにパーミキュライトを多く含む汚泥を付着させた。所定量の汚泥を流した後、逆洗により、付着した汚泥を剥離・回収し、沈降分離によって汚泥のみを回収した。

模擬汚染汚泥は、以下の手順により汚染土壤中の細かい土壤物質を馴養活性汚泥に添加することで調製した。まず、粘土物質を微細な栃木県内の空間放射線量の比較的高い地点の土壤の表層部を採取し、大きな石、植物、ゴミなどを除いたのち、細かい粒子のみを湿式分級により分離した。この土壤微粒子を馴養した活性汚泥に添加し、捕捉させて調製した。模擬汚染汚泥は、分離処理前に放射能測定モニタでセシウム由来の放射能を測定した。この模擬汚泥を流量80~1,000 mL/minでカラムに流した。一部の汚泥がマグネットバーに磁力で付着し、大部分の汚泥はカラムを通過し流出した。マグネットバーに付着した汚泥を回収した後、カラムから流

出した汚泥の放射能を、再度測定し、カラムに通した。この操作を5回繰り返し、カラムを通過させることによる放射能の低下を順次測定した。

実汚泥を用いた実験には水再生センターの返送汚泥 200 L を用いた。磁気分離装置下部より 1 L の実汚泥を 10 L/h で流入させた。模擬汚泥と同様にマグネットバーに付着する汚泥と、付着せず流出する汚泥に分離した。マグネットバーに付着した汚泥を回収した後、次の 1L を同様に磁気分離カラムに通した。これを 200 回繰り返して、200L の汚泥全量を 1 回磁気分離した。

放射能濃度測定には食品放射能測定モトタ(千代田テクノル RAD IQTM FS200)を用い、Cs134 及び Cs137 の放射能の合計値を求めた。

#### 4. 研究成果

模擬汚泥を用いた実験では、各流速条件に対する磁気分離カラムを通過した汚泥の放射能残存率および汚泥体積分率を測定した。その結果、流速 170 ml/min において、磁気分離を 2 回繰り返したとき、磁気分離カラムを通過した除染汚泥の体積分率は積算で約 80% となった(積算で 20% の濃縮汚泥がマグネットバーに付着)。この除染汚泥の放射能残存率は約 20% (初期放射能の 20%) であった。2 回の磁気分離操作によって、除染汚泥側の放射能濃度を 1/4 に下げることができることが示された。磁石に付着した濃縮側の汚染汚泥はパーミキュライトが 4 倍濃縮されたと考えられる。同じ条件で、磁気分離を 5 回繰り返した場合、カラムを通過した除染汚泥の体積分率が約 60% まで減少(磁石に付着する分が減少)する一方で、放射能を最初の 10% まで減少させることができた。磁気分離を繰り返すことで、除染の割合が向上することが示された。一方、除染汚泥の体積は磁気分離を繰り返すほど減少してゆくため、汚染汚泥の濃縮側では濃縮率は 4 倍から約 2 倍まで減少した。濃縮汚泥の減容率という点では、磁気分離 2 回では止めた方が良いことが示された。

流速を約 1 L/min に増加させた場合、磁気分離を 2 回繰り返すと約 5 割の除染ができた。このとき除染汚泥の体積は最初の体積の 95% 以上であった。濃縮汚泥の放射能濃度は元の汚泥の放射能濃度と比べて 10 倍となった。除染率の目標が 50% 程度のような比較的汚染の程度が軽い汚泥の場合、このような濃縮優先の分離条件が有効・かつ効率的であると考えられた。

対象とする汚染汚泥が資源化可能な 200 Bq/kg をどの程度超えているかによって、磁気分離の条件を選定する必要があることが示唆された。

図 2 に 1 L の実下水汚泥を通過させた後の磁気分離カラムの写真を示した。カラム内の銀色に見えるマグネットバーにリング状に



図 2 磁気分離カラムとマグネットバーに磁力で付着した濃縮汚泥

活性汚泥が付着している様子が観察された。実下水汚泥を用いた実験では、約 200 L の汚泥を磁気分離して、マグネットバーに付着した濃縮汚泥のセシウム由来の放射能は 5.4 Bq、汚泥体積は約 1 L であった。一方、カラムを通過した汚泥のセシウム由来の放射能は 73 Bq であった。実汚泥では、マグネットバーに付着する汚泥量が模擬汚泥に比べて大幅に減少した。磁気分離装置を通過した汚泥の除染率は約 7% と小さな値となったが、一方、汚泥体積は 0.5% まで減容できたため、放射能濃度の濃縮率は 15 倍となった。

汚染レベルの低い実汚泥では、常磁性のパーミキュライトの含有率も少ないため、より多くのパーミキュライトを回収し、除染率を向上させるため、さらに強力な磁気分離プロセスで検討する必要があると考えられた。

これらの詳細な結果は文末に示した低温工学・超電導学会、水環境学会、MAP7 などの学会発表で報告された。

磁気力による放射能汚染汚泥の除染は可能であることが示された。マグネットバーによる磁気分離装置の改良や、より強力な超電導磁石による高勾配磁気分離法などの適用により、二次汚染の少ない放射能汚染下水汚泥の除染プロセスの実現が期待される。

## 5. 主な発表論文等

〔学会発表〕(計9件)

酒井保藏、「磁気分離による水処理の新たな領域開拓の可能性」、第207回研究会 / 第35回強磁場応用専門研究会 第59回磁気工学専門研究会、2016年3月18日、早稲田大学(東京都・新宿区)

佐藤翔大、酒井保藏、高橋克哉、「放射性Csで汚染された下水実汚泥の磁気分離による除染技術の検討」、第50回日本水環境学会年会、2016年3月17日、アスティとくしま(徳島県・徳島市)

佐藤翔大、酒井保藏、「放射性セシウムで汚染された下水汚泥の磁気分離による除染の検討」、2015磁気力制御・磁場応用夏の学校ポスターセッション、2015年9月4日、石川県勤労者福祉文化会館(石川県・金沢市)

佐藤翔大、酒井保藏、高橋克哉、「磁気分離を用いた放射能汚染汚泥の簡易な除染技術の検討」、第91回2014年度春季低温工学・超電導学会、2015年5月27日、産業技術総合研究所つくばセンター共用講堂(茨城県・つくば市)

高橋克哉、酒井保藏、西嶋茂宏、「放射性セシウムで、汚染された下水汚泥の磁気分離による除染～効率向上のための条件検討」、第49回日本水環境学会年会、2015年3月17日、金沢大学(石川県・金沢市)

酒井保藏、「汚染下水汚泥の現状と問題点」、第3回材料研究会シンポジウム・福島除染に関する現状と問題点、2014年11月4日、除染プラザ(福島県・福島市)

- ⑦ Yasuzo Sakai, Katsuya Takahashi, Yutaka Fujiwara, Shigehiro Nishijima, “Proposal of Magnetic Decontamination of Radioactive Cs from Activated Sludge”, International Forum on Magnetic Force Control 2014 in China, 2014年10月30日、Beijing(China)

Yasuzo Sakai, Yutaka Fujiwara, Katsuya Takahashi, Shigehiro Nishijima, “Preproposal of Simple Method for Radioactive Decontamination of Sludge by Magnetic Separation”, 6th International Workshop on Materials Analysis and Processing in Magnetic Fields(MAP6), 2014年7月11日、サウザンビーチホテル&リゾート(沖縄県・糸満市)

酒井保藏、藤原豊、高橋克哉、西嶋茂宏、「放射能汚染された汚泥の除染への磁気分離応用の可能性」第89回春季低温工学・超電導学会、2014年5月27日、タワーホール船堀(東京都・江戸川区)

〔図書〕(計1件)

超電導磁気分離システムを利用した除染

技術調査専門委員会編、電気学会、技術報告書1372号「福島の現状と超電導磁気分離システムを利用した除染技術の動向」、2016、52

## 6. 研究組織

(1)研究代表者

酒井 保藏 (SAKAI, Yasuzo)

宇都宮大学・工学研究科・准教授

研究者番号：70186998