

放射線汚染物質への磁気分離法適用に関する基礎的研究*

三島 史人^{*1}, 奥田 貴大^{*1}

Fundamental Study of Magnetic Separation Method for Radioactive Contaminant

Fumihito MISHIMA and Takahiro OKUDA

^{*1} Department of Applied Nuclear Technology

Since the accident that happened in The Fukushima Daiichi Nuclear Power Station, a scattered radiological decontamination and decommissioning technology are attracting a lot of attention. The removal of radioactive crud in the nuclear power plant will become one of the more important elemental technologies of the decommissioning from now on. However, the effective technique to remove the crud which is applicable at high-temperature area around the nuclear power plant does not exist. Therefore, we focused on the magnetic property of the target cruds which are paramagnetic substance and high gradient magnetic separation (HGMS) was proposed as a nuclear power plant crud removal method. In this study, we tested the magnetic separation of crud sample model in room temperature for the practical use of the HGMS device and a possibility of the application of our method was indicated.

Key Words : Decommissioning , Radioactive Crud, Paramagnetic Substanece, High Gradient Magnetic Separation

1. 緒 言

2011年3月11日に起きた東日本大震災に伴い、福島第一原子力発電所から様々な放射性物質が大量に拡散した。また、福島事故以降は既存の廃炉に加え、設備の老朽化や安全性への問題を抱える原子力プラントについての廃炉作業が進められている。今後は事故により放出された放射性物質だけではなく、廃炉作業における放射性廃棄物の回収技術の向上が求められると考える。

廃炉作業を行う工程において原子炉冷却水を取り出すことが必要となる。BWR (Boiling Water Reactor : 沸騰水型原子炉) の冷却水や PWR (Pressurized Water Reactor: 加圧水型原子炉) の一次冷却系循環水中にはクラッド (Crud) と呼ばれる配管金属材料の腐食によって発生する腐食生成物が放射化されて存在しており、放射能上昇の原因となる⁽¹⁾⁻⁽⁶⁾。放射性腐食生成物は、炉内や循環系統に蓄積し、原子炉及び、周辺機器の保守や点検に支障をきたすだけでなく、燃料棒に付着して熱効率を低下させる。よって、稼働状態の原子炉のみならず廃炉作業の原子炉においてもその除去と回収は重要である。今後、運転開始から40年前後が経過している原子炉が増える中、廃炉作業に貢献できる新たな技術の創生が望まれている。

これらのクラッドは常磁性や強磁性の磁氣的性質を示すため、回収に必要な物理的外力として磁気力に着目した⁽⁷⁾。本研究では高温高压流体中に混入しているクラッドを直接ろ過できる方法として、高勾配磁気分離法を提案し、基礎的な実験を行い、その適用可能性について検討した結果について報告する。

2. 磁気分離法の原理

2.1 磁気分離法⁽⁸⁾

磁気分離法とは、物質に作用する磁気力の差を利用することで分離物質を除去する方法である。磁気分離に影

* 原稿受付 2017年2月28日

^{*1} 原子力技術応用工学科

E-mail: f-mishim@fukui-ut.ac.jp

響を及ぼすパラメーターは、粒子の体積、磁場強度（磁束密度）、磁場勾配、粒子の磁化率である。磁気分離法を用いるときに、考慮すべき力は粒子に作用する磁気力とドラッグ力（流体抵抗）である。磁気力 F_M とドラッグ力 F_D は、次の式（1）と式（2）で表される。式（1）において、 $V[\text{m}^3]$ は分離対象の体積、 $M[\text{A/m}]$ は粒子の磁化、 $H[\text{A/m}]$ は粒子の位置における磁場強度（磁束密度 B は $B[\text{T}] = \mu_0(H+M)$ 、 μ_0 は真空の透磁率）を表す。また、式（2）において、 $\eta[\text{Pa} \cdot \text{s}]$ は作業媒体の粘性率、 $r_p[\text{m}]$ は分離対象の粒子半径、 v_f と v_p は作業媒体の流速と対象粒子の流速 $[\text{m/s}]$ を表している。磁気分離条件としては、磁気力 F_M がドラッグ力 F_D よりも大きくなる必要がある。大きな磁気力を粒子に作用させるためには、高い磁場強度（磁束密度）と大きな磁場勾配が求められる。

$$F_M = V(M \cdot \nabla)H \quad (1)$$

$$F_D = 6\pi\eta r_p(v_f - v_p) \quad (2)$$

磁気分離は他の物理的分離方法では使用されない磁気力を用いるため、従来の方法では分離が困難な物質も分離できる可能性がある。磁気分離は1910年代から使用されている技術であり、鉱石の選鉱や鉄粉の除去などに使用されていた。そして、1970年代後半から高勾配磁気分離技術の研究が進むと、強磁性体だけでなく常磁性体の微細な粒子の分離または浄化に用いる装置の実用化が始まった。超電導磁石の導入が進むと、大量高速処理を要する製紙業用カオリン粘土精製や製鉄排水純化などで実用化された。その他、ガラス研磨剤などの廃棄物の分離回収、製紙排水の浄化などにも使用されている。

2.2 高勾配磁気分離法について

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つの手法がある。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。磁場勾配が小さいため、得られる磁気力が小さくなる短所があるが、装置が簡単のため従来から選鉱など強磁性体の分離に用いられている。

HGMSは、外部から印加した磁場中に強磁性材料でできたフィルター（強磁性細線）を配置することにより、高勾配磁場（高磁場勾配）を形成させることで、強い磁気力を発生させ、強磁性細線表面で粒子を捕捉する手法である。Fig. 1に磁場中に強磁性細線を設置したときの磁束線を表す。図中の円は強磁性細線の断面である。磁束線の密度変化が大きい部分が磁場勾配の大きな領域となる。

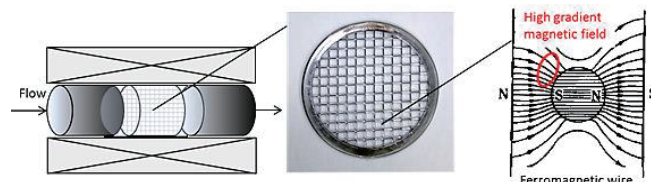


Fig. 1 Schematic diagram of HGMS and magnetic flux lines near the ferromagnetic wire.

3. 模擬コバルトクラッドの磁気分離実験

3.1 実験

模擬クラッドして酸化コバルトコロイド溶液を調製した。0.1 mol/L になるよう塩化コバルト（II）六水和物（ナカライテスク）を蒸留水 100 mL に溶かして塩化コバルト水溶液とし、4 mol/L の NaOH 水溶液を 5 mL 添加して、室温で約 30 分間の空気バブリングをし、酸化コバルトコロイド（ $\text{Co}(\text{OH})_3$ ）を合成した。添加する NaOH 溶液の添加量はアルカリのモル数と金属(Co)イオンの比が 2:1 になるように添加した。酸化コバルトコロイドの pH は約 9~10 である。

調製した酸化コバルトコロイドにネオジウム磁石（最大表面磁束密度 0.35 T）を近づけ OGMS を行った（Fig. 2）。酸化コバルトコロイドは写真の白矢印の方向に磁石に引き寄せられ、磁気分離が可能であることが示された。

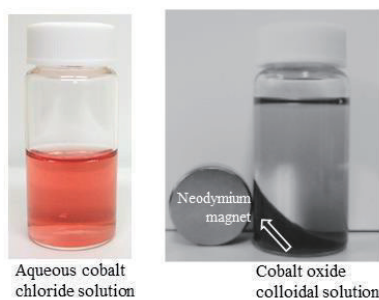


Fig. 2 Photograph of open gradient magnetic separation.

3.2 分離対象物の磁化率

コバルト酸化物コロイドは反応性が高く、不安定であるため模擬クラッドを酸化コバルトとした実験は、バッチ試験のみとした。流水条件下における磁気分離実験の模擬クラッドとしては、化学的に安定であり、コバルト酸化物より磁化率の小さい酸化鉄（ヘマタイト： $\alpha\text{-Fe}_2\text{O}_3$ ）を用いた。クラッド（金属酸化物）および、磁気分離の作業媒体となる水の磁化率について Table 1 に示す。

Table 1 Magnetic susceptibility of inorganic compound

Inorganic compound	Chemical formula	χ bulk susceptibility SI[-]
Cobalt(II,III) oxide	Co_3O_4	2.4E-03
Cobalt(III) oxide	Co_2O_3	1.8E-03
Hematite	Fe_2O_3	2.0E-04
Manganese(II) oxide	MnO	4.6E-03
Manganese(II,III) oxide	Mn_3O_4	3.3E-03
Manganese(III) oxide	Mn_2O_3	5.6E-03
Nickel(II) oxide	NiO	7.5E-04
Water (L, 293 K)	H_2O	-9.0E-06

4. 鉄系クラッドの磁気分離実験

ヘマタイトを模擬クラッドとした場合の磁気分離に必要な磁気力の見積もりを行った。実験の磁場発生源となる最大表面磁束密度 1.35 T（実測値 1.5 T）の永久磁石回路のデータ（Fig. 3）を磁気力計算に用いた。

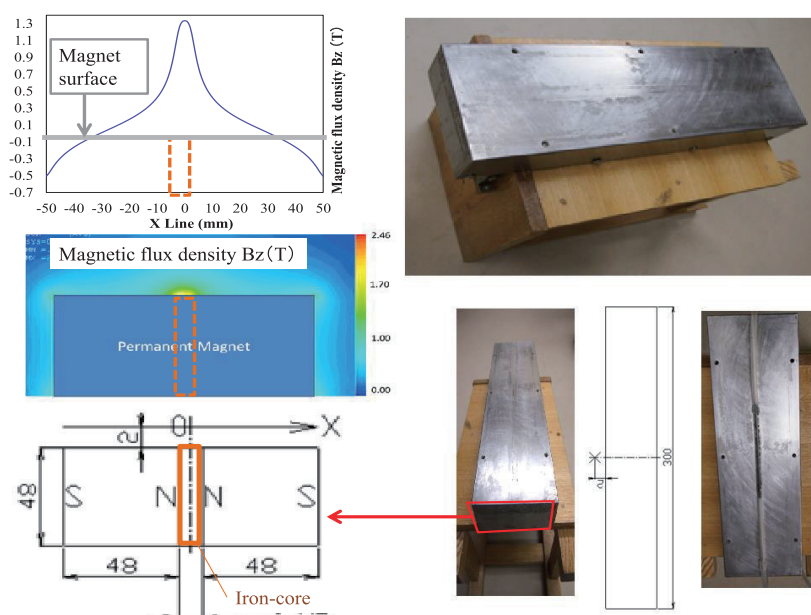


Fig. 3 Photograph of experimental Magnet and the Analysis of the magnetic flux densities.

HGMS 実験に使用する強磁性細線（SUS430 製 線形 ϕ 0.1 mm）を使用し、最大 1.5 T/m の磁場勾配とした時の条件で計算した（Fig. 4）。

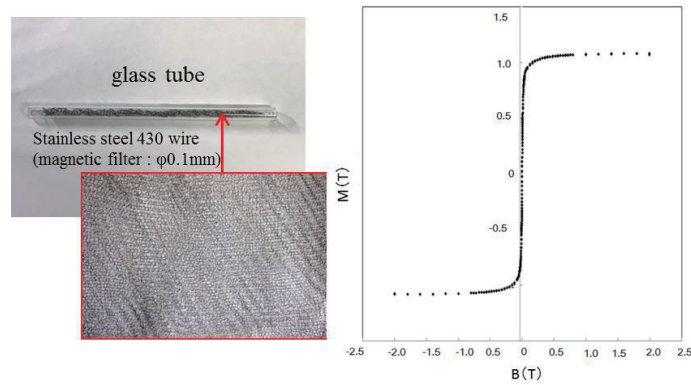


Fig. 4 Photograph of HGMS filter and magnetization curve SUS430.

ヘマタイトの平均粒子径は試薬データと光学顕微鏡（OLYMPUS OPTICAL CO. LTD., model: CHT）観察により平均粒子径が 10 μm ，単分散で 5 μm とした。磁気分離可能となる層流条件下の最大流速について、Table 1 の磁化率を用いて磁気力とドラッグ力として計算を行った。また、計算の結果を Fig. 5 に示す。

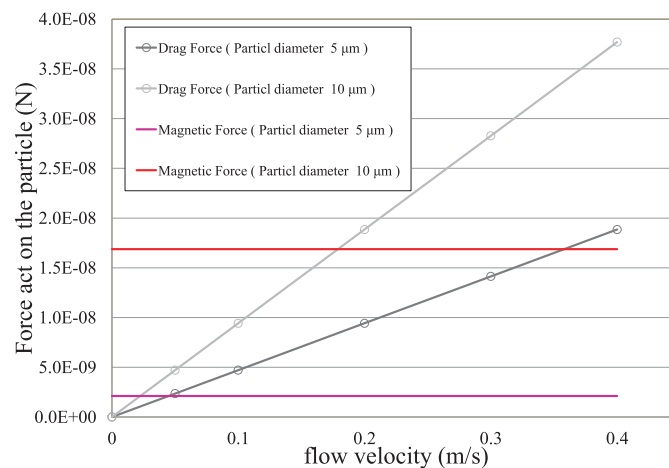


Fig. 5 The calculation results of the force (F_M and F_D) which act on the particles

粒子径が大きくなると磁気力とドラッグ力は共に大きくなる。磁気力は粒子径の 3 乗で、ドラッグ力は粒子径の大きさに比例する。計算結果より、粒子径 5 μm では流速 0.05 m/s 以下、粒子径 10 μm では流速 0.2 m/s 以上では磁気分離できないこと見積もられた。ただし、計算に用いた流速は管内の最大流速であり、管内の流速は管壁に近づくとも流速が低下するため、最大流速以下の部分も多く、実際には磁気分離可能な流速領域が多いと考える。さらに磁気分離流路内に強磁性細線を配置すると細線近傍の流速はさらに低速となり、実際の分離条件は計算値より易しいと考える。そこで、実験では 0.2 m/s の流速の倍となる 0.4 m/s を最大流速として磁気分離実験を実施した。

5. 模擬クラッド（ヘマタイト）の磁気分離流水実験

磁気分離装置には最大表面磁束密度 1.35 T（磁場領域 5 mm×500 mm，磁場分布は Fig. 3 に示した。）の永久磁石（ $\text{Nd}_2\text{Fe}_{14}\text{B}$ ）回路を磁場発生源として用い、内径 4.6 mm のガラス管内に線径 0.1 mm の強磁性細線（SUS430 製）を充填し、高勾配磁気分離（HGMS）流路とした。ヘマタイト（戸田工業 180ED 粒子径 5 μm ）と蒸留水の懸濁液（12.5 ppm）をかくはん機（Heidolph RZR-2021）でかくはんしながら、定量送液ポンプ（EYELA RP-1000）

で磁気分離流路 (HGMS) に送液した。実験条件として、ポンプによって流速を変えて (0.1 m/s, 0.2 m/s, 0.3 m/s, 0.4 m/s) 磁気分離試験を行った。磁気分離前後での懸濁液をそれぞれ 100 mL サンプルングし、分離率の変化を算出した。分離率を算出するにあたり、懸濁液中のヘマトイトの量は、濁度計 (HACH 2100Q) を用いて作成した検量線を用いた。磁気分離実験装置の写真を Fig. 6 に示す。Fig. 6 に示すように、試料懸濁液はポンプを用いて矢印の方向に送液し、磁場発生源上に配置された磁気分離流路 (HGMS) を通過させ分離処理を行った。

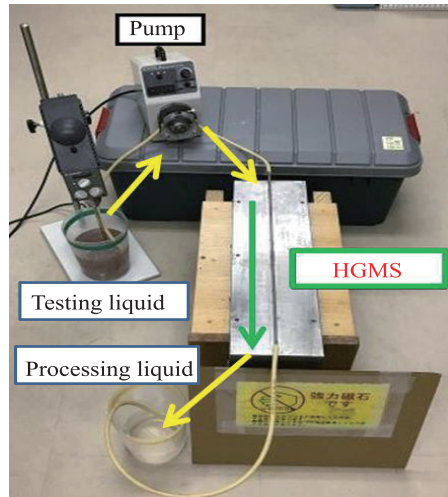


Fig. 6 Photograph of High Gradient Magnetic Separation experimental setup.

ヘマトイトの分離率と流速変化の関係の実験結果を Fig. 7 に示す。実験結果は流速を速くすることで分離率が低下し、計算結果の傾向と概ね一致していることが確認された。12.5 ppm では流速に 0.1 m/s にて 83 % の分離が可能であった。速度調整、磁場・磁場勾配を大きくすることで分離効率の上昇が期待できる。ただし、本実験を倍の懸濁度 25 ppm で行った場合には、低流速 (流速が 0.1 m/s と 0.2 m/s) の条件では分離率に変化が無かった (最大 70 % (0.1 m/s : 70%, 0.2 m/s : 69 %, 0.3 m/s : 54 %, 0.4 m/s : 46 %)。本実験装置は分離領域が小さいため磁性細線捕捉領域に対して最大捕捉量に達してしまった。

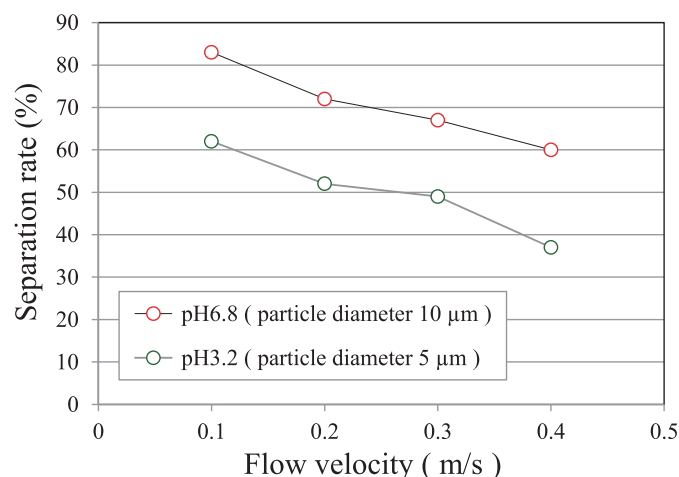


Fig. 7 Separation rate of hematite using HGMS.

本実験の懸濁液は pH 6.8 であり、光学顕微鏡観察より粒子の凝集が観られ、粒子径は 10~20 μm 程度であった。磁気分離の粒子径依存性を検証するために、懸濁液 (12.5 ppm) の pH を酸性 (3 付近) に調整することで

粒子のゼータ電位を調製し分散させ、粒子径 $5\ \mu\text{m}$ に単分散させた状態で同様の実験を行った。Fig. 7 に示されるように流速に関する分離率の傾向は同様であったが、全体的に分離率が 20 % 程度低下した（流速に 0.1 m/s にて 62 %）。粒子径が小さくなると粒子に作用する磁気力が低下し、分離率が低下することを確認した。

6. 結 言

本研究では、常温常圧下で模擬クラッドの磁気分離実験を行い、クラッド除去への磁気分離法の適用可能性を示した。実際の発電所の配管に本技術を適用しようとした場合には、高温高压条件かつ、高速大量処理が要求される。高温高压条件では粘性抵抗が小さくなるため、分離効率は向上することが予想される。しかし、高速大量処理と連続運用を考慮した場合には、磁気分離装置の磁場発生源として広域に強い磁気力を発生可能な超電導磁石を用いる必要があり、フィルタの形状やフィルタの洗浄システムについての検討が必要であると考えられる。今後は高温高压条件において模擬クラッドの超電導磁石を用いた高勾配磁気分離実験を行い、実用化に向けた課題の抽出と改良を進めてゆく予定である。

文 献

- (1) 丹野和夫, “火力および BWR 発電プラントにおける腐食による障害と水処理” 日本金属学会会報 第 22 巻第 9 号, (1983) pp. 809-817.
- (2) 大島茂男 “原子炉系水質管理による放射線量の低減” 三菱重工技報 Vol.32, No.3 (1995) pp. 188-190.
- (3) 石樽 顕吉 他, “水化学管理高度化の実績と将来課題” 日本原子力学会誌 Vol.41, No.8 (1999) pp. 20-30.
- (4) 火原協会講座 34 火力・原子力発電所における水・化学管理 (平成 19 年度版) pp. 73-80
- (5) Song, Min Chul; Lee, Kun Jai, “A study on a magnetic separation of radioactive corrosion products from NPP using permanent magnets” Nuclear Engineering and Design, Vol. 229 (1), (2004), pp. 101-111.
- (6) 阿部勝 他, “原子力プラントにおける洗浄・除染技術の動向に関する調査”, 八戸工業大学エネルギー環境システム研究所紀要 第 9 巻(2011) pp. 45-53.
- (7) N.Mizuno, F.Mishima, Y.Akiyama, et al., “Removal of Iron Oxide With Superconducting Magnet High Gradient Magnetic Separation From Feed-Water in Thermal Plant”, IEEE TRANS. ON APPL. SUPERCOND., VOL.25, NO. 3, (2015) Page(s)3700804
- (8) 電気学会技術報告「物質の磁気特性を活用した精密磁気制御応用技術の現状と動向」 電気学会 電力・エネルギー部門 超電導応用電力機器技術委員会, 第 1198 号, (2010) pp. 5-21.

(平成 29 年 3 月 31 日受理)