

磁選による放射性セシウム汚染土壌の乾式分級

－高炉スラグ微粉末の磁性材料としての利用－

Dry Classification of Radioactive Cesium Contaminated Soil by Magnetic Separator

- Usage of Ground Granulated Blast-Furnace Slag as a Magnetic Material -

白石祐彰* 榎木正成**

要 旨

放射性セシウム汚染土壌は土粒子が小さいほど汚染濃度が高くなるため、細粒土からなる汚染土壌と基準を満たす粗粒土を分けること（分級処理）により、粗粒土は再生利用ができる。従前は、水を使用して汚染土を湿式分級していた。しかし、湿式分級で発生する濁水は、細粒分の粒径が小さくなると凝集沈殿処理が難しくなり、濁水の性状が変化すると凝集沈殿処理は安定しない。

そこで、全く廃水を出さない、模擬セシウム汚染土壌の乾式分級試験方法を検討した。高炉スラグ微粉末を磁性材料として用い、2 段式格子型マグネットで磁力選別した結果、磁着試料（細粒分）は分級前の約 2.7 倍のセシウム濃度となり、分級前の約 20%の重量に濃縮できた。次に、放射性セシウム汚染土壌で試験を実施し、ドラム型磁選機により細粒分と粗粒分に分級した結果、粗粒分は試料の放射性セシウム濃度に対して 39～46%に低下した。

キーワード：放射性セシウム汚染土壌、高炉スラグ微粉末、乾式分級、磁力選別、ドラム型磁選機

1. まえがき

福島県で発生した、除染で取り除いた土や放射性物質に汚染された廃棄物を最終処分するまでの間、安全に集中的に管理・保管するための中間貯蔵施設は福島県内に設置されることになっている。中間貯蔵施設に搬入される除去土壌等は最大約 2,200 万 m³ と推計され、全量をそのまま最終処分することは、必要な規模の最終処分場確保等の観点から実現性が乏しい。最終処分が必要となる量を減少させるためには、除去土壌等を本来貴重な資源である土壌として何らかの形で利用することが考えられるが、放射性物質を含む除去土壌等はそのままでは利用が難しい。このため、適切な前処理や減容技術の活用により除去土壌等を処理することで、放射能濃度の低い土壌等を分離し、管理主体や責任主体が明確となっている一定の公共事業等に限定して再生利用する。この再生利用の対象となる土壌等（浄化物）の量を可能な限り増やすことにより、最終処分量の低減を図る方針が示されている¹⁾。

環境省が 2016 年 3 月 30 日に開催した中間貯蔵除去土壌等の減容・再生利用技術開発戦略検討会（第 3 回）において、再生資材の放射性セシウム濃度は 8,000 Bq/kg

以下を原則とする旨が示された。放射性セシウム汚染土壌は土粒子が小さいほど汚染濃度が高くなるため、細粒土からなる汚染土壌と基準（8,000 Bq/kg 以下）を満たす粗粒土を分けること（分級処理）により、粗粒土は再生利用ができる。

従前は、水を使用して汚染土を湿式分級し、シルト・粘土の微細粒子を除去していた。その際、湿式分級に伴い細粒分を含んだ濁水が発生する。発生した濁水は凝集沈殿処理を行い、脱水ケーキとして処分する。しかし、細粒分の粒径が小さくなると熟練した技術者が対応しない限りポリ塩化アルミニウム（PAC）と高分子ポリマーによる凝集沈殿処理は難しくなる。また、濁水の性状が変化すると凝集沈殿処理が安定しなくなるといった課題がある。

そこで、磁力選別により全く廃水を出さずにセシウム汚染土から高濃度の細粒分を磁着分離する、鉄および酸化 Ca を含有する粉砕物を用いた乾式分級試験を実施した²⁾。そして、鉄および酸化 Ca を含有する粉砕物の代わりに市販されている高炉スラグ微粉末を用い、資源リサイクルなどにおいて原料を磁性物（有価物）と非磁性物（廃棄物）に選別するドラム型磁選機をセシウム汚染土壌の分級処理に初めて適用したので報告する。

* 技術研究所環境研究グループ ** 東日本支社土木工務部

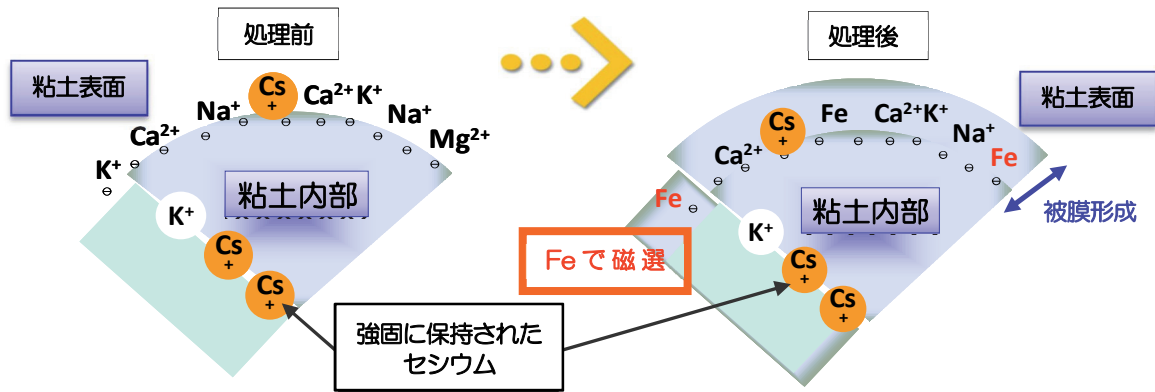


図-1 鉄および酸化Caを含有する粉砕物による粘土表面での被膜形成

2. 鉄および酸化Caを含有する粉砕物を用いた乾式分級原理

鉄および酸化Caを含有する粉砕物は、鉄粉、酸化Caおよび金属Caを2:5:2の混合比とし不活性ガス雰囲気下、遊星ボールミルを用いて400rpmで1時間粉砕処理を行い得られた粉砕混合物で、ナノサイズの複合体である³⁾。

鉄および酸化Caを含有する粉砕物は、土壌の間隙水や表面付着水と反応して、全ての土壌に対して一定の厚みの被膜を形成することができる(図-1)^{4) 5)}。また、図-2に示すように、その被膜内に共存する鉄粉と土壌粒子サイズ、外部磁力との関係から乾式処理で土壌微粒子のみを選択的に分離することが可能となる⁶⁾。

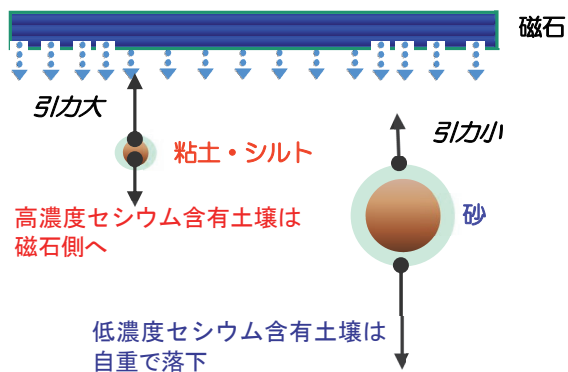


図-2 磁着分離の概念図

3. 乾式分級試験に使用した材料および機器

3.1 材料

a. 磁性材料

鉄および酸化Caを含有する粉砕物の代わりに高炉スラグ微粉末を使用した。

高炉スラグ微粉末は、製鉄所の高炉より副生される高炉水砕スラグを微粉砕して製造され、高炉セメント原料や生コンクリート混和材などとして広く利用されている。

本試験では、以下の3種類を磁性材料として使用した。

- ・ 炉前水砕スラグを遊星ボールミルを用いて粉砕処理を行い作成した高炉スラグ微粉末
- ・ JIS A6206 (コンクリート用高炉スラグ微粉末) に定められている高炉スラグ微粉末 8000
- ・ 遊星ボールミルによりさらに細かくした高炉スラグ微粉末 8000 の粉砕物 (粒径 $0.1\mu\text{m} \sim 1\mu\text{m}$)

b. 土壌

(a) 模擬セシウム汚染土壌

マサ土を風乾し、マサ土 10kg に塩化セシウム水溶液 (100mg/500ml) を噴霧器により少量ずつ加えながら、ポッドミキサーを3分間回転させた(写真-1)。その後、目開き2mmの篩でふるい、ふるい下の2mmアンダーの土壌を試験に用いた。



写真-1 模擬セシウム汚染土壌の調製

(b) 放射性セシウム汚染土壌

福島県内にある中学校の校庭の土壌表層をすき取った放射性セシウム汚染土壌を目開き5mmの篩でふるい、5mmアンダーの土壌を試験に用いた。

3.2 機材

a. 攪拌機

パン型ドラムに遊星回転する多段混練羽根を複数軸備えた攪拌ミキサーを用いてセシウム汚染土壌と磁性材料を混合攪拌した。ドラム内部を図-3に示す。アーム(公転)が多段混練羽根の全体を回転させて、ロータ(自転)がせん断混合の働きをする。そのほかの羽根によって材料をドラム内で対流混合させる。

b. 磁力選別機

(a) 格子型マグネット

写真-2に示す2段式格子型マグネット（日本マグネティックス株式会社製）を磁力選別に使用した。マグネットの磁束密度は10,000 ガウスである。

(b) ドラム型磁選機

ドラム内部に磁石（最大磁束密度は約 6000 ガウス）が内蔵されていて回転する。ドラム表面に磁着した試料が磁石の回転により移動することで分離分別を行う（図-4）。

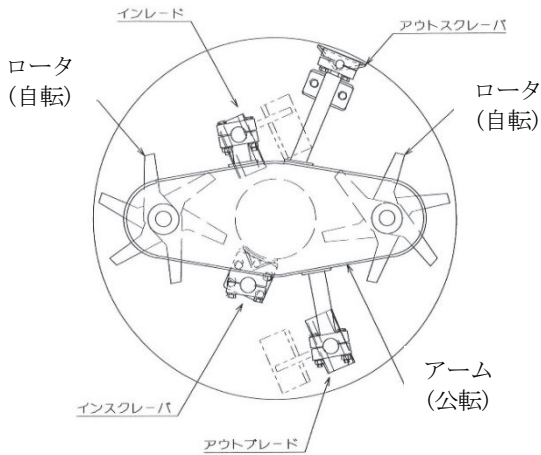


図-3 ドラム内部

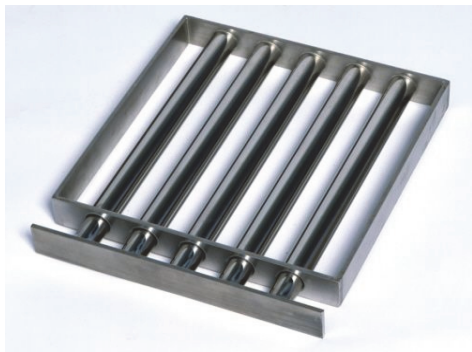


写真-2 格子型マグネット

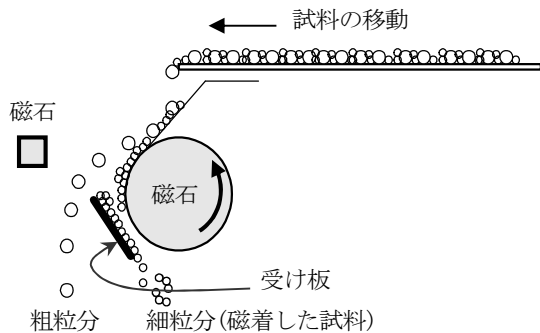


図-4 ドラム型磁選機を用いた分級の概略

4. 試験方法

4.1 模擬セシウム汚染土壌の乾式分級

a. 炉前水砕スラグを粉砕処理した高炉スラグ微粉末を用いた分級

鉄および酸化 Ca を含有する粉砕物の代替として炉前水砕スラグを粉砕処理した高炉スラグ微粉末が磁性材料となることを確かめるため、以下の試験を実施した。

模擬セシウム汚染土壌 50kg と炉前水砕スラグを粉砕処理した高炉スラグ微粉末 5kg を攪拌後に風乾し（含水率=2.2%）、試料 5kg を2段式格子型マグネットで磁力選別した。ただし、1回あたりの磁着量が少なかったため、磁着しないで格子型マグネットを通過した試料を集めて、写真-3～5の磁着および脱磁を繰り返した。磁着および脱磁を30回繰り返したときに1回あたりの磁着量がおおよそ20gとなり、見た目に少量となったため磁力選別を終了した。その後、磁着した試料および磁着しなかった残渣試料の重量とセシウム濃度と粒度分布を計測した。



写真-3 格子型マグネットによる磁力選別

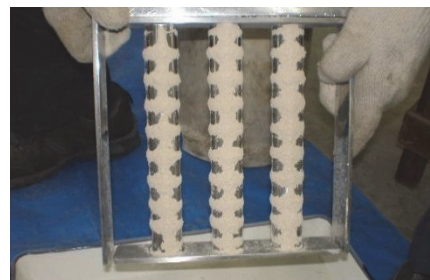


写真-4 磁着した試料

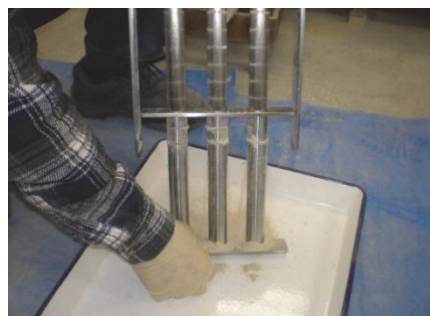


写真-5 脱磁による分級

2 段式格子型マグネットでの磁力選別により炉前水砕スラグを粉碎処理した高炉スラグ微粉末が磁性材料となることを確かめられたが、磁着および脱磁を繰り返す作業は現実性が乏しいので、現場適用性の向上のため、磁力選別機を 2 段式格子型マグネットからドラム型磁選機に代えて以下の試験を実施した。含水率を 2.4% に調整した模擬セシウム汚染土壌 50kg と炉前水砕スラグを粉碎処理した高炉スラグ微粉末 5kg を攪拌後に風乾し（含水率=0.7~1.9%）、試料 1kg をドラム型磁選機で磁力選別した。その後、磁着した試料および磁着しなかった残渣試料の重量と粒度分布を計測した。

高炉スラグ微粉末 8000 を用いた分級

高炉スラグ微粉末 8000 は市販品であり、炉前水砕スラグより入手が容易である。そこで、炉前水砕スラグを粉碎処理した高炉スラグ微粉末の代替として高炉スラグ微粉末 8000 が磁性材料となることを確かめるため、以下の試験を実施した。

模擬セシウム汚染土壌 50kg と高炉スラグ微粉末 8000 の 5kg とを攪拌後に風乾し（含水率=2.2%）、試料 5kg を 2 段式格子型マグネットで磁力選別した。その結果、1 回あたりの磁着量が少なかったため、磁着しないで格子型マグネットを通過した試料を集めて、写真-3~5 の磁着および脱磁を繰り返した。1 回あたりの磁着量がおおよそ 20g になるまで、磁着および脱磁を 20 回繰り返した。その後、磁着した試料および磁着しなかった残渣試料の重量とセシウム濃度、粒度分布を計測した。

4.2 放射性セシウム汚染土壌の分級

対象土壌を模擬セシウム汚染土壌から放射性セシウム汚染土壌に代えて以下の試験を実施した。含水率 2.5% 程度まで風乾させた土壌 62.5kg と高炉スラグ微粉末 8000 の粉碎物 5kg を攪拌後に風乾し（含水率=1.2~2.1%）、試料 7kg をドラム型磁選機で磁力選別した。パラメータとして以下の磁選機の変可変条件を設定した。試験ケースを表-1 に示す。

- ・ 振動フィーダによる粉体移動速度
- ・ 振動フィーダの位置（図-5、6）
- ・ 受け板角度（図-7）
- ・ 受け板長さ

その後、磁着した試料および磁着しなかった残渣試料の重量と放射性セシウム濃度（ゲルマニウム半導体検出器法）、粒度分布を計測した。

また、高炉スラグ微粉末 8000 を用いて同様の分級試験を実施した。試験ケースを表-2 に示す。

5. 結果および考察

5.1 模擬セシウム汚染土壌の分級

- 炉前水砕スラグを粉碎処理した高炉スラグ微粉末を用いた分級

表-1 磁選機の設定条件（高炉スラグ微粉末 8000 の粉碎物を用いた試験）

試料	インバータ目盛*	フィード位置**	受板長さ	受板角度
No.1	55	-0.5cm	115mm	33°
No.2	55	-0.5cm	115mm	25°
No.3	55	-0.5cm	117mm	33°
No.4	55	-0.5cm	117mm	33°
No.5	55	+0.5cm	117mm	36°
No.6	65	-0.5cm	117mm	25°

*インバータ目盛が大きいほど振動フィーダによる粉体移動速度が大きくなる

**フィード位置が-0.5 cmは、振動フィーダの位置を後ろへ-0.5 cm移動した

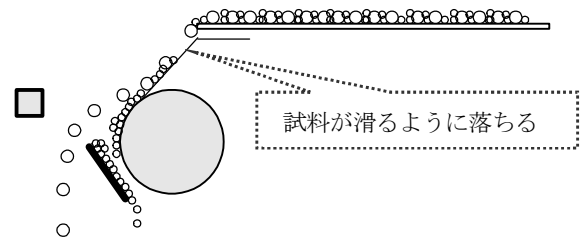


図-5 磁選機の振動フィーダの位置を後ろにずらした場合

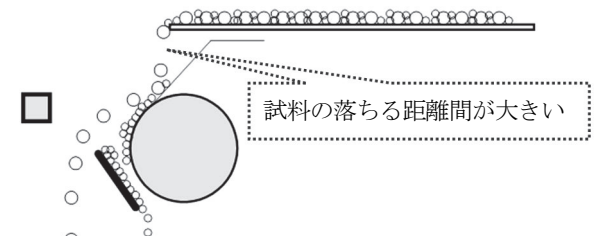


図-6 磁選機の振動フィーダの位置を前にずらした場合

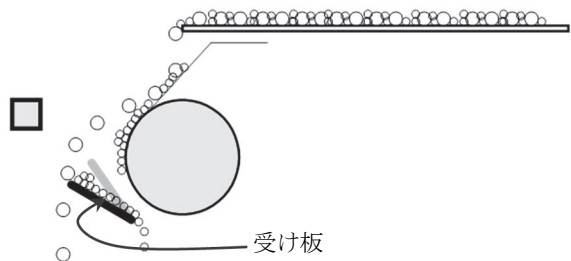


図-7 磁選機の受け板角度を調整

表-2 磁選機の設定条件（高炉スラグ微粉末 8000 を用いた試験）

試料	インバータ目盛	フィード位置	受板長さ	受板角度
No.1	55	-0.5cm	115mm	33°
No.2	55	-0.5cm	117mm	33°
No.3	55	-0.5cm	119mm	33°
No.4	55	-0.5cm	117mm	38°
No.5	65	-0.5cm	117mm	25°

模擬セシウム汚染土壌と炉前水砕スラグを粉碎処理した高炉スラグ微粉末を攪拌した試料 5kg を 2 段式格子型マグネットで磁力選別を 30 回繰り返したときの 1 回ごとの磁着量の変化および磁着量の累計を図-8 に示す。磁着および脱磁を 30 回繰り返した結果、磁着量の合計は 982 g に達した。炉前水砕スラグを粉碎処理した高炉スラグ微粉末が磁性材料として成立することが分かった。

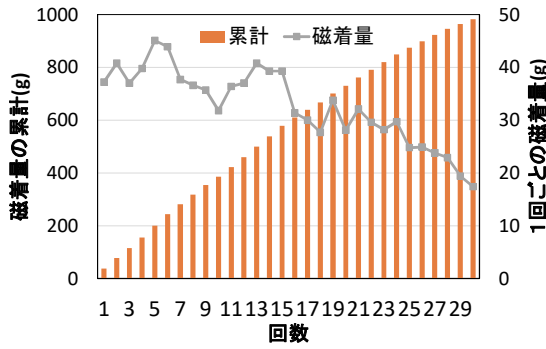


図-8 1回ごとの磁着量の変化および磁着量の累計
(炉前水砕スラグの粉碎物を用いた試験)

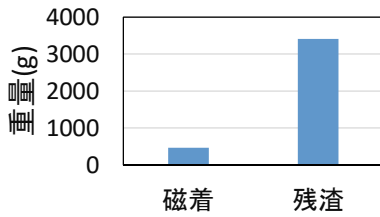


図-9 磁着および残渣試料の粒径 0.25mm 以上の重量
(炉前水砕スラグの粉碎物を用いた試験)

粒度分布の計測結果から磁着した試料および磁着しなかった残渣試料の粒径 0.25mm 以上の重量を図-9に示す。粒径 0.25mm 以上の試料のおよそ9割は磁着しないで格子型マグネットを通過した。

分級前の 2mm アンダー試料のセシウム濃度は 7.1 mg/kg、分級後の磁着および残渣試料のセシウム濃度は 19mg/kg、4.5 mg/kg であった(表-3)。分級により磁着試料は、分級前の 2mm アンダーの約 2.7 倍のセシウム濃度を分級前の約 20%の重量に濃縮できた。一方、残渣試料は、分級前のセシウム濃度を約 4 割減少させることができた。

模擬セシウム汚染土壌と炉前水砕スラグを粉碎処理した高炉スラグ微粉末を攪拌した試料 1kg をドラム型磁選機で磁力選別した。磁選前の試料の含水率と磁着量および残渣量との関係を表-4に示す。試料 1kg に対し、磁着量は 30%を超え、最大 42%に達した。磁着前の試料

表-3 各試料のセシウム濃度
(炉前水砕スラグの粉碎物を用いた試験)

試料	セシウム濃度 (mg/kg)	備考
分級前 2mmアンダー	7.1	分級前試料:5000g
分級後 磁着	19.0	分級後試料: 982g
分級後 残渣	4.5	分級後試料:4018g

表-4 磁選前の試料の含水率と磁着量および残渣量

試料No.	磁選前の含水率 (%)	磁着量 (g)	残渣量 (g)
1	0.7	424	568
2	0.8	412	574
3	1.0	412	586
4	1.8	326	667
5	1.9	351	640

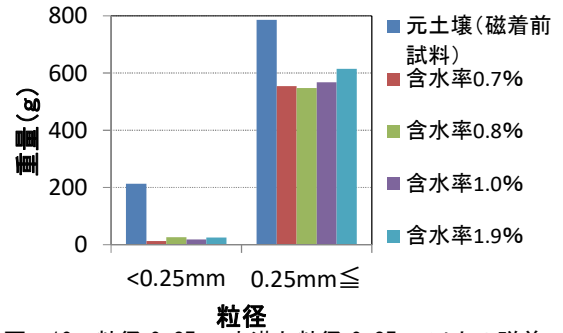


図-10 粒径 0.25 mm未満と粒径 0.25 mm以上の磁着前の試料および残渣試料

(マサ土+炉前水砕スラグ) および残渣試料について粒径 0.25mm 未満と粒径 0.25mm 以上に分けて図-10に示す。粒径 0.25mm 未満の試料が残渣に含まれていたのは磁着前試料の約 6~12%であった。

b. 高炉スラグ微粉末 8000 を用いた分級

模擬セシウム汚染土壌と高炉スラグ微粉末 8000 を攪拌した試料 5kg を 2 段式格子型マグネット で磁力選別を 20 回繰り返したときの 1 回ごとの磁着量の変化および磁着量の累計を図-11 に示す。磁着および脱磁を 20 回繰り返した結果、磁着量の合計は 1293 g に達した。高炉スラグ微粉末 8000 が磁性材料として成立することが分かった。粒度分布の計測結果から磁着した試料および磁着しなかった残渣試料の粒径 0.25mm 以上の重量を図-12 に示す。粒径 0.25mm 以上の試料のおよそ 8 割は磁着しないで格子型マグネットを通過した。

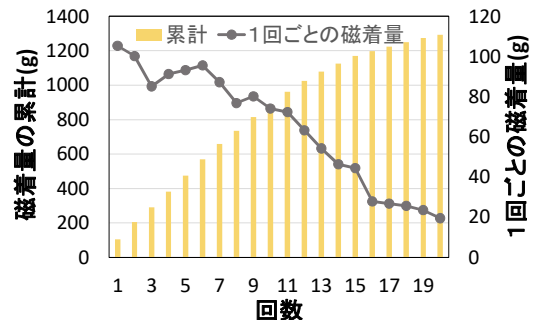


図-11 1回ごとの磁着量の変化および磁着量の累計
(高炉スラグ微粉末 8000 を用いた試験)

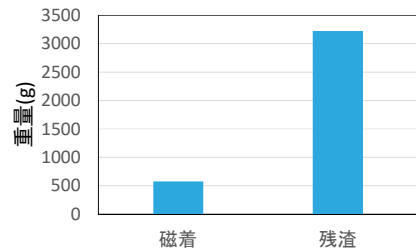


図-12 磁着および残渣試料の粒径 0.25mm 以上の重量
(高炉スラグ微粉末 8000 を用いた試験)

表-5 各試料のセシウム濃度

試料	セシウム濃度 (mg/kg)	備考
分級前 2mmアンダー	6.5	分級前試料:5000g
分級後 磁着	18.0	分級後試料:1293g
分級後 残渣	4.5	分級後試料:3707g

分級前の 2mm アンダー試料のセシウム濃度は 6.5 mg/kg、分級後の磁着のセシウム濃度は 18mg/kg であった (表-5)。分級により磁着試料は、分級前の約 2.8 倍のセシウム濃度を分級前の約 26%の重量に濃縮できた。

5.2 放射性セシウム汚染土壌の分級

5mm アンダーの土壌の放射性セシウム濃度は 1998Bq/kg、土壌 62.5kg と高炉スラグ微粉末 8000 の粉砕物 5kg を攪拌後の試料の放射性セシウム濃度は 1764Bq/kg であった。

ここでは、磁選機の主な可変条件を選択することにより 6 ケースの実験を行った。磁着しなかった残渣試料 (粗粒分) の放射性セシウム濃度および磁着試料 (細粒分) と残渣試料 (粗粒分) の重量を表-6 に示す。粗粒分は 686~818 Bq/kg となり、試料の放射性セシウム濃度 1764Bq/kg に対して 39~46%に低下した。

試験ケースNo.4は、磁選機に試料を約7000g投入し、細粒分4187g と粗粒分2807gに分級され、細粒分と粗粒分の割合は 60:40 であった。このときの試料およびNo.4の粗粒分の粒径 0.25mm 未満と粒径 0.25mm 以上の土壌の重量を図-13 に示す。No.4 の粗粒分は分級処理によって試料の粒径 0.25mm 未満の土壌のおよそ 9 割が分離されたことが分かる。この分級効果から No.4 の粗粒分のセシウム濃度は試料の 43%に低下した。

表-6 粗粒分のセシウム濃度および細粒分と粗粒分の重量

ケース	濃度 (Bq/kg)		重量 (g)	
	粗粒分	細粒分	粗粒分	細粒分
No.1	773	4976	2041	
No.2	705	5122	1920	
No.3	686	3978	3040	
No.4	760	4187	2807	
No.5	793	4060	2907	
No.6	818	3700	3750	

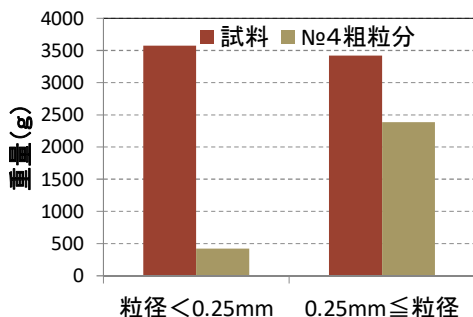


図-13 試料とNo.4粗粒分の粒径の違いによる重量の差

表-7 粗粒分のセシウム濃度および細粒分と粗粒分の重量 (高炉スラグ微粉末 8000 を用いた分級試験)

試料名	濃度 (Bq/kg)		重量 (g)	
	粗粒分	細粒分	粗粒分	細粒分
No.1	757	4628	2397	
No.2	749	2553	3545	
No.3	815	2944	2406	
No.4	838	3941	3129	
No.5	746	3951	3108	

また、高炉スラグ微粉末 8000 の粉砕物の代わりに磁性材料として高炉スラグ微粉末 8000 を用いて同様の分級試験を実施した。5mm アンダーの土壌 62.5kg と高炉スラグ微粉末 8000 の 5kg とを攪拌後の試料の放射性セシウム濃度は 1584Bq/kg であった。

磁選機の主な可変条件を選択することにより 5 ケースの実験を行った。磁着しなかった残渣試料 (粗粒分) の放射性セシウム濃度および磁着試料 (細粒分) と残渣試料 (粗粒分) の重量を表-7 に示す。粗粒分の濃度は 746~838 Bq/kg となり、試料の放射性セシウム濃度 1584Bq/kg に対して 47~53%に低下した。

磁性材料として、高炉スラグ微粉末 8000 の粉砕物を用いた場合と高炉スラグ微粉末 8000 を用いた場合の磁選後の粗粒分のセシウム濃度を比較すると、前者の方が小さくなった。しかし前者は、高炉スラグ微粉末 8000 を遊星ボールミルによりさらに細かく粉砕するという工程が増える。一方、後者は、市販品をそのまま磁性材料とすることができる。

6. まとめ

模擬セシウム汚染土壌の分級試験により、以下の結果が得られた。

- i. 炉前水砕スラグを粉砕処理した高炉スラグ微粉末を用いて 2 段式格子型マグネットで磁力選別した結果、磁着試料は、分級前の 2mm アンダーの約 2.7 倍のセシウム濃度を分級前の約 20%の重量に濃縮できた
- ii. 高炉スラグ微粉末 8000 を用いて 2 段式格子型マグネットで磁力選別した結果、磁着試料は、分級前の約 2.8 倍のセシウム濃度を分級前の約 26%の重量に濃縮できた
- iii. 炉前水砕スラグを粉砕処理した高炉スラグ微粉末を用いてドラム型磁選機で磁力選別した結果、粒径 0.25mm 未満の試料が磁着しなかった残渣試料 (粗粒分) に含まれていたのは磁選前試料の約 6~12%であった

また、放射性セシウム汚染土壌の分級試験から以下の結果が得られた。

- i. 高炉スラグ微粉末 8000 の粉砕物を用いてドラム型磁選機で磁力選別した結果、磁着しなかった残渣の放射性セシウム濃度は 686~818 Bq/kg となり、磁選前試料の放射性セシウム濃度 1764Bq/kg に対して 39~46%に低下した
- ii. 高炉スラグ微粉末 8000 を用いてドラム型磁選機で磁力選別した結果、磁着しなかった残渣の放射性セシウム濃度は 746~838 Bq/kg となり、磁選前試料の放射性セシウム濃度 1584Bq/kg に対して 47~53%に低下した

以上の試験結果から、ドラム型磁選機による磁力選別により細粒分と粗粒分に分級できることが明らかとなった。実現場における乾式分級の処理フローを図-14に示す。プロセス数が湿式分級よりも比較的少なく、処理の流れが単純になっている。

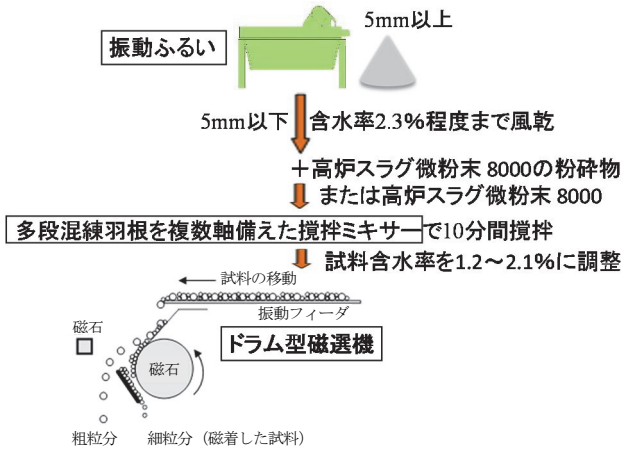


図-14 実現場における乾式分級の処理フロー

7. あとがき

汚染土壌と高炉スラグ微粉末とを攪拌混合して試料を調製する際には、土の粒子に高炉スラグが付着するために土壌水分が無くてはならない。しかし、含水率が高い場合、高炉スラグ同士や高炉スラグが付着した土粒子同士が接着されることになるため、含水率を2.3%以下にする必要がある。磁選を行う際には、基本的に水分量が少ない方が土粒子同士が離れやすく分級効果が高まるが、含水率がある程度以下になると細粒分の重量が軽くなりすぎて大気中に拡散してしまう。このような水分調整を大量の現地汚染土壌に対し円滑に行う手法の検討が必要と考えている。

なお、県立広島大学の三苦教授に、遊星ボールミルを用いた炉前水砕スラグの粉碎処理による高炉スラグ微粉末を提供していただき、本研究を実施した。また、攪拌機のドラム内部の図は、株式会社北川鉄工所から借用した。

【参考文献】

- 1) 環境省、「中間貯蔵除去土壌等の減容・再生利用技術開発戦略(案)」、p.3、2016.3
- 2) 白石祐彰、「磁力選別による模擬セシウム汚染土壌の乾式分級試験」、奥村組技術研究年報 No.40、pp.64-71、2013.9
- 3) 三苦好治、福岡猛三、松江英彰、小林秀匡、白石祐彰、梶谷幹男、「ナノカルシウムによる放射セシウム汚染土壌の除染技術」、デコミッションング技報 特別号一福島環境回復技術一、pp.24-29、2013.6
- 4) 三苦好治、「ナノカルシウムによる放射性セシウムの

処理技術」、第13回インテレクチャル・カフェ広島講演資料、2011.12

- 5) 白石祐彰、三苦好治、「ナノカルシウムによる模擬セシウム汚染土壌の乾式分級試験」、環境放射能除染学会第2回研究発表会 講演資料、2013.6
- 6) S.R.Mallamati, Y.Mitoma, T.Okuda, S.Sakita, M.Kakeda, 「High immobilization of soil cesium using ball milling with nano-Fe/Ca/Cao dispersion mixtures」 *Environ.Chem.Lett.* DOI10.1007/s10311-012-0384-0(online)
- 7) 白石祐彰、三苦好治、「汚染物質を含有する固体の処理方法」、特開 2017-148719、2017.8