

## 科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 25 年 5 月 4 日現在

機関番号：12501

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2012

課題番号：23656189

研究課題名（和文） 二酸化炭素ガスの凍結磁気分離法に関する基礎的研究

研究課題名（英文） Magnetic separation of carbon dioxide gas under low temperature

研究代表者

岩坂 正和 (IWASAKA MASAKAZU)

千葉大学・大学院工学研究科・准教授

研究者番号：90243922

研究成果の概要（和文）：二酸化炭素ガスが勾配磁界を通過する際の輸送速度の計測を行った。磁界中で二酸化炭素濃度計測可能な観測システムの構築を行い、勾配磁界中での二酸化炭素と酸素ガス混層流での二酸化炭素の流れの計測を行った。5 テスラ(T)超伝導磁石内部および500mT 永久磁石の勾配磁界空間における二酸化炭素ガスの輸送速度は、常磁性気体(酸素ガス)濃度に依存して変化した。二酸化炭素発生源に勾配磁界を設置した際、常磁性ガスを二酸化炭素ガスキャリアとして有効利用できることが明らかとなった。

研究成果の概要（英文）：Gas transportations of carbon dioxide molecules under gradient magnetic fields were investigated. An observation system of carbon dioxide gas concentration and flow under magnetic fields was constructed, and the flow velocity of the carbon dioxide-oxygen mixture was measured. The flow velocity of carbon dioxide gas both under magnetic fields of 5 T superconducting magnet and 500 mT permanent magnet showed a dependence on the additional oxygen supply. The results indicate that the paramagnetic oxygen gas can be utilized as a carrier for the carbon dioxide gas transportation.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
交付決定額	2,900,000	870,000	3,770,000

研究分野：電気電子工学

科研費の分科・細目：電力工学・電力変換・電気機器

キーワード：電気有効利用，電磁界有効利用

## 1. 研究開始当初の背景

二酸化炭素の物理吸収法は実証～実用段階にあり、二酸化炭素の大規模発生源からの回収に貢献すると期待されている。しかし、高压状態で液体に二酸化炭素を取り込ませる必要があるため、大気圧に近い条件での実用に厳しい面が技術の普及をばむ原因として危惧される。

一方、超伝導磁石技術の進歩に伴い、強磁界の産業応用の研究が過去 20 年ほど世界的に展開されており、我が国では磁気科学研究プロジェクトが組まれるなど強磁界の応用例は急速に広がりつつある。本申請者はこれまで、磁界による水面の二分現象（モーゼ効果）、磁気泳動、磁気クロマトグラフィー、そして燃焼・ガス流に及ぼす磁界効果（磁気

カーテン）など、空間勾配磁界による磁気力の応用に取り組んできた。本応募テーマを行う根拠は、輸送される過程の二酸化炭素ガスの挙動に与える磁界効果を、これまでの研究をもとに明確化することにより、効率的な二酸化炭素の分離回収に貢献可能であるという実験モデルにある。

## 2. 研究の目的

本研究は、大気中および大規模発生源付近の二酸化炭素を、経済的かつ効率よく吸収し地中貯蔵に至るプロセスにおいて、二酸化炭素を磁界空間へ取り込み・輸送・濃縮する技術を凍結プロセス下の勾配磁界にて実現することを目的とする。

超伝導磁石のテスラ (T) 級の強磁界空間

を用い高勾配磁界空間での二酸化炭素の輸送特性の解明を行う。磁気力の指標となる磁界・勾配積の値が  $300\sim 800\text{T}^2/\text{m}$  となる条件において二酸化炭素の挙動を低温下で制御し、大気圧中の二酸化炭素濃度条件での実験を進める。

## 2. 研究の方法

### (1) 超伝導磁石の高勾配磁界空間での二酸化炭素の輸送特性の調査

テスラ (T) 級の強磁界空間における二酸化炭素の輸送特性を調べることで、磁界形状に依存した二酸化炭素の流れのモード解析を進める。強磁界を発生する既存の超伝導磁石を使用する。液体中における二酸化炭素の輸送速度を、磁気クロマトグラフィー測定システムによって計測する。次に、勾配磁界中での反磁性・常磁性混層流での二酸化炭素の流れを可視化するため、使用する超伝導磁石の室温ボア空間に設置する流体系の酸素ガスおよび二酸化炭素ガスの比率を変えつつ、二酸化炭素ガスが通過する速度計測を行う。

### (2) モーゼ効果型凍結磁気分離カラムの開発

あらかじめ常磁性物質含有層 (反固体～液状) を形成させた構造をもつカラム (inlet と outlet をもつ円筒) を作成する。勾配磁界を有する冷凍空間に設置し、外部磁界形状によって反磁性物質層と常磁性物質層の境界での二酸化炭素輸送を制御する。カラム内部に導かれた二酸化炭素含有気体が、カラム内部の反磁性層にて磁気力を受けるように作成する。

### (3) 0.1 T ～ 1 T 程度の磁束密度の磁石を用いた、局所高勾配磁界空間での二酸化炭素の輸送

0.1 T ～ 1 T 程度の永久磁石および電磁石を用いた条件において、同様の調査を進める。

### (4) 二酸化炭素の小型冷凍磁気分離プレートの検討

液体窒素を用いた伝熱冷却によりマイナス  $80^\circ\text{C}$  以下に冷やした回収プレートに二酸化炭素ガスを接触させ、二酸化炭素の挙動を観察する。冷却されたプレート上に分布する勾配磁界下では、二酸化炭素ガス流の周囲の常磁性酸素の働きにより磁界中心方向へ二酸化炭素のドリフトが生じることが予想される。この原理を積極的に利用して、回収プレートの真ん中に存在する穴を通して二酸化炭素を粉末状態で磁気濃縮・回収するガス流体回路の作成を検討する。なお、ガス流の磁界中観測・可視化には、磁界中で実体観察可能な CCD カメラシステムを使用する。

### (5) 超伝導磁石および永久磁石と組み合わせた凍結磁気分離カラム内での二酸化炭素輸送特性の評価

製作した凍結磁気分離カラムを用いた実地想定実験を進める。磁気分離カラムの outlet 部での二酸化炭素濃度を分光手法により評価する。

## 3. 研究成果

### (1) 超伝導磁石の高勾配磁界空間での二酸化炭素の輸送特性の調査

超伝導磁石の 5 ～ 10 テスラ (T) 級の強磁界空間における二酸化炭素の輸送特性を解明するため、実験系の構築と磁界形状に依存した二酸化炭素の流れのモード解析を進めた。円筒状の磁界空間内における二酸化炭素流の観測のため、CCD カメラを組み合わせた二酸化炭素フロー・セルの作成を行った。

また、液体中における二酸化炭素の輸送速度に対する勾配磁気力効果を解析するため、液体クロマトグラフィー的な流体フローを送液ポンプで制御しつつ、分光測定システムと二酸化炭素指示薬 (BTB 溶液) により、磁界空間から送出される液体中の二酸化炭素濃度計測を実現した (図 1)。図 2 は、BTB 水溶液の光波長  $600\text{nm}\sim 620\text{nm}$  での透過光を時系列計測することで水中の二酸化炭素濃度が評価可能であることを示す。図 2 (a) は二酸化炭素濃度に依存した透過光強度スペクトルの変化とその時系列変化を示す。

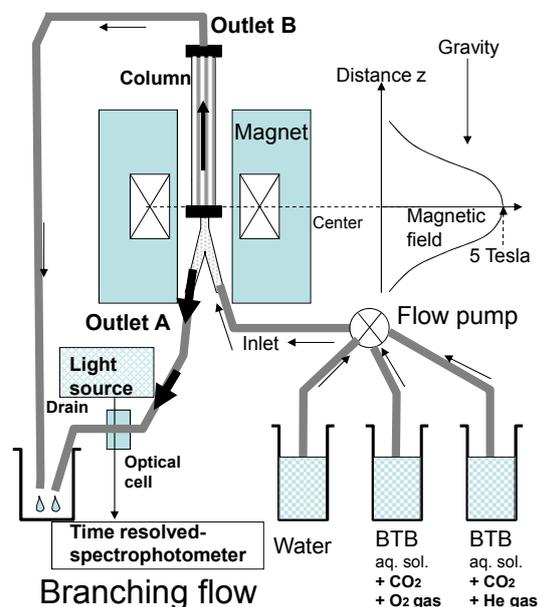


図 1 超伝導磁石 (5 T) の磁場空間を通過する水溶液フロー系における二酸化炭素輸送計測システム

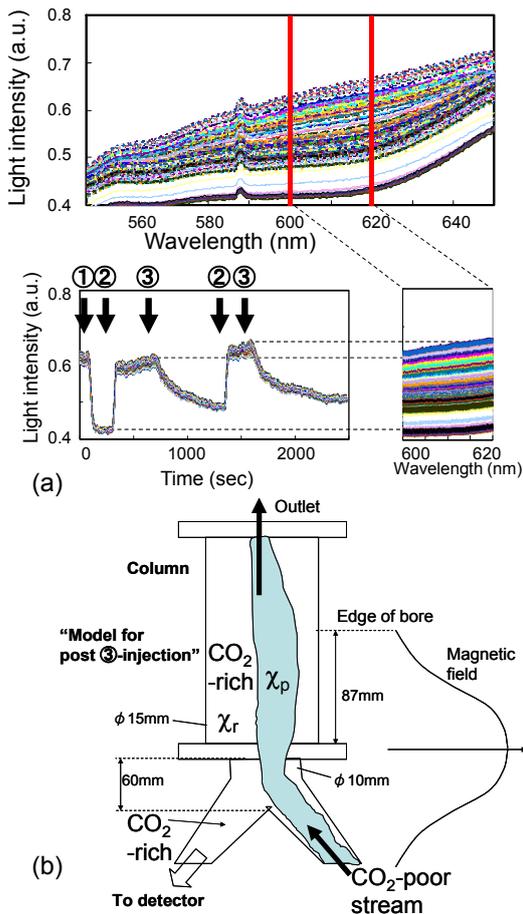


図2 二酸化炭素濃度計測指示薬 (BTB) による二酸化炭素輸送計測システムの詳細。二酸化炭素濃度の上昇は透過光の増加に対応する。

図2(b)のメカニズム・モデル図に示すように、勾配磁界中に設置したクロマトカラムの inlet の部分に分岐パスを取り付けることで、流入した水溶液中の  $\text{CO}_2$  濃度の比較的高い領域がカラム内に滞在する期間が長くなり、反磁性磁気力が高くなったタイミングで inlet 側の分岐パスから  $\text{CO}_2$  濃度の比較的高い領域が流出する、という仮説を設定した。

二酸化炭素ガス溶解水溶液に対し、さらに酸素ガスあるいは He ガスを導入し、5T 磁石の勾配磁界を通過する水流と勾配磁界中心から分岐する水流の2出力における二酸化炭素濃度変化を比較した。He ガス導入は磁界と無関係に二酸化炭素ガスの水中輸送速度を増加させた (図3)。一方、酸素ガス導入を行った場合、勾配磁界印加によって勾配磁界中心から分岐水流への二酸化炭素ガス濃度増加が起こった (図4)。この研究成果を *Journal of Applied Physics* 誌(2012年3月)に論文公表した。

なお、超伝導磁石の勾配磁界をスルーで流れが通過した際の、二酸化炭素の輸送速度に

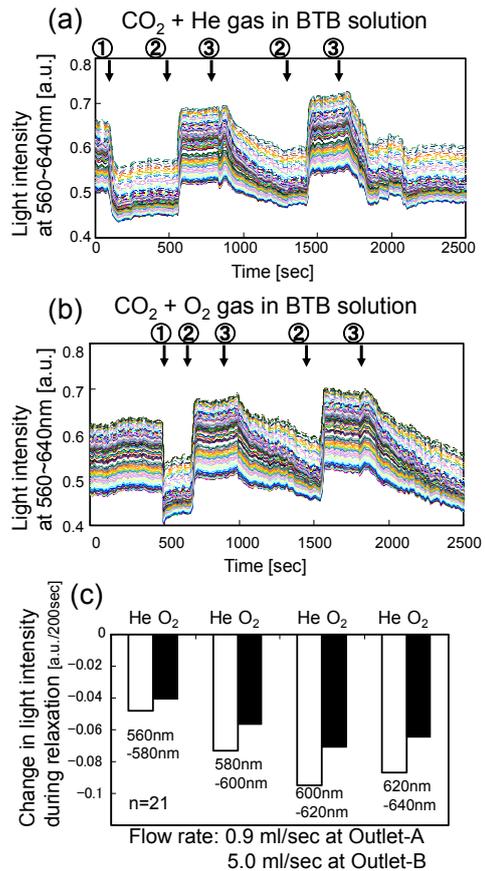


図3 勾配磁界中での溶存ガス分子の滞在時間の比較。(a),(b)はそれぞれ  $\text{CO}_2$  ガスに He または  $\text{O}_2$  ガスを加えた水を図1の流体系に流した場合の透過光の時系列変化を示す。(c)は4つの波長域の透過光の変化率を He ガス添加と  $\text{O}_2$  ガス添加で比較したグラフ。

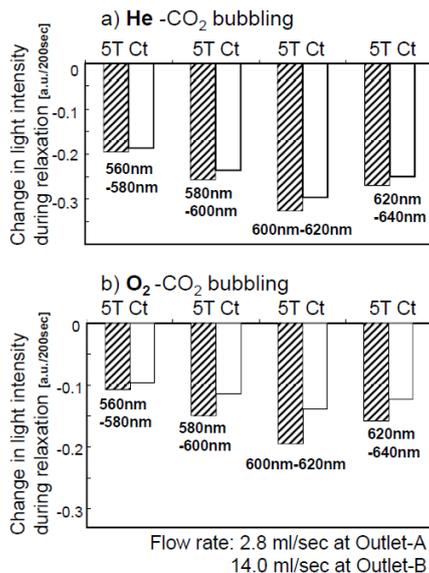


図4 透過光変化率 ( $\text{CO}_2$  ガスを分岐ルートへ輸送する速度に対応) の 5 T 磁場印加群と対照群とでの比較。

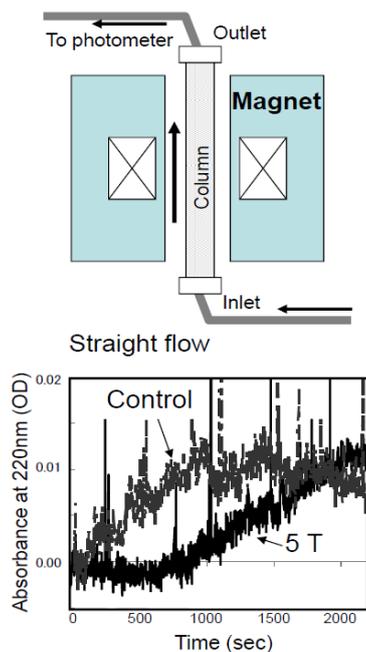


図5 勾配磁界貫通型フローにおけるCO<sub>2</sub>溶存水の輸送速度の磁場(5T)有無比較。

ついて追加検討を行った。この場合、CO<sub>2</sub>をバブリングした水をクロマトカラムに流し込み、磁界を通過した水を分光フローセルに導き、光波長220nmでの吸光度の時系列データを得た(図5)。5T磁場印加はCO<sub>2</sub>ガスの輸送速度を約20分遅らせる効果を与えた。前述の分岐フローの結果と照らし合わせて考察することで、円筒ボア型の超伝導磁場空間に二分岐(inlet迂回および通過ルート)を有する)フローを設けた場合、inlet迂回ルートから二酸化炭素 rich な水を取り出すことが可能であると結論した。

#### (2) モーゼ効果型凍結磁気分離カラムの開発

1%アガロース水溶液に硫酸銅イオンを混入させ、酸素ガスと共に常磁性イオンを含むゲル層をクロマトカラム内に形成させた。ゲル化の過程でカラム中心部に勾配磁界を与えることで、モーゼ効果(勾配磁気力)によってゲル界面曲率を変化させた。この常磁性物質含有ゲルをカラムごと低温状態に置くことで、二酸化炭素ガスを凍結分離させるための凍結磁気分離カラムのプロトタイプを作成した。

#### (3) 0.1T~1T程度の磁束密度の磁石を用いた、局所高勾配磁界空間での二酸化炭素の輸送

永久磁石の局所勾配磁界空間による酸素ガスの分布制御を利用し、二酸化炭素発生源から排出される二酸化炭素ガスの濃縮について検討を行った。ネオジム永久磁石を組み

合わせた磁石ユニットによって、排出口の近傍における常磁性酸素ガスの濃度を高めることで、反磁性磁化率を有する二酸化炭素ガスを容器内に留まらせることを検討した。容器から濃度計へと排出される二酸化炭素ガスの過渡過程において、永久磁石による勾配磁界下で酸素濃度を高めた条件では容器からの二酸化炭素ガスの排出が抑制された。また、二酸化炭素の容器への供給を停止させた後の経過では濃度低下がみられた。この結果は、永久磁石付近にて容器内の酸素ガス挙動が変化したことにより、排出口から外部への二酸化炭素ガス移動を阻害する効果が生じたことに加えて、反磁性磁化率を持つ二酸化炭素ガスが排出口に近づきにくくする効果が補助的に働いていたと考えられた。さらに酸素ガスの供給を増加させた場合、容器から排出される二酸化炭素ガス流量は平衡状態に早く到達した。すなわち、勾配磁界下で酸素と二酸化炭素濃度を調整することで二酸化炭素輸送速度が制御可能であった。この研究成果を電気学会論文誌A(2013年)に論文公表する予定となった(2013年3月受理)。

#### (4) 二酸化炭素の小型冷凍磁気分離プレートの検討

二酸化炭素の小型冷凍磁気分離プレートの開発のため、磁界中心に二酸化炭素の通過するパスを常磁性物質層で形成させ、低磁界側に二酸化炭素の集積部位をつくる条件を実験的に解析した。液体窒素によりマイナス60℃以下に冷やした金属プレートに接触した二酸化炭素ガスの分布に及ぼす勾配磁界効果を観測した。5T超伝導磁石、小型永久磁石をそれぞれ分離カラムと組み合わせ、勾配磁界中の磁気分離プレート近傍にて二酸化炭素を分流するプロセスの開発に取り組んだ。二酸化炭素を含んだエアロゾル(線香煙)の通過速度の計測を行った。冷却に用いた液体窒素の還流ホースと大気雰囲気との温度勾配による対流が生じたため、二酸化炭素濃度の計測値において誤差が支配的であった。

#### (5) 超伝導磁石および永久磁石に設置された凍結磁気分離カラム内での二酸化炭素輸送特性の評価

気相での冷却二酸化炭素含有ガス(エアロゾル)が勾配磁界を通過する際のガス流の観測を行った。磁界中で実体観察可能なCCDカメラシステムの構築を行い、勾配磁界中での二酸化炭素と酸素ガス混層流での二酸化炭素の流れの可視化を行った。超伝導磁石内部(1T~5T)および500mT永久磁石の勾配磁界空間における二酸化炭素含有ガス(エアロゾル)の白煙ストリーム速度は、常磁性気体(酸素ガス)濃度に依存して変化した。すなわち、二酸化炭素発生源に勾配磁界を設置

した際、常磁性ガスを二酸化炭素ガスキャリアとして有効利用できることが明らかとなった。

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計2件)

①宮下惟人, 岩坂正和,  
細胞培養系および環境中における二酸化炭素濃度制御のための磁気力応用に関する基礎的研究  
電気学会論文誌A, 133巻6号A分冊  
査読有, 2013 (印刷中)

②M. Iwasaka, S. Kurita, and N. Owada,  
Properties of bubbled gases transportation in a bromothymol blue aqueous solution under gradient magnetic fields  
Journal of Applied Physics, 査読有,  
Vol.111, 2012, 07B326 (1-3)

[学会発表] (計2件)

①宮下惟人, 岩坂正和,  
二酸化炭素ガス輸送過程における勾配磁気力制御の利点と問題点  
電気学会マグネティックス研究会  
MAG-12-119  
発表年月日 2012年11月16日  
福岡県福岡市

②M. Iwasaka, S. Kurita, and N. Owada  
Gradient magnetic-field-flow fractionation of dissolved oxygen and carbon dioxide gasses  
56th Conference on Magnetism and Magnetic Materials  
発表年月日 2011年11月2日  
Scottsdale, Arizona, USA

[その他]

ホームページ等

<http://www.tms.chiba-u.jp/~iwasaka/CO2.html>

#### 6. 研究組織

##### (1) 研究代表者

岩坂 正和 (IWASAKA MASAKAZU)  
千葉大学・大学院工学研究科・准教授  
研究者番号：90243922

##### (2) 研究協力者

宮下 惟人 (MIYASHITA YUITO)  
千葉大学・大学院工学研究科・大学院生