

科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 6 日現在

機関番号：14401

研究種目：若手研究(B)

研究期間：2012～2013

課題番号：24760232

研究課題名(和文) パーフルオロカーボンを用いた新奇磁気アルキメデス法の開発

研究課題名(英文) Development of the new magneto-Archimedes separation method using perfluorocarbon

研究代表者

三島 史人(MISHIMA, FUMIHITO)

大阪大学・工学(系)研究科(研究院)・助教

研究者番号：80558263

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 3,300,000円、(間接経費) 990,000円

研究成果の概要(和文)：本研究において、反磁性を示す医用有価物の磁気分離装置の設計を検討した。従来の磁気アルキメデス分離法は媒質として、塩化マンガン等の遷移金属のハロゲン化合物の水溶液を用いるため、装置の腐食や後工程で分離物質に付着した遷移金属塩を除去する必要がある。そこで残存物質が残らない溶存酸素パーフルオロカーボンを作業媒体を用いることを検討した。分離に必要なとされる磁気力は計算から見積り、圧力と印加磁場を制御し、模擬試料としたプラスチックや水溶性物質の分離は成功した。実験結果より、溶存酸素パーフルオロカーボンを用いた分離法は選択的な分離に有効な方法であることが示された。

研究成果の概要(英文)：In this research, I have tried to design a magnetic separator for medical valuable substance which shows diamagnetism. A magneto Archimedes separation is effective in those substances. However, the medium used for separation is a paramagnetic liquid in which the manganese chloride and the rare earth nitrate were dissolved, and there are such problems as the metal salt adhesion to the substance and the equipment. The oxygenated perfluorocarbon under pressure was used as the medium. Under atmospheric pressure, a metallic compound does not remain on the surface of the separation substance and equipment. The separation of a plastic and water-soluble substances used as imitation sample succeeded. The magnetic force and the pressure needed for the separation were estimated from calculations and the separation experiments. The result shows that the magneto Archimedes separator with oxygenated perfluorocarbon is promising method for selective separation.

研究分野：磁気分離、磁気力制御

科研費の分科・細目：電気電子工学、電力工学・電力変換・電気機器

キーワード：磁気分離 磁気力制御 反磁性 常磁性 磁気アルキメデス 溶存酸素 超電導磁石

1. 研究開始当初の背景

分離対象物質が反磁性を示す場合には、一般的には従来の磁気分離法では分離が不可能とされている。目的とする反磁性物質に対して強磁性粒子を選択的に化学的に付着させて磁気分離を行うことは可能であるが、後工程で、その強磁性粒子をはずす後工程が必要であり、廃棄目的で分離する以外には適さない手法である。

世に存在する物質の多くは反磁性を示し、その反磁性物質を分離・回収することは資源循環の上で重要である。さらに化学的処理なしに、物理的外力として磁気力を用いて分離することは環境負荷の低減やエネルギー問題に対しての一つの答えであると考えられる。磁気力により、常磁性を示す溶液中で、反磁性物質を浮上させる分離法に磁気アルキメデス分離法がある。本分離プロセスは作業媒体の磁気牽引を主とする分離方法である。従来の磁気アルキメデス分離法では、塩化マンガン等遷移金属のハロゲン化合物を水に溶解させて調製した常磁性液体を作業媒体として用いる。作業媒体中のハロゲンイオンは、金属材料表面の不動態皮膜を破壊して腐食を引き起こす原因となる。よって後工程では分離物質に付着した遷移金属塩の除去操作や、廃棄物の削減という意味で使用済溶媒からの遷移金属ハロゲン化合物の回収及びリサイクルプロセスが必要である。

本研究手法では、作業媒体となる液体として、パーフルオロカーボンを用いる。パーフルオロカーボンに酸素(常磁性)を加圧溶解させて、溶存酸素量(磁化率)を制御した常磁性作業媒体として用いる。反応性も低いため、上記のような腐食性などの問題を解決できる手法といえる。パーフルオロカーボンは液体呼吸媒体としての医療応用の実績もあり水に対し酸素溶解度は20倍である。分離物質や分離装置に化学的に負荷を与えず分離することは、ステンレス等装置の材質の腐食を防ぐという意味、さらには分離対象物質として食品や医薬品等を扱う場合はその安全性を担保すると云う意味においても重要と考えた。

2. 研究の目的

本研究では、反磁性物質が懸濁する常磁性を示す作業媒体(液体)に磁気力を作用させ、液体の見かけの比重を制御することで、反磁性物質を浮上もしくは沈降させて磁気アルキメデス分離をする。作業媒体の磁化率は、酸素を加圧溶解させたパーフルオロカーボン(液体)を用い、酸素圧力によって制御する。作業媒体の磁化率と分離対象物の磁化率、密度、磁場発生源が持つ磁場分布による磁場強度および磁場勾配から、計算により分離に可能な磁気力を見積り、分離条件を検討する。最終的には作業媒体中に懸濁する数種類の反磁性物質の混合物を、磁気アルキメデス力によって、種類別に効率良く分離することを

目的とした。

3. 研究の方法

本研究では、分離対象物や作業媒体が反磁性や常磁性の性質(磁化率の絶対値にしてSI単位系で 10^{-6} から 10^{-4} 程度)を示し、それらの物質に磁場を印加し、磁気力を作用させる必要があり、磁場発生源として超電導磁石を採用した。磁気力制御するために必要な磁気力を計算し、その磁気力条件下での分離実験を行うことで、その計算条件の妥当性を示した。さらに今後の実用化に向けた分離システムの設計指針を得ることを目指した。

(1) 磁気力計算

作業媒体の磁化率

本研究における磁気アルキメデス分離には、酸素が溶存したパーフルオロカーボンを用いている。作業媒体として、酸素圧力と作業媒体の磁化率との関係を検討する必要があり、文献調査と、塩化マンガン水溶液(測定により既知)を調製した作業媒体との比較をした。パーフルオロカーボン(パーフルオロヘキサン)の密度: $1.69 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、体積磁化率: $-3.26 \times 10^{-6} [-]$ を使用した。そして、溶存酸素パーフルオロカーボンの合成磁化率については酸素溶解度はヘンリー則に従うとして計算した。その磁化率と圧力の関係を図1に示す。

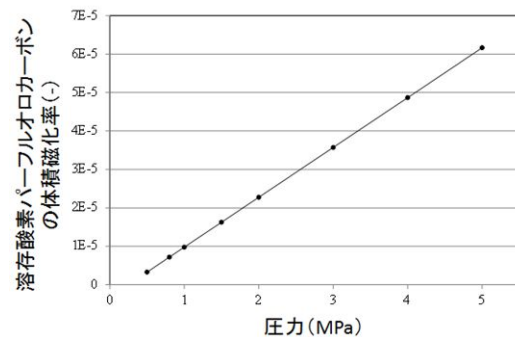


図1 溶存酸素パーフルオロカーボンの合成磁化率

磁気力計算

本研究では、分離対象物に作用させる磁気力を見積もるため、磁場発生源の磁場分布(磁束密度と磁場勾配)を解析(有限解析ソフト ANSYS を使用)と実測により求めて、上記の作業媒体の磁化率を計算に適用し、分離に必要な磁気力を求めた。

(2) 磁気アルキメデス分離実験

磁気アルキメデス分離法として、鉛直方向への分離と鉛直と水平方向を組み合わせた分離を行った。磁場発生源として、鉛直方向への分離については超電導ソレノイド磁石、水平方向については高温超電導バルク磁石を使用した。それぞれの磁場発生源を用いて(1)の計算から見積もった磁気力制御によ

って分離実験を行った。作業媒体が封入された压力容器内に分離対象物を投入し、酸素圧力を調整することで、作業媒体の磁化率を制御した後に、压力容器（分離容器）に磁場を印可し、その時の分離対象物の挙動（分離状況）を確認した。

磁場を一定にしたまま、酸素圧力を調整する条件で分離する方法により、酸素圧力による分離状態（分離制御）が可能であることを確認した。同様に、酸素圧力を一定にしたまま印可する磁場を制御することで、分離制御が可能であることも確認した。

4. 研究成果

(1) 酸素圧力制御による分離制御および、一定圧力下での磁場制御による分離制御

分離装置の写真を図2に示す。磁場発生源として超電導型ソレノイド磁石（ボア直径100mm、長さ460mm、最大磁束密度10T、）を用いた。分離容器のパーフルオロカーボンの液面が磁場積240 T²/m（ボア中心印可磁場最大8Tから下方100mmの位置）となる位置に設置した。内容積96mlの耐圧ガラス容器（内径27mm、高さ175mm）にパーフルオロカーボン50mLとナイロン6樹脂（PA6）密度 $1.14 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、磁化率 -8.19×10^{-6} 、ポリエチレンテレフタレート樹脂（PET）密度 $1.38 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、磁化率 -8.67×10^{-6} 、および塩化ビニル樹脂（PVC）密度 $1.43 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ 、磁化率 -10.3×10^{-6} をそれぞれ1g同時に投入した。加圧前には3種類の樹脂は媒質より軽いため、液面に浮いていた。室温下で0.5MPaから2.0MPaまで圧力を変化させた。磁場印加条件は8Tとし、パーフルオロカーボン内の溶存酸素濃度を変化させ、媒質の磁化率を制御した。

加圧条件と沈降に必要な磁場積を求めた計算結果を図3に示す。

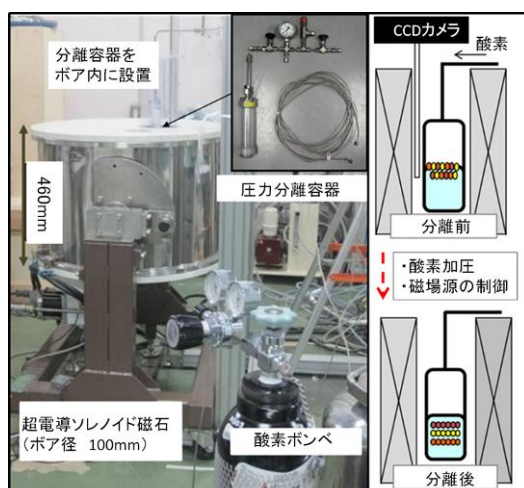


図2 パーフルオロカーボンを用いた磁気アルキメデス分離装置

結果として0.5MPaの圧力下では、PVCが沈降し、0.8MPaの圧力下ではPVCとPETが沈降した。1.5MPaではPA6も含めすべての

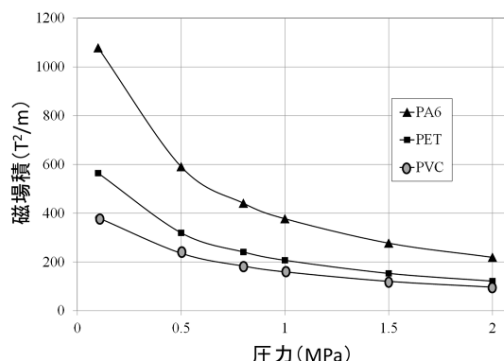


図3 プラスチックの分離に必要な磁場積



図4 プラスチックの分離写真

樹脂が沈降した。2.0 Mpa 条件下では沈降深さは PVC、PET、PA6 の順になった。実験中のボア内の様子は CCD カメラにて撮影し、分離状態について観察した結果を図4に示す。

圧力制御（作業媒体の磁化率制御）により、樹脂の選択的な分離が可能であることが示された。ただし、浮遊位置に変位を形成できたが、ソレノイド磁石の内部であるため、分離した状態で取り出すことが困難であった。

(2) 水溶性分離対象物質の磁気アルキメデス分離実験

上記の実験方法で、パーフルオロカーボンを作業媒体に用いることで、水溶性の物質の分離が可能であることを示した。その分離対象物として NaCl（体積磁化率 -1.40×10^{-5} 、密度 $2.16 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ ）と KCl（体積磁化率 -1.25×10^{-5} 、密度 $1.988 \times 10^3 \text{ kg/m}^3$ ）の粉を用い、0.5MPa、240T²/mの条件で KCl が分離可能であることが計算を基に実験により示された。NaCl は同じ磁場条件で1.2MPaの加圧が必要であった。その分離に必要な加圧条件と必要磁場積の関係の計算結果を図5に示す。

(3) 効率の良い分離方法（水平方向磁場の利用）

これまでの検討により、磁場分布や作業媒体の磁化率を制御して、ある分離対象物を選択的に浮遊させ、磁気力により浮遊したもの（沈降したもの）のみを分離可能であることが示された。しかしながら、磁化率や密度の近い物質は浮遊する高さに差が少なく、その差を利用して効率的に分離することは困難であると考えられる。

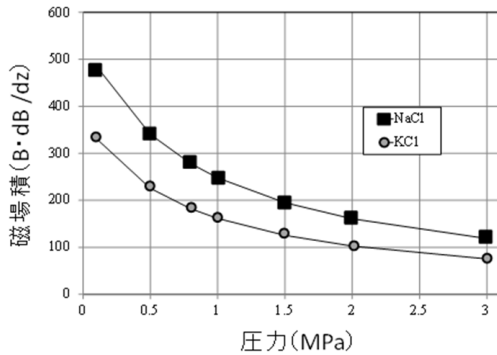


図5 水溶性物質の分離に必要な磁場積

そこで、鉛直方向の磁気力と水平方向の磁気力を利用し、分離領域を拡大することを考えた。

本検討においては、磁場発生源には高温超電導バルク磁石 (HTS バルク磁石) 直径 60 mm、高さ 20 mm、クライオスタット表面での最大磁束密度 3.1 T、磁場勾配 250 T/m) を使用した。HTS バルク磁石の鉛直上面 10 mm (2.0 T、120 T/m、磁場積 240 T²/m) の領域に溶存酸素を含む分離容器を設置し、圧力を変化させ粒子の分離状態について確認した。その実験の様子を図 6 に示す。



図6 水平方向磁場を利用した磁気アルキメデス分離

加圧前には 2 種類の粒子は沈んでいた。1.2MPa の条件下において KCl と NaCl の両者は浮遊したが、浮遊の高さは目視では変わらず、1 mm であった。HTS バルク磁石を用いた場合も浮遊した高低差を利用して分離を行うことが困難であることが分かった。

HTS バルク磁石の磁場はソレノイド磁石の磁場分布とは異なり、径方向にも高磁場勾配磁場を形成している。媒質および粒子には水平方向への磁気力も働いたため、さらに水平方向への分離が可能である。

HTS バルク磁石では分離領域で最大 95 T²/m の磁場積があり、一度浮遊すれば水平方向に粒子は移動可能となる。水平方向に粒子が移動できるように分離領域を配置し、それぞれの粒子が浮上した圧力値の間となる 0.8 MPa (KCl のみが浮遊可能) にて分離実験を行った。その結果 HTS バルク磁場の中心から水平方向に KCl 粒子は最大で 40 mm 移動した。その実験の結果を図 7 に示す。水平方向の分離方法を利用することで、鉛直方向での得られる浮揚位置の変位 (1 mm) に対し大幅な改善

が見られ、分離方法の指針を見出した。

(4) まとめ

本研究ではパーフルオロカーボンに酸素を溶存させた媒質を用い、圧力制御によって磁気アルキメデス分離を行う方法を提案した。本分離手法によってプラスチックの分離や水溶性の物質を選択的に分離することも可能であることが示された。また、その分離手法として、従来行われている鉛直方向の磁気アルキメデス分離だけでなく、水平方向の磁気アルキメデス分離も検証され、分離対象物質の適用範囲の拡大が期待できることが示された。ただし、分離対象物は浮遊しない場合にも水平方向の磁気力を受けており、分離容器壁面との摩擦によって、水平方向への移動ができないと考える。容器の摩擦や粒子形状によっても、結果が変化してくることも予想され今後の課題と考える。さらに、今後はこれらのデータを基に医用系有価物の分離を検討予定である。

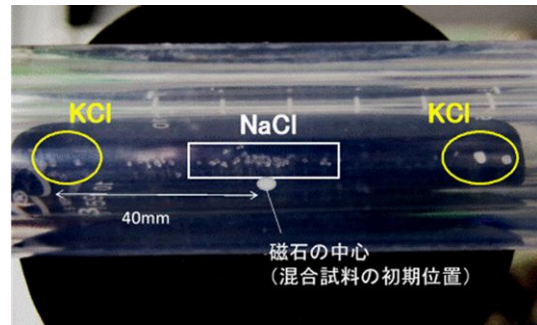


図7 水平方向磁場を利用した磁気アルキメデス分離の結果の写真

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 1 件)

Fumihito Mishima, Yoko Akiyama, Shigehiro Nishijima, "Fundamental Study on Magnetic Separator Using Oxygen Dissolved Perfluorocarbon", IEEE Trans. Appl. Supercond. page(s): 3700705 Vol. 24, (3) 2014, DOI 10.1109/TASC.2013.2292311, (査読有り)

〔学会発表〕(計 5 件)

Fumihito Mishima, Yoko Akiyama, Shigehiro Nishijima, Fundamental study on magnetic separator using the oxygen dissolved in the perfluorocarbon, 23rd Magnet Technology Conference, 2PoCH-10 (July 16th2013, The West in Copley place Boston, Massachusetts)

三島 史人, 秋山 庸子, 西嶋 茂宏, 溶存酸素を用いた磁気アルキメデス分離装置の検討, 第 86 回 2012 年度秋季低温

工学・超電動学会、(2012年11月9日、
いわて県民情報交流センター(アイーナ)、
3A-a02

三島 史人, 秋山 庸子, 西嶋 茂宏,
溶存酸素パーフルオロカーボンを用いた
磁気分離装置の検討, 第 87 回 2013 年度
春季低温工学・超電動学会,(2013年5
月15日, タワーホール船堀), 3D-a02

三島 史人, 秋山 庸子, 西嶋 茂宏,
溶存酸素パーフルオロカーボンを利用し
た磁気分離アルキメデス分離法に関する
研究, 第 88 回 2013 年度秋季低温工学・
超電動学会,(2013年12月5日, ウィン
クあいち) 2B-a02

三島 史人, 秋山 庸子, 西嶋 茂宏, A
Study on magnetic separator using
oxygenated perfluorocarbon, 第 12 回
2013 年度 磁気力制御・磁場応用夏の学
校(2013年9月7日, 神戸 しあわせの
村) P-8

6. 研究組織

(1) 研究代表者

三島 史人 (MISHIMA FUMIHITO)
大阪大学大学院工学研究科・助教
研究者番号: 80558263