

常磁性体の磁気分離に関する流体制御を用いた高度化

三島 史人^{*1}, 中岡 俊一^{*1}, 野村 直希^{*1}

Advanced magnetic separation of paramagnetic materials using fluid control

Fumihito MISHIMA, Syunichi NAKAOKA, Naoki NOMURA

^{*1} Department of Applied Nuclear Technology

The volume of contaminated soil induced by the Fukushima accident can be reduced using selection tube with high efficiency. We focused on the target substance in the soil having paramagnetism. We proposed the novel separation method, which is applying a magnetic field to selection tube, aiming for more precise and easier separation than High Gradient Magnetic Separation (HGMS). We showed the effectiveness of Open Gradient Magnetic Separation (OGMS) under the selection tube with using colored glass imitated target substance. The experimental results were found to shows good agreements with the calculated results.

Key Words : Selection tube, paramagnetism, Open Gradient Magnetic Separation (OGMS), High Gradient Magnet Separation (HGMS)

1. 緒 言

水や土壌の環境浄化や有価物回収などに乾式・湿式条件下で、磁気分離法は利用されている。現在開発されている常磁性物質の磁気分離法においては、7T 程の超電導磁石の強力な磁場と高勾配磁場を併用することが必要とされている。しかし、分離対象物となる常磁性物質は高勾配磁場形成用の強磁性細線表面に吸着されるため処理量が少なく、微量な有価物資源の回収などへの適用にとどまっている¹⁾⁵⁾。本研究で実施した磁気分離法は、2T 程の開放勾配磁場 (OGMS : Open gradient magnetic separation) と上昇流の流体制御を併用することで、常磁性物質の磁気分離を可能としている。具体的には淘汰管を用い、分離対象物に作用する重力とドラッグ力のつり合いを利用し、停留 (浮遊) 状態にある常磁性物質に磁気力が作用するような新たな概念を磁気分離法に導入した。従来の超電導高勾配磁気分離法と比べ、適用する磁場が比較的低磁場のため、磁石の室温空間の拡大が可能である。このため回収領域も広く設定でき、常磁性物質の高速大量処理も可能である。そこで本研究では淘汰管を用い、分離対象粒子を開放勾配磁場により磁気分離が可能であることを示すとともに、良好な分離結果を得たので報告する。

2. 淘汰管による流体制御を用いた磁気分離法

従来の常磁性物質の磁気分離には、超電導磁石に強磁性細線 (ステンレス 430 製, 線径 0.1 mm など) の磁気フィルターを用いた超電導高勾配磁気分離法 (Superconducting High Gradient Magnetic Separation) が適用されている。常磁性体を高勾配磁気分離するための外部印加磁場として、およそ 7T 以上では分離効果は大きいと小規模の実験から確認されているが、実用的には適用磁場は経済的理由から 4T 程度が限界であり、強磁場を使用せず分離効率を上げることが求められている。更には逆洗が不要な OGMS の適用が望まれている。

* 原稿受付 2020 年 5 月 29 日

^{*1} 原子力技術応用工学科
E-mail: f-mishim@fukui-ut.ac.jp

そこで本論文では、淘汰管を用いた流量制御下にある粒子に磁気分離法を適用することを試みた。鉛直上向きの流れ条件下で分離対象物の重力とドラッグ力のつり合いを利用し、ドラッグ力の影響を抑え、直接的に磁気力が分離対象物に作用する磁気分離法である。

3. 淘汰管の原理

ここでは淘汰管を用いた分離技術の原理について示す。淘汰管とは、Fig. 1 に示すように、液中に懸濁した粒子が沈降する速度と装置下部から送液した作業媒体の上昇速度との関係により、粒子に作用する合力を利用して、微粒子を粒径によって選別する装置である。淘汰管内の粒子には、流体によるドラッグ力 F_D 、浮力と重力が働く。この粒子に作用する合力を式 (1) に示す。また、この式から流体（作業媒体）の速度 v_f を 0 としたときに導かれる粒子の沈降終端速度 v_s を式 (2) に示す。

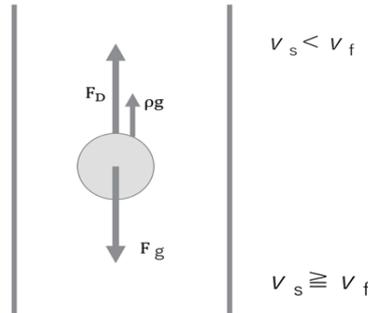


Fig. 1 Force acting on the particles in the selection tube.

$$F_D = \frac{4}{3}\pi r^3(\rho_p - \rho_f)g - 6\pi\eta r(v_f - v_p) \quad (1)$$

$$v_s = \frac{2r^2(\rho_p - \rho_f)g}{9\eta} \quad (2)$$

ここで、 r は粒子半径 [m]、 ρ_p は粒子の密度 [kg/m^3]、 ρ_f は流体の密度 [kg/m^3]、 η は流体の粘度 [$\text{Pa} \cdot \text{s}$]、 v_f は流体の速度 [m/s]、 v_p は粒子の速度 [m/s] である。

粒子の沈降終端速度 v_s が、流体の上昇速度 v_f よりも大きいまたは一致する場合、粒子は流体の流れに逆らって、淘汰管で停留（浮遊）または沈降して、装置内に残留する。一方、 v_s が v_f よりも小さい場合、粒子は流体の流れに乗り淘汰管装置の系外に排出されることになる。

4. 淘汰管を用いたガラス粒子の分級試験

分離対象粒子として、ふるい振とう機 (Retsch AS200 basic) により平均粒子径 $180\mu\text{m}$ の色ガラス（比重 3.1）を選別した。色ガラスには、常磁性を示す黒色ガラス粒子、反磁性を示す黄色ガラス粒子を用いた。磁気天秤 (Sherwood Scientific 社製、MSB-AUTO) を用いて測定した体積磁化率はそれぞれ、 $+3.17 \times 10^{-4}$ と -9.27×10^{-6} であった。

4.1 ゼータ電位測定

淘汰管において、粒子の凝集状態が重要になるため、ガラス粒子 (SiO_2) のゼータ電位測定を行った。その結果を Fig.2 に示す。結果が示すように、黒色ガラスも黄色ガラスも、典型的な SiO_2 のゼータ電位特性と一致していた。中性域において負電荷を持っており、ここでは分散状態となるため、作業媒体は pH6.5 付近の蒸留水を用いることにした。

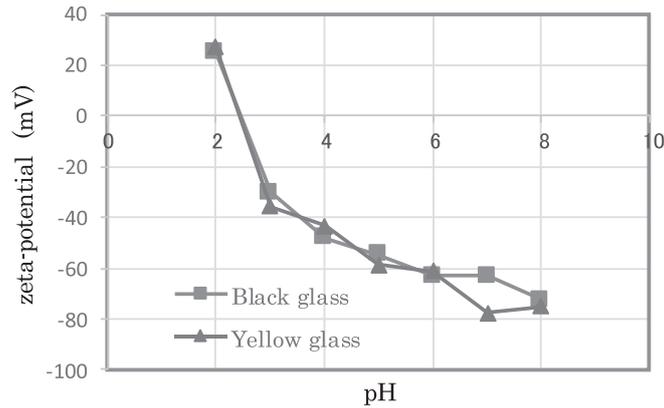


Fig. 2 Relationship between zeta potential of the glass samples and pH.

4.2 淘汰管内でのガラス粒子の停滞位置の確認

実験装置として、内径 20 mm、長さ 1m の塩化ビニル製パイプを用いた淘汰管を作製した。装置底部には SUS304（非磁性）の球を整流器として配置した。

作業媒体の流速は、式 (2) に従い計算し、淘汰管内にガラス粒子を停滞させる流体速度として 3.5 cm/s 付近に設定した。また、この実験条件下でのレイノルズ数は 700 程度であり淘汰管内は層流となる。

実験で用いた淘汰管は太さに変化が無い直管であるため、淘汰管内の流速は一定である。このため淘汰管内に粒子を停滞させる位置を一意に決定することはできず、試料投入の方法によって変化する。そこで、平均粒子径 180 μ m の色ガラスを試料とし、淘汰管内での粒子の停滞位置についての観察を行った。

今回の実験方法では、懸濁状態のガラス粒子を装置下部から定量送液ポンプ（EYELA RP-1000）を用いて流入させ淘汰管流入口から 20cm 付近に停滞することを確認した。実験結果から管内に粒子を停滞させることのできる流速についての計算結果の妥当性が示された。

作製した淘汰管に停滞するガラス粒子の位置（図中の破線部）と装置の模式図を Fig.3 に示す。

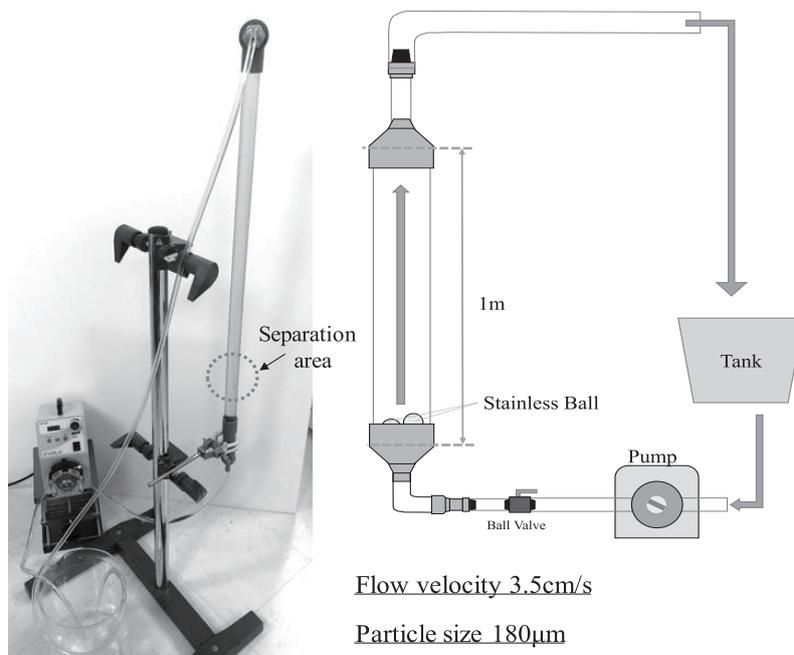


Fig.3 Schematic illustration of experimental setup. The dashed circle in the figure shows the area glass in floating.

5. 淘汰管を利用した色ガラスの磁気分離⁶⁾

本実験では、常磁性を示す黒色ガラス粒子と反磁性を示す黄色ガラス粒子を淘汰管（流体停止時）に投入し、沈降後、淘汰管下部からポンプを用いて流速 3.5 cm/s で送液した。そして、ガラス粒子が浮上し留まる位置（淘汰管の高さ 20cm の位置）の側面に、最大磁束密度 1.5 T の永久磁石回路を配置し、停留する黒色ガラス粒子（常磁性体）のみを水平方向に磁気分離した。

5.1 磁気分離理論

磁気分離とは、物理的外力としての粒子に作用する磁気力の差を利用した分離手法である。分離対象となる粒子に作用する主な力として、磁気力 F_M とドラッグ力（流体抵抗） F_D がある。磁気力とドラッグ力はそれぞれ以下の式 (3) と式 (4) で表される。

$$F_M = V(\mathbf{M} \cdot \nabla) \mathbf{H} \quad (3)$$

$$F_D = 6\pi\eta r_p(v_f - v_p) \quad (4)$$

式 (1) において、 V [m³] は分離対象の体積、 \mathbf{M} [Wb/m²] は粒子の磁化、 \mathbf{H} [A/m] は粒子の位置における磁場強度を表す。また、式 (2) において、 η [Pa · s] は作業媒体の粘性率、 r_p [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 [m/s] を表している。

磁気分離が可能な条件として、単純表記すれば、 $F_M > F_D$ において分離可能となる。式が示すように、ドラッグ力は粒子半径に比例し、磁気力は粒子半径の 3 乗に比例するため、粒子半径は磁気分離において重要なパラメータとなる。粒子が凝集した場合など粒子径が大きくなれば磁気分離は容易になる。逆に粒子径が小さくなれば磁気力の式からも分かるように、磁気分離装置の磁場発生源の磁場 H （以降実験では磁束密度 B を用いている。）やその磁場勾配を大きくする必要がある。今回の実験では淘汰管により鉛直方向（流れ方向）の力はドラッグ力 F_D と重力の差となり小さくなっているため、常磁性体を 1.5T 程の開放勾配磁場で磁気分離が可能になると考えられる。

5.2 淘汰管内における粒子の水平方向の磁気分離の検討

磁場発生源としてハルバツハ永久磁石回路（最大磁束密度 1.5 T）が形成する開放勾配磁場を管壁に設置し、淘汰管内を停留する粒子を淘汰管の中心軸線上にから管壁に到達する所要時間を把握する必要がある。これは連続処理を想定した場合、短時間でけん引できる必要があるからである。実験体系（パイプ内径 20mm）を考慮し、粒子が 10mm を磁気力により移動する時間について検討を行った。粒子径は今後分離対象と考える粘土の粒子径（凝集状態で 75~100 μ m）を想定し、100 μ m とした。この計算はガラス粒子より小さな粒径を想定しており、実験よりけん引しにくい条件である。粒子に作用する磁気力から加速度を求め、粒子の速度およびドラッグ力を計算し、管内同心円状の中心から粒子が磁場発生源に吸着されるまでの時間を計算した。分離対象物は、粒径 100 μ m、密度 3000kg/m³、体積磁化率磁化率 3×10^{-4} として計算した。実験に用いるハルバツハ永久磁石回路の磁場の実測値と計算から求めた磁場勾配の結果を Fig.4 に示す。粒子径 100 μ m の粒子が牽引されるまでに通過する磁場と磁場勾配の値 (Fig.4) を用いて、10mm（管内中心から管壁面まで）の移動に要する時間はおよそ 1.3 秒となり、実験で使用される磁場条件にて水平方向の連続磁気分離が可能であると見積もられた。

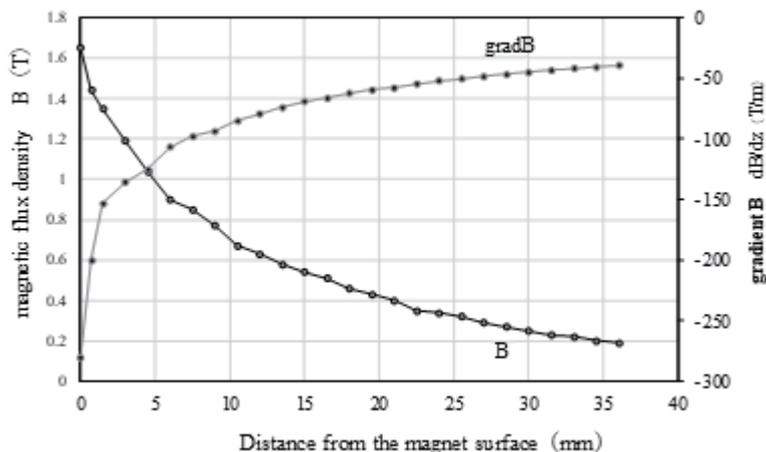


Fig. 4 Diagram of magnetic fields and field gradients of Halbach array magnet.

5.3 淘汰管内における黒色ガラス粒子の水平方向の磁気分離実験

本実験では、常磁性を示す黒色ガラス粒子（体積磁化率はそれぞれ、 $+3.17 \times 10^{-4}$ ）と反磁性を示す黄色ガラス粒子（体積磁化率 -9.27×10^{-6} ）を淘汰管（流体停止時）に投入した。ガラス粒子沈降後、淘汰管下部から定量送液ポンプ（EYELA RP-1000）を用いて流速 3.5 cm/s で送液し、ガラス粒子が浮上し留まる位置（淘汰管の高さ 20cm の位置）の側面に、最大磁束密度 1.5 T の永久磁石回路（淘汰管の内壁面最大磁束密度は 1.3 T である。）を配置し、停留する粒子のうちで黒色のガラス粒子のみの磁気分離を試みた。その実験の様子と磁石回路に捕捉されたガラス粒子の写真を Fig.5 に示す。その結果、黒色ガラスのみを磁気力で捕捉できることが明らかになった。

淘汰管を用いると黒色ガラス粒子は磁気分離可能であったが、同じ磁場条件にて、水平方向の流路（同流速）での磁気分離を試みたが、黒色ガラス粒子は磁気分離されることはなかった。この結果から、淘汰管の特性を生かした磁気分離法は常磁性粒子の磁気分離に有効であることが確認できた。

停留した黒ガラス粒子を開放勾配磁気分離によって捕捉できることを確認したが、捕捉された黒ガラスは淘汰管の内壁まで達した後、壁面に沿って沈降することが観察された。これは壁面では流速がゼロとなり浮上力がなくなることで理由と考えられる。この現象を利用すれば淘汰管下部より黒ガラスのみを取り出すことが可能と考えられる。

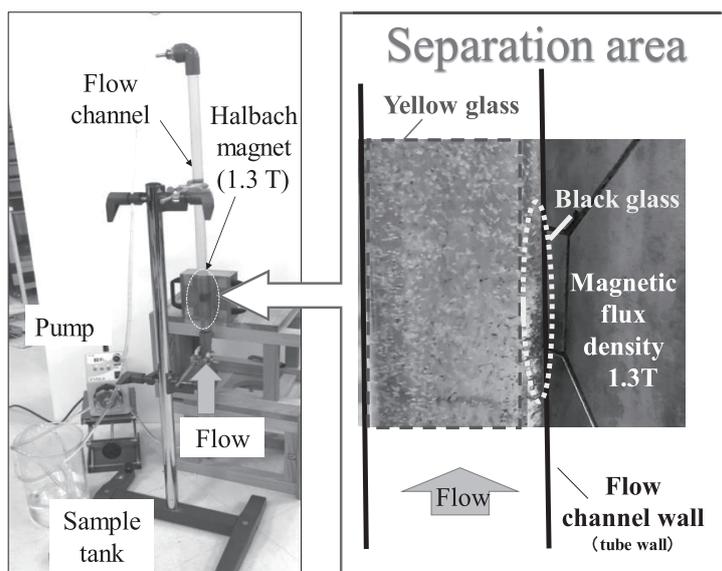


Fig.5 Photographs of the separated black glass particles by Halbach array magnet shown in the dashed circle. 1.3 T was applied at the inner surface of the selection tubes).

5.4 磁気分離対象粒子の回収

淘汰管内の水平方向の磁気分離によって分離した黒ガラス粒子の回収方法として、(5.3)での黒ガラスが壁面近くで順次沈降していく結果を利用し、管を二重構造(内管の内径 13 mm, 外管内径 20 mm, パイプ間には 2mm の空間ができるよう配置)とする方法を採用した。Fig.6 (a)に示すように、停留している黒ガラス粒子は内管と外管をつなぐ貫通穴に向かって水平方向に磁気力によって吸引され、最終的に直径 3 mm の貫通穴から外管に移行し、順次沈降していく様子が確認できた。実験後、それぞれのガラス粒子を回収し、吸引ろ過装置(ULVAC MDA-006)を用いて脱水乾燥させ重量測定し、磁気分離後の黒ガラスの分離率を求め最大 88% の分離率が確認された。分離したガラス粒子の写真を Fig.6 (b) に示す。図中左は内管側の回収粒子で、ほぼ黄色ガラス粒子のみが回収された。右の外管側は黒色ガラスと少量の黄色ガラスを含む結果となっており、実験試料中の黒ガラス粒子を完全に磁気力で捕捉できるものの、黄色ガラス粒子も流れにより外管側に多少流出していることも確認された。今後もより精密な流体制御、装置構造の改良、または現在の精度で装置を多段にして試料純度を上げるなどの検討が必要であると考えている。

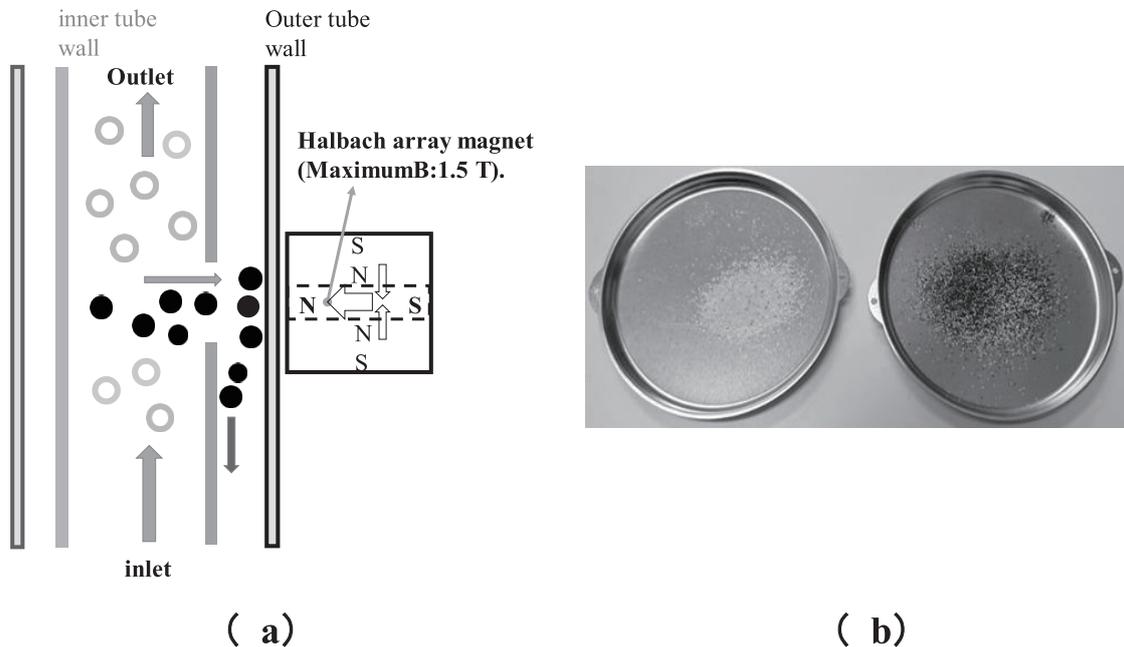


Fig.6 (a) Schematic illustration of recovery system, (b) separated samples.

6. バーミキュライト粘土鉱物への適用⁷⁾

ガラス粒子の分離実験と同様の実験体系で、粒子径 75 μm でふるい分けしたバーミキュライト粘土鉱物 (体積磁化率 2.6×10^{-4}) を淘汰管制御下における粒子を水平方向に磁気力で捕捉した実験結果を Fig.7 に示す。実験写真が示すように、粒子径の小さな常磁性粘土粒子 (バーミキュライト) であっても、淘汰管内で停留している状態に磁場を印加することで捕集可能であることが確認できた。

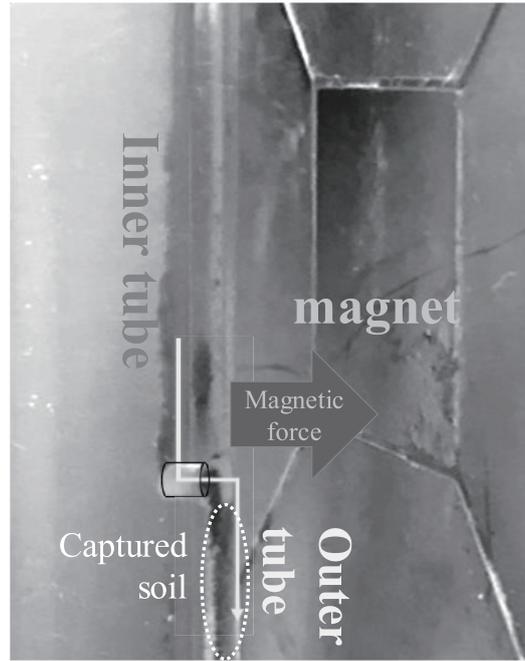


Fig.7 Photographs of the captured paramagnetic soil using the combination of the selection tube and a Halbach array magnet.

7. 結 言

本研究では小規模な淘汰管を作製し、磁気分離実験を行い良好な結果を得た。すなわち淘汰管に磁気分離を導入し、開放勾配磁場での常磁性物質の磁気分離法の可能性を示した。しかし、本実験での分離率には改善の余地があり、特に使用した二重式淘汰管では内管と外管の流速に差があるため、内・外管の流速の最適化を図るなどの精密な流体制御を行うとともに、流体解析と粒子軌跡計算を用いたより詳細な装置設計を実施し、装置化に向けた検討を行う。更に、より粒子径の小さいガラス粒子を用いた実験を実施しつつ、土壤中の常磁性粘土鉱物の詳細な分離を検討してゆく。

謝 辞

本研究は福井工業大学学内特別研究費および金井学園若手研究育成研究費の助成を受けて実施したものである。

文 献

- (1) 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.
- (2) 三島 史人, 奥田 貴大, “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”, 福井工業大学研究紀要 47号 (頁 111~116), 2017年
- (3) 三島 史人, 柳澤 敦也 他, “粒子径制御と磁気力を利用した常磁性体の分離法”, 福井工業大学研究紀要 49号 (頁 99~105), 2019年
- (4) R. D. Ambashta, M. Sillanpää: Water purification using magnetic assistance: A review. Journal of Hazardous Materials, 180, 38-49 (2010)
- (5) 尾崎博明: 「高勾配磁気分離法による水処理の基礎と応用に関する研究」, 1989年1月 pp. 7
- (6) F. Mishima, et al.: Abstracts of CSSJ Conference, Vol. 98 (2019) p.167
- (7) 西嶋茂宏: 磁気分離による汚染土壌の減容化の試み I Isotope News 2014年3月号 No.719

(2020年9月10日受理)