

# 磁気分離に関する共同研究

(平成5～8年度共同研究報告書)

1997年5月

動力炉・核燃料開発事業団  
電子技術総合研究所

複製又はこの資料の入手については、下記にお問い合わせ下さい。

〒319-11 茨城県那珂郡東海村大字村松 4 - 33

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

技術開発推進部 技術管理室

Inquiries about copyright and reproduction should be addressed to:  
Technology Management Section, Tokai Works, Power Reactor and Nuclear Fuel  
Development Corporation 4-33, Muramatsu, Tokai-mura, Naka-gun, Ibaraki,  
319-11, Japan )

動力炉・核燃料開発事業団 (Power Reactor and Nuclear Fuel Development  
Corporation)1997

## 磁気分離に関する共同研究

(平成5～8年度共同研究報告書)<sup>1)</sup>

和田幸男<sup>2)</sup>、小原健司<sup>3)</sup>

### 要旨

本報告は、平成5年から平成8年度まで動燃事業団と電子技術総合研究所とで実施した、核燃料サイクルにおける磁気分離技術の基礎的な共同研究成果の報告である。

これらの研究では、超伝導磁石のような強磁場下の磁気分離技術として、磁気フィルター分離法による超微粒子の分離技術（清澄技術）と、液中溶存元素のクロマト的な元素の磁気分離技術の、核燃料サイクル工程への応用の可能性を評価した。

- 
- 1) 本報告は、動力炉・核燃料開発事業団と電子技術総合研究所との契約により実施した業務の成果である。 契約番号：5TK(核)002、6TK(核)004、7TK(核)007、8TK(核)002
  - 2) 動燃事業団 核燃料技術開発部 先端技術開発室
  - 3) 電子技術総合研究所 極限技術部 超伝導技術研究室

## 目次

1。	共同研究実施担当	1
2。	共同研究経緯	3
3。	研究目的および成果概要	5
3. 1	磁気フィルター分離技術の核燃料サイクル技術への 応用評価、解析	6
3. 2	3-2 磁気クロマト分離法の原理、解析および 適用性概念検討	7
4。	研究論文および概要	8
4. 1	研究論文(1)	9
4. 2	研究論文(2)	17
4. 3	研究論文(3)	23
4. 4	研究論文(4)	31
4. 5	研究論文(5)	46
4. 6	研究論文(6)	53
4. 7	研究成果OHP	60
4. 8	磁気クロマトカラム設計	76
4. 9	磁気クロマト分離予備基礎試験結果	80
5。	外部発表および工業所有権	82

# 1。共同研究实施担当

1. 共同研究実施担当

研究項目	主担当および担当者	
(1) 磁気フィルター分離技術の核燃料 サイクル技術への		
①応用評価	動燃事業団	山本和典、小田好博、杉山顕寿 和田幸男、
②解析	電総研	小原健司、海保勝之、山崎裕文
(2) 磁気クロマト分離法の		
①原理、解析	電総研	小原健司、海保勝之、山崎裕文
②応用の適用性概念検討	動燃事業団	山本和典、小田好博、杉山顕寿 和田幸男
(3) 報告書の作成	両研究者	

## 2。共同研究経緯

## 2。共同研究経緯

年度	研究項目	研究概要
' 9 3 —	<ul style="list-style-type: none"> <li>・磁気フィルター分離技術の適用性検討。</li> <li>・磁気クロマト分離技術の原理、概念検討。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・再処理清澄工程への適用の可能性を評価した。</li> <li>・新しい技術の分離概念とシュミレーション解析を行った。</li> </ul>
' 9 4 —		
' 9 5 —	<ul style="list-style-type: none"> <li>・磁気クロマト分離技術のシュミレーション解析および分離カラム検討。</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・数百Å単位粒径までの分子の常磁性体のクロマト分離の分離評価とクロマト用カラムを設計、試作した。</li> </ul>
' 9 6 —		<ul style="list-style-type: none"> <li>また、予備基礎実験を行った。</li> </ul>



### 3。研究目的および成果概要

### 3。研究目的および成果概要

#### 3-1 磁気フィルター分離技術の核燃料サイクル技術への応用評価、解析

(目的) :

高勾配磁気フィルター分離技術は、強力な磁界勾配を有する磁性体面に磁性粒子を吸着させる技術である。この分離法は通常の機械的な口渦器とは異なり、被吸着物の大きさより十分に粗い目のフィルターエレメントを使用でき、従って吸着に伴う圧力損失は起こりにくく、しかも $1\mu\text{m}$ 以下の超微粒子、弱磁性体も十分に吸着することが可能な技術である。この技術を、核燃料再処理工程等で発生する不溶解残渣あるいは再沈殿物質等を分離する清澄技術としての可能性を評価する。特に、磁界を除けば吸着力が消えるため、フィルターの洗浄、再生が容易であるという特徴は、再処理に伴う放射性二次廃棄物発生的大幅な低減に大きく寄与する点である。この技術に超伝導マグネットを使用した場合の実用性と操作性等を検討する。

(成果概要) :

超伝導磁石を用いた高勾配磁気フィルター分離技術が、従来では分離回収が不可能であった常磁性物質の超微粒子(サブミクロン径)の分離が可能と解析された。これを応用すると、再処理工程から発生するサブミクロン径の不溶解残渣が、数テスラ磁界において95%以上で回収可能であることがわかった。また、工程機器としての設置概念として、マグネットおよび分離カラム部をセル内に設置し、マグネット制御部および冷凍機等をセル外に設置する装置システムが検討された。(参照研究論文(1)-(3))

### 3-2 磁気クロマト分離法の原理、解析および適用性概念検討

(目的) : 高勾配磁気分離技術で分離できる粒子には、拡散のため分離限界最小粒子径が存在し、これは磁界強度と物質の磁化率に依存する。より小さな微粒子まで分離の可能性を拡大するため、高勾配磁気フィルター法とフィールド・フロー・フラクショネーションを折衷した手法の新しい分離技術概念である、磁気クロマト分離（高勾配磁界流動分画）法の可能性を検討する。

(成果概要) :

磁性線の周囲に発生する高勾配磁界内の微粒子に働く磁気力と拡散力を定量的に検討し、超超微粒子（Åオーダー）の濃度分布解析を実施した。その結果、この濃度分布が物質の磁化率によって大きく異なることが、シミュレーションの定量的検討から明らかになった。

また、濃度分布や分画プロセスの定量的な検討から、この濃度分布と平行チャンネル内部の流体の流速分布とを組み合わせることによって、磁化率が異なる超超微粒子（例えば液中溶存元素のUとNd）の相互分離が可能なことを見出した。

更に、硝酸第二鉄水溶液を0.5Tの磁場中に設置してあるSUS430スチールウール充填カラム中に通過させた結果、第二鉄イオンの流出速度に変化が生じることを確認した。

(参照研究論文(4) - (7) および予備基礎試験結果)

## 4。研究論文および概要

## 4。1 研究論文（1）

研究論文(1)  
超電導磁気分離研究の経緯と動向

電子技術総合研究所

小原健司、海保勝之

### 1. はじめに

最近の応用超電導技術の進歩により、操作性に優れた超電導磁石の製作が可能になり、様々な応用超電導機器実現への夢が広がっている。中でも磁気分離への応用は特に関心を引いている。理由は、超電導が最も得意とする大空間への高磁界発生技術を、比較的小規模システムで活用できるからである。のみならず、この磁気力を用いた懸濁微粒子ハンドリング技術の本格的普及・実用化が地球環境保全に大きく寄与するからである。

本稿では、まず磁気分離の原理と特長を解説する。つぎに内外の研究開発の経緯と動向、実用化の現状を述べ、磁気分離研究の必要性と重要性に言及する。最後に磁気分離技術を発展させる可能性を持つ、新しい種々のアイデアの一部を簡単に紹介し、今後の検討課題を述べる。

### 2. 原理と特長

磁気分離とは、空気、水、海水、油、有機溶媒などの分散媒中に懸濁している微粒子（以下分散質）を、磁気力によって選別あるいは濾過する技術である。

#### 2.1 磁気力

磁気力  $F_{m\xi}$  の発生には、以下の(1)式<sup>1)</sup>と(2)式<sup>2)</sup>にあるように、分散媒と異なる磁化率( $M^* \neq 0$ 、すなわち  $\chi_p \neq \chi_f$ ) の分散質を不均一磁界 ( $\nabla_{\xi} H \neq 0$ ) 中に置くことが必要である。

$$F_{m\xi} = V_p \cdot \mu_0 \cdot M^* \cdot \nabla_{\xi} H \quad (1)$$

ただし、EB 対応の SI 単位系による表式を採用し、 $F_{m\xi}$  : 磁気力ベクトル  $\vec{F}_m$  [N] の成分、 $\xi = x, y, z$ 、 $V_p$  : 分散質の体積 [m<sup>3</sup>]、 $\mu_0$  : 真空の透磁率 [H/m]、 $H$  : 不均一磁界 [A/m] である。また、分散質は球形微粒子として磁界方向に均一に磁化すると仮定した場合、分散質と分散媒の相対磁化  $M^*$  は次式で表わされる。

$$M^* = \frac{9(\chi_p - \chi_f)}{(3 + \chi_p)(3 + \chi_f)} H \quad (2)$$

ここで、 $\chi_f$  : 分散媒の体積磁化率 [-]、 $\chi_p$  : 分散質の体積磁化率 [-] である。

血液中の赤血球の場合<sup>3)</sup>のように分散質が弱磁性粒子のとき、相対磁化(2)式は  $M^* = (\chi_p - \chi_f) \cdot H$  となるので、磁気力  $F_{m\xi}$  は、分散質（赤血球）と分散媒（血液溶液—プラズマという）の磁化率の差と、磁界の大きさ、磁界勾配の積に比例する。分散質が強磁性の場合、粒子の磁化  $M_p (= 3\chi_p H / (3 + \chi_p))$  が比較的低磁界で飽和するので、高磁界の印加による  $F_{m\xi}$  の増強には限界がある。

磁気力を大きくするには、(A)分散質に「磁氣的種付け」をする、あるいは(B)磁界勾配  $\nabla_{\xi} H$  の増強をはかることが効果的である。もちろん、弱磁性の場合には(C)高磁界を用いる。または(D)  $\chi_p - \chi_f$  が大きい分散媒を選ぶなどの試みがなされている。(A)と(B)は次節参照。

#### 2.2 磁気分離の特長

磁気力を分離力として懸濁粒子に直接働かせることができる。かつ、外部印加磁界のOFFにより分離力を消せる。したがって、システムの繰り返し使用が可能で、従来形濾過（標準閉塞濾過）のように二次廃棄物を排出しない。さらに、磁気力の格段に大きな高勾配磁気分離<sup>4)</sup>（別名、磁気濾過<sup>5)</sup>、電磁フィルタ<sup>6)</sup>、大勾配磁気分離<sup>7)</sup>）は、大量の希薄懸濁系を高速で分離可能である。

3. 内外の研究開発の経緯と動向—磁気分離の発展と超電導化

3.1 オープン・グラディエント磁気分離 (OGMS)

磁気分離は、磁気選別装置として鉄鉱石や砂鉄等の鉄成分の富化に使用されてきた古い技術である。この改良と発展に関し著しいものを列挙すると、日本では1970年代の初期に、重金属イオン除去が目的のフェライト化法<sup>8)</sup>が開発された。これは前節2.1節の(A)の改良であり、被分離物質を強磁性フェライト粒子中に取り込んだ後、棒状永久磁石を組み込んだ回転磁気ディスクで回収する方式である。大学などの研究施設廃液の処理に実用されている。

ドイツでは、1984年に最大3 [T]の超電導磁石使用の回転ドラム式磁気分離装置を試作し、ヘマタイト鉱石、リン鉱石、ボーキサイトなどの選別性能試験を2年間実施した<sup>9)</sup>。

3.2 高勾配磁気分離 (HGMS)

米国では1970年代にMITのグループにより、2.1節(B)の改良がなされた。すなわち、図1 (a)に示す、線径数 10 - 100 [μm] 程度のステンレス強磁性細線に外部磁界を垂直に印加する方法を考案した<sup>10)</sup>。強磁性細線の周囲には、同図 (b)の磁界分布ができ、粒子はこの磁界の坂を転がるように動く。最後に磁性細線上に吸着される(同図 (a))。ただし、粒子の磁性が負(反磁性)ならば坂を下り、正(常磁性、強磁性など)ならば坂を登るように動く。図中の矢印は粒子の磁性が正の場合。

この方法により磁界勾配が  $1.6 \times 10^{10}$  [A/m<sup>2</sup>] ( $\nabla \mu_0 H = 20,000$  [T/m]) にもなり、従来の1,000 ~ 10,000 倍の強い磁気力の発生に成功した。これを高勾配磁気分離<sup>4)</sup> (HGMS: High Gradient Magnetic Separation) と呼ぶ。以前には強磁性かつ大粒径粒子のみであった磁気分離の実用対象を、HGMSは、弱磁性を含む 100 [μm] 以下の微細な粒子にまで広げた。さらに電磁石の改良で、比較的高勾配かつ  $H = 1.6 \times 10^6$  [A/m] ( $\mu_0 H = 2.0$  [T]) 程度の高磁界を内径 1 [m] 以上の大空間に発生できたことによって、実用化が急速に進んだ。米国と英国では主に製紙業用のカオリン粘土 (Kaolin または China clay) の精製<sup>11)</sup>、日本では鉄鋼圧延排水の処理<sup>6), 12), 13)</sup>で稼働している。これらの性能と経済性は、種々の他方式 - 物理化学処理や沈殿池方式 - より優れていることを実証した。

図2は、HGMS 関連研究の推移を、シンポジウム開催や、Intermag 発表論文数で概観した。IEEE 自身や他学会の通常投稿論文を含めた HGMS 研究全体から見れば、もちろん、たいへん狭い視野ではあるが、このグラフからも HGMS が多くの研究者を魅了したことが分かる。

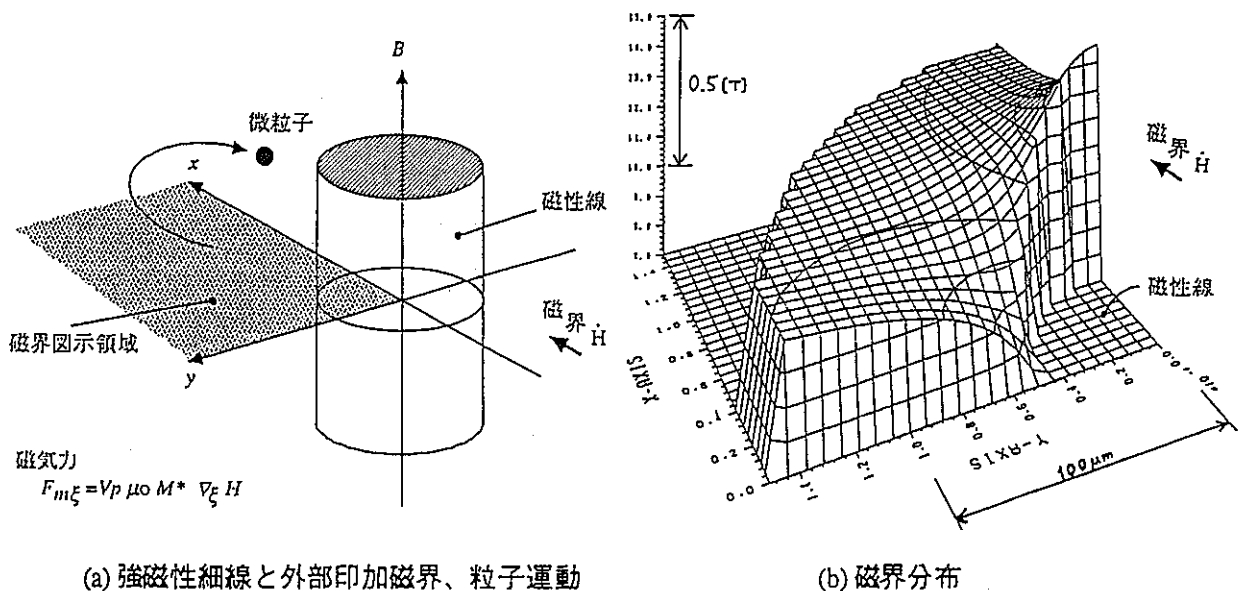


図1 HGMS における粒子捕獲概念

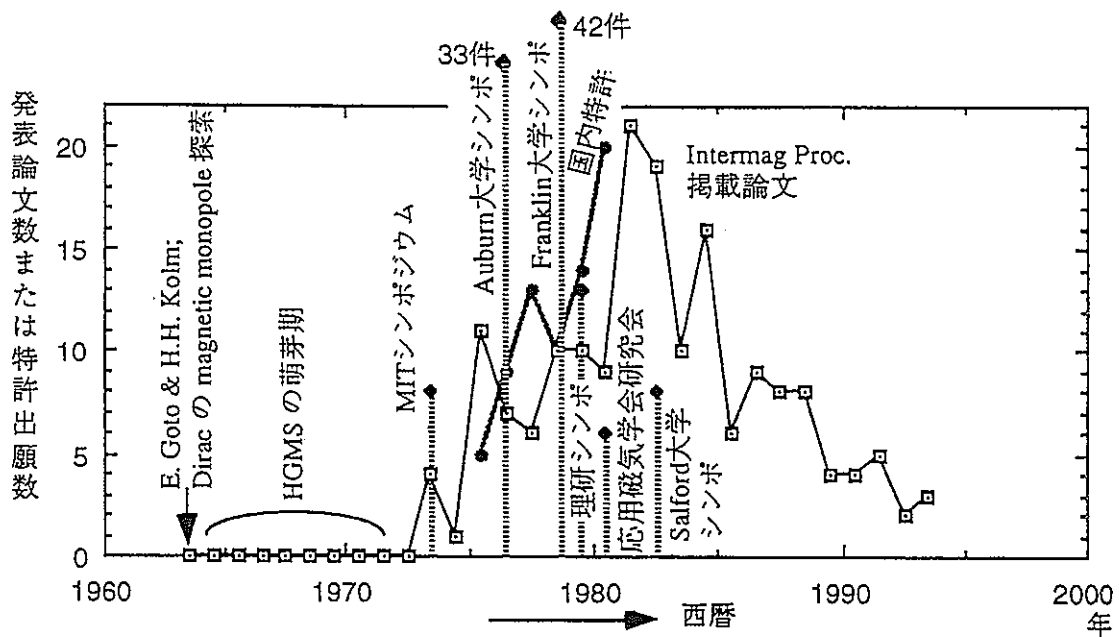


図2 HGMS 関連研究発表の推移

1986年にはカオリン精製システムの磁界発生部分に 4.2K 運転の超電導磁石が導入され、超電導化のメリットが確認された<sup>14), 15)</sup>。エリート社が従来形 2 [T] 電磁石を蓄積エネルギー 3.53 [MJ]、中心磁束密度 2 [T] の超電導磁石で置き換えた結果、装置重量は 42 [%]、体積は 34 [%]、消費電力は 5 [%] への小形化を実現した。しかも励磁時間を 1 分以下に短縮でき、運転効率を大幅に向上させた。中国科学院では石炭の脱硫を目的とした超電導 HGMS プラントの開発が 1990 年頃より進行している<sup>16)</sup>。このように、HGMS は超電導化によって、その省エネルギー化、コンパクト化を通じ、また高速化を通じて、初めて本来の利点を発揮させ得るものと考えられる。

#### 4. 原子力産業への応用

原子力産業工程液の清澄、あるいは放射性クラッドの除去に高勾配磁気分離を適用すると、放射性二次廃棄物の低減に大きな効果を期待できるとの調査結果がある。米国ロスアラモス研究所とロッキード社、ウェスティング・ハウス社では 1991 年頃より軍用核燃料製造工場における、放射性微粒子で汚染された土壌の浄化・改質や、地下タンク貯蔵所の放射性廃液の Remediation (修復) のための実用システムを検討している<sup>17), 18)</sup>。日本の状況は本シンポジウム最後の講演参照。

#### 5. 新しいアイデアと検討課題

HGMS の性能解析を行う有力な手法は、英国の J.H.P. Watson<sup>5)</sup> により提案された粒子航跡モデルであった。この手法は永い間様々な解析目的に使用されてきた。しかしその後、M. Takayasu らの実験の検討<sup>19)</sup> を発端として、R. Geber らによる HGMS 一般化理論へと発展した<sup>20)</sup>。この理論の副産物として、磁性線上への「静的堆積」(以下参照) を原理とする従来形 HGMS の粒径限界が明確になった。さらに、HGMS のバリエーションとも言えるいくつかのアイデアが、従来の HGMS を補う、あるいは発展させた方式として提案されている。以下にその一部を簡単に紹介する。

##### 5.1 微粒子の粒径に依存する凝集パターン

微粒子が強大な磁気力によって凝集するとき、粒子の拡散力と磁気力とのバランスが凝集パターンを決めるので、粒子サイズによりその凝集パターンが異なる。すなわち、小粒径粒子の場合には、Brown 運動 (あるいは分散媒分子の熱運動) に起因する粒子集団の拡散力が大きく、磁気



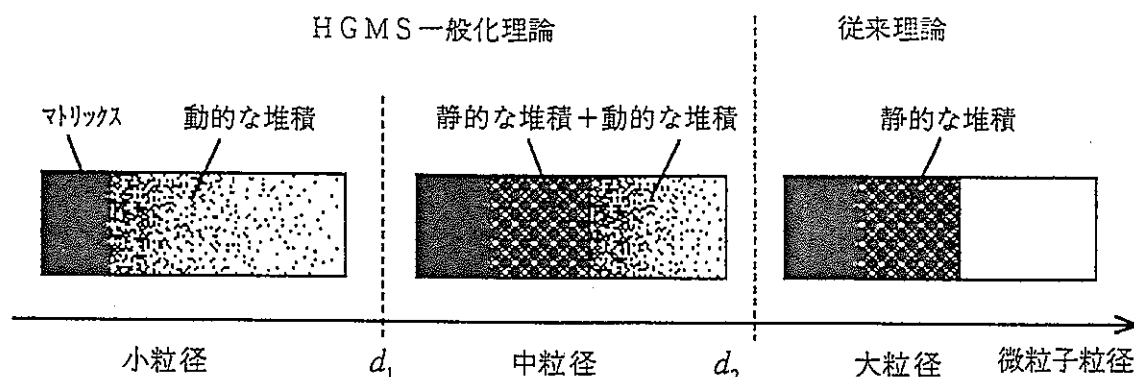


図3 微粒子粒径に依存した粒子凝集パターンの比較

力と競合するため、勾配磁界中で被分離粒子は静的に堆積しない。図3の左端パターンがこの状態を表わしており、粒径がある閾値  $d_1$  より小さい場合には、懸濁濃度が不均一になるだけである。これを「動的堆積」と呼ぶことにする。

反対に、図3右端パターンのように、粒径がある閾値  $d_2$  (値は表1参照) より大きい場合、粒子は静的に積み重なった状態となる。これを「静的堆積」と呼ぶことにすると、中間の粒径では、図3中央パターンのように、上述の動的堆積とこの静的堆積の共存する状態となる。ただし、 $d_1$  と  $d_2$  は次式で表わされる<sup>20)</sup>。

$$d_1 = 2 \left( \frac{3kT \ln(C_{sat}/C_0)}{2\pi\mu_0\chi M H_0 (1 \pm K_w/2)} \right)^{1/3} \quad (3),$$

$$d_2 = \left( \frac{3akT}{4\pi\mu_0\chi M H_0 g(r_a)} \right)^{1/4} \quad (4),$$

$$g(r_a) \equiv r_a^{-3} \pm K_w r_a^{-5} \quad (5)$$

従来の磁気分離機器においては、静的堆積のみを想定し、利用していたので、用途は比較的大粒径粒子の分離に限られていた。しかし、磁気力が特に強いHGMS技術によれば、動的堆積においても超微粒子の懸濁濃度に大きな不均一を作ることができる<sup>21-23)</sup>ので、従来の限界を越えた微細粒子の分離<sup>21-23)</sup>が可能である。有用あるいは有害超微粒子の濃縮技術としての今後の発展が期待される。

表1 磁気力がBrown運動に打ち勝つ微粒子粒径の最小値  $d_2$

物質名	Fe	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	Mn <sub>2</sub> P <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	α-Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CuO	Al	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Au
相対磁化率 $\chi^*$	-	-	4.72E-3	1.47E-3	2.42E-4	2.08E-5	-1.81E-5	-2.55E-5
粒径 $d_2$ [Å]	300	400	1,500	2,000	3,000	5,000	7,500	6,000

注)  $\chi^* = \chi_p - \chi_f$ 、 $\chi_p$  : 物質(分散質)の磁化率、 $\chi_f$  : 分散媒の磁化率。分散媒を水とし、 $\chi_f = -9.05 \times 10^{-6}$ 。磁性細線径  $2a = 100$  [μm]、印加磁界  $\mu_0 H = 1$  [T]。上表中の記号 E-3 は  $\times 10^{-3}$  を意味する。

## 5.2 HGMS のバリエーション

### (1) 磁化率勾配を利用した磁気分離<sup>24)</sup>

粒径 100 ナンノメートル以下の粒子による磁性流体を高勾配磁界中に置くと、一桁以上も差のある懸濁濃度勾配が磁界勾配に沿って形成される。前節で述べた、コロイド粒子に働く磁気力とBrown運動による粒子自身の拡散力とのバランスで生じる現象である。この磁性流体をマクロに見ると、磁性コロイド粒子と分散媒の平均磁化率が場所に依存して一桁以上も変化している。

ここへ分離したい粒径 1 [μm] 以下の混合粒子試料を導入する。すると、試料の磁化率と試料の

ある場所の磁性流体の磁化率との差に応じて、試料（すなわち被分離粒子）に磁気力が働く。この結果、差がゼロになる（試料の磁化率＝磁性流体の磁化率、になる）場所まで被分離粒子が移動する。磁化率により集まる場所が異なるので物質の分離ができる。

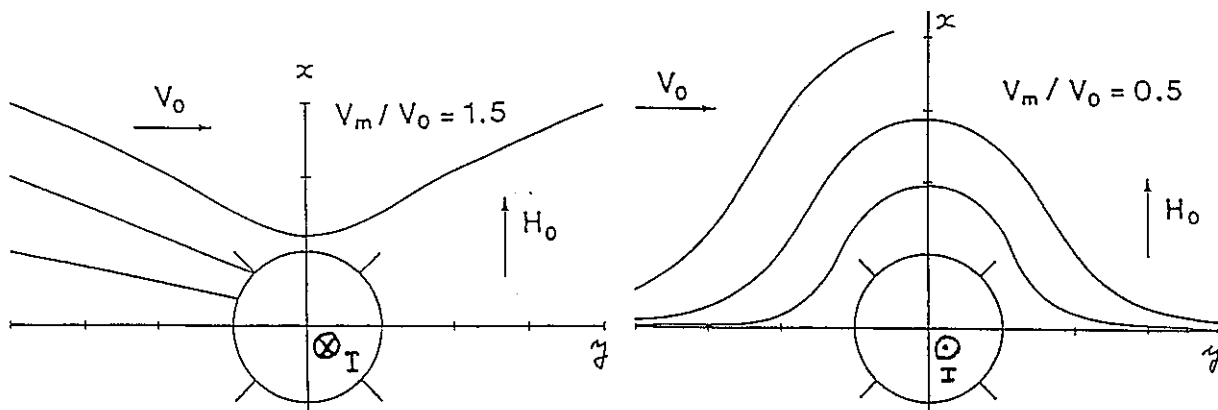
この方式の特長は、フィルタ構造に注意して製作すると、その分離能力を左右する因子を被分離粒子の磁化率のみにできること。すなわち粒子の密度、大きさ、形状などを分離能力と無関係にすることができる点にある。第3節で紹介した従来形 HGMS では、二種類以上の物質の分離には被分離粒子の粒径分布をできるだけ狭い範囲に制限することが必要であった。分離能力が被分離粒子の密度や粒径に強く依存するためである。しかし、磁化率勾配を利用した本方式では粒径分布に気を配る必要はない。

(2) フィルタマトリックスに電流を流す方法<sup>25-27)</sup>

細い磁性線を使う代わりに、断面直径 100～500[μm] 程度の細い電氣的良導体、例えばエナメル絶縁銅線を用いて金網を作り、これに電流を流すと HGMS フィルタと同様の働きをさせることができる。被分離粒子に及ぼす吸引力の、距離に対する減衰は、この電流通電マトリックスの方が磁性線マトリックスよりも小さい。もし裸銅線を用いると、ガス中や液体中では腐食の問題、そのうえ液体中では漏れ電流の問題が生じるが、吸着力の減衰が小さいメリットを生かして导体表面に十分なコーティングを施すことが可能である。

電流通電マトリックスは外部から磁界を印加しなくても使用できる。が、その場合の弱磁性粒子分離用フィルタの電力ロスを概算すると莫大なものになる。この理由から磁性の強い粒子の分離に用いることが最初に提案された<sup>25)</sup>。

その後、外部磁界の印加が粒子吸着能率を著しく改善する、と分かった<sup>26)</sup>。しかも、外部磁界とマトリックスに流れる電流が作る磁界との相互作用の結果、フィルタ洗浄・再生にたいへん便利な現象が発現する。それは、フィルタ細線中の電流の向きを変えて、粒子の吸・脱着が制御できることである。外部印加磁界の方向（ $x$ 方向とする）、流体の流れ方向（同 $y$ 方向）、導線を流れる電流の方向（同 $z$ 方向）をそれぞれが他に対して直角になるように配置するとき、 $xyz$ 座標が右手系座標であれば、粒子を吸着し、左手系座標であれば、粒子は导体を避ける航跡をとる。図4の計算結果<sup>27)</sup>参照。したがって電流の向きを逆にすることにより吸着粒子を「追い出せる」。おまけに、外部磁界を切る必要がないので、永久電流モードの超伝導電磁石を利用できる。



(a) 磁界  $H_0$  - 流れ  $v_0$  - 電流  $I$  の関係が右手系座標のとき

(b) 同左手系座標のとき

図4 電流通電マトリックスにおける微粒子航跡

(3) 非晶質磁性合金を用いる方法と磁性線の隣接効果<sup>28)</sup>

フィルタ材料の耐食性改善の目的で、非晶質磁性合金リボンをHGMSに用いることを提案し、理論と実験でリボン形状磁性線による磁気分離プロセスを解析した。その結果、円断面の磁性線に比べて微粒子に対する死角が小さい捕獲領域が形成されること、したがって、磁性線配列の変化による性能劣化が極めて小さい高能率フィルタを実現できることが明らかになった。また印加磁界を楕円断面の磁性線の長軸方向あるいは短軸方向に印加することで、反磁性粒子をフィルタに吸着させてそれ以外の粒子を通過させる、あるいはその逆ができることも分かった。

一般に、隣接磁性線を考慮して磁性線近傍の磁界勾配を計算すると、隣接磁性線相互の干渉により、単一磁性線について計算した磁界勾配よりも小さい。したがって隣接磁性線を考慮したフィルタ性能は、近似的に単一磁性線で求めた場合より劣ると安易に推測しがちである。これを第一種の隣接効果と呼ぶことにする。しかし実際の計算では、微粒子の高回収領域で、性能は逆になり、第一種隣接効果が大きな効果ではないことが示された。

ではなぜか。単一磁性線の場合、微粒子の捕獲ができる領域の形状は円形に近く、このために死角が大きい。しかし隣接磁性線を考慮した計算結果を見ると、死角が低減された形状となっている。すなわち死角の低減が、隣接磁性線による磁気力の低減を上回る。これを第二種の隣接効果と呼ぶことにする。第二種隣接効果が一見常識に反するフィルタ性能の逆転を生む理由である。

(4) 生物学における応用<sup>29)</sup>と微生物利用の磁氣的種付け法<sup>30),31)</sup>

生物学への磁気分離の応用は、血液を構成している細胞の分離—赤血球の分離<sup>3)</sup>から始まった。赤血球の粒径は7~8 [μm]程度とかなり大きく、HGMSにとって恵まれていた条件であったため、比較的早い時期から研究が行なわれた。その後、他の血液組成成分を初めとして、生体メカニズムの解明の新しい手法としての模索が行われている<sup>29)</sup>。

Watsonら<sup>30)</sup>は三リン酸グリセロール溶液中で培養した微生物を用い、細胞表面に重金属の三リン酸化合物を沈着させた後、従来形のHGMSにより分離除去する方法を提案している。重金属の最終イオン濃度を $10^9$  [ppm]以下に低減できるので、原子力産業における放射性重金属イオン除去への応用が可能としている。

Ozakiら<sup>31)</sup>は、磁性粉と微生物を人工ポリマーのマイクロカプセル内部に固定して水処理に用いる提案をしている。例えば農薬などの有害有機物を分解する微生物を固定化し、その種を区別する目的で、磁性の異なる磁性粉で磁氣的種付けをしておく。すると処理後の廃水から、磁気分離によりこれらの貴重な微生物を区別して回収できる。この研究<sup>31)</sup>では、直径74~250 [μm]のポリアクリアミドゲル粒子中に固定した微生物をマグネタイトあるいはヘマタイトで種付けし、これでフェノールを分解した後、永久磁石式磁気分離およびHGMSによる回収を試みた。

## 6. おわりに

磁気分離技術の実用化と普及は、先端産業や原子力産業から排出される有用・有害物質の分離・濃縮の際の二次廃棄物の低減に大きく貢献することが期待される。特に高勾配磁気分離 (HGMS) は、超電導磁石技術と結合させることで、従来不可能とされていた希薄懸濁系の大量高速処理が技術的・経済的に可能になる。すなわち、半導体、原子力、電線製造、電気製品、化学、石油化学、鉄鋼、鍍金、繊維・染色、パルプ・製紙、水産加工、基礎素材の各産業、あるいは「都市鉱山」や廃鉱などから排出される微細粒子の分離・回収、および再利用促進などに応用可能である。

しかし超電導磁気分離の新しい実用領域の開拓には、さらに多様な分野の科学と技術の融合が

必要である。装置改良の見地からは電気、機械、超電導工学、分離システムの立場からは化学工学や応用化学、利用面からは環境、衛生、資源、原子力工学など、異分野研究者の交流と協力が重要な役割を演じると考えられる。

地球環境の保全と新しい科学技術の創出を目指した、多くの研究者による息の長い基礎研究・開発研究と、そこから生みだされる多大な貢献を願ってやまない。

最後に、本シンポジウムを企画され、筆者らに発表の機会を与えて下さった低温工学協会超電導応用研究会の皆様には感謝致します。

#### 参考文献

- (1) 小原：電子技術総合研究所研究報告 no.858, pp.21-24 (1985.12)
- (2) 小原：電気学会第3回超電導磁気分離技術調査専門委員会資料3-5 (1994.8)
- (3) D. Melville, F. Paul, and S. Roath: Nature vol.255, p.706 (1975)
- (4) J. A. Oberteuffer: IEEE Trans. Magn., vol.MAG-9, no.3, pp.303-306 (1973.3)
- (5) J.H.P. Watson: J. Appl. Phys., vol.44, pp.4209-4213 (1973.2)
- (6) 菅原、市川、矢野：化学工学, vol.45, pp.235-239 (1981.4)
- (7) 公害対策電気技術常置専門委員会：電気学会技術報告 vol.11-114 (1981.6)
- (8) 例えば、辻：電子材料, vol.12, no.9, pp.70 (1973.9) / 菅野、林：PPM, pp.61-72 (1976.2)
- (9) K.P. Jüngst, G. Ries, S. Förster, F. Graf, G. Obermaier, and W. Lehmann: Cryogenics, vol.24, no.11, pp.648-652 (1984.11)
- (10) H.H. Kolm: US patent 3,567,026 (1971) / 3,676,337 (1972)
- (11) J. Iannicelli: IEEE Trans. Magn., vol.MAG-12, pp.436-443 (1976)
- (12) 滝野、松野、藤田、加藤：工業用水, vol.227, pp.54-59 (1977.8)
- (13) K. Takino, T. Tanaka, and T. Shichiri: Proc. Industrial Applications of Magnetic Separation, IEEE Catalog No.78CH1447-2, pp.137-141 (1978.8)
- (14) J.A. Selvaggi, P. Vander Arend, and J. Colwell: Adv. Cryog. Engnrng, vol.33, pp.53-60 (1988)
- (15) A.J. Winters and J.A. Selvaggi: Chemical Engineering Progress, vol.86, no.1, pp.36-40 (1990.1)
- (16) 屠、敵：低温工学, vol.28, no.7, pp.344-354 (1993)
- (17) C. Prenger, W.F. Stewart, D. Hill: Cryogenic Engineering Conf., HQ-14 (1993.7)
- (18) L.R. Avens, L.A. Worl, K.J. deAgüero: Proc. WM'93, Tucson, eds. R.G. Post, pp.787-789 (1993)
- (19) M. Takayasu, R. Gerber, and F. J. Friedlaender: IEEE Trans. Magn., vol.MAG-19, no.5, pp.2112-2114 (1983.9)
- (20) R. Gerber, M. Takayasu, and F. J. Friedlaender: *ibid*, pp.2115-2117 (1983.9)
- (21) 小原、森、三宅、和田、山本、塚本：第17回日本応用磁気学会学術講演会予稿集, 10pD-4, p.84 (1993.9.10)
- (22) T. Ohara, S. Mori, Y.Oda, K. Yamamoto, Y. Wada, and O. Tsukamoto: The Fourth International Symposium on Field-Flow Fractionation (FFF'94) in Sweden, Lecture no.18 (1994.6.13)
- (23) O. Tsukamoto, T. Ohizumi, T. Ohara, S. Mori, and Y. Wada : Applied Superconductivity Conf. in Boston, LED-1 (1994.10.17)
- (24) M. Takayasu, J.Y. Hwang, F.J. Friedlaender, L. Petrakis, and R. Geber: IEEE Trans. Magn., vol. MAG-20, no.1, pp.155-159 (1984)
- (25) M.R. Parker: IEEE Trans. Magn., vol. MAG-17, no.6, pp.2816-2818 (1981.11)
- (25) J.H.P. Watson, C.H. Boonman, A.S. Bahaj, and D.Rassi: IEEE Trans. Magn., vol. MAG-21, no.5, pp.2056-2058 (1985.9)
- (27) J.H.P. Watson, and C.H. Boonman: Int. J. Miner. Process. vol.17, pp.161-185 (1986)
- (28) T. Ohara: IEEE Trans. Magn., vol. MAG-20, no.2, pp.436-443 (1984)
- (29) 解説として、小原：生物物理, vol.29, no.3, pp.150-155 (1989.6)
- (30) J.H.P. Watson, D.C. Ellwood and A.S. Bahaj: Proc. Low Temperature Engineering and Cryogenics Conf. in Southampton, 3.2 (1990.7)
- (31) H. Ozaki, Z. Liu, and Y. Terashima: Wat. Sci. Tech., vol.23, pp.1125-1136 (1991)

## 4。2 研究論文（2）

## 超電導応用の一分野としての磁気分離

電子技術総合研究所 小原健司

### 1. はじめに

混合物質を磁気力で選別する磁気分離のうち、特に高勾配磁気分離とその関連技術は、地球環境保全に絶大な貢献をなす可能性がある。すなわち、この技術は本質的に物理的選別技術であり、被分離粒子の磁性を大きくする（いわゆる種付け）操作以外には化学処理を伴わない。さらに高勾配磁気分離は、篩やフィルターなど（標準閉塞濾過）の従来形濾過とは根本的に異なる原理に基づくので、分離力の消去が容易でシステムの繰り返し使用が可能であり、大量の希薄懸濁系を高速で分離でき、二次廃棄物を排出しないという優れた特徴を持つ。

磁性の比較的大きい粒子の分離には従来型電磁石（一部は既に超電導磁石に置き換わっている）を用いた高勾配磁気分離装置が開発され、製紙業用カオリン粘土の精製と鉄鋼圧延排水の純化などの領域で実用化され、性能と経済性など実用化のメリットが実証されている。

実用的な速度で弱磁性粒子を分離するには、高磁界かつ大空間に磁界を発生できる超電導磁石が必要不可欠である。近年の高温酸化物超電導体の発見により液体ヘリウムを使用しない超電導磁石が実現できており、この有力な応用分野としての関心も高まっているが、発展-普及-成熟には様々な研究開発が今後も必要である。すなわち磁気分離の新たな実用領域の開拓、分離性能の解析や装置規模決定の手法、システム運転技術をはじめとして分離メカニズム、運用方式、保守管理の問題など、検討すべき多くの課題が残されている。

ここではまず、磁気分離—特に高勾配磁気分離の原理を説明し、内外の研究開発の動向と実用化の現状を述べ、磁気分離研究の重要性と必要性を説明したい。つぎに磁気分離技術を発展させる可能性のある新しい種々のアイデアを簡単に紹介する。最後に今後の検討課題を述べる。

### 2. 磁気分離の原理 (SI単位系EB対応)

空気、水、海水、油、有機溶媒などの分散媒中に球形微粒子（分散質）が分散している系を考える。この系を不均一磁界  $H$  [A/m] 中に置くと、次式の磁気力  $F_m(x, y, z)$  [N] が分散微粒子に働く。

$$F_{m\xi} = V_p \cdot \mu_0 \cdot M^* \cdot \nabla_{\xi} H \quad (1)$$

$$M^* = \frac{9(\chi_p - \chi_f)}{(3 + \chi_p)(3 + \chi_f)} H \quad (2)$$

ただし、体積磁化率  $\chi_f$  [-] の分散媒中に、体積磁化率  $\chi_p$  [-]、体積  $V_p$  [m<sup>3</sup>] の、磁界方向に均一に磁化した微粒子が分散しているとする。またベクトル  $\vec{F}_m$  の成分を  $F_{m\xi}$  と記し、 $\xi \equiv x, y, z$  である。(1)式の磁気力  $\vec{F}_m$  を利用して系の微粒子を分離することを磁気分離と呼ぶ。

強磁性粒子の場合には、磁化  $M_p = \chi_p H$  が比較的低磁界で飽和するので、高磁界印加による  $F_m$  の増強には限界がある。

血液中の赤血球の場合のように、分散質が弱磁性粒子のとき、相対磁化(2)式は  $M^* = (\chi_p - \chi_f) \cdot H$  となるので、磁気力  $F_m$  は、分散質と分散媒（血液の場合には赤血球と血液溶液—プラズマという）の磁化率の差と、磁界の大きさ、磁界勾配の積に比例する。したがって、もし均一な磁界中に置かれたのであれば、どのように大きい磁界中であろうとも粒子を動かす磁気力は発生しない。すなわち(1)式で  $\nabla_z H = 0$  なら  $F_{mz} = 0$  である。強い磁気力を求められるときは、何らかの手段を講じてこの磁界勾配  $\nabla_z H$  を極端に大きくすることを考えればよい。

他の因子である粒子の体積  $V_p$  と磁化の大きさ  $M_p$  については、粒径をなるべく大きくする、あるいは、印加磁界を大きくして磁化  $M_p$  を大きくするなどの工夫もできる。しかしこれらは被分離粒子自身に固有な値であるから、条件として与えられている場合が多く、分離能力を格段に向上させようとする工夫には限界がある。磁気力を大きくするには磁界勾配  $\nabla_z H$  の改善が最も効果的である。このための試みが過去に種々なされた。この一部を次節で述べる。

### 3. 内外の動向と現状

磁気分離技術は、磁気選別装置として鉄鉱石や砂鉄等の鉄成分の富化に使用されてきたことが約80年前の文献にも記述されており、少なくとも約150年位使用されてきた古い技術である。この中で最近の技術の改良と発展に関し著しいものを列挙すると、日本では1970年代の初期に、京都大学とNEC公害防止研究所などによって重金属イオン除去を目的としたフェライト化法が開発され、主に研究廃水などの高濃度廃水の処理へ導入された。これは原子置換によって被分離物質を磁性の大きなフェライト結晶中に取り込んだ後、棒状永久磁石を組み込んだ回転ディスク式磁気分離装置（三菱製鋼製やナガシマラボ製など）で回収する方式である。

米国では1970年代にMITフランシス・ビター研究所のグループにより従来の1,000～10,000倍の磁気力を発生できる高勾配磁気分離方式が考案され、ただちにジョージア州の製紙業用カオリン粘土中の鉄分の除去、日本では大同特殊鋼と日立プラントによって製鉄圧延排水の浄化に実用化された。分離メカニズムの理解に貢献した理論的検討のさきがけは、James H.P. Watson (当時Corning Glass Works, U.S.A., 現在Southampton Univ., England) の "Magnetic Filtration" (1973年2月) と、John A. Oberteuffer (当時MIT FBNML, 現在?) の "High Gradient Magnetic Separation" (1973年3月) と "Magnetic Separation: A Review of Principles, Devices, and Applications" (1974年) である。その後1986年頃まで数多くの研究成果が、IEEE Trans. Magnetics や J. Applied Physics をはじめとするいろいろな学術誌に発表された。日本では1978年頃から日本応用磁気学会や電気学会、化学工学会、空気調和・衛生工学会などで研究発表があった。当時、様々な分野の研究者が集まり磁気分離の研究会がいろいろな学会や公的機関に作られた。電気学会では名古屋大学の内山晋教授を中心とするグループが技術動向の調査を行い、1981年に技術報告「大勾配磁気分離技術の現状と動向」をまとめた。しかし超電導磁石の応用という観点は皆無であり、以下に述べる最近の新しい動向も当然のことながら含まれていない。

ドイツ・カールスルーエでは1984年に超電導磁石使用の回転ドラム式磁気分離装置が試作され、ヘマタイト鉱石、リン鉱石、ボーキサイトなどの選別試験が2年間実施された。1988年には、カオリン精製システムの磁界発生部分に4.2K運転の超電導磁石が導入された。また中国科学院では石炭の脱硫を目的とした超電導高勾配磁気分離プラントの開発が1990年頃より進行している。さらに、原子力産業においては、放射性物質の溶解・清澄、分離・濃縮、貯蔵あるいは分析工程から排出される放射性二次廃棄物の低減に大きな効果が期待でき、1989年より未踏科学技術協会が、動燃からの委託調査研究として、使用済核燃料再処理工程への適用の検討を行っている。

また1990年に英国サザンプトン大学低温工学研究所では微生物を用いた放射性物質の磁気分離法を提案している。米国ロスアラモス研究所とロッキード社、ウェスティング・ハウス社では1991年頃より軍用核燃料製造工場における、放射性微粒子で汚染された土壌の浄化・改質や、地下タンク貯蔵所の放射性廃液のRemediation（たぶん貯蔵量の低減化）のための超電導システムを理論的および実験的に検討している。

以下に、項目分けして現状を詳述する。

### 3.1 従来形磁気分離

#### 3.1.1 特徴

回転ドラム式あるいは回転ディスク式装置の磁界 $H$ は $0.8\sim 1.6\times 10^6$  [A/m] ( $\mu_0 H=1.0\sim 2.0$  [T])を越えることはほとんどなく、磁界勾配 $\nabla H$ も $8\times 10^5\sim 8\times 10^7$  [A/m<sup>2</sup>] ( $\nabla\mu_0 H=1.0\sim 100$  [T/m])である。したがってミクロンサイズの弱磁性あるいは反磁性の微粒子には実用上十分な磁気力を及ぼすことはできない。

しかし(1)構造が簡単で堅牢、(2)連続処理が可能、(3)ドラムまたはディスクの吸着面に捕獲された強磁性粒子の除去回収が容易などの長所があり、主に鉱石の選別に使用されてきたドラム式装置には永年の稼働実績とそれに伴うノウハウが蓄積されている。

#### 3.1.2 鉱石選別

回転ドラム式磁気分離装置が広く普及している。鉄鉱石では、粉碎後、水と混合され、スラリー状になったマグネタイト粒子が磁気力によりガング（脈石）から分離選別される。Cr, Nb, Mn, Mo, Ni, R<sub>u</sub>, Ta, W, Tiなどの鉱石でも、選別工程の途中で1段あるいは2、3段、この種の装置が実用されている。

#### 3.1.3 廃水処理

工場廃水、研究廃水などに含まれる高濃度の重金属イオンを除去する方法に、フェライト化法がある。鉄イオン源として硫酸第一鉄 $\text{FeSO}_4$ を廃水に加え、温度とpHを最適に保ちながら酸化させ、 $\text{MO-Fe}_2\text{O}_3$ の形（スピネル形）でフェライト粒子を生成する。これを磁気分離装置に通して重金属を除去する。スピネルフェライトを形成する金属イオンはFe, Mn, Zn, Ni, Co, Cuなどの約40種が知られている。しかもこれらの金属イオンはほとんど同じ温度とpHの条件下で反応する。したがって、種々の重金属イオンの含まれた廃水の処理でも一括して処理できる。生成粒子は強い磁性を示すので、上述の回転ディスク式装置で容易に分離除去できる。日本の数多くの大学や研究機関の比較的高濃度の廃水の濃縮処理に使用されている。

#### 3.1.4 永久磁石式磁気分離装置の超伝導化

ドラム式磁気分離装置の長所を活用し、かつ磁気力が小さい短所を改善するために、永久磁石を超電導マグネット(NbTi)で置き換えることは自然な成り行きである。KfKのK.P. Jungstらは、3 [T]の最大磁束密度と24極の磁極を発生させる目的で、楕円に近いレーストラック形超電導コイルを4組用いた。しかし製作初期には100回以上のトレーニングが見られ、回転ドラム表面の1/3に必要な磁界分布を発生させることが容易でなかったが、技術開発の結果、超電導コイルを柔構造的に固定することで克服できたと報告している。その後2年間、磁気分離装置として運転された実績がある。



### 3. 2 高勾配磁気分離

#### 3.2.1 特徴

大きな磁気力の発生には、大きな不均一磁界が必要であることを §2. で述べた。Henry H. Kolm (当時 MIT FBNML, 現在 ?)らは、線径数 10 - 100 [μm] 程度のステンレス強磁性線に外部磁界を垂直に印加する方法を考案した。磁界勾配は  $1.6 \times 10^{10}$  [A/m<sup>2</sup>] ( $\nabla \mu_0 H = 20,000$  [T/m]) 程度に達し、大きな磁気力の発生に成功した。これを高勾配磁気分離 (HGMS: High Gradient Magnetic Separation) と呼ぶ。この発明以前には強磁性かつ大粒径の粒子のみであった磁気分離対象粒子を、100 [μm] 程度以下の弱磁性を含む微細な粒子にまで広げ、希薄懸濁系の大量高速処理を可能にした。

ステンレス強磁性線の配置と機能は、繊維で作った従来の濾過フィルタに似ているので、HGMS を磁気フィルタあるいは磁気濾過と呼ぶこともある。しかし、§2. で述べたように従来の濾過とは大きく異なり、磁力線分布を極端に歪ませることによる HGMS はつぎの三つの特長を持つ。

- (1) 200 - 1000 [m/h] 程度の超高速濾過が可能。磁性線近傍に流れる粒子の磁性に起因する選択的な分離力を、直接その粒子に及ぼすからである。
- (2) 圧力損失が極めて小さい。磁気フィルタ材の占積率が 3 - 6 [%] と低いことによる。
- (3) フィルタの洗浄、再生が容易。磁界を除けば吸着力が消えるためである。

これらは現代の電子制御式自動プラントへの組み込みという面から見ても都合が良い。また、環境保全に大きく貢献するのは上述 (3) の特長である。すなわち、フィルタ素材の耐久性の許す限り、何回でも繰り返し使用できる HGMS は、濾過フィルタ使用に伴う二次廃棄物の大幅な低減を可能にする。種々の分野での実用化が期待できるが、その中でも、核燃料製造に伴う放射能二次汚染廃材の低減に必要な不可欠な技術であろうことは想像に難くない。

#### 3.2.2 応用の現状

HGMSによる磁気分離性能の向上に加えて、大型電磁石の改良ができたこと—すなわち(1)短いソレノイド形にして、(2)強磁性の磁束リターンヨークで外側を囲む工夫により、比較的高均一かつ  $H = 1.6 \times 10^6$  [A/m] ( $\mu_0 H = 2.0$  [T]) 程度の高磁界を内径 1 [m] 以上の大空間に発生する電磁石を開発できたことにも力を得て、実用化は急速に進んだ。米国と英国では主に製紙業用のカオリン粘土 (Kaolin または China clay) の精製、日本では鉄鋼圧延排水の処理に実用化され、性能と経済性において、種々の物理化学処理や沈殿池方式より優れていることを実証している。

#### 3.2.3 超電導化

HGMSに超電導マグネットを使う、いわゆる超電導化は、実用性と経済性の点で大きなメリットを持つはずだという指摘が1974年 (Henry H. Kolm) 以来しばしばあった。(筆者の知るかぎりでも8件の記事がある。)しかしフーバー社 (J.M. Huber clay-processing plant in Wrens) が米国ジョージアカオリンの生産プラントに超電導マグネットを導入してこのことを確認したのは、1986年のことである。当時の Machine Design 誌の10月号は、「超電導が(やっと)産業の中に仕事を見つけた」と題した記事の中で、つぎのように報じている。「従来の2 T銅鉄マグネットを2 T超電導マグネットに置き換えた結果、電力消費は5%に、重量は42%に、装置の大きさは34%にできた。磁気フィルターの再生時に必要なマグネットの減磁および励磁に要する時間を1分以内にできた。さらに、2 T以上の磁界の発生と利用に対するコストを大きく下げることが可能にし、製品の品位(Brightness)の向上はもちろん生産スピード(Throughput rate)の増大を、ほんの少し運転経費を増加するだけで実現できた。」

異論として、HGMSの意義は磁界勾配を桁違いに上げられる点にあり、マグネットを超電導化し

でも磁界自身は桁違いとまではいかないのだから、超電導化の意義は多分に二次的なものでしかありえないとの論がある。しかし、上述のごとく、装置の運転効率の大幅な改善が可能になっており、二次的な意義と簡単に言うことができない程、磁気分離特有の種々の利点を生むことが実証されている。

### 3.2.4 HGMSの粒径限界とバリエーション

最近、HGMSの微粒子捕獲プロセスに及ぼす拡散の効果を解析した結果が報告され、この中で、被分離粒子の磁性線上への捕獲を原理とするHGMSの粒径限界が明確になった。すなわち、被分離粒子の粒径対磁化率に制限領域があることが示された。種々の分野への磁気分離の適用性を検討しようとするとき、被分離粒子が具備すべき条件としての、粒径および磁化率の大きさに重要な指針を与える。表1にこの例を掲げる

表1 Brown運動が無視できない微粒子粒径の最大値

物質名	Fe	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	Mn <sub>2</sub> P <sub>2</sub> O <sub>7</sub>	α-Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CuO	Al	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Au
相対磁化率 $x^*$	-	-	4.72E-3	1.47E-3	2.42E-4	2.08E-5	-1.81E-5	-2.55E-5
d [Å]	300	400	1,500	2,000	3,000	5,000	7,500	6,000

注  $x^* = x_p - x_f$ ,  $x_p$ は物質の磁化率,  $x_f$ は分散媒(水)の磁化率( $x_f = -9.05E-6$ )

さらに、いくつかのHGMSのバリエーションも生まれた。被分離粒子の大きさや形状に関係なく、ただ磁化率の差のみで分離できる「磁化率勾配を利用した方法」、磁気フィルタの洗浄・再生時に外部磁界を切る、あるいはフィルタを交換する必要のない「フィルタマトリックスに電流を流す方法」と「HGMSの反発力を利用する方法」、外部磁界印加のための磁石が不必要な「磁化されたマトリックスを用いる方法」、フィルタマトリックスの耐食性の改善を目的とした「非晶質磁性合金を用いる方法」、原子力技術に関係のある重金属イオン除去への応用を目指した「微生物を利用した磁氣的種付け(Magnetic Seeding)法」などが、従来のHGMSを補うあるいは発展させた方式として提案されている。生物学の分野では血液組成の分離を初めとして、生体メカニズムの解明の新しい手法としての模索も行われている。

### 4. 今後の課題

高勾配磁気分離技術は、従来不可能とされていた大量の流体中の微粒子の高速分離を経済的に可能にする技術であり、将来の新・省エネルギー技術、資源・環境技術、公害防止技術などへの広範な適用が期待される反面、多様な分野の科学と技術を融合しないかぎり実用化への道のりは険しい。新しい応用領域の開拓と効率的な研究開発には、異分野研究者の交流と協力が重要な役割を演じると容易に想像できる。

磁気フィルタについては、現在までに膨大な研究成果が蓄積されているにもかかわらず、堆積効果や組み合わせ効果などの分離メカニズムの定量化が、まだ不十分のままである。従来の解析手法では限界があると考えられ、新しい手法の導入が待たれる。さらに粒径限界や提案されている種々の新しい方式の実験的裏付けと、実用性の検討も将来十分に行われる必要がある。

高勾配磁気分離は超電導化によって、その省エネルギー化、コンパクト化を通じ、また高速化を通じて、初めて本来の利点を発揮させ得るものと考えられる。超電導マグネットの導入、運転、維持、管理面の負担を最小にするための、システムの最適化手法—特に様々な用途別のきめの細かい最適化手法の開発にも注力すべきである。

## 4。3 研究論文（3）

原子力分野における磁気分離技術の応用の可能性

動燃事業団

和田幸男

1. まえがき

磁気分離技術は、一般工業界において強磁性体を含む物質の分離、回収技術として始まった。しかし、近年の強力磁場の実現、特に超電導磁気コイルの発達により、常磁性の超微粒子まで分離、回収できる可能性が出てきた<sup>1)</sup>。

いっぽう、原子力の核燃料サイクル技術では、原子炉の運転からその使用済燃料の再処理、廃棄物の処理、処分まで幅広い技術によって成り立っている。これらの技術は、分離技術が主要な技術である。これらの高度化技術として、安全性は十分に確保したうえで将来技術として、より効率的、簡素化された、しかも二次廃棄物を発生させない等の改善が求められている。

このようなニーズに答えた手法の一つとして、強磁場利用の磁気分離技術の適用が期待される。

2. 核燃料サイクル

原子力の全体概念を示す核燃料サイクルの概要を図-1に示す。これまでのこの分野における適応性研究として、原子炉関連の水処理<sup>2),3)</sup>と再処理清澄工程技術<sup>4)</sup>に適用する研究例がある。しかし、まだ実用化された例はほとんどない。そこでまず適用が期待される再処理関連の工程概要を以下に示す。

再処理では、使用済燃料中の再利用できるウランとプルトニウムを不要な核分裂生成物から分離、回収するもので、主に硝酸溶液を取り扱う工程技術から成っている。これらの工程技術は、高放射性物質の分離技術そのものであり、溶媒抽出分離が採用されている。この工程技術概要を図-2

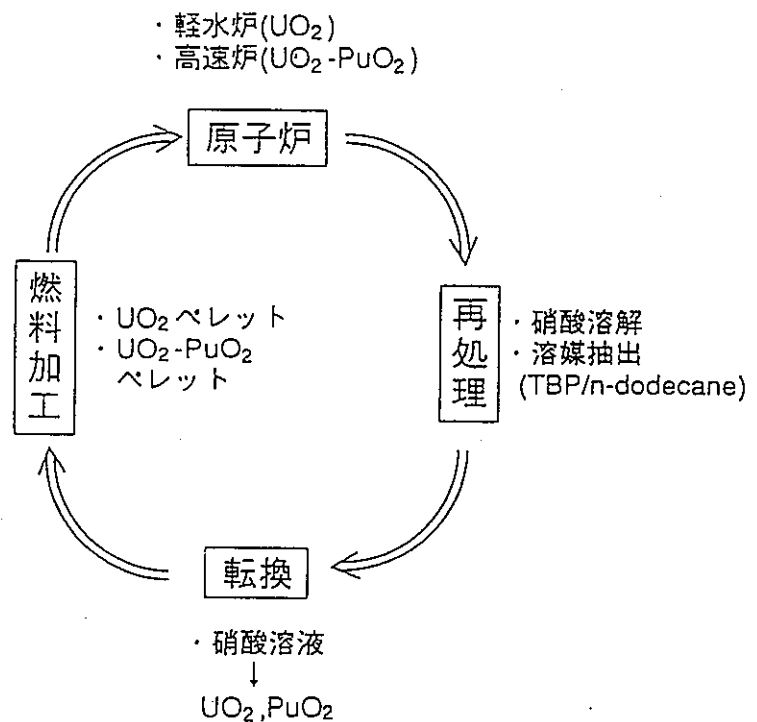


図1. 核燃料サイクル概要

に示す。また将来の核燃料サイクルとして、使用済燃料中のネプツニウムアメリシウムのような超ウラン元素も含めた燃料を作り、また白金族元素のような希少価値の高い元素を利用するなど、最終的な廃棄物をできるだけ少なくするサイクル技術が検討されている。そのようなサイクルの概念を図-3に示す。このようなサイクル技術を確認するためには、安全性、耐放射性に優れ、従来技術では分離が不可能な元素をも分離できる、新たな、簡便な技術が求められている。

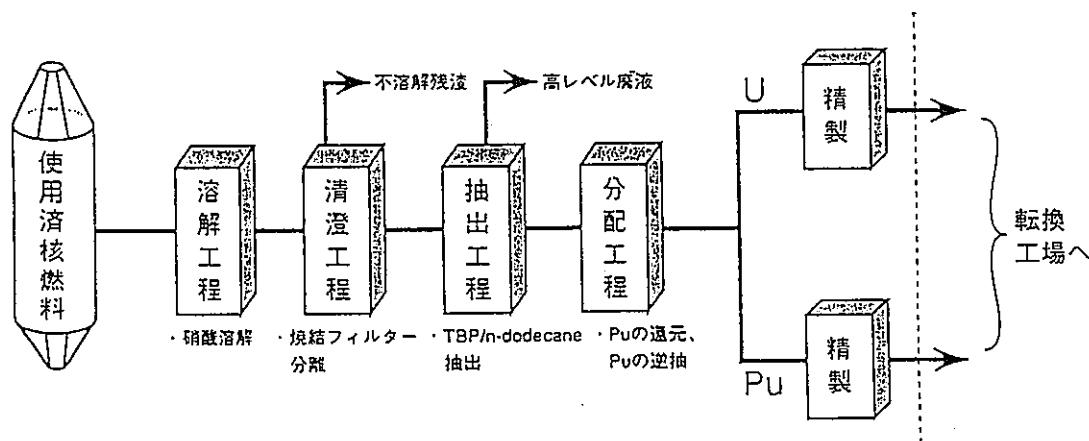


図2. 核燃料再処理工程フロー

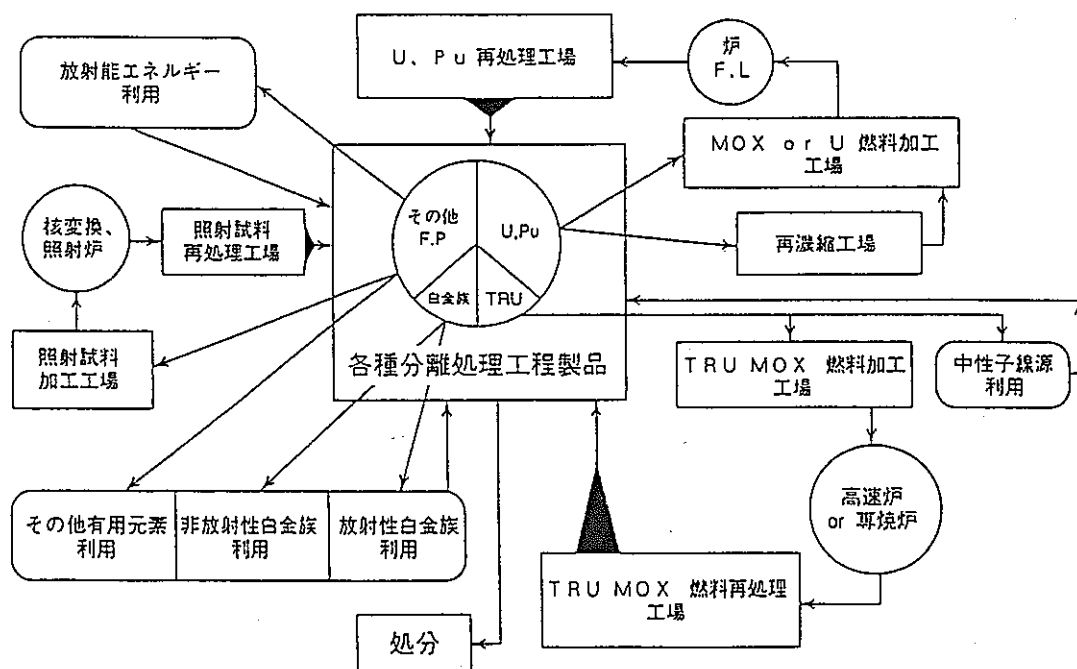


図3 将来の核燃料サイクルの一例

### 3. 将来技術としての磁気分離技術応用の可能性

第2節で述べたような今後の原子力にとって期待される新たな分離技術の一つとして、磁気分離技術がある。この技術による分離方法として、現在二つの手法が検討されている。それは、

- (1) 磁気フィルター法によるスラッジの分離回収、
- (2) 磁気クロマト法による液中溶解元素の分離

である。以下にその概要を示す。

#### (1) 磁気フィルター法によるスラッジの分離回収

最近の米国の応用研究例では、土壌中の放射性物質除去技術としての、高勾配磁気分離技術の適用性を評価したのがある<sup>5)</sup>。また SUS 磁性線などを用いた高勾配磁場（数テスラ）を用いた方法により、従来では分離回収が不可能であった常磁性物質の超微粒子（サブミクロン径）の分離が、可能になると予想される。そこで、我々は、再処理工程から発生する不溶解残渣の模擬試料を作成し、その可能性を解析評価した。表-1は、その試料の諸元を示したもので、このデータ等に基づき解析した。

その結果の一例を図-4に示す<sup>6)</sup>。この図では、超電導を用いた磁気分離法が0.1ミクロン径まで分離できることを示している。

また、酸化ニッケルと二酸化ウラン粉末を用いた基礎実験を行ない、その高い回収率を確認した。その結果を図-5に示す。このように、現状の従来技術よりもより効率的に分離回収できる可能性を示している。また回収された物質の逆洗は、電磁コイルの電源を切り洗浄するだけで済み、そのままの状態でもた次の工程液を処理できる。

このような、大きな利点があることから、この装置の運転上の信頼性と安全性が十分に確保できれば、図-6に示すようなホットセル内設置に対応した磁気分離システムが可能となるであろう。

表1 不溶解残渣模擬試料微粒子の諸元

物質名	分子当量 Mo <sup>※1</sup>	磁化率 cgs		密度 $\rho$ <sup>※1</sup>	磁化率 SI $\chi_{SI}(=4\pi\rho\chi_g)$	平均粒径 d[ $\mu\text{m}$ ]
		$\chi_{mol}$ <sup>※2</sup>	$\chi_g$ <sup>※3</sup> (= $\chi_{mol}/\text{Mo}$ )			
FBR小	68.1	3.50E-3	5.14E-5	11.69	7.55E-3	0.86
FBR大	96.2	1.00E-4	1.04E-6	11.47	1.50E-4	7.11
LWR	98.5	4.00E-4	4.06E-6	11.00	5.61E-4	3.81
LWR1	100.8	2.10E-4	2.08E-6	11.86	3.11E-4	3.21
LWR2	100.8	6.38E-3	6.33E-5	11.86	9.44E-3	0.85

<sup>※1</sup> 模擬試料微粒子を構成するMo,Ru,Rh,Pdの4種金属の組成割合、各金属の原子量と密度の値を用い計算した値。

<sup>※2</sup> 単位は[cc/mol]。 <sup>※3</sup> 同[cc/g]。

(2) 磁気クロマト法による液中溶解元素の分離

一般的な従来法による液中溶解元素の分離技術は、イオン交換分離、溶媒抽出分離、抽出クロマトグラフ、イオンクロマトグラフ及び電気泳動分離等が原子力技術に取り入られている。これらはいわば、すべてが化学的性質の違いを利用し、元素を分離しようとするものである。これに対し磁気クロマト法は、その元素または分子種がもつ磁化率の違いを利用し、相互に分離しようとするものである。そのため化学的な違いだけではどうしても分離できなかった元素が、分離できる可能性がある。

図-3で示したように将来の核燃料サイクルでは、核分裂生成物 (FP) を目的に応じ更に元素分離する。これらの中でランタノイド元素とアクチノイド元素は化学的に性質が似ているため、従来技術ではなかなか相互分離できない場合が多い。

そこで、磁化率の差を利用した分離法を適用する場合の基本と成る、各FP元素の磁

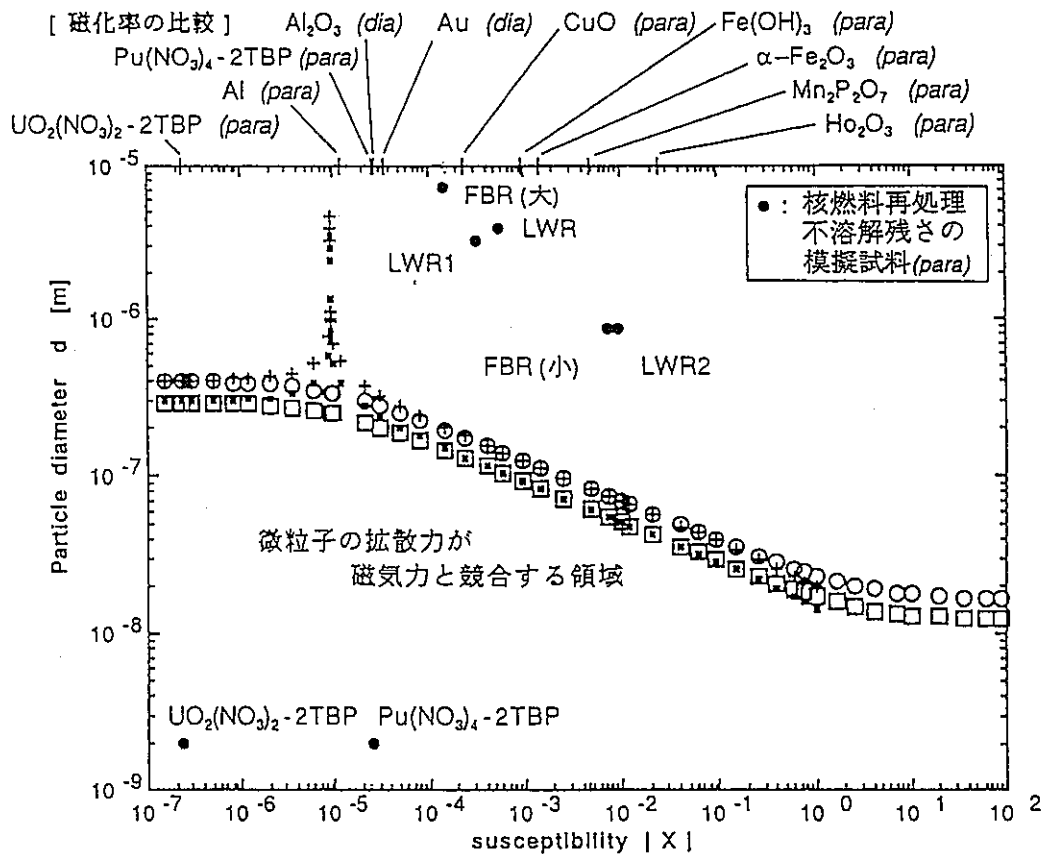


図4 従来形高勾配磁気分離の粒径限界

$\mu_0 H = 2 [T]$ : ○; 常磁性粒子の下限、+; 反磁性粒子の下限

$= 7 [T]$ : □; ◊; ■; ◊

上部の物質名とともに示した (para) と (dia) はそれぞれ常磁性と反磁性の種別を示す

化率<sup>7)</sup>を、元素組成割合と共に  
 図-7に示す。これらの磁化率  
 の差を利用した磁気クロマト  
 分離の分離概念を図-8に示す。  
 図に示す基本的な原理は、超  
 微粒子の磁気フィルター分離  
 による場合のように、磁性線  
 に付着固定されることでの分  
 離ではなく、液中の溶存分子  
 種と磁性線との相互作用によ  
 り、カラム方向に液中を移動  
 する速度の違いを利用したも  
 のである。この手法を利用す  
 ると、磁化率のある範囲にあ  
 る群ごとの分離（群分離）が  
 可能と予想される。その概念  
 を図-9に示す。この概念では、  
 ウランとプルトニウムの燃料  
 及びネプツニウムとアメリシ

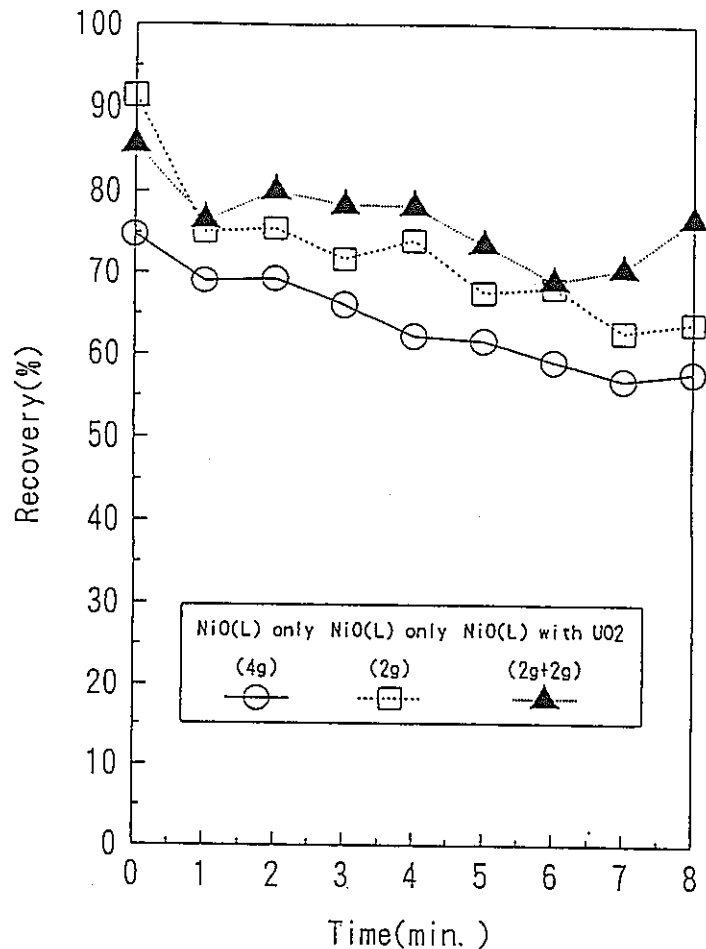


図5 酸化ニッケル(大)の捕集率の時間変化  
 酸化ニッケルの単一試料と二酸化ウランとの混合試料

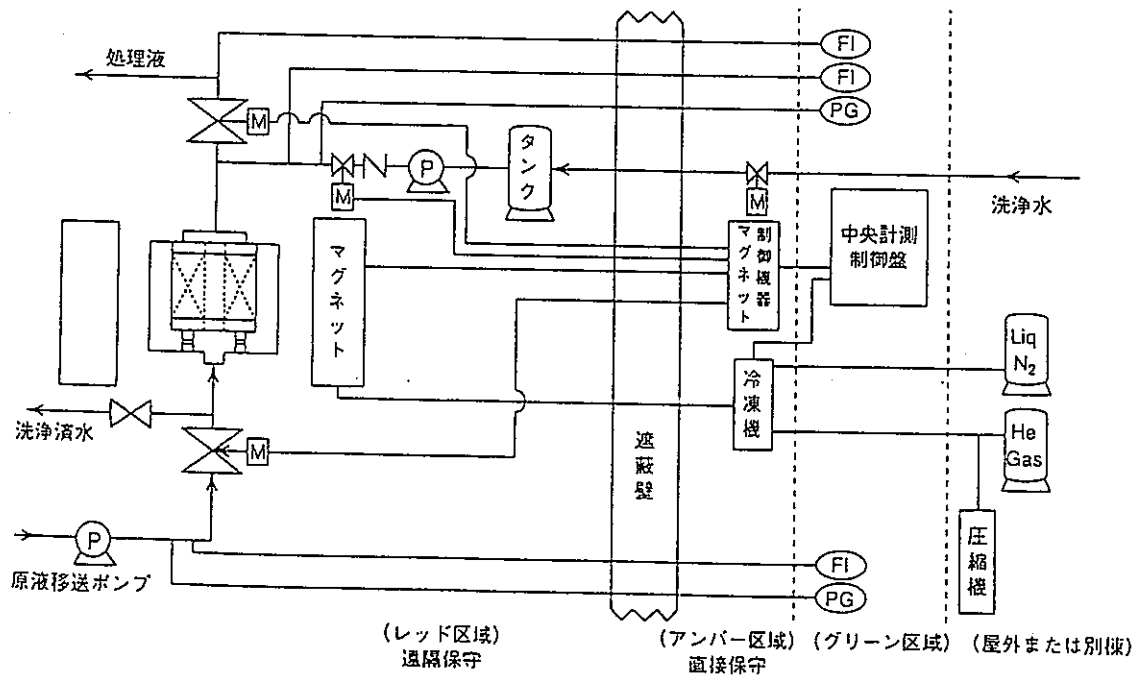


図6 ホットセル内磁気分離装置概念



ウムの TRU 元素が約 10% の FP と共に一緒に分離される。しかも同じ TRU 元素で混在させたくないキュリウム (Cm) が分離される可能性があることが示されている。このような、磁気クロマト分離法では、その分離カラム内の充填剤が耐放射性で、し

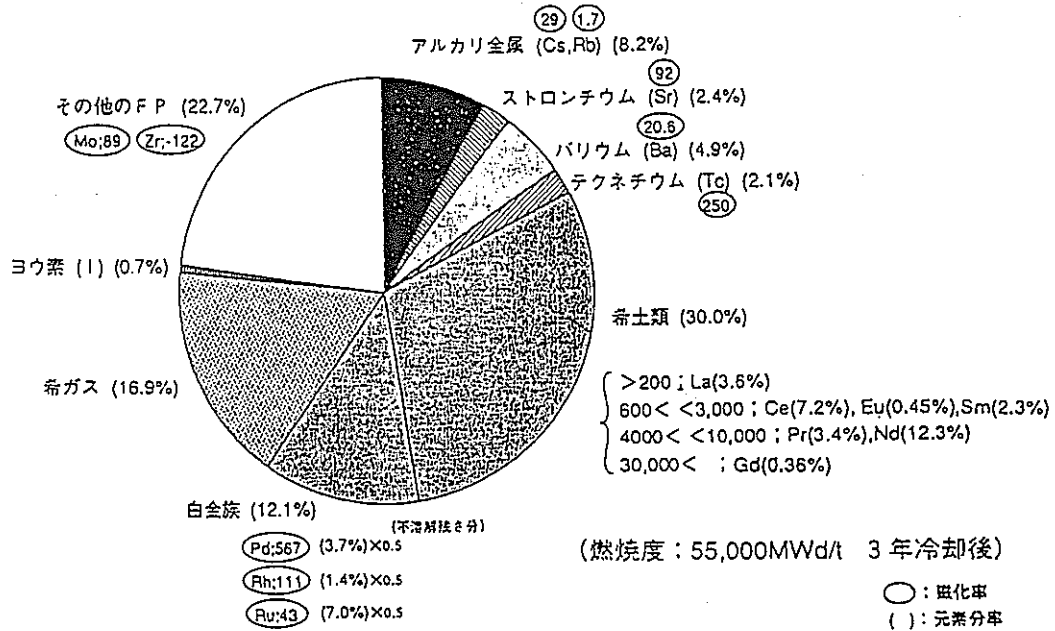


図7 PWR使用済燃料中に含まれるFPの内訳と磁化率

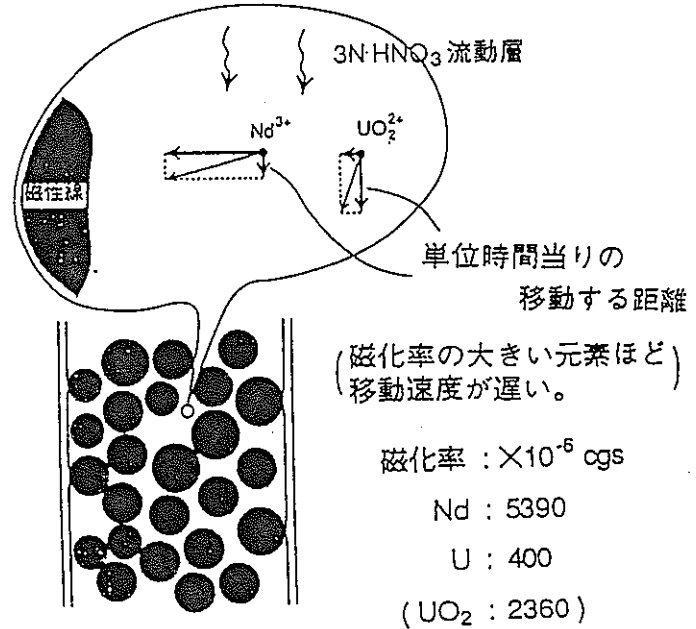
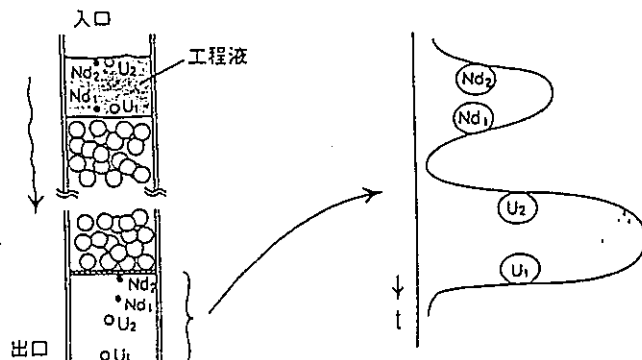


図8 磁気クロマト分離概念



かも耐硝酸性のステンレス磁性線等が使用出来ることから、工程が簡素化され、二次廃棄物の発生の少ない工程技術になると期待される。

以上のように、高勾配磁気分離技術には将来の原子力技術にとって、大きな利点のある要素技術になると思われる。しかし、原子力全般の工程技術は、十分な安全確保の実証が、なによりも優先される。そのため、これらの技術は今後さまざまな角度から十分に評価、解析されなければならない。

4. あとがき

本報告は、横浜国立大学 塚本修己 教授を主査とする、磁気分離技術検討WGで検討された内容を主に含んでいる。

参考文献

- (1) H. Elliott et al: Int. Water Conf. Eng. Soc. West. Pa. 41 st. p.57 (1980)
- (2) 早田文隆、他：日本応用磁気学会誌、Vol. 8, No.2 (1984)
- (3) B. B. Emory : IEEE Trans. Magn., Vol.17, No.6 . pp.3296-3298 (1981)
- (4) 早田文隆、他：日本原子力学会「昭61年会」 H.63 (1986)
- (5) L. R. Avens et al : WM'93 Proceeding vol.1, pp.787-789 (1993)
- (6) T. Ohara, S. Mori, Y.Oda, K. Yamamoto, Y. Wada, and O. Tsukamoto: The Fourth International Symposium on Field-Flow Fractionation (FFF'94) in Sweden, Lecture no.18 (1994.6.13)
- (7) D. R. Lide: CRC Handbook of Chemistry and Physics, 73rd Edition (1992)

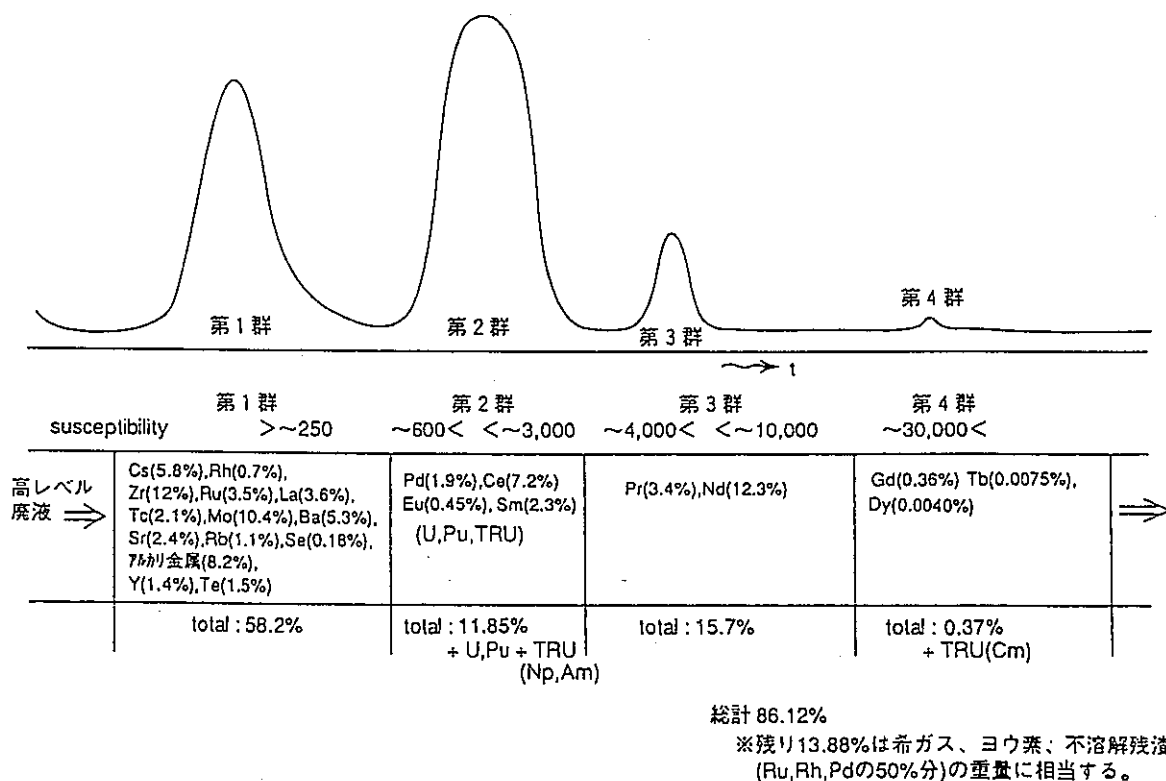


図9 磁気クロマト分離予想スペクトル

## 4。4 研究論文（4）

## 高勾配高磁界を用いた懸濁粒子の流動分画法 プロセス解析

電子技術総合研究所 小原健司

### 1 はじめに

化学反応を伴わない純粋な物理力の磁気力を利用する磁気分離技術は、化学薬品を使用することなしに、大量の希薄懸濁系を高速で分離できる。しかも磁界を切ることにより磁気力を消去できるので、分離システムの繰り返し使用が可能であり、二次廃棄物を排出しない。したがって、先端産業に汎用される有害物質の分離・濃縮工程における、環境汚染のリスクを伴わない新しい処理技術として有望である。

我々は、微細粒子に対応可能な高勾配磁気分離の粒径限界をさらに拡大できる可能性のある新しい方式—高勾配磁界流動分画法を考案し、分画プロセスを解析した。この結果を報告する。

### 2 高勾配磁界流動分画法 (High Gradient Magnetic Field Flow Fractionation)

考案したシステムの原理図を図2-1に示す。数百ミクロン程度の強磁性細線で上下を挟まれたチャンネル内に、被分離懸濁液を満たし、外部磁界を磁性線に垂直に印加する。磁性線付近には大きな磁界勾配が発生し、懸濁粒子に磁気力が働き、磁性線近傍と遠方では懸濁液の懸濁濃度に差を生じる。この状態のまま層流になるように静かに磁性線の長さ方向に懸濁液を流すと、チャンネル厚み方向における中央付近の微粒子がチャンネル出口から先に排出される。微粒子の磁性の大小によりチャンネル内部の濃度分布が異なるため、微粒子の磁性差が排出時間に差をもたらす。

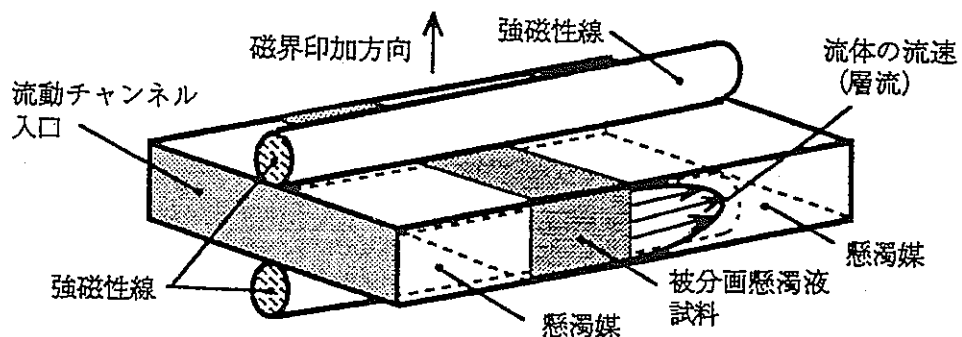


図2-1 高勾配磁界流動分画法原理図

例えば、図2-1のように厚み方向に磁界を印加すると、磁化率の大きい微粒子には磁性線方向への吸引磁気力が働き、チャンネル上下の壁面付近の懸濁濃度が高くなる。したがって、大磁化粒子は壁面近くに保持される。一方、磁化率の小さい懸濁粒子に

は小さな吸引力しか働かないので濃度差は大きくならない。そのために、下流へ流される速度は平均的にみて大磁化粒子より速い。この磁性差に起因する懸濁粒子の流れの時間差を利用して微粒子の種類を分画できる。

### 3 濃度分布の解析

#### 3.1 拡散と磁気力の平衡状態の式

物質の出現と消滅がないことを保証する物質保存条件から、濃度  $C$  を用いて、次式が成り立つ。

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{J} = 0 \quad (1)$$

粒子のフラックス  $\vec{J}$  は、濃度勾配による拡散と外力によるドリフトとの和で表わされる。

$$\vec{J} = \vec{J}_D + \vec{J}_F \quad (2)$$

$$\text{ただし、} \quad \vec{J}_D = -D \vec{\nabla} C \quad (3)$$

$$\vec{J}_F = \vec{V} C \quad (4)$$

(1)式に(2)~(4)式を代入すると次式となる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = \vec{\nabla} \cdot (D \vec{\nabla} C) - \vec{\nabla} \cdot (\vec{V} C) \quad (5)$$

$D$  は拡散係数で濃度  $C$  に依存しないとすると次式となる。

$$\frac{\partial C}{\partial t} = D \vec{\nabla}^2 C - \vec{\nabla} \cdot (\vec{V} C) \quad (6)$$

拡散係数  $D$  はネルンスト・アインシュタインの式で表わされる。

$$D = u k T \quad (7)$$

移動度  $u$  はストークス近似により次式で表わされる。

$$u = \frac{1}{6\pi\eta b} \quad (8)$$

ドリフト速度  $\vec{V}$  は外力  $\vec{F}$  を用いて次式で表わされる。

$$\vec{V} = u \vec{F} \quad (9)$$

外力  $\vec{F}$  に、粘性力などの磁気力  $\vec{F}_m$  以外の力を無視し、定常状態 ( $\partial C / \partial t = 0$ ) を仮定して、(7)~(9)式を(6)式に代入すると(10)式となる。

$$\frac{1}{6\pi\eta b} \left( k T \vec{\nabla}^2 C - \vec{\nabla} \cdot (\vec{F}_m C) \right) = 0 \quad (10)$$

(10)式より、拡散と磁気力の平衡状態の式が以下のように導出される。

$$kT\vec{\nabla}C - \vec{F}_m C = 0 \quad (11)$$

磁気力  $\vec{F}_m$  は、微粒子の静磁ポテンシャルエネルギー  $U_m$  の負の勾配であるから、(11)式は

$$\frac{kT}{C}\vec{\nabla}C + \vec{\nabla}U_m = 0 \quad (12)$$

したがって、以下のように変形できる。

$$\frac{kT}{C}dC + dU_m = 0 \quad (13)$$

$$\therefore C = \alpha \exp\left\{-\frac{U_m}{kT}\right\} \quad (14)$$

濃度  $C$  は、ポテンシャルエネルギーと初期条件を(14)式に与えることにより計算できる。

### 3. 2 静磁ポテンシャルエネルギー

懸濁液中では分散媒と同じ磁化率(= $\chi_f$ )の微粒子には磁気力が働かない。そのため、磁化率  $\chi_p$ 、体積  $V_p$  の微粒子の持つ静磁ポテンシャルエネルギー  $U_m$  は、真空中の静磁ポテンシャルエネルギー  $U_p$  と、この微粒子が仮に分散媒と同じ磁化率(= $\chi_f$ )を持つとした場合の真空中の静磁ポテンシャルエネルギー  $U_f$  との差で表わされる。

$$\begin{aligned} U_m &= -U_p + U_f \\ &= -V_p(\mu_0\vec{M}_p \cdot \vec{H})/2 + V_p(\mu_0\vec{M}_f \cdot \vec{H})/2 \end{aligned} \quad (15)$$

ただし微粒子は半径  $b$  の球で、一様磁化と仮定すると次式が成り立つ。

$$\vec{M}_p = \frac{3\chi_p}{3+\chi_p}\vec{H}^e, \quad \vec{M}_f = \frac{3\chi_f}{3+\chi_f}\vec{H}^e, \quad V_p = \frac{4\pi b^3}{3} \quad (16)$$

(15)、(16)式を整理して次式を得る。

$$U_m = -\frac{2\pi\mu_0 b^3}{3} \cdot \frac{9(\chi_p - \chi_f)}{(3+\chi_p)(3+\chi_f)} \cdot (\vec{H}^e \cdot \vec{H}^e) \quad (17)$$

### 3. 3 磁界分布

#### 3. 3. 1 一本の磁性線近傍の磁界と磁界ベクトルの内積

円柱磁性線断面の中心に原点を置く図3.3.1-1の円柱座標  $(r, \theta)$  において、磁化  $M^m$ 、直径  $2a$  の磁性線の長さ方向と直角な  $\theta=0$  方向に、均一な外部磁界  $H_0$  が印加されている場合を想定すると、 $\vec{H}^e$  の大きさ  $H^e$ 、あるいは、 $\vec{H}^e$  の  $r, \theta$  方向成分  $H_r, H_\theta$  は次の(18)~(20)式のようになる。

$$H^e = \sqrt{H_r^2 + H_\theta^2} \quad (18)$$

$$H_r = (H_0 + M^w a^2 / 2r^2) \cos \theta \quad (19)$$

$$H_\theta = -(H_0 - M^w a^2 / 2r^2) \sin \theta \quad (20)$$

磁性線半径  $a$  で規格化した(21)式のデカルト座標  $(x_a, y_a)$  を用いて、 $\vec{H}^e$  の  $x_a$ 、 $y_a$  方向成分  $H_x$ 、 $H_y$  を求めると、それぞれ(23)式と(26)式になる。これらの式を記号  $h_x$ 、 $h_y$  を用いて(24)式と(27)式で表記することにする。

$$x_a = r \cos \theta / a, \quad y_a = r \sin \theta / a \quad (21)$$

$$H_x = H_r \cos \theta - H_\theta \sin \theta \quad (22)$$

$$= H_0 \left( 1 + K_w \frac{x_a^2 - y_a^2}{(x_a^2 + y_a^2)^2} \right) \quad (23)$$

$$\equiv H_0 (1 + K_w \cdot h_x) \quad (24)$$

$$H_y = H_r \sin \theta + H_\theta \cos \theta \quad (25)$$

$$= H_0 K_w \frac{2x_a \cdot y_a}{(x_a^2 + y_a^2)^2} \quad (26)$$

$$\equiv H_0 \cdot K_w \cdot h_y \quad (27)$$

ただし、外部印加磁界は磁性線が飽和するに十分な大きさの磁界とする。

$$K_w = \frac{M^w}{2H_0} \quad (28)$$

つぎに、(17)式中の磁界ベクトルの内積を計算する。

$$(\vec{H}^e \cdot \vec{H}^e) = H_x^2 + H_y^2 \quad (29)$$

$$= H_0^2 \left\{ (1 + K_w \cdot h_x)^2 + (K_w \cdot h_y)^2 \right\} \quad (30)$$

$$= H_0^2 \left( 1 + \frac{K_w \cdot (2x_a^2 - 2y_a^2 + K_w)}{(x_a^2 + y_a^2)^2} \right) \quad (31)$$

### 3. 3. 2 多数本の隣接磁性線を考慮した磁界計算と磁界ベクトルの内積

前節の(24)式と(27)式から明らかなように、観測点の磁界  $\vec{H}^e$  ( $H_x, H_y$ ) は、印加された平等磁界  $\vec{H}_0$  に磁性線の存在に起因する磁界ひずみ分  $H_0 \cdot K_w \cdot \vec{h}$  を加えたものである。したがって、 $N$ 本の磁性線、1、2、3、 $\dots$ 、 $N$ の中心から見た観測点の座標を  $(x_{a1}, y_{a1})$ 、 $(x_{a2}, y_{a2})$ 、 $(x_{a3}, y_{a3})$ 、 $\dots$ 、 $(x_{aN}, y_{aN})$  とすると、次式が成り立つ。

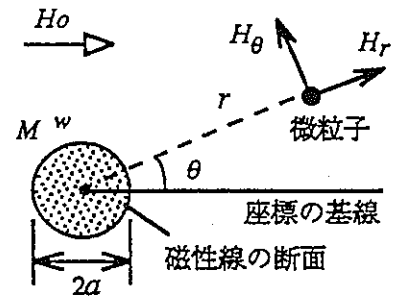


図3.3.1-1 円柱座標  $(r, \theta)$

$$H_x = H_0 \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi} \right) \quad (32)$$

$$H_y = H_0 \cdot K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi} \quad (33)$$

磁界ベクトルの内積は次式となる。

$$(\vec{H} \cdot \vec{H}) = H_x^2 + H_y^2 \quad (34)$$

$$= H_0^2 \left\{ \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi} \right)^2 + \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi} \right)^2 \right\} \quad (35)$$

ただし、記号  $h_{xi}$ 、 $h_{yi}$  は次式(36)式と(37)式である。

$$h_{xi} = \frac{x_{ai}^2 - y_{ai}^2}{(x_{ai}^2 + y_{ai}^2)^2} \quad (36)$$

$$h_{yi} = \frac{2x_{ai} \cdot y_{ai}}{(x_{ai}^2 + y_{ai}^2)^2} \quad (37)$$

### 3. 4 濃度分布の計算

#### 3. 4. 1 単一磁性線の場合

無限に大きな容器に懸濁液が満たされていて、その中で単一の磁性線が半径方向に磁界印加されているとする。この場合の濃度分布  $C$  は、(14)式に(17)式と(31)式を代入して以下の(38)~(40)式のように求められる。(ただし、限られた容積の容器の中に比較的多数の磁性線が配列されている場合には(13)式の積分定数の決定に、印加磁界の有無にかかわらず容器内微粒子の個数が不変という条件を用いなければならない。詳細は次節参照。)

$$C = C_0 \exp \left[ \frac{G_0}{4 \cdot K_w} \left\{ \left( 1 + K_w \cdot h_x \right)^2 + \left( K_w \cdot h_y \right)^2 - 1 \right\} \right] \quad (38)$$

$$= C_0 \exp \left( \frac{G_0}{2} \cdot \frac{x_a^2 - y_a^2 + \frac{1}{2} K_w}{(x_a^2 + y_a^2)^2} \right) \quad (39)$$

ただし 
$$G_0 \equiv \frac{4\pi b^3 M^w \mu_0 H_0}{3kT} \frac{9(\chi_p - \chi_f)}{(3 + \chi_p)(3 + \chi_f)} \quad (40)$$

(38)(39)式中の  $C_0$  は、 $G_0 = 0$  (すなわち印加磁界が零、磁性線の磁化が零、あるいは懸濁質と懸濁媒の磁化率が等しい) ときの懸濁濃度、または磁界ひずみのない無限遠での懸濁濃度である。

表3.4.1-1に示す数値を用いて(39)式を計算した結果が図3.4.1-1である。中心の円筒部分は円柱磁性線のある場所を示しており、濃度の値ではない。磁性線周囲では磁界印加方向の  $x$  方向に高濃度領域ができ、それと直交する  $y$  方向には低濃度領域ができる。磁性線配列とチャンネルの構造を工夫すれば、高または低濃度領域のみをチャンネル内部に発生させ、これを分離に利用できると考えられる。次節参照。



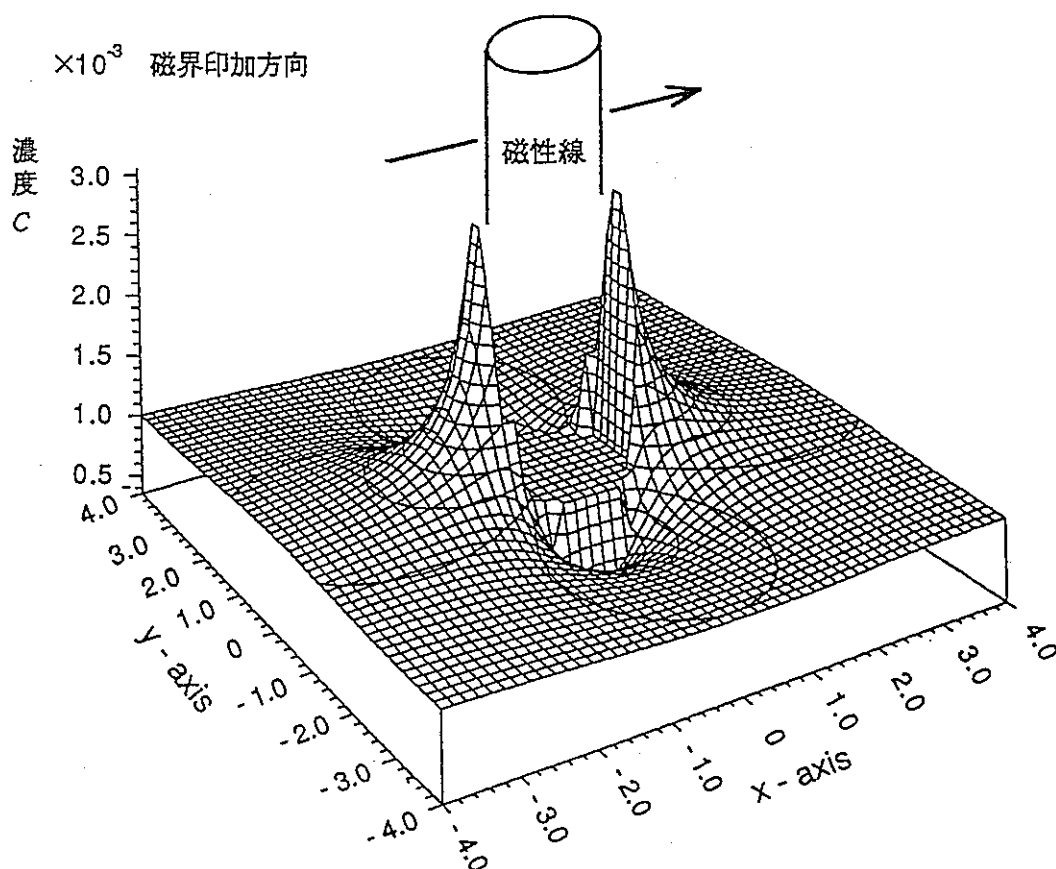


図3.4.1-1 単一磁性線近傍の懸濁微粒子の濃度分布の計算例

表3.4.1-1 計算に用いた数値

懸濁液の初期濃度 $C$	1.00E-3
微粒子の粒径 $2b$	100 [Å]
微粒子の磁化率 $\chi_p$	3.51E-3 (単体Nd)
分散媒の磁化率 $\chi_f$	- 8.88E-6 (TBP)
外部印加磁界 $\mu_0 H_0$	7.0 [T]
磁性線の線径 $2a$	200 [ $\mu\text{m}$ ]
磁性線の磁化 $\mu_0 M^*$	1.0 [T]
絶対温度 $T$	300 [K]
ボルツマン定数 $k$	1.38E-23 [J/K]

### 3. 4. 2 複数磁性線の場合

単一磁性線の場合と同様にして、複数の磁性線が外部磁界を印加された懸濁液中に配列されている場合は、(14)式に(17)式と(35)式を代入して微粒子の濃度分布  $C$  が(41)式のように求まる。

$$C = \alpha_0 \exp \left[ \frac{G_0}{4 \cdot K_w} \left\{ \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi} \right)^2 + \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi} \right)^2 - 1 \right\} \right] \quad (41)$$

ただし、ここでは容器容積が限定されているとし、磁界印加の有無によらず容器内微粒子の個数が不変という条件から(13)式の積分定数 ((41)式の  $\alpha_0$ ) を次式で確定する。

$$\alpha_0 = C_0 \frac{(\xi_c - \xi_s) \cdot (\psi_c - \psi_s)}{\int_{\xi_s}^{\xi_c} dx_a \int_{\psi_s}^{\psi_c} \exp \left[ \frac{G_0}{4 \cdot K_w} \left\{ \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi} \right)^2 + \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi} \right)^2 - 1 \right\} \right] dy_a} \quad (42)$$

ただし、右辺の分子は容器の  $(x_a, y_a)$  座標への投影断面積である。また分母の  $h_{xi}$ 、 $h_{yi}$  は(36)式と(37)式である。 $G_0$  は(40)式を参照。

$$h_{xi} = \frac{x_{ai}^2 - y_{ai}^2}{(x_{ai}^2 + y_{ai}^2)^2} \quad (36) \quad , \quad h_{yi} = \frac{2 x_{ai} \cdot y_{ai}}{(x_{ai}^2 + y_{ai}^2)^2} \quad (37)$$

(41)式による計算を図3.4.2-1の磁性線配列について行った例を図3.4.2-2に示す。

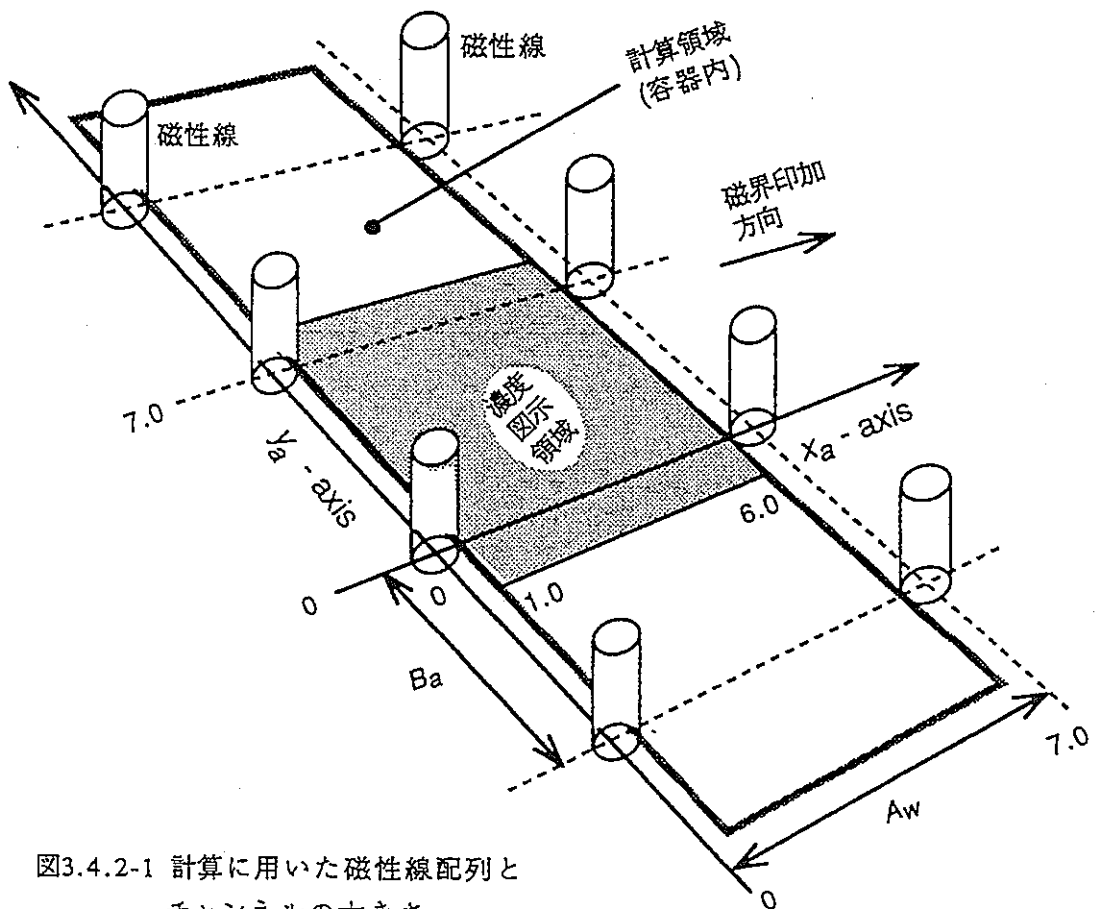


図3.4.2-1 計算に用いた磁性線配列とチャンネルの大きさ

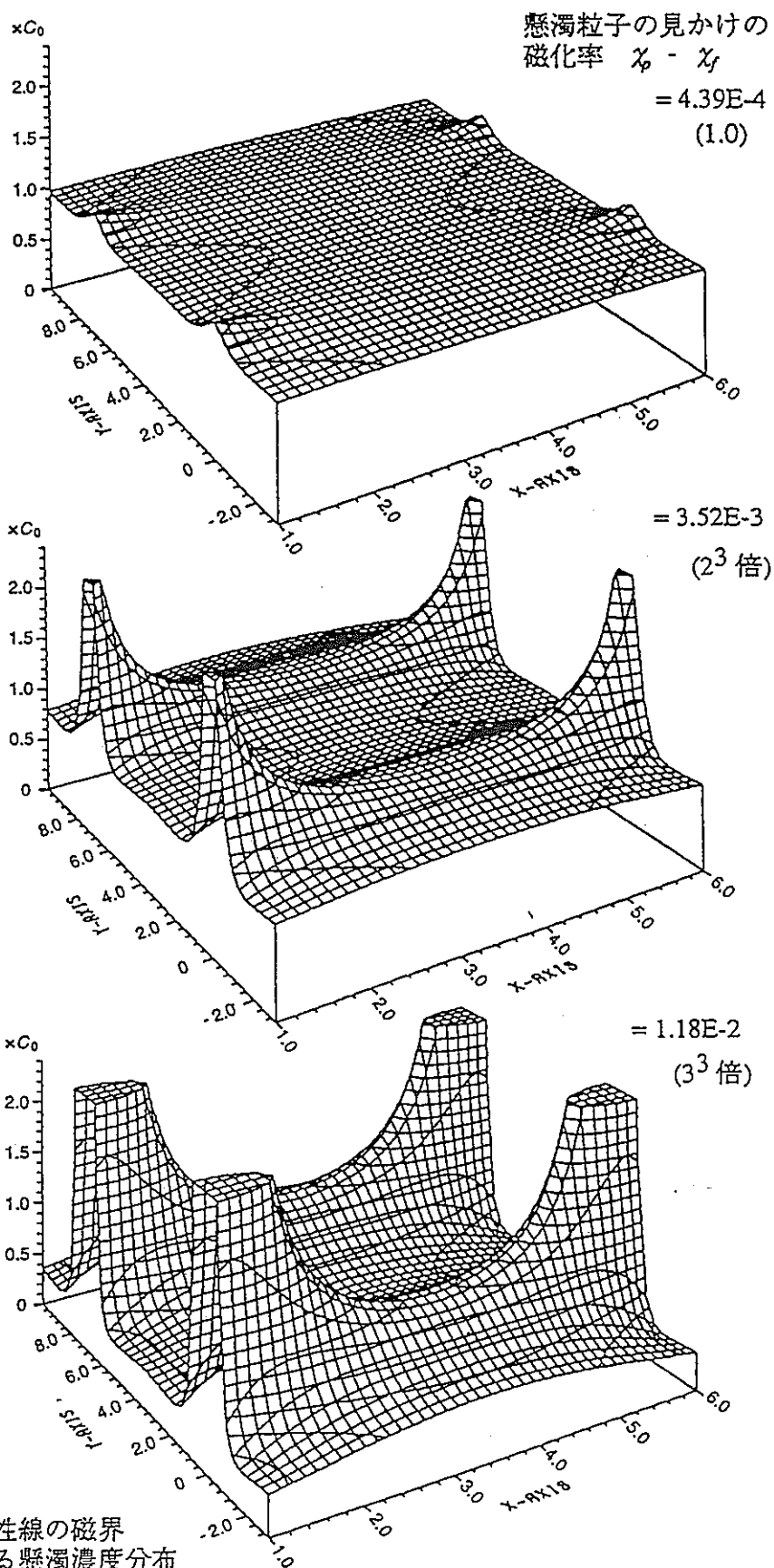


図3.4.2-2  
8本の磁性線の磁界  
勾配が作る懸濁濃度分布

### 3. 5 分画プロセスの解析

本節では、実際の流動分画動作を念頭に置き、試料懸濁液がチャンネル厚み方向にのみ拡散しながら下流へ移動する比較的簡単な計算モデルを設定した。このモデルについて  $x$ - $y$  平面の平均濃度の時間変化を近似的に計算する手法を考案した。

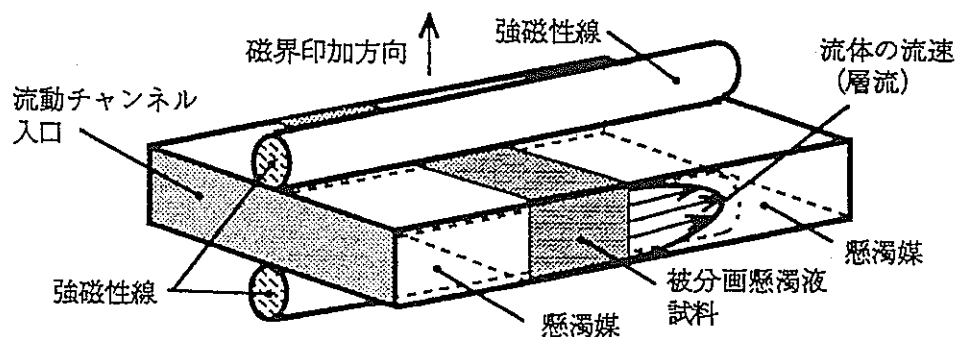
#### 3. 5. 1 高勾配磁界流動分画の計算モデル

再掲図2-1のチャンネル内の一部分に二種類の微粒子を含む試料懸濁液を滴した後、左から右方向へ静かに流した時、これらの懸濁液の  $x$ - $y$  平面の平均濃度がどのように変化するかを計算する。ただしチャンネルの上下の厚みは非常に薄いと見做し、懸濁微粒子の拡散は上下 ( $x$  方向) にだけ生じると仮定する。

拡散と流れは同時に起きるのであるが、計算を簡単にする目的で、このプロセスを次頁の図3.5.1-1の(b)(c)、(d)(e)、(f)(g)、あるいは(h)(i)のように、二つに分離して考える。すなわち、試料懸濁液の最上流側（再掲図2-1と次頁の図3.5.1-1では左側）では、微小時間内に純粋な懸濁媒が左から層流で懸濁液内に侵入し、つぎの瞬間に上下方向の微粒子の拡散が起きる。試料懸濁液の最下流側（再掲図2-1と次頁の図3.5.1-1では右側）でも同じように、懸濁液が右側の純粋な懸濁媒中に層流で侵入し、微小時間後に瞬時に懸濁微粒子が拡散する。つぎの微小時間にもまた同様のことが起きるのであるが、図3.5.1-1の(c)、(e)、(g)、あるいは(i)に示すように、流れ方向には拡散しないと仮定して、微小時間毎に濃度の異なる微小領域数が増加すると考える。

#### 3. 5. 2 チャンネル内の流体の濃度変化の計算

図3.5.1-1の(a)から(c)の状態に移行するときの懸濁液最上流側および最下流側での微小領域の平均濃度  $C_{0,1} \rightarrow C_{1,1}$ ,  $C_{0,l} \rightarrow C_{1,l+1}$  の変化を、それぞれ  $1.0 \rightarrow C_e$ ,  $0 \rightarrow C_s$  とする。ただし初期の試料懸濁濃度を  $1.0$  とし、試料懸濁液の分割数を  $l$  とする。これらの  $C_e$  と  $C_s$  (計算法は次節を参照) をそれぞれ保持係数、流出係数と名付けて用いると、図3.5.1-1の  $(i, j)$  番目の微小領域の平均濃度  $C_{i,j}$  は、図3.5.2-1のように計算できる。



再掲図2-1 高勾配磁界流動分画法原理図

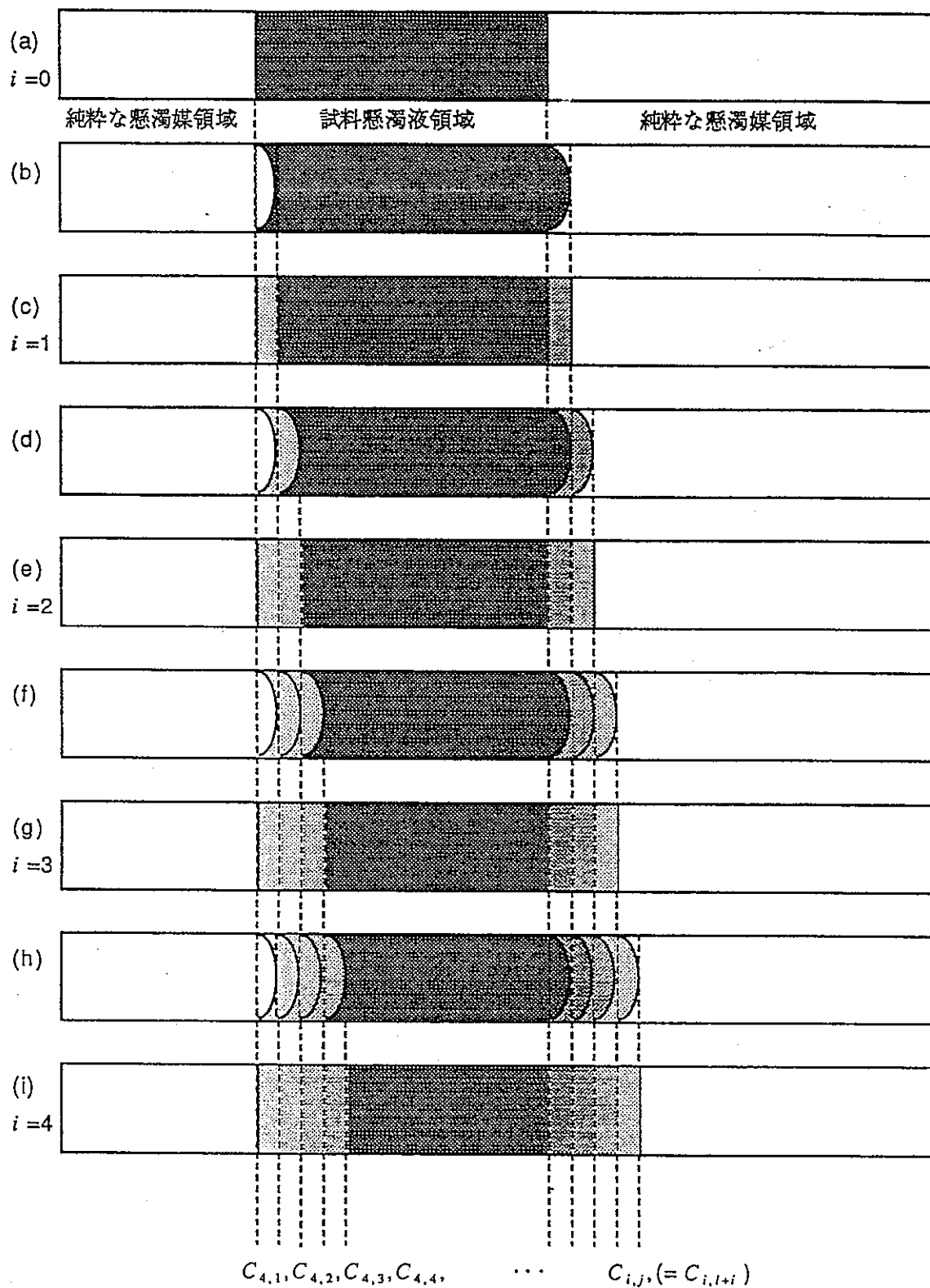


図3.5.1-1 プロセスモデルと計算記号

	1	2	3	...	$l$	...	$j$ 番目	...	...														
0	1	1	1	1	1	1	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	...		
1	$C_{1,1}$	1	1	1	1	1	$C_{1,7}$	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	...	
2	$C_{2,1}$	$C_{2,2}$	1	1	1	1	$C_{2,7}$	$C_{2,8}$	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	...	
3	$C_{3,1}$	$C_{3,2}$	$C_{3,3}$	1	1	1	$C_{3,7}$	$C_{3,8}$	$C_{3,9}$	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	...	
⋮	$C_{4,1}$	$C_{4,2}$	$C_{4,3}$	$C_{4,4}$	1	1	$C_{4,7}$	$C_{4,8}$	$C_{4,9}$	$C_{4,10}$	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	...	
⋮	$C_{5,1}$	$C_{5,2}$	$C_{5,3}$	$C_{5,4}$	$C_{5,5}$	1	$C_{5,7}$	$C_{5,8}$	$C_{5,9}$	$C_{5,10}$	$C_{5,11}$	0	0	0	0	0	0	0	0	0	0	...	
⋮	$C_{6,1}$	$C_{6,2}$	$C_{6,3}$	$C_{6,4}$	$C_{6,5}$	$C_{6,6}$	$C_{6,7}$	$C_{6,8}$	$C_{6,9}$	$C_{6,10}$	$C_{6,11}$	$C_{6,12}$	0	0	0	0	0	0	0	0	0	...	
$i$ 番目	$C_{7,1}$	$C_{7,2}$	$C_{7,3}$	$C_{7,4}$	$C_{7,5}$	$C_{7,6}$	$C_{7,7}$	$C_{7,8}$	$C_{7,9}$	$C_{7,10}$	$C_{7,11}$	$C_{7,12}$	$C_{7,13}$	0	0	0	0	0	0	0	0	...	
⋮	$C_{8,1}$	$C_{8,2}$	$C_{8,3}$	$C_{8,4}$	$C_{8,5}$	$C_{8,6}$	$C_{8,7}$	$C_{8,8}$	$C_{8,9}$	$C_{8,10}$	$C_{8,11}$	$C_{8,12}$	$C_{8,13}$	$C_{8,14}$	0	0	0	0	0	0	0	...	
⋮	$C_{9,1}$	$C_{9,2}$	$C_{9,3}$	$C_{9,4}$	$C_{9,5}$	$C_{9,6}$	$C_{9,7}$	$C_{9,8}$	$C_{9,9}$	$C_{9,10}$	$C_{9,11}$	$C_{9,12}$	$C_{9,13}$	$C_{9,14}$	$C_{9,15}$	0	0	0	0	0	0	...	
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	...	
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	...
⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	⋮	...

上表における  $C_{i,j}$  は次式で計算できる。

$j + 1$  あるいは  $j + i + 1$  のとき

$$C_{i,j} = C_e \cdot C_{i-1,j-1} + C_o \cdot C_{i-1,j}$$

$j = 1$  のとき

$$C_{i,j} = C_{i,1} = C_e^i$$

$j = i + 1$  のとき

$$C_{i,j} = C_{i,i+1} = C_o^i$$

図3.5.2-1 High Gradient Magnetic FFF のチャンネル内濃度の計算

### 3. 5. 3 保持係数 $C_e$ と流出係数 $C_o$ の計算

$i = 1$  のときの最上流側微小領域に残る懸濁粒子の体積を、磁界印加前にこの領域に満たされていた粒子の体積で割った値が保持係数  $C_e$  である。図3.5.3-1に計算モデルを示す。これを式で表現すると、チャンネル厚みを  $2W_a$  として次式となる。

$$\begin{aligned}
 C_e &= \frac{1}{2W_a(\psi_c - \psi_s) C_0} \int_1^{2W_a+1} dx_a \int_{\psi_s}^{\psi_c} \frac{(x_a - W_a - 1)^2}{W_a^2} \cdot C \, dy_a \quad (43) \\
 &= \frac{1}{2W_a(\psi_c - \psi_s) C_0} \int_1^{2W_a+1} dx_a \int_{\psi_s}^{\psi_c} \frac{(x_a - W_a - 1)^2}{W_a^2} \cdot \alpha_0 \cdot
 \end{aligned}$$

$$\exp \left[ \frac{G_0}{4 \cdot K_w} \left( \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi} \right)^2 + \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi} \right)^2 - 1 \right) \right] dy_a \quad (44)$$

同様にして  $i=1$  のときの最下流側懸濁液の微小領域の平均濃度を計算すれば流出係数  $C_3$  が求まるが、物質保存則から  $C_e + C_3 = 1$  の関係がある。 $C_e$  の計算結果が図3.5.3-2である。計算に用いたパラメータは表4.3.1-1参照。ただし、ここでは Nd と Pu 微粒子を想定し、粒径  $2b$  を  $10 \sim 320$  [Å] として磁性線 8 本の場合について計算した。

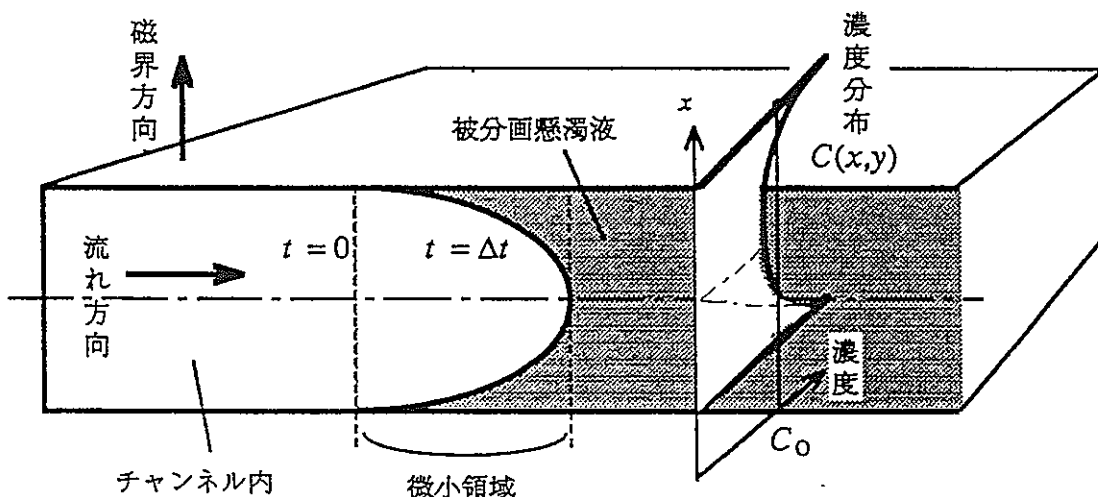


図3.5.3-1 保持係数  $C_e$  の計算

( $i=1$  のときの最上流側懸濁液の微小領域の平均濃度を計算して求める)

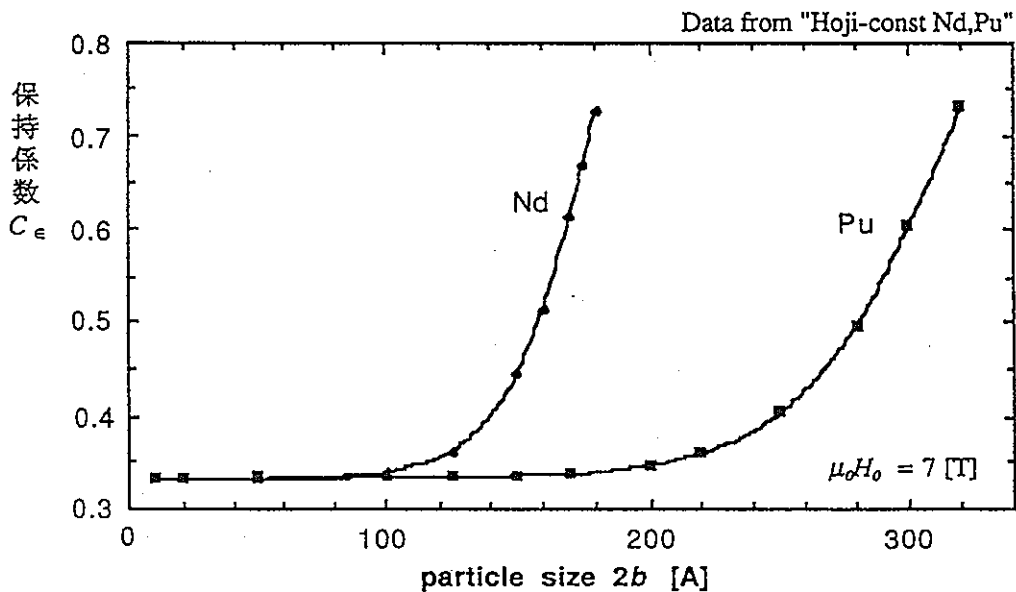


図3.5.3-2 保持係数  $C_e$  と流出係数  $C_3$  の計算結果

### 3. 5. 4 分画プロセスの計算例

図3.5.4-1は、前節の計算法を用い、単体の Nd と Pu の磁化率をそれぞれ  $3.51\text{E-}3$ 、 $6.23\text{E-}4$ 、印加磁束密度  $\mu_0 H_0$  7 [T]、微粒子の粒径  $2b$  を  $154.8$  [Å] とした場合の数値計算結果である。チャンネル内で分離してゆく様子がはっきり分かる。

線径  $200$  [ $\mu\text{m}$ ] の磁性線を用いて磁気フィルタを構成し、7 [T] の磁界を印加したとして計算した通常の高勾配磁気分離の限界粒径は Nd の場合約  $700$  [Å] であるから、この限界をはるかに越えており、しかも流れ方向の距離もそれほど長い必要はないように見える。

今後は、被分離粒子の磁化率・粒径とチャンネル必要長さや印加磁界強度との関係、あるいは拡散による濃度低下に起因する分離の限界などを明らかにしたい。

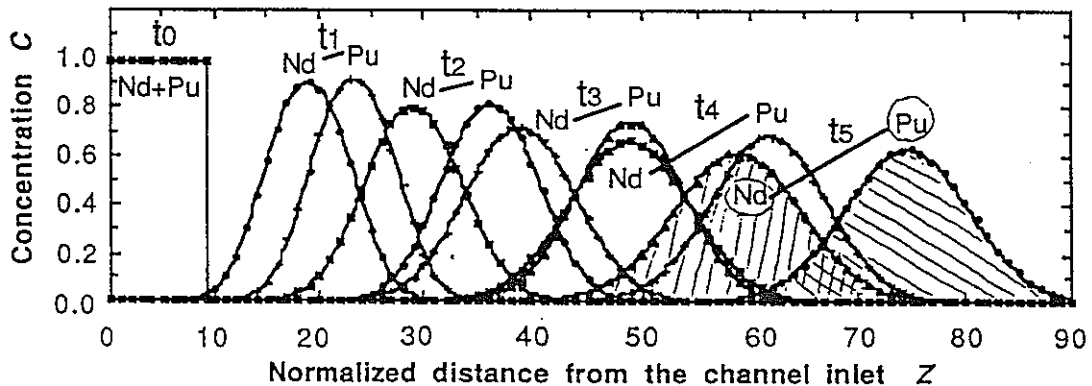


図3.5.4-1 分画プロセスの計算結果

## 4 まとめ

超微粒子の分離や分析を目的として、高勾配磁気分離(HGMS)とフィールド・フロー・フラクシオネーション(FFF)を折衷した手法—高勾配磁界流動分画法 (High Gradient Magnetic FFF) を提案し、性能を明らかにすることを試みた。

検討手順は以下のようである。(1) 一本磁性線の周囲に発生する高勾配磁界内の微粒子に働く磁気力と拡散力を定量的に検討し、超微粒子懸濁液の濃度分布の解析を行った。(2) この成果を基礎に、複数隣接磁性線の磁気力がチャンネル (カラム) 内の微粒子の濃度分布に与える影響 (以下磁性線隣接効果と呼ぶ) を検討するために、微粒子の拡散と磁気力の平衡式を定式化し、磁気力を求め、磁性線 8 本の場合の濃度分布に関して数値計算を実行した。(3) 高勾配磁界を用いた流動分画動作の定量的記述を目的にして、チャンネル内の微粒子濃度の時間変化を計算する手法を考案した。最後に、(5) 単体の Nd と Pu の粒径  $154.8$  [Å] の懸濁液の分離プロセスを計算した。

検討の結果以下の二点を明らかにした；(1)通常の高勾配磁気分離の粒径限界を越えた微細粒子を分離できる。(2)流れ方向のチャンネル長さは初期試料長の10倍程度必要。



参考文献

- 1) 小原健司：「サブミクロン粒子の磁気分離について」未踏科学技術協会新超電導材料研究会・エネルギー技術関連動向調査WG委員会資料 no.5、(1990.12.14)
- 2) 小原健司：「磁気分離に及ぼす拡散の影響」未踏科学技術協会新超電導材料研究会・エネルギー技術関連動向調査WG委員会資料 no.E3.7、(1991.1.24)
- 3) 塚本修巳、他 8 名、磁気分離技術に関する調査研究：動力炉・核燃料開発事業団委託研究成果報告書PNC ZJ 1556 91-001、未踏科学技術協会、東京、pp.5-6 (1991.3)
- 4) 小原健司：「微粒子の拡散力と磁気力との競合範囲」未踏科学技術協会新超電導材料研究会・磁気分離技術関連動向調査WG委員会資料 no.2.5、(1991.10.1)
- 5) 小原健司：「磁気分離の粒径限界の理論的検討」未踏科学技術協会新超電導材料研究会・磁気分離技術関連動向調査WG委員会資料、(1992.3.11)
- 6) 小原健司：「高勾配磁界により誘起される懸濁液微粒子の濃度勾配」未踏科学技術協会新超電導材料研究会・磁気分離技術関連動向調査WG委員会資料 no.4.2、(1992.1.17)
- 7) 小原健司、森 定雄：「高勾配磁界を用いたフィールド・フロー・フラクシヨネーション I. 磁界方向の濃度分布」未踏科学技術協会新超電導材料研究会・磁気分離技術関連動向調査WG委員会資料、(1992.3.11)
- 8) 塚本修巳、他 5 名、磁気分離技術に関する調査研究：動力炉・核燃料開発事業団委託研究成果報告書PNC ZJ 1556 92-001、未踏科学技術協会、東京、pp.3-16 (1992)
- 9) 小原健司：「高勾配磁界を用いたフィールド・フロー・フラクシヨネーション II. 磁性線隣接効果」未踏科学技術協会新超電導材料研究会・磁気分離技術関連動向調査WG委員会資料2-2、(1992.10.23)
- 10) 小原健司、森 定雄：「高勾配磁界を用いたフィールド・フロー・フラクシヨネーション III. 分画プロセスの解析」未踏科学技術協会新超電導材料研究会・磁気分離技術関連動向調査WG委員会資料2-3、(1992.10.23)
- 11) 小原健司、森 定雄：「高勾配磁界を用いたフィールド・フロー・フラクシヨネーション III. 分画プロセスの解析 (その 2)」未踏科学技術協会新超電導材料研究会・磁気分離技術関連動向調査WG委員会資料3-2、(1992.12.9)
- 12) 塚本修巳、他 5 名、磁気分離技術に関する調査研究：動力炉・核燃料開発事業団委託研究成果報告書PNC ZJ 1556 93-001、未踏科学技術協会、東京、pp.36-50 (1993.5)
- 13) M. Takayasu, R. Gerber and F.J. Friedlaender. 「Magnetic Separation of Submicron Particles」 IEEE Trans. Magn., vol.MAG-19, no.5, pp.2112-2114(1983)
- 14) R. Gerber, M. Takayasu and F.J. Friedlaender. 「Generalization of HGMS Theory The Capture of Ultrafine Particles」 IEEE Trans. Magn., vol.MAG-19, no.5, pp.2115-2117(1983)

## 4. 5 研究論文 (5)

## 研究論文 (5)

## SPECIAL MAT FOR IEE JAPAN POWER &amp; ENERGY

TO 81% COPY

FEASIBILITY OF USING MAGNETIC CHROMATOGRAPHY FOR  
ULTRA-FINE PARTICLE SEPARATIONTakeshi Ohara<sup>1</sup>, Sadao Mori<sup>2</sup>, Yoshihiro Oda<sup>3</sup>, Yukio Wada<sup>3</sup>, and Osami Tsukamoto<sup>4</sup><sup>1</sup>Electrotechnical Laboratory, 1-1-4 Umezono, Tsukuba-shi, Ibaraki 305, JAPAN<sup>2</sup>Mie University, 1515 Kamihama-cho, Tsu-shi, Mie 541, JAPAN<sup>3</sup>Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp., Tokai, Naka-gun, Ibaraki 319-11, JAPAN<sup>4</sup>Yokohama National University, 156 Tokiwadai, Hodogaya-ku, Yokohama 240, JAPANAbstract

We propose a new technique that uses *magnetic chromatography* for continuous separation of ultrafine particles (i.e. <1,000 Å diameter) from mixed colloids. The separation is done using field flow fractionation, and the separation results from differences in the magnetic susceptibility and volume of the ultrafine particles. Our theoretical analysis shows that high-gradient magnetic fields generate very steep distributions of the concentration of Nd fine particles that have a susceptibility  $3.5 \times 10^3$  and a diameter of about 100 to 150 Å. Our magnetic chromatography can be done by applying flow fractionation to the concentration distribution in a channel from 5 to 50 μm thick and using embedded ferromagnetic wires from 2 to 20 μm in diameter. A simplified numerical simulation of our magnetic chromatography technique suggests the potential of separating very weak paramagnetic materials (e.g., Pu and Nd) which we have not been able to deal with through the conventional high-gradient magnetic separation techniques.

Introduction

When a vessel filled with thin ferromagnetic wires that are 10 - 100 μm in diameter and with a colloidal suspension is placed in a magnetic field, a strong magnetic force acts on fine particles near the wires [1]. The distorted magnetic field near the wires is known as a High Gradient Magnetic Field (HGMF), and when this HGMF is applied to particle capture it is known as High Gradient Magnetic Separation (HGMS)[2]. One remarkable feature of HGMS is that the capture process originates from its strong and remote magnetic force, and thus yields very low secondary waste generation when applied to nuclear fuel engineering. Consequently, HGMS has been used in kaolin beneficiation, steel mill water filtration, etc.[3,4] where a large amount of slurry must be processed both at high speed and at low cost. An important future application is nuclear fuel reprocessing.

We propose what we call *magnetic chromatography (MC)*, which is based on applying HGMF and a high-intensity magnetic field (attained by using a superconducting magnet) on a flow fractionation (or separation) process[5]. Our MC system is characterized by magnetic separation and single-phase chromatography (i.e., only a mobile phase). Thus, no stationary phase is needed, and consequently, in the case of nuclear fuel reprocessing, the MC

system saves secondary radioactive waste. Moreover, there is a possibility that chemically similar but magnetically dissimilar materials, such as lanthanide (e.g., Nd) and actinide (e.g., Pu) elements can be separated using the MC system. In this paper, first we describe the principle behind MC. Then, we model the MC process. Finally, we do a numerical simulation of this MC system applied to nuclear fuel reprocessing.

Principle

Magnetic field distortion occurs when a uniform magnetic field is applied normal to thin ferromagnetic wires. The thinner the wire, the greater the field distortion. The HGMF generates a strong force in the direction of the magnetic field gradient.

Let us consider a fluid that flows in a channel transverse to the magnetic field gradient (Fig.1) where a magnetic field is applied in either the *x* or *y* direction. Then, the particles are distributed in the cross-section of the channel according to the magnetization (and volume) of each particle. At the same time, the viscous flow in the axial direction has velocity profile that depends on the distance from the inside wall of the channel (Fig.1). Hence, fractionation (or separation) of the particles occurs. If the flow is laminar, then weak magnetic particles gather near the center of the channel, and because they have higher velocity than other particles, they are the first particles to exit the channel.

In the MC system, a high-intensity magnetic field (attained by using a superconducting magnet) combined with thin channels (achieved by using micro-machining technologies), increases the particle magnetization and the magnetic force. In contrast, if the particle volume or magnetization is too large, particles cannot flow due to a too-large magnetic force and thus are captured onto the wall. This corresponds to the conventional HGMS.

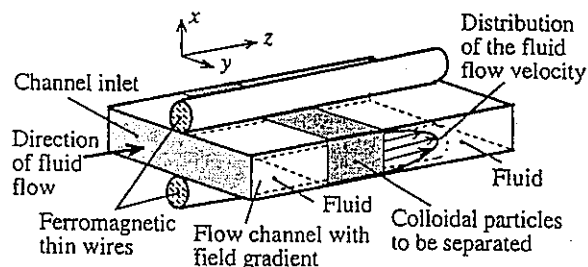


Fig.1 The principle of proposed magnetic chromatography

SPECIAL MAT FOR IEE JAPAN POWER & ENERGY

TO 81% COPY

Theoretical Analysis

Fig.2 shows our model of the MC system in which eight thin ferromagnetic wires of diameter  $2a$  are placed in a flow channel. A uniform magnetic field,  $H_0$ , is applied in either the  $x$  or  $y$  direction and normal to both the wires and to the flow direction. Flow is in the  $z$  axial direction.

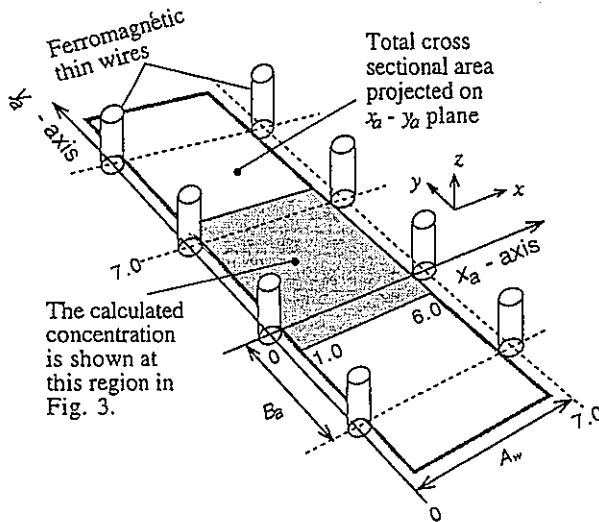


Fig.2 Calculation model showing wire arrangement and flow channel size  
(Both  $x$  and  $y$  axes are normalized by the wire radius  $a$ )

Particle Diffusion and Magnetic Force at Steady State

The particle concentration,  $C$ , in the vicinity of a wire is given by the solution of the following equation by assuming mass conservation:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{J} = 0 \quad (1)$$

where  $\vec{J}$  is particle flux and  $t$  is elapsed time.

At steady state conditions ( $\partial C / \partial t = 0$ ), we obtain the following relationship between the particle concentration  $C$  and the magnetostatic energy,  $U_m$ .

$$\frac{\kappa T}{C} \vec{\nabla} C + \vec{\nabla} U_m = 0 \quad (2)$$

$$\therefore C = \alpha \exp \left\{ -\frac{U_m}{\kappa T} \right\} \quad (3)$$

where  $\kappa$  is the Boltzmann constant,  $T$  is temperature, and  $\alpha$  is an integration constant.

Magnetostatic Energy

The magnetic force induced on a particle in suspension is a function of the difference between the magnetic susceptibility of the medium,  $\chi_f$ , and the magnetic susceptibility of the particle,  $\chi_p$ . we define the resulting

magnetostatic energy of a particle,  $U_m$ , with volume,  $V_p$ , as follows:

$$U_m = U_p - U_f = -V_p(\mu_0 \vec{M}_p \cdot \vec{H}) / 2 + V_p(\mu_0 \vec{M}_f \cdot \vec{H}) / 2 \quad (4)$$

where  $U_p$  is the magnetostatic energy of only the particle,  $U_f$  is the magnetostatic energy of fluid displaced by the particle,  $\vec{M}_p$  is the particle magnetization,  $\vec{M}_f$  is the magnetization of the dispersion medium with the same volume as a particle, and  $\vec{H}$  is the distorted magnetic field near a wire.

By assuming a spherical particle of radius  $b$  and uniform magnetization  $\vec{M}_p$ , we obtain

$$\vec{M}_p = \frac{3\chi_p}{3+\chi_p} \vec{H}^e \quad (5), \quad \vec{M}_f = \frac{3\chi_f}{3+\chi_f} \vec{H}^e \quad (6), \quad V_p = \frac{4\pi b^3}{3} \quad (7)$$

By substituting eqn. (4) into eqns. (5) - (7), we obtain an equation for the magnetostatic energy of a particle in a fluid under an applied magnetic field:

$$U_m = -\frac{2\pi\mu_0 b^3}{3} \frac{9(\chi_p - \chi_f)}{(3 + \chi_p)(3 + \chi_f)} (\vec{H}^e \cdot \vec{H}^e) \quad (8)$$

Inner Product of the Magnetic Field Vectors

The  $\vec{H}^e (H_x, H_y)$  is the sum of the applied magnetic field  $\vec{H}_0$  and its distorted component  $H_0 \cdot K_w \cdot \vec{h}$  (where  $K_w$  is  $M^w / 2H_0$ ,  $M^w$  is wire magnetization, and  $\vec{h}$  is a field distortion factor). When multiple cylindrical wires are placed in a uniform magnetic field  $\vec{H}_0$ , equations (9) - (12) below are derived. We adopt the Cartesian coordinates ( $x, y, z$ ) here, where the  $z$ -axis is in the axial direction of the wire.

$$H_0 // x : (\vec{H}^e \cdot \vec{H}^e) = H_x^2 + H_y^2 \quad (9)$$

$$= H_0^2 \left\{ \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi}^2 \right) + \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi}^2 \right) \right\} \quad (10)$$

$$H_0 // y : (\vec{H}^e \cdot \vec{H}^e) = H_x^2 + H_y^2 \quad (11)$$

$$= H_0^2 \left\{ \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi}^2 \right) + \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi}^2 \right) \right\} \quad (12)$$

where  $H_0 // x$  and  $H_0 // y$  mean that an external field  $\vec{H}_0$  is applied parallel to the  $x$ -axis and the  $y$ -axis, respectively. The components of the vectors  $\vec{h}^x (h_{xi}^x, h_{yi}^x)$  and  $\vec{h}^y (h_{xi}^y, h_{yi}^y)$  are expressed as

$$h_{xi}^x = -h_{yi}^y = \frac{x_{ai}^2 - y_{ai}^2}{(x_{ai}^2 + y_{ai}^2)^2} \quad (13)$$

$$h_{xi}^y = h_{yi}^x = \frac{2x_{ai} \cdot y_{ai}}{(x_{ai}^2 + y_{ai}^2)^2} \quad (14)$$

where  $(x_{ai}, y_{ai})$  represents the coordinates that are normalized by the wire radius  $a$  have their origin at the center of the  $i$ th wire.

Particle Concentration

The particle concentration,  $C$ , is derived by substituting either eqn. (10) or (12) into eqn. (8), and then substituting

SPECIAL MAT FOR IEE JAPAN POWER & ENERGY

TO 81% COPY

the result into eqn. (3). Thus, for  $H_0 \parallel x$ , the concentration is

$$C = \alpha_0 \exp \left[ \frac{G_0}{4 \cdot K_w} \left\{ \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi}^2 \right) + \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi}^2 \right) - 1 \right\} \right] \tag{15}$$

In eqn. (15),  $\alpha_0$  is the integration constant for an initial particle concentration,  $C_0$ , when no magnetic field is applied. We determine  $\alpha_0$  by assuming that the number of the particles in the channel is independent of the magnetic field intensity and is defined as

$$\alpha_0 = C_0 \frac{(\xi_c - \xi_s)(\psi_c - \psi_s)}{\int_{\xi_s}^{\xi_c} dx_a \int_{\psi_s}^{\psi_c} \exp \left[ \frac{G_0}{4 \cdot K_w} \left\{ \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi}^2 \right) + \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi}^2 \right) - 1 \right\} \right] dy_a} \tag{16}$$

where the numerator is the total cross sectional area of the channel projected on the  $x_a - y_a$  plane. Furthermore, we define  $G_0$  as

$$G_0 = \frac{4\pi b^3 M'' \mu_0 H_0}{3\kappa T} \frac{9(\chi_p - \chi_f)}{(3 + \chi_p)(3 + \chi_f)} \tag{17}$$

Similarly, for  $H_0 \parallel y$ , the particle concentration is

$$C = \alpha_0 \exp \left[ \frac{G_0}{4 \cdot K_w} \left\{ \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi}^2 \right) + \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi}^2 \right) - 1 \right\} \right] \tag{18}$$

$$\alpha_0 = C_0 \frac{(\xi_c - \xi_s)(\psi_c - \psi_s)}{\int_{\xi_s}^{\xi_c} dx_a \int_{\psi_s}^{\psi_c} \exp \left[ \frac{G_0}{4 \cdot K_w} \left\{ \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi}^2 \right) + \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi}^2 \right) - 1 \right\} \right] dy_a} \tag{19}$$

Fig.2 shows the model configuration and Table 1 lists the parameters used in our calculations. The example results shown in Fig.3 correspond to the shaded region shown in Fig.2.

Table 1 Model Parameters

Initial particle concentration $C_0$	1.00E-3*
Particle diameter $2b$	10 - 500 Å
Particle susceptibility $\chi_p$	3.51E-3 (Nd), 6.23E-4 (Pu)
Dispersion medium susceptibility $\chi_f$	- 8.88E-6 (Tributylphosphate)
Applied magnetic field $\mu_0 H_0$	2.0 - 28.0 T
Wire diameter $2a$	20 $\mu$ m
Wire magnetization $\mu_0 M''$	1.0 T
Temperature $T$	300 K
Channel thickness $A_w - 2a$	50 $\mu$ m
Boltzmann constant $\kappa$	1.38E-23 J/K

\*E-3 means  $\times 10^{-3}$ .

Time Required to Reach Steady-State Particle Concentration

Although the time dependent solution of eqn. (1) can be found numerically, we can simplify the analysis by

estimating the time required for the concentration distribution to reach steady state by using the Einstein relation for the square mean value of the diffusion length  $x^2$

$$\overline{x^2} = 2tD \tag{20}$$

$$D = \kappa T / (6\pi\eta b) \tag{21}$$

where  $D$  is the diffusion coefficient according to Stokes Law (assuming a spherical particles of radius  $b$ ), and  $\eta$  is the viscosity of the colloid.

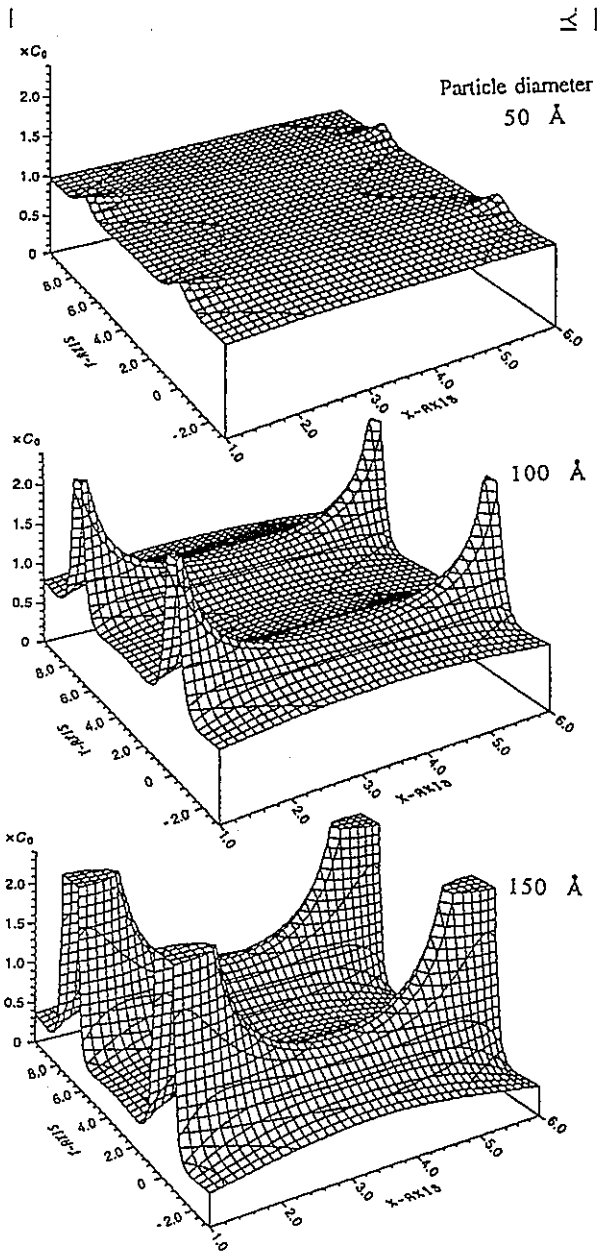


Fig.3 Theoretical results for the Nd concentration generated with HGMP (Magnetic field  $\mu_0 H_0 = 7$  T was applied in the  $x$  direction. The other parameters are listed in Table 1.)

SPECIAL MAT FOR IEE JAPAN POWER & ENERGY

TO 81% COPY

Assuming  $\bar{x}^2 = ((A_w - 2a)/2\sqrt{2})^2 = (50 \mu\text{m}/2\sqrt{2})^2$ ,  $2b = 100 \text{ \AA}$ ,  $\eta = 0.85 \times 10^{-3} \text{ kg/m}\cdot\text{s}$ , and other parameters as listed in Table 1, we obtain  $t = 3 \text{ s}$  from eqns. (20) and (21). Furthermore, when we assume a channel thickness of  $5 \mu\text{m}$ , we obtain  $t = 0.03 \text{ s}$ . This estimation shows that the channel thickness should be very small (i.e., < several  $10 \mu\text{m}$ ) if the actual processing time for particle separation is to be realistic.

Simulation of the Fractionation Process in the MC System

We numerically simulated magnetic chromatography by using the model system shown in Fig.4. We assumed that colloidal particles only diffuse in the direction of  $x$ -axis. This assumption is valid because the channel thickness is very small compared with the width. We also assumed laminar flow. Although diffusion and flow occur simultaneously, to simplify our simulation we separate them by dividing the time into consecutive  $\Delta t$  periods in which  $\Delta t$  is the time required to reach steady state in a segment. Fig.4 shows this process. A small amount of the dispersion media flows into a colloidal area in time  $\Delta t$  (as shown in (b), (d), (f), (h)), and then the colloidal particles diffuse in the direction of the  $x$ -axis (as shown in

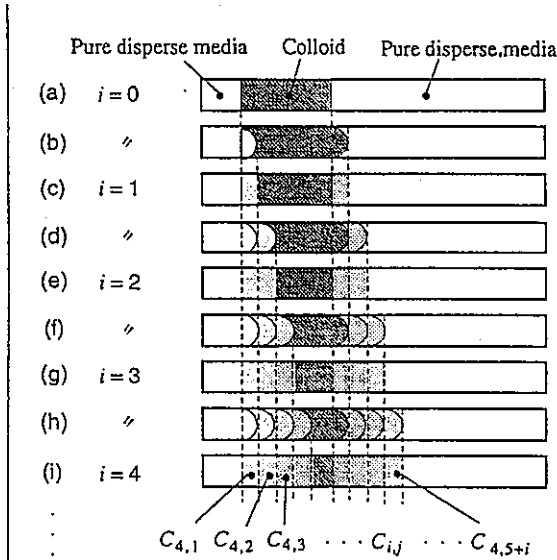


Fig.4 The simulation model

(c), (e), (g), (i)). Fig.5 shows the numerical series determined using the following equations.

$$C_{i,j} = C_e \cdot C_{i-1,j-1} + (1 - C_e) \cdot C_{i-1,j} \quad (22)$$

where  $j \neq 1$  or  $j \neq i + 1$ .

$$C_{i,j} = C_{i,1} = C_e^i \quad (23)$$

where  $j = 1$ .

$$C_{i,j} = C_{i,i+1} = (1 - C_e)^i \quad (24)$$

where  $j = i + 1$ .

	$j=1$	$2$	$3$	$4$	$5$	$6$	$7$	$8$	$9$	$10$	$11$	$\dots$
$i=0$	1	1	1	1	1	0	0	0	0	0	0	$\dots$
1	$C_{1,1}$	1	1	1	$C_{1,6}$	0	0	0	0	0	$\dots$	
2	$C_{2,1}$	$C_{2,2}$	1	1	$C_{2,6}$	$C_{2,7}$	0	0	0	0	$\dots$	
3	$C_{3,1}$	$C_{3,2}$	$C_{3,3}$	1	1	$C_{3,6}$	$C_{3,7}$	$C_{3,8}$	0	0	0	$\dots$
4	$C_{4,1}$	$C_{4,2}$	$C_{4,3}$	$C_{4,4}$	1	$C_{4,6}$	$C_{4,7}$	$C_{4,8}$	$C_{4,9}$	0	0	$\dots$
5	$C_{5,1}$	$C_{5,2}$	$C_{5,3}$	$C_{5,4}$	$C_{5,5}$	$C_{5,6}$	$C_{5,7}$	$C_{5,8}$	$C_{5,9}$	$C_{5,10}$	0	$\dots$
6	$C_{6,1}$	$C_{6,2}$	$C_{6,3}$	$C_{6,4}$	$C_{6,5}$	$C_{6,6}$	$C_{6,7}$	$C_{6,8}$	$C_{6,9}$	$C_{6,10}$	$C_{6,11}$	$\dots$
$\dots$	$\dots$	$\dots$	$\dots$	$\dots$	$\dots$	$\dots$	$\dots$	$\dots$	$\dots$	$\dots$	$\dots$	$\dots$

Fig.5 The series of concentration at each segment ( $C_p$  is normalized by an initial concentration value  $C_0$ )

We calculated  $C_e$  by dividing the total volume of particles remaining in a segment after equilibrium is reached by the initial total volume of particles.

$$C_e = \frac{1}{2W_a(\psi_c - \psi_s)C_0} \int_1^{2W_a+1} dx_a \int_{\psi_s}^{\psi_c} \frac{(\alpha_a - W_a - 1)^2}{W_a^2} \cdot C dy_a \quad (25)$$

$$C_e = \frac{1}{2W_a(\psi_c - \psi_s)C_0} \int_1^{2W_a+1} dx_a \int_{\psi_s}^{\psi_c} \frac{(\alpha_a - W_a - 1)^2}{W_a^2} \cdot \alpha_0 \times \exp \left[ \frac{G_0}{4 \cdot K_w} \left( \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi}^2 \right)^2 + \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi}^2 \right)^2 - 1 \right) \right] dy_a \quad (26)$$

Fig.6 shows our numerical results, illustrating the

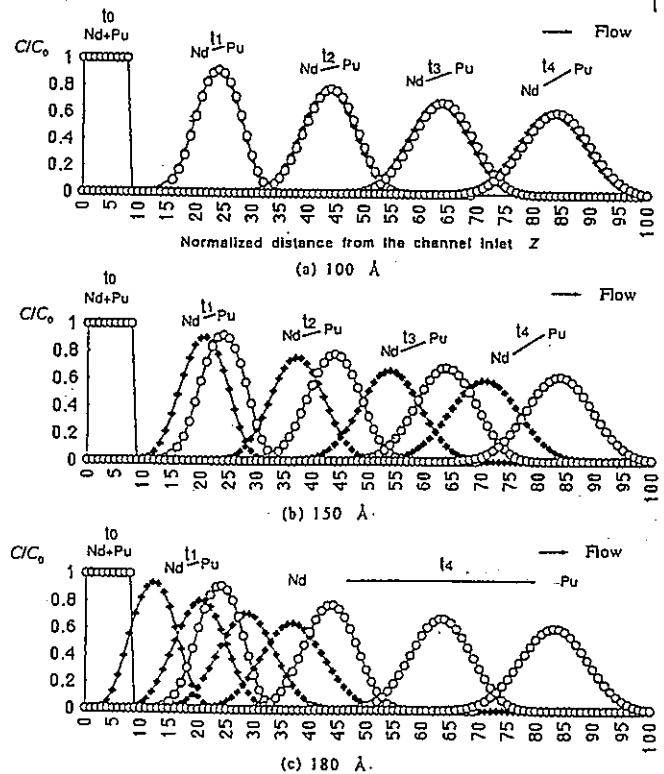


Fig.6 Simulation results for the magnetic chromatography process using nuclear fuel reprocessing as an example

SPECIAL MAT FOR IEE JAPAN POWER & ENERGY

TO 81% COPY

magnetic chromatography process. To demonstrate the usefulness of magnetic chromatography in nuclear fuel reprocessing, we used Pu and Nd particles because Nd is a good neutron absorber and should be separated from Pu so that a reactor consumes no excess neutrons. This example shows that we can separate very fine and weakly magnetized particles with this method.

Discussion of Particle Size Limitation

Applied Field Direction

From the value of the retention parameter  $C_e$ , we can set a tentative criterion for determining the particle size at which magnetic chromatography becomes ineffective. The reason for using  $C_e$  is that it is the only parameter which defines both the concentrations in all the segments and the fractionation performance (as it is clear from equations (22) - (24)). Fig.7 shows the numerical results for ultrafine particles of Nd and Pu ranging from 10 to 350 Å under an applied field  $\mu_0 H_0$  of 7.0 T in either the x or y direction. The arrows indicate the values of  $C_e$  and the particle diameters used in the numerical results in the Fig.6.

The difference between the  $C_e$  values for Nd and Pu indicates the separation ability of the magnetic chromatography process. Fig.7 therefore shows that applying a field in the x direction is more advantageous in separating finer particles than applying it in the y direction.

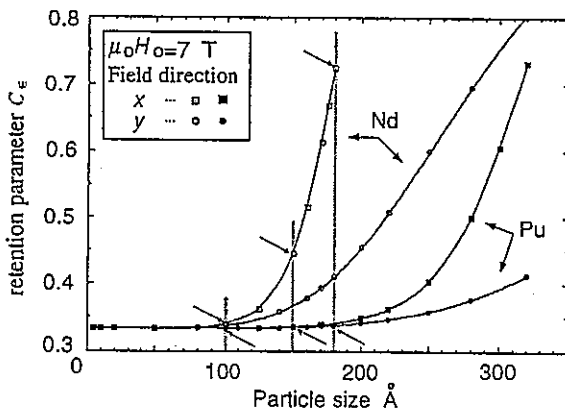


Fig.7 Dependence of retention parameter  $C_e$  on particle size under a magnetic field applied in either the x or y direction (The \ indicates the values used in numerical results shown in Fig.6)

Applied Field Intensity

Fig.8 shows the numerical results for an applied field  $\mu_0 H_0$  of 2.0 to 28.0 T. The figure shows that the stronger the applied magnetic field, the finer the particle that can be separated. Furthermore, Fig.8 shows that a separation limit exists at both small and large particle sizes. Moreover, the

size range in which two different kinds of the particles can be separated becomes narrower when a higher field is applied.

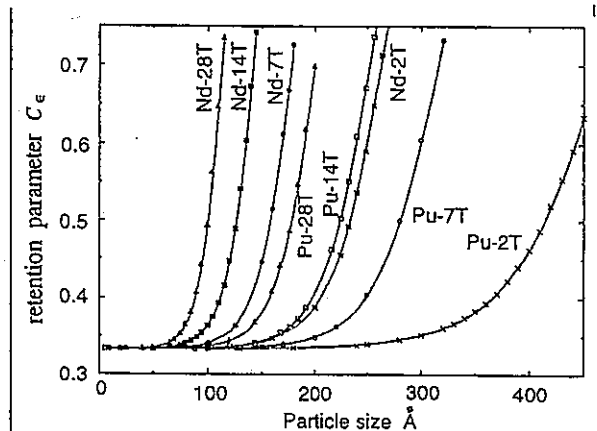


Fig.8 Dependence of the retention parameter  $C_e$  on particle size and applied field strength (A magnetic field  $\mu_0 H_0$  of 2.0 to 28.0 T was applied in the x direction.)

Comparison Between the Magnetic Chromatography System and the HGMS System

The conventional HGMS system has a limit in particle size at which the magnetic force can directly capture particles on a magnetic wire. The reason is that Brownian motion dominates the kinematics of suspended particles when the particle size becomes extremely small. We derived the theoretical limit based on a reference paper [6].

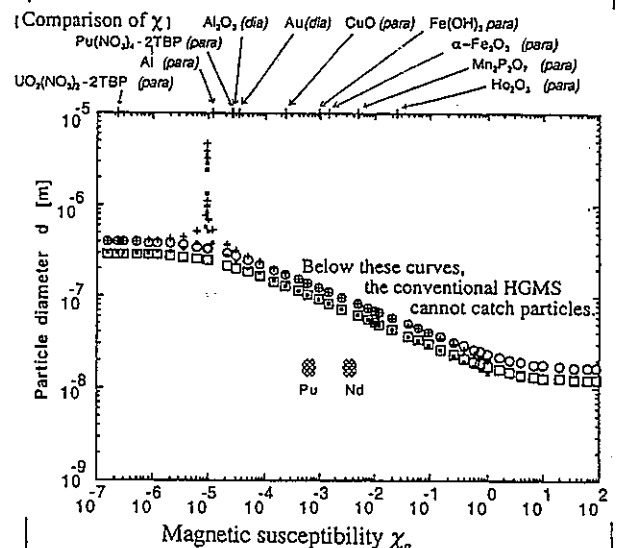


Fig.9 Calculation results for particle size limit for  $\mu_0 H = 2$  [T]: ○; Paramagnetic particle, +; Diamagnetic particle.  $\mu_0 H = 7$  [T]: □; Paramagnetic particle, ■; Diamagnetic particle

## SPECIAL MAT FOR IEE JAPAN POWER &amp; ENERGY

TO 81% COPY

$$d^4 \leq \frac{3a\kappa T}{4\pi M \mu_0 H \frac{(\chi_p - \chi_f)(3 + \chi_f)}{(3 + \chi_p + 2\chi_f)} \left(r_a^{-3} + \frac{M}{2H} r_a^{-5}\right)} \quad (27)$$

where  $r_a$  is the axial position normalized by the wire radius.

Fig.9 shows the particle size limit calculated using equation (27) and  $\chi_f = -9.05E-6$ ,  $\mu_0 H = 2$  T or 7 T,  $2a = 100$   $\mu$ m,  $\mu_0 M = 1$  T, and  $r_a = 2$ .

Our numerical analysis of magnetic chromatography was done for the hatched regions (indicated as Pu and Nd) in Fig.9. These regions are below the particle size limit for the conventional HGMS. This means that the magnetic chromatography system can be applied to a very large class of weak paramagnetic materials whose size is on the order of a giant molecule.

### Conclusion

We proposed the concept of magnetic chromatography. This paper gives an explanation of the principle, a theoretical model for the steady-state particle concentration distribution, and a rough estimate for the time required to reach steady state. Our numerical simulation illustrated the fractionation process, and we defined a retention parameter which characterizes the concentration of the fractional colloid in the segments as well as the overall separation performance.

Regarding the particle size separation limit, by comparing the retention parameter's values, we concluded the following: (1) The field applied in the channel-thickness direction ( $x$  direction) is more advantageous than the field applied in the channel-width direction ( $y$  direction). (2) As the magnetic field is increased, the particle separation performance increases. (3) However, as the magnetic field is increased, the size range of particles that can be separated becomes narrower.

Comparison with the conventional HGMS also showed that our proposed system has the potential to extend the applicability of magnetic separation to a very large class of weak paramagnetic materials, down to particle sizes on the order of giant molecules.

To realize our system with high separation performance, a micro-machining technique is required to fabricate thin channels embedded magnet with thin ferromagnetic wires. A superconducting magnet is also needed to produce a high external magnetic field.

A separation system based on our magnetic chromatography technique is attractive because it can reduce secondary radioactive waste during nuclear fuel

reprocessing. Because it is a physical process and does not depend on the chemical nature of the separated material, it can be applied to many types of material. It also has an advantage compared with filtration separation techniques because it can be regenerated simply by turning the magnetic field off. We believe these features make this separation technique an attractive alternative to current techniques for nuclear fuel reprocessing.

### Acknowledgements

The authors wish to thank Dr. S. Kosaka, Dr. K. Kaiho, Dr. M. Umeda from the Electrotechnical Laboratory, Prof. C. Miyake from the University of Osaka, and Mr. K. Yamamoto from the Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp. for helpful discussions. We also wish to thank Dr. K. Takano from the ETL for asking us to submit this paper. We also wish to thank Dr. Y. Kimura, Director of the Oita Industrial Research Institute, and Dr. H. Wada, Director of the Research Planning Office of the National Research Institute for Metals, for their encouragement.

### References

- [1] T. Ohara: "Particle Capture Theory and Experiment on an Amorphous Magnetic Ribbon Filter," IEEE Trans. Magn., MAG-20, pp.436-443, (1984)
- [2] J.A. Oberteufer: "High Gradient Magnetic Separation," IEEE Trans. Magn., MAG-9, pp.303-306, (1973)
- [3] R. Gerber and R.R. Birss: "High Gradient Magnetic Separation," Research Studies Press, John Wiley & Sons Ltd., Chichester, 1983, Chap.5, PP. 131-170
- [4] Proceeding of the Second Symposium on Applied Superconductivity "Magnetic Separation" in 1994, Cryogenic Association of Japan, to be published.
- [5] T. Ohara, S. Mori, C. Miyake, Y. Wada, K. Yamamoto, and O. Tsukamoto: "Field Flow Fractionation Using High Gradient and High Intensity Magnetic Field; Process Analysis," Digests of the 17th Annual Conf. on Magnetics in Japan, p.84, (1993)
- [6] R. Gerber, M. Takayasu, and F.J. Friedlaender: "Generalization of HGMS Theory: The Capture of Ultra-Fine Particles," IEEE Trans. Magn., MAG-19, pp.2115-2117, (1983)

ID THIS LINE

DO NOT TYPE BELOW THIS LINE



## 4。6 研究論文（6）

"High Magnetic Fields: Industry, Materials and Technology" Workshop  
held at the National High Magnetic Field Laboratory in Tallahassee, Florida  
on February 27th - March 1st, 1996

## Feasibility of Using Magnetic Chromatography for Ultra-Fine Particle Separation

Takeshi Ohara

National Research Institute for Metals, and Electrotechnical Laboratory

### Summary

We propose a new technique that uses magnetic chromatography for continuous separation of ultra fine particles (i.e.,  $<1,000 \text{ \AA}$  diameter) from mixed colloids. The separation is done using field flow fractionation, and the separation results from differences in the magnetic susceptibility and volume of the ultra fine particles. Our theoretical analysis shows that high-gradient magnetic fields generate very steep distributions of the concentration of a Nd fine particles that have a susceptibility  $3.5 \times 10^{-3}$  and a diameter of about 100 to 150  $\text{\AA}$ . Our magnetic chromatography can be done by applying flow fractionation to the concentration distribution in a channel from 5 to 50  $\mu\text{m}$  thick and using embedded ferromagnetic wires from 2 to 20  $\mu\text{m}$  in diameter. A simplified numerical simulation of our magnetic chromatography technique suggests the potential of separating very weak paramagnetic materials (e.g., a nuclear fuel element and Nd) which we have not been able to deal with through the conventional high-gradient magnetic separation techniques.

### Introduction

When a vessel filled with thin ferromagnetic wires that are 10 - 100  $\mu\text{m}$  in diameter and with a colloidal suspension is placed in a magnetic field, a strong magnetic force acts on fine particles near the wires [1]. The distorted magnetic field near the wires is known as a High Gradient Magnetic Field (HGMF), and when it's used to capture particles it is known as High Gradient Magnetic Separation (HGMS) [2]. One of the remarkable features of HGMS is that the capture process originates from strong, remote magnetic forces, and thus yields very low secondary waste generation. Consequently, the HGMS has been used in kaolin beneficiation, steel mill water filtration, etc. [3,4] where a large amount of slurry must be processed both at high speed and at low cost. An important future application is nuclear fuel reprocessing.

We propose what we call *magnetic chromatography (MC)*, which is based on applying the HGMF and a high-intensity magnetic field (attained by using a superconducting magnet) to a flow fractionation (or separation) process [5,6]. Our proposed MC System is characterized both by magnetic separation and by single-phase chromatography (i.e., only a mobile phase). Thus, no stationary phase is needed, and consequently, in the case of nuclear fuel reprocessing, the MC system saves secondary radioactive waste. Moreover, there is a possibility that chemically similar, but magnetically dissimilar materials, such as lanthanide (e.g., Nd) and actinide (e.g., a nuclear fuel) elements can be separated using this new system. In this paper, first we describe the

principle behind the MC. Then, we model the MC process. Finally, we do a numerical simulation of this MC system applied to nuclear fuel reprocessing.

### Principle

Magnetic field distortion occurs when a uniform magnetic field is applied normal to thin ferromagnetic wires. The thinner the wire, the more distorted the field. The HGMF generates a strong force in the direction of the magnetic field gradient.

Let us consider a fluid that flows in a channel transverse to the magnetic field gradient (Figure 1) where a magnetic field is applied in the  $x$  direction. Then, the particles are distributed in the cross-section of the channel according to

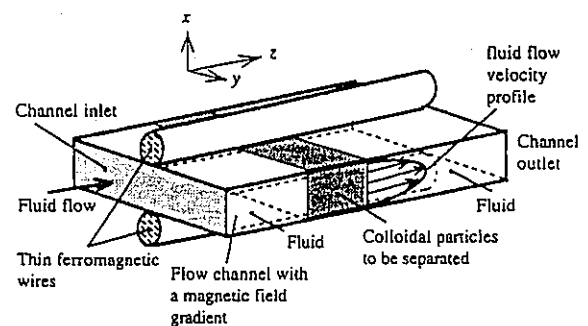


Figure 1 The principle of magnetic chromatography

the magnetization and the volume of each particle. Hence, strong magnetic or coarse particles are attracted to the thin ferromagnetic wires, and weak magnetic or fine particles gather near the center of the channel.

At the same time, the viscous flow in the axial direction has a velocity profile that depends on the distance from the inside wall of the channel (Figure 1). The particle flow therefore has its own velocity depending on the magnetic susceptibility and volume of the particle. If the flow is laminar, the weak magnetic or fine particles near the center are the first particles to exit the channel, because they have higher z-velocity. By this method, it is possible to fractionate or separate the ultra fine particles suspended in various dispersion media.

In the MC system, a high-intensity magnetic field (achieved by using a superconducting magnet) combined with thin channels using micro-machining technologies increases the particle magnetization and the magnetic force. In contrast, in the conventional HGMS principle on which capture of particles with a higher magnetic susceptibility and/or a larger volume onto a magnetic matrix is based, particles cannot flow due to a too large magnetic force and thus are captured on the wall.

### Theoretical Analysis

Figure 2 shows our model of an MC system in which eight thin ferromagnetic wires of diameter  $2a$  are placed near

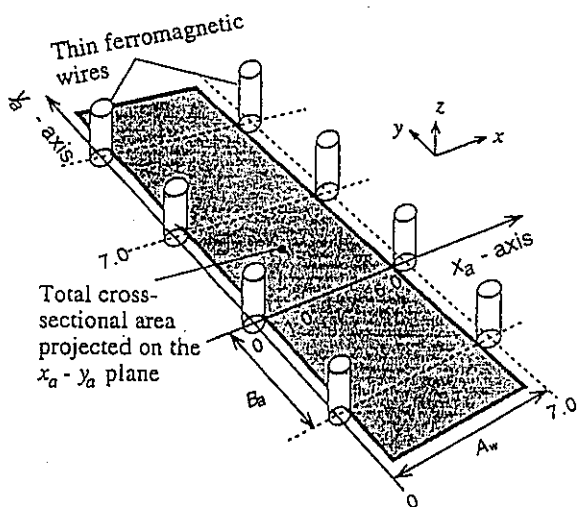


Figure 2 Calculation model for wire arrangement and flow channel size  
(The x and y axes are normalized with a wire diameter  $a$ .)

a flow channel. A uniform magnetic field,  $H_0$ , is applied perpendicular to both the wires and flow direction, in the  $x$  direction. The wires and the fluid flow are in the  $z$  axial direction.

The scale of the coordinate  $(x_a, y_a)$  is normalized by the wire radius  $a$  in Figure 2.  $A_w$  and  $B_a$  which are the distances between the two neighboring wire centers in  $x$  and  $y$  directions, respectively, are also normalized values with the  $a$ .

In order to make it easy to analyze the MC process and understand the general performance trends, we consider ultra fine particle which is not captured on the wall. In other words, we do not consider any particle deposition in the following analysis.

### Particle Diffusion and Magnetic Force in the Steady State

The particle concentration,  $C$ , in the vicinity of the wire is given by the solution of the following equation by assuming mass conservation:

$$\frac{\partial C}{\partial t} + \vec{\nabla} \cdot \vec{J} = 0 \tag{1}$$

where  $\vec{J}$  is particle flux and  $t$  is elapsed time.

At steady state conditions ( $\partial C / \partial t = 0$ ), we obtain the following relationship between the particle concentration  $C$  and the magnetostatic energy,  $U_m$ .

$$\frac{\kappa T}{C} \vec{\nabla} C + \vec{\nabla} U_m = 0 \tag{2}$$

$$\therefore C = \alpha \exp\left(-\frac{U_m}{\kappa T}\right) \tag{3}$$

where  $\kappa$  is the Boltzmann constant,  $T$  is temperature, and  $\alpha$  is an integration constant.

### Magnetostatic Energy

The magnetic force induced on a particle in suspension is a function of the difference between the magnetic susceptibility of the medium,  $\chi_f$ , and the magnetic susceptibility of the particle,  $\chi_p$ . We define the resulting magnetization as  $M_p$ , so that the resulting magnetostatic energy,  $U_m$ , on a particle of volume,  $V_p$ , can be written as

$$U_m = U_p - U_f \\ = -V_p(\mu_0 \vec{M}_p \cdot \vec{H}) / 2 + V_p(\mu_0 \vec{M}_f \cdot \vec{H}) / 2 \tag{4}$$

where  $U_p$  is the magnetostatic energy of the particle,  $U_f$  is the magnetostatic energy of the fluid displaced by the particle,  $\vec{M}_p$  is the particle magnetization,  $\vec{M}_f$  is the magnetization of the dispersion medium with the same volume as a particle, and  $\vec{H}$  is a distorted magnetic field near a wire.

We obtain an equation for the magnetostatic energy of a particle in a fluid under an applied magnetic field:

$$U_m = -\frac{2\pi\mu_0 b^3}{3} \frac{9(\chi_p - \chi_f)}{(3 + \chi_p)(3 + \chi_f)} \cdot (\vec{H}^e \cdot \vec{H}^e) \quad (5)$$

### Inner Product of the Magnetic Field Vectors

The  $\vec{H}^e(H_x, H_y)$  is the sum of the applied magnetic field  $\vec{H}_0$  and its distorted component  $H_0 \cdot K_w \cdot \vec{h}$  (where  $K_w$  is  $M_w/2H_0$ ,  $M_w$  is wire magnetization, and  $\vec{h}$  is a field distortion factor). When multiple cylindrical wires are placed in a uniform magnetic field  $\vec{H}_0$ , equations (6) shown below are derived. We adopt the Cartesian coordinates ( $x$ ,  $y$ ,  $z$ ) here, where the  $z$ -axis is along the wire axis.

$$\begin{aligned} (\vec{H}^e \cdot \vec{H}^e) &= H_x^2 + H_y^2 \\ &= H_0^2 \left\{ \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi}^2 \right) + \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi}^2 \right) \right\} \end{aligned} \quad (6)$$

where an external field  $\vec{H}_0$  is applied parallel to the  $x$ -axis.

The component of the vector  $\vec{h} \begin{pmatrix} h_x^e \\ h_y^e \end{pmatrix}$  is expressed as

$$h_{xi}^e = \frac{x_{ai}^2 - y_{ai}^2}{(x_{ai}^2 + y_{ai}^2)^2} \quad (7)$$

$$h_{yi}^e = \frac{2x_{ai}y_{ai}}{(x_{ai}^2 + y_{ai}^2)^2} \quad (8)$$

where  $(x_{ai}, y_{ai})$  is the coordinate normalized by the wire radius,  $a$ , from the center of the  $i$ th wire.

### Particle Concentration

The particle concentration,  $C$ , is derived by substituting equation (6) into equation (5), and then substituting the result into equation (3).

$$C = \alpha_0 \exp \left[ \frac{G_0}{4 \cdot K_w} \left\{ \left( 1 + K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{xi}^2 \right) + \left( K_w \cdot \sum_{i=1}^n h_{yi}^2 \right) - 1 \right\} \right] \quad (9)$$

In equation (9),  $\alpha_0$  is the integration constant for an initial particle concentration,  $C_0$ , when no magnetic field is applied.

$$\alpha_0 = C_0 \frac{(\xi_e - \xi_s) \cdot (\psi_e - \psi_s)}{\int_{\xi_s}^{\xi_e} dx_a \int_{\psi_s}^{\psi_e} \exp \left[ \frac{G_0}{4 K_w} \left\{ \left( K_w \sum_{i=1}^n h_{xi}^2 \right) + \left( 1 + K_w \sum_{i=1}^n h_{yi}^2 \right) - 1 \right\} \right] dy_a} \quad (10)$$

where the numerator is the total cross-sectional area of the channel projected on the  $x_a - y_a$  plane. The  $G_0$  is

$$G_0 = \frac{4\pi b^3 M^w \mu_0 H_0}{3\kappa T} \frac{9(\chi_p - \chi_f)}{(3 + \chi_p)(3 + \chi_f)} \quad (11)$$

### Time Required to Reach a Steady State Concentration Distribution

Although the time dependent solution of equation (1) can be found numerically, we can simplify the analysis by estimating the time  $t$  required for the concentration distribution to reach steady state by using the Einstein relation for the square mean value of the diffusion length  $\bar{x}^2$

$$\bar{x}^2 = 2tD \quad (12)$$

$$D = \kappa T / (6\pi\eta b) \quad (13)$$

where  $D$  is the diffusion coefficient according to Stokes Law (assuming spherical particles of radius  $b$ ), and  $\eta$  is the viscosity of the colloid.

Assuming  $\bar{x}^2 = ((A_w - 2a)/2\sqrt{2})^2 = (50 \mu\text{m}/2\sqrt{2})^2$ ,  $2b = 100 \text{ \AA}$ ,  $\eta = 0.85 \times 10^{-3} \text{ kg/m}\cdot\text{s}$ , and the values of other parameters as shown in Table 1, we obtain  $t = 3 \text{ s}$  from equations (12) and (13). Furthermore, when we assume a channel thickness of  $5 \mu\text{m}$ , then we get  $t = 0.03 \text{ s}$ . This estimation shows that the channel thickness should be very small (i.e.,  $< \text{several } 10 \mu\text{m}$ ) for practical processing time to be realized.

Table 1 Parameters for theoretical analysis

Initial particle concentration $C_0$	$1.00 \times 10^{-3}$
Particle diameter $2b$	$10 - 500 \text{ \AA}$
Particle susceptibility $\chi_p$	$3.51 \times 10^{-3}$ (Nd), $6.23 \times 10^{-4}$ (NFe)
Dispersion-medium susceptibility $\chi_f$	$-8.88 \times 10^{-6}$ (Tributylphosphate)
Applied magnetic field $\mu_0 H_0$	$2.0 - 28.0 \text{ T}$
Wire diameter $2a$	$20 \mu\text{m}$
Wire magnetization $\mu_0 M^w$	$1.0 \text{ T}$
Temperature $T$	$300 \text{ K}$
Channel thickness $A_w - 2a$	$50 \mu\text{m}$
Boltzmann constant $\kappa$	$1.38 \times 10^{-23} \text{ J/K}$

### Simulation of the Fractionation Process in the MC System

We numerically simulated magnetic chromatography by using the model system shown in Figure 3. We assumed that colloidal particles only diffuse in the direction of  $x$ -axis. This assumption is valid because the channel thickness is very small compared with the width. We also assumed laminar flow. Although diffusion and flow occur simultaneously, to simplify our simulation we separated them by dividing the time into consecutive  $\Delta t$  periods in which  $\Delta t$  is the time required to reach steady state in a segment. As estimated in the former chapter by using the values shown in Table 1,  $\Delta t$  is nearly equal to 3 seconds. Figure 3 shows the above-mentioned simulation model of a fractionation process. We can call this quasi-steady state model. A small amount of the dispersion media flows into a colloidal area in time  $\Delta t$  (as shown in (b), (d), (f), (h)), and then the colloidal particles diffuse in the direction of the  $x$ -axis (as shown in (c), (e), (g), (i)).

The numerical series  $C_{i,j}$  which appears at Figure 3 is an average concentration at each segment and is determined using the following equations.

$$C_{i,j} = C_E \cdot C_{i-1,j-1} + (1 - C_E) \cdot C_{i-1,j} \quad (14)$$

where  $j \neq 1$  or  $j \neq i+1$ .

$$C_{i,j} = C_{i,1} = C_E^j \quad (15)$$

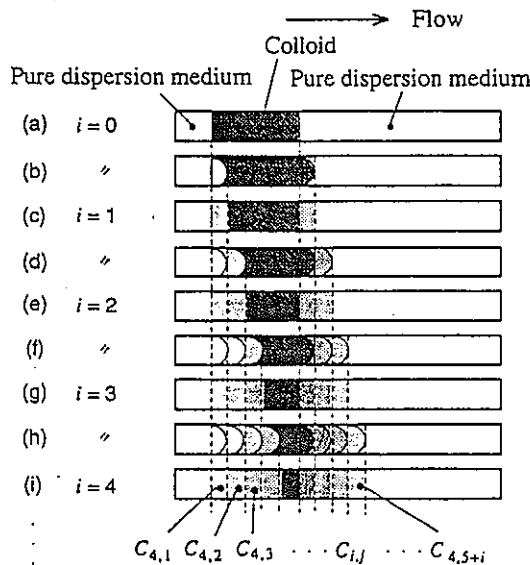


Figure 3 The simulation model as a quasi-steady state model (The time  $\Delta t$  elapses between the  $i$  and  $i+1$  conditions. The series of average concentration at each segment  $C_{i,j}$  is normalized by an initial concentration value  $C_0$ .)

where  $j = 1$ .

$$C_{i,j} = C_{i,i+1} = (1 - C_E)^i \quad (16)$$

where  $j = i+1$ .

We call  $C_E$  a retention parameter and calculated  $C_E$  by dividing the total volume of particles remaining in a segment after equilibrium is reached by the initial total volume of particles.

$$C_E = \frac{1}{2W_a(\psi_c - \psi_s)C_0} \int_1^{2W_a+1} dx_a \int_{\psi_s}^{\psi_c} \frac{(\alpha_a - W_a - 1)^2}{W_a^2} \cdot C dy_a \quad (17)$$

where  $W_a$  is a channel thickness, and  $C$  is expressed by equations (9), (10) and (11).

Figure 4 shows our numerical results, illustrating the magnetic chromatography process. To demonstrate the usefulness of magnetic chromatography in nuclear fuel reprocessing, we used particles of Nd and a nuclear fuel element (NFE) because Nd is a good neutron absorber and should be separated from the nuclear fuel element so that a reactor consumes no excess neutrons.

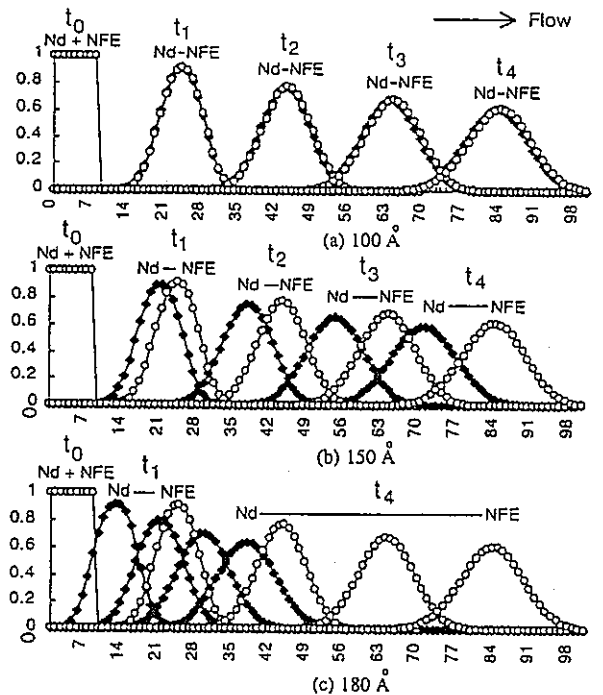


Figure 4 Simulation results for the magnetic chromatography process using nuclear fuel reprocessing as an example (NFE is an abbreviation of a nuclear fuel element.  $t_0=0$ ,  $t_1=30 \times \Delta t$ ,  $t_2=60 \times \Delta t$ ,  $t_3=90 \times \Delta t$ ,  $t_4=120 \times \Delta t$  s. The (a), (b), and (c) are the results for particle diameters of 100 Å, 150 Å, and 180 Å, respectively.)

The average particle concentration  $C$  at each segment is normalized with  $C_0$ . The figure shows that the  $C/C_0$  changes with both time and segment's number labeled as a normalized  $z$ . distance from the channel inlet. This example shows that we can separate very fine and weakly magnetized particles with this method.

### Discussion of Particle Size Limitation Applied Field Intensity

From the value of the retention parameter  $C_E$ , we can set a tentative criterion for determining the particle size at which magnetic chromatography becomes ineffective. The reason for using  $C_E$  is that it is the only parameter which defines both the concentrations in all the segments and the fractionation performance (as it is clear from equations (14) - (16)).

Figure 5 shows the numerical results for ultra fine particles of Nd and a nuclear fuel element ranging from 10 to 450 Å under an applied magnetic field  $\mu_0 H_0$  of 2.0 to 28.0 T. The figure shows that the stronger the applied field, the finer the particle that can be separated, and a separation limit exists at a small particle size. Furthermore, the size range in which two different kinds of the particles can be separated becomes narrower when a higher field is applied.

The separation limit at large particle size can not be calculated because we assume here that any particle deposition does not occur. The MC simulation including the deposition may require rather complicated calculation, and is

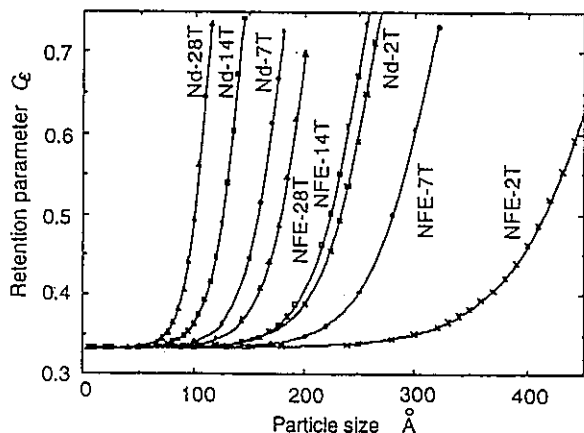


Figure 5 Dependence of the retention parameter  $C_E$  on particle size and applied field strength (A magnetic field  $\mu_0 H_0$  of 2.0 to 28.0 T was applied in the  $x$  direction.)

one of the issues to be analyzed in the future. In the next chapter, we will compare two kinds of separation limit for this "pure" magnetic chromatography and for the "pure" magnetic deposition system which corresponds to the conventional HGMS system.

### Comparison Between the MC System and the HGMS System

The conventional HGMS system also has a limit in particle size at which the magnetic force can directly capture particles on a magnetic wire. The reason is that Brownian motion dominates the kinematics of suspended particles when the particle size becomes extremely small. We derived the theoretical limit based on a reference paper [7].

$$d^4 \leq \frac{3 a \kappa T}{4 \pi M \mu_0 H \frac{(\chi_p - \chi_f)(3 + \chi_f)}{(3 + \chi_p + 2\chi_f)} \left( r_a^{-3} + \frac{M}{2H} r_a^{-5} \right)} \quad (18)$$

where  $r_a$  is the axial position normalized by the wire radius.

Figure 6 shows the particle size limit calculated using equation (18) and  $\chi_f = -9.05 \times 10^{-6}$ ,  $\mu_0 H = 2$  T or 7 T,  $2a = 100 \mu\text{m}$ ,  $\mu_0 M = 1$  T, and  $r_a = 2$ .

Our numerical analysis of magnetic chromatography was done for the hatched regions (indicated as NEF and Nd) in Figure 6. These regions are below the particle size limit for the conventional HGMS. This means that the magnetic chromatography system can be applied to a very large class of weak paramagnetic materials whose size is on the order of a giant molecule.

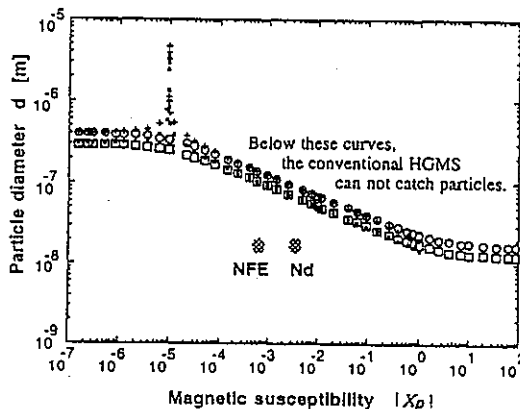


Figure 6 Calculation results for particle size limit for 2T: O; Paramagnetic particle, +; Diamagnetic particle, 7T: □; Paramagnetic particle, •; Diamagnetic particle. (NFE is an abbreviation of a nuclear fuel element.)

### Conclusion

We proposed the concept of magnetic chromatography. This paper gives an explanation of the principle, a theoretical model for the steady-state particle concentration distribution, and a rough estimation for the time required to reach steady state. Our numerical simulation illustrated the fractionation process, and we defined a retention parameter which characterizes the concentration of the fractional colloid in the segments as well as the overall separation performance.

Regarding the particle size separation limit, by comparing the retention parameter's values, we concluded the following: (1) As the magnetic field is increased, the particle separation performance increases. (2) However, as the magnetic field is increased, the size range of particles that can be separated becomes narrower.

Comparison with the conventional HGMS also showed that our proposed system has the potential to extend the applicability of magnetic separation to a very large class of weak paramagnetic materials, down to particle sizes on the order of giant molecules.

To realize our system with high separation performance, a micro-machining technique is required to fabricate thin channels embedded with thin ferromagnetic wires. A superconducting magnet is also needed to produce a high external magnetic field. An investigation on how far the influence of particle deposition extends in the MC system is the next step of our research and development.

A separation system based on our magnetic chromatography technique is attractive because it can reduce secondary radioactive waste during nuclear fuel reprocessing. Because it is a physical process and does not depend on the chemical nature of the separated material, it can be applied to many types of material. It also has an advantage compared with the conventional filtration techniques because it can be regenerated simply by turning the magnetic field off whenever any particle deposition may happen on the channel walls. We believe these features make this separation technique an attractive alternative to current techniques for nuclear fuel reprocessing.

### Acknowledgments

The author wish to thank Prof. Sadao Mori from the Univ. of Mie, Drs. Yoshihiro Oda, Yukio Wada, Kazunori Yamamoto from the Power Reactor and Nuclear Fuel Development Corp., Dr. Tsukasa Kiyoshi from the National Research Institute for Metals, and Prof. Chie Miyake from the University of Osaka for helpful discussions. We also wish to thank Drs. Shin Kosaka, Katsuyuki Kaiho, Masaichi Umeda from the Electrotechnical Laboratory, Dr. Yoichi Kimura, Director of Shikoku Industrial Research Institute, and Dr. Hitoshi Wada, Director of the Research Planning Office of the NRIM, for their encouragement.

### References

- [1] T. Ohara: "Particle Capture Theory and Experiment on an Amorphous Magnetic Ribbon Filter," *IEEE Trans. Magn.*, MAG-20, 436-443 (1984)
- [2] J.A. Oberteufer: "High Gradient Magnetic Separation," *IEEE Trans. Magn.*, MAG-9, 303-306 (1973)
- [3] R. Gerber and R.R. Birss: "High Gradient Magnetic Separation," Research Studies Press, John Wiley & Sons Ltd., Chichester, 1983, Chap.5, 131-170
- [4] Proceeding of the Second Symposium on Applied Superconductivity "Magnetic Separation" in 1994, Cryogenic Association of Japan (in Japanese)
- [5] T. Ohara, S. Mori, C. Miyake, Y. Wada, K. Yamamoto, and O. Tsukamoto: "Field Flow Fractionation Using High Gradient and High Intensity Magnetic Field; Process Analysis," *Digests of the 17th Annual Conf. on Magnetics in Japan*, 84 (1993) (in Japanese)
- [6] T. Ohara, S. Mori, Y. Oda, Y. Wada, and O. Tsukamoto: "Feasibility of Magnetic Chromatography for Ultra-Fine Particle Separation," to be published in *T.IEE Japan*, vol.116-B (August 1996)
- [7] R. Gerber, M. Takayasu, and F.J. Friedlaender: "Generalization of HGMS Theory: The Capture of Ultra-Fine Particles," *IEEE Trans. Magn.*, MAG-19, 2115-2117 (1983)

## 4。7 研究論文（7）



超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発

動力炉・核燃料開発事業団 東海事業所

核燃料技術開発部 先端技術開発室

小田 好博

超電導磁気クロマトグラフィーによる新分離法の開発  
 ～従来法との比較～

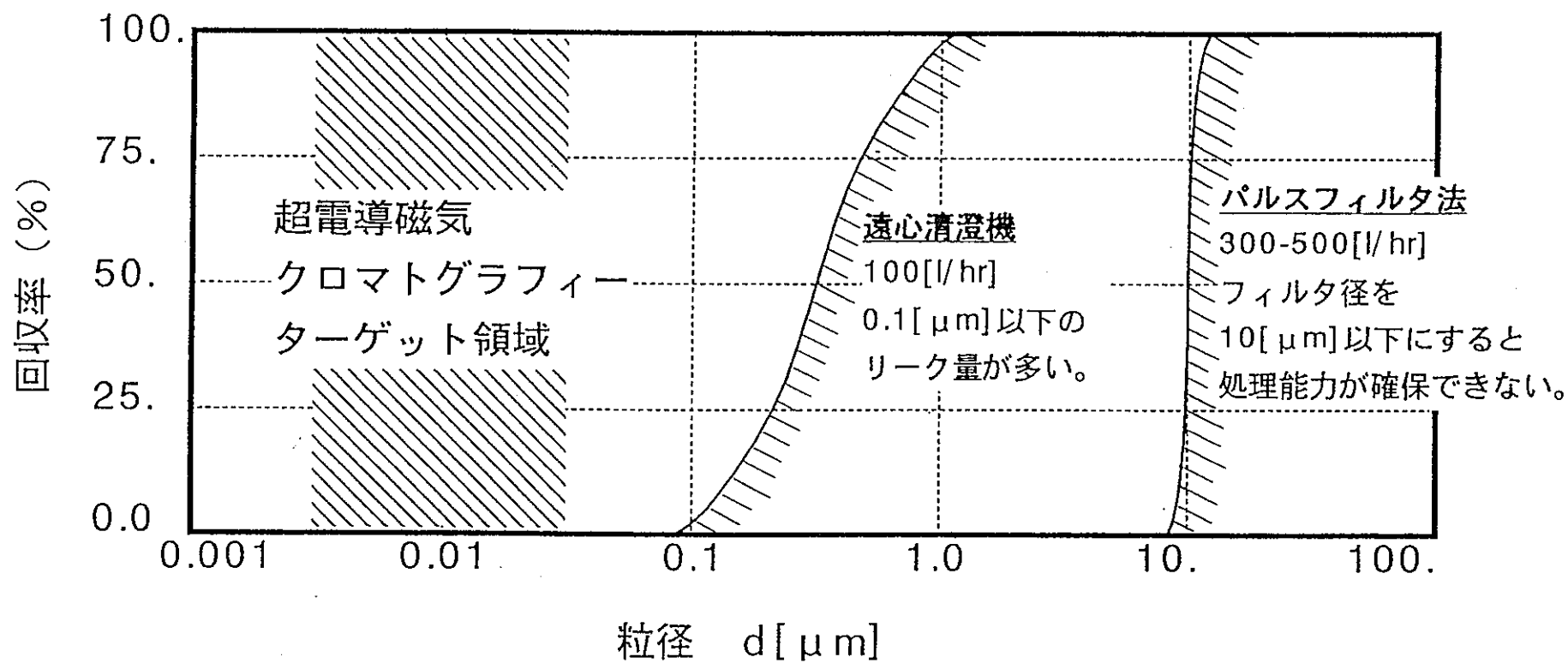


図 微粒子の回収可能粒径範囲

超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発  
 ~原理~

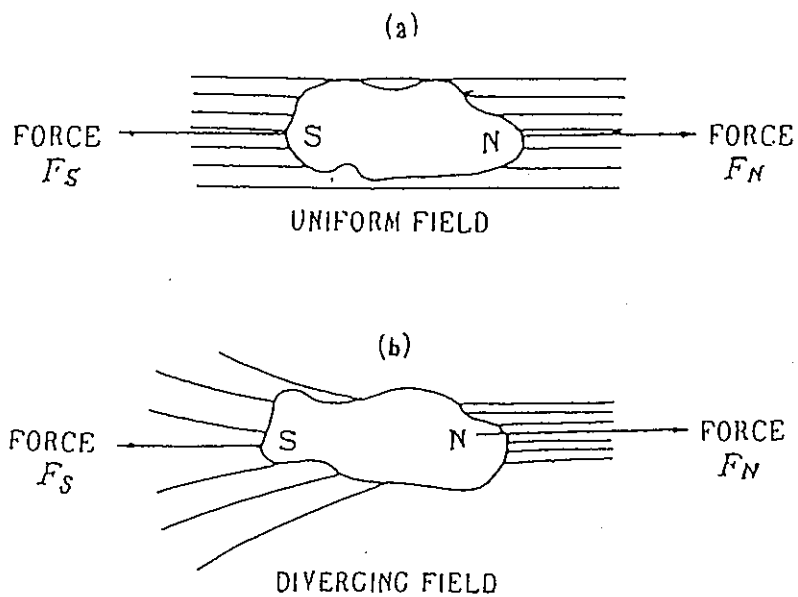
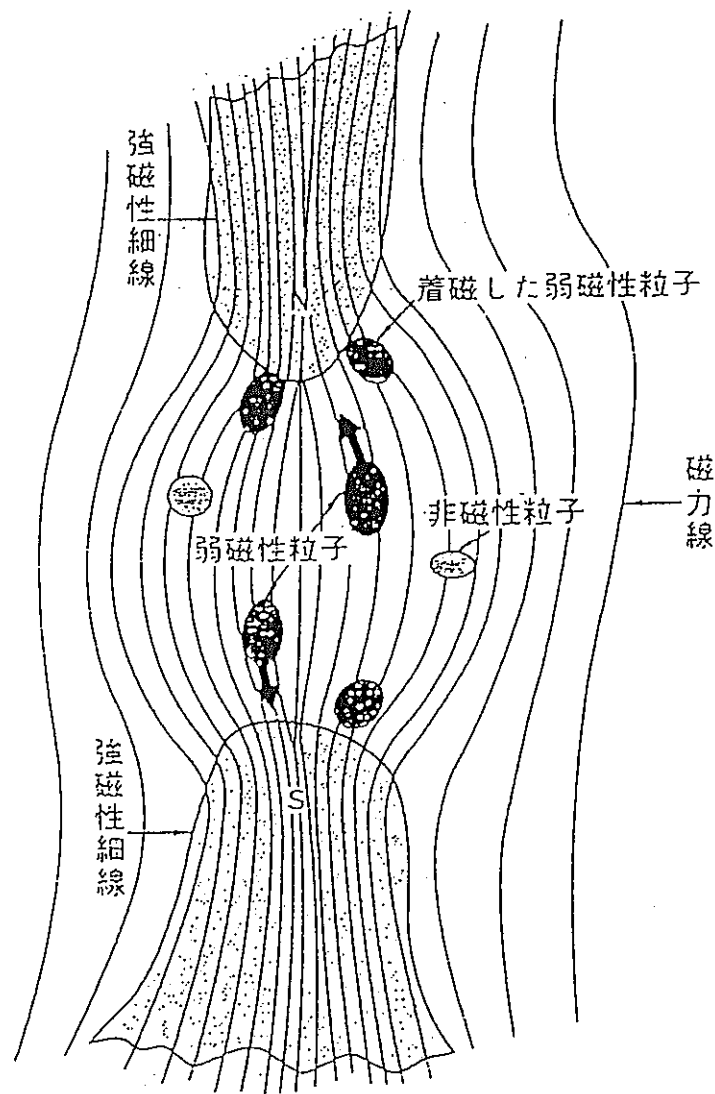


図 磁界内での粒子に作用する磁気力  
 (a)均一磁界, (b)不均一磁界



超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発  
～原理2～

不均一磁界  $H^e$  [A/m] 中にある磁性粒子に働く力

$$\text{磁気力} : F_m = V \cdot \mu_0 \cdot M^p \cdot \nabla H^e$$

$V$  : 粒子の体積

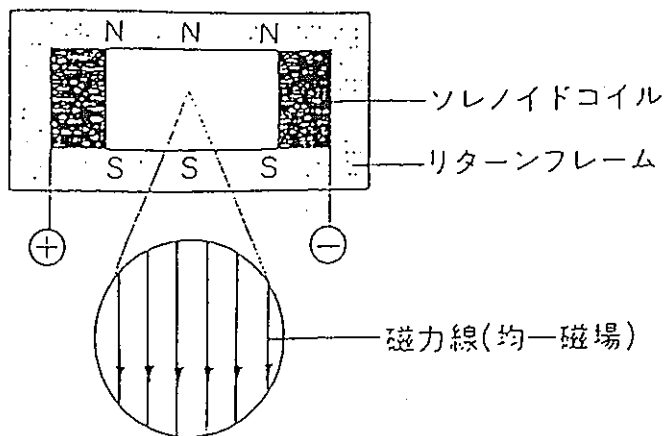
$M^p = (\chi_p - \chi_f)$  : 粒子と溶液の磁化の差

$\nabla H^e$  : 磁界勾配

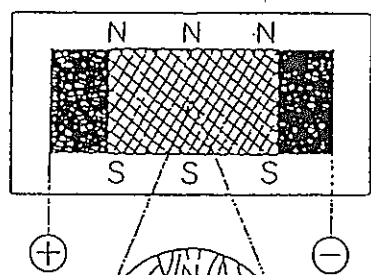
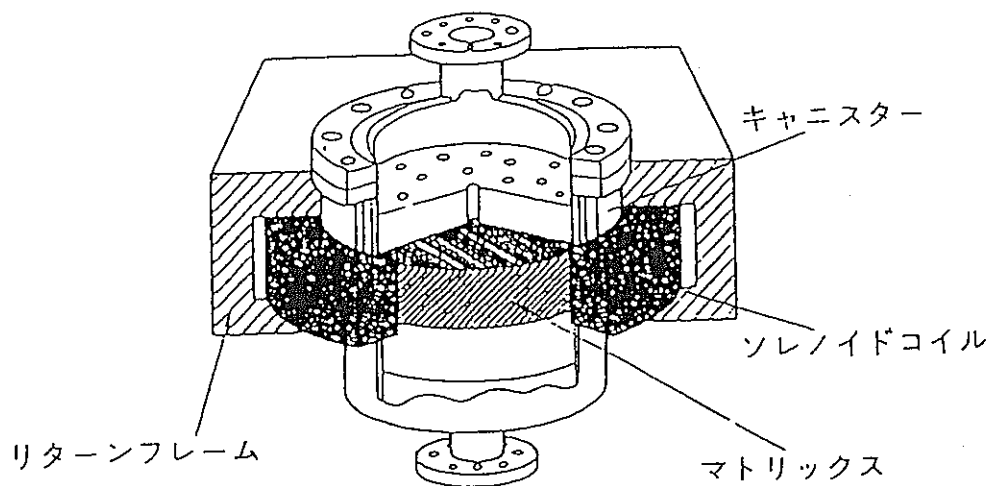
磁気力を大きくするには、

- (1) 外部印加磁界を大きくする。
- (2) 磁界勾配を大きくする。

超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発  
 ～高勾配磁気分離～



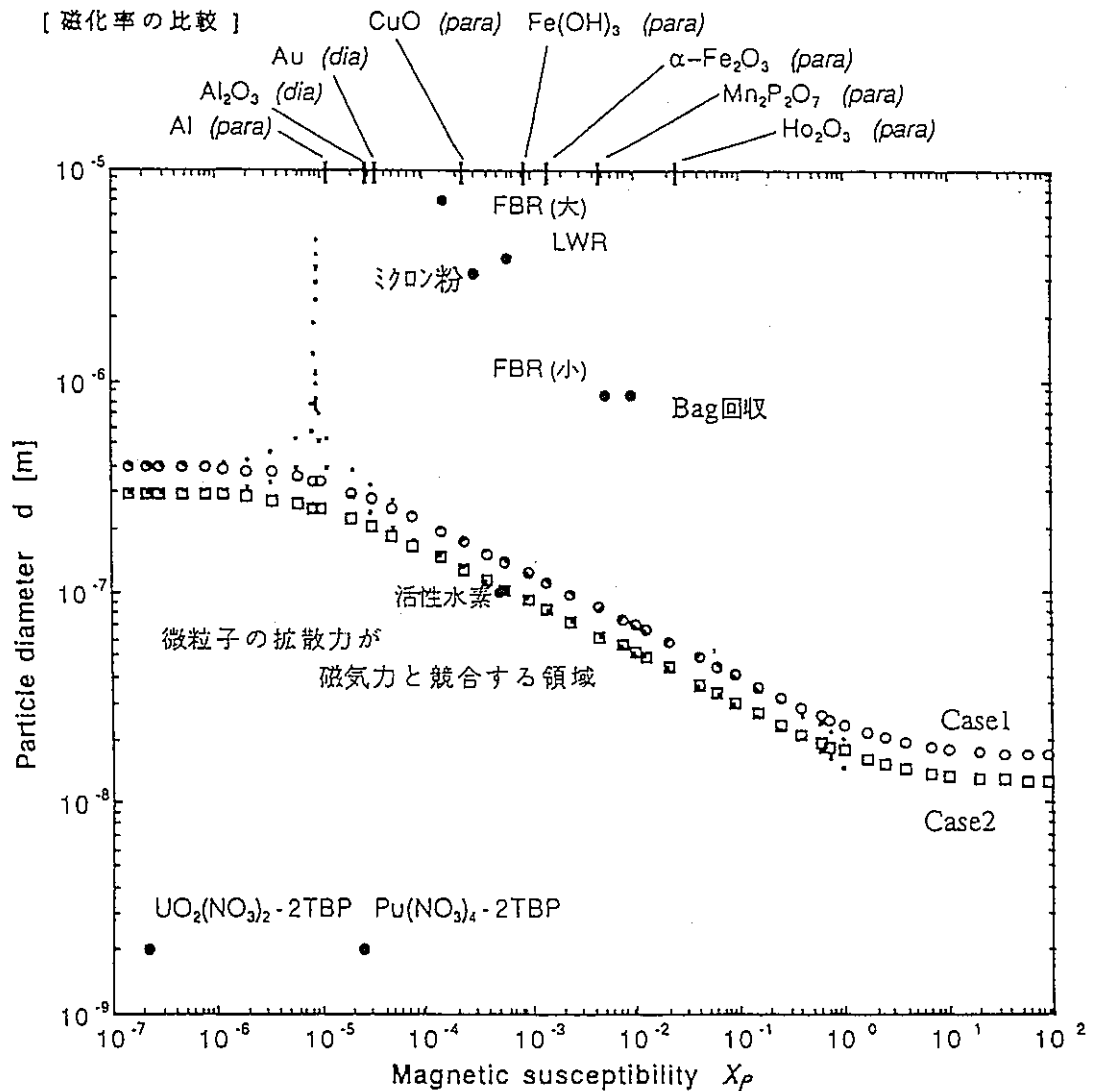
〈マトリックスのない場合〉



マトリックス  
 断面

〈マトリックスを入れた場合〉

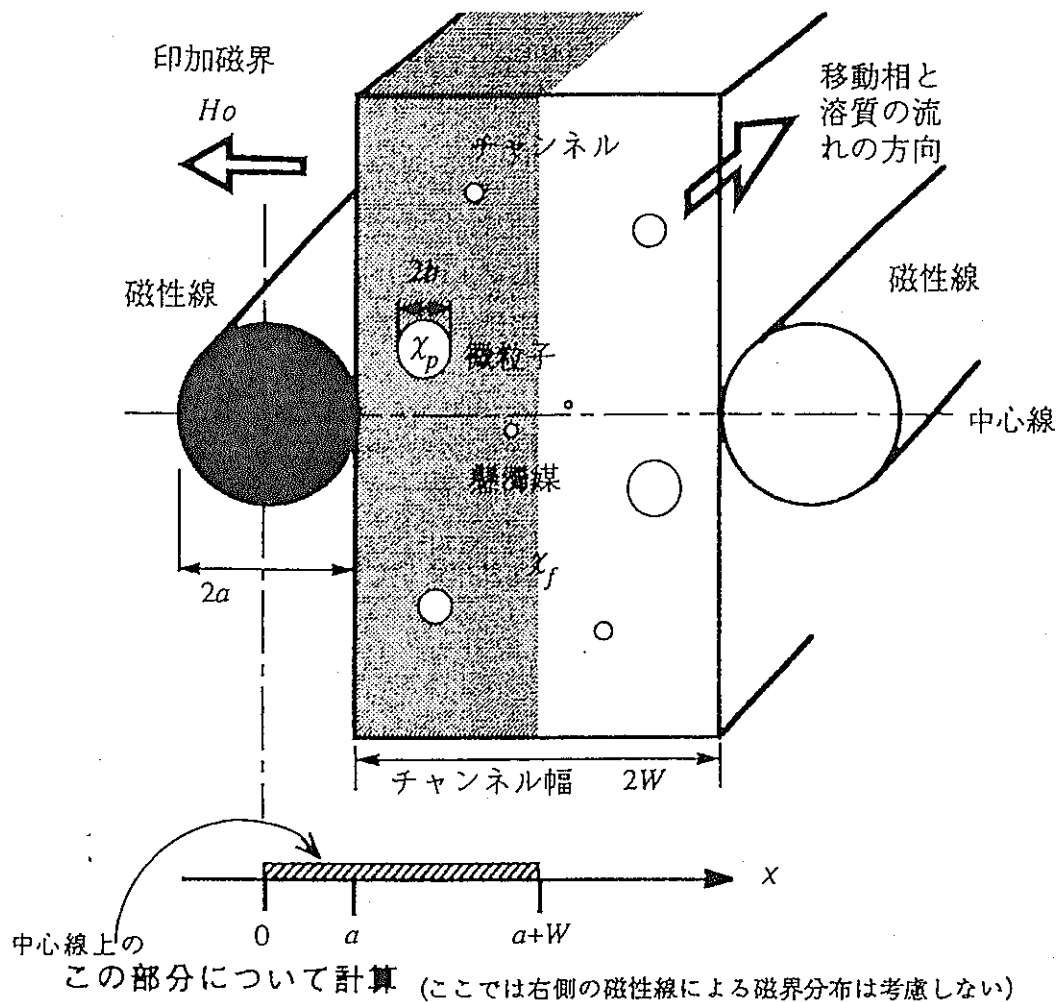
超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発  
 ～微粒子に働く磁気力と拡散力の比較～



$d$ - $\chi_p$ 境界曲線

Case1 ( $\mu_0 H = 2$  [T]) : ○ ; 常磁性粒子の上限、● ; 反磁性粒子の上限  
 Case2 ( $\mu_0 H = 7$  [T]) : □ ; 常磁性粒子の上限、■ ; 反磁性粒子の上限  
 (グラフ上側の物質名とともに示した(*para*) と (*dia*) はそれぞれ常磁性  
 粒子と反磁性粒子の種別を示す。)

超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発  
 ～磁性細線間の濃度分布～



超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発  
 ～磁化率による濃度分布の違い～

表 計算に用いた数値

分散媒の磁化率 $\chi_f$	- 9.05E-6 (純水)
微粒子の磁化率 $\chi_p$	2.55E-5 ... Pu(NO <sub>3</sub> ) <sub>4</sub> -2TBP 2.28E-7 ... UO <sub>2</sub> (NO <sub>3</sub> ) <sub>2</sub> -2TBP
懸濁液の初期濃度 $C$	1.00E-3
ボルツマン定数 $k$	1.38E-23 [J/K]
絶対温度 $T$	300 [K]
磁性線の磁化 $\mu_0 M$	1.7 [T]
チャンネル幅 $2W$	500 [ $\mu$ m]
磁性線の線径 $2a$	200 [ $\mu$ m]
外部印加磁界 $\mu_0 H_0$	30 [T]
微粒子の粒径 $2b$	40 [Å]

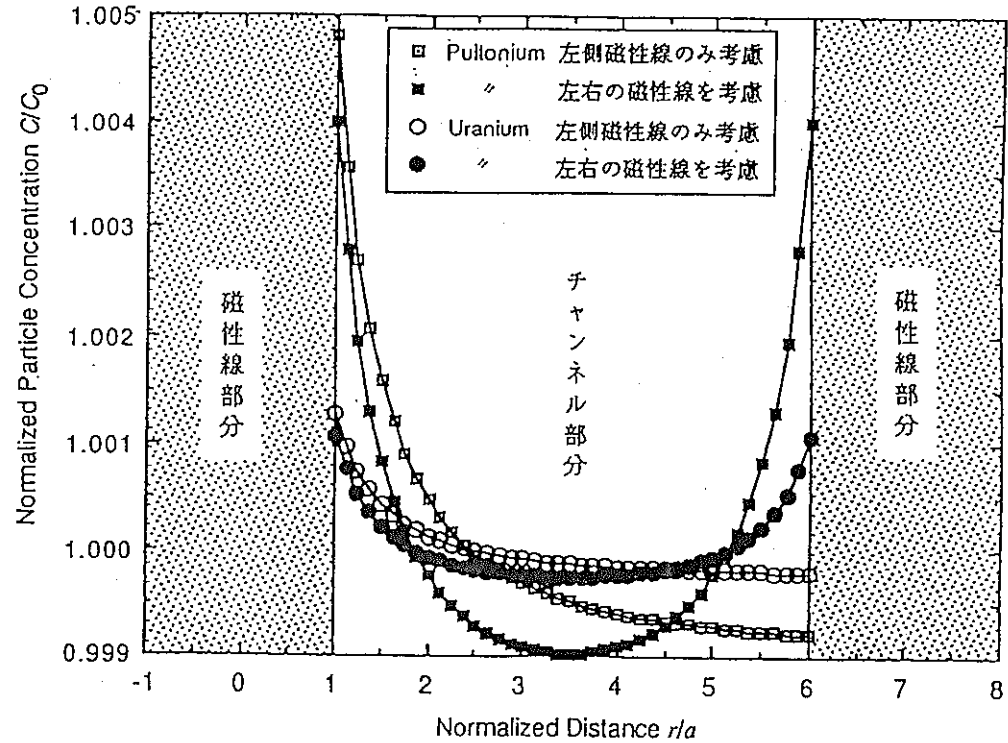


図 濃度分布への磁性線隣接効果の計算結果



超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発  
～磁性細線周囲の濃度分布の計算例～

表 計算に用いた数値

懸濁液の初期濃度 $C$	1.00E-3
微粒子の粒径 $2b$	50 [Å], 100 [Å], 150 [Å]
微粒子の磁化率 $\chi_p$	3.51E-3 (単体Nd)
分散媒の磁化率 $\chi_f$	- 8.88E-6 (TBP*)
外部印加磁界 $\mu_0 H_0$	7.0 [T]
磁性線の線径 $2a$	200 [ $\mu\text{m}$ ]
磁性線の磁化 $\mu_0 M^*$	1.0 [T]
絶対温度 $T$	300 [K]
ボルツマン定数 $k$	1.38E-23 [J/K]

\*Tributylphosphate、バスカル定数を用いて計算した値

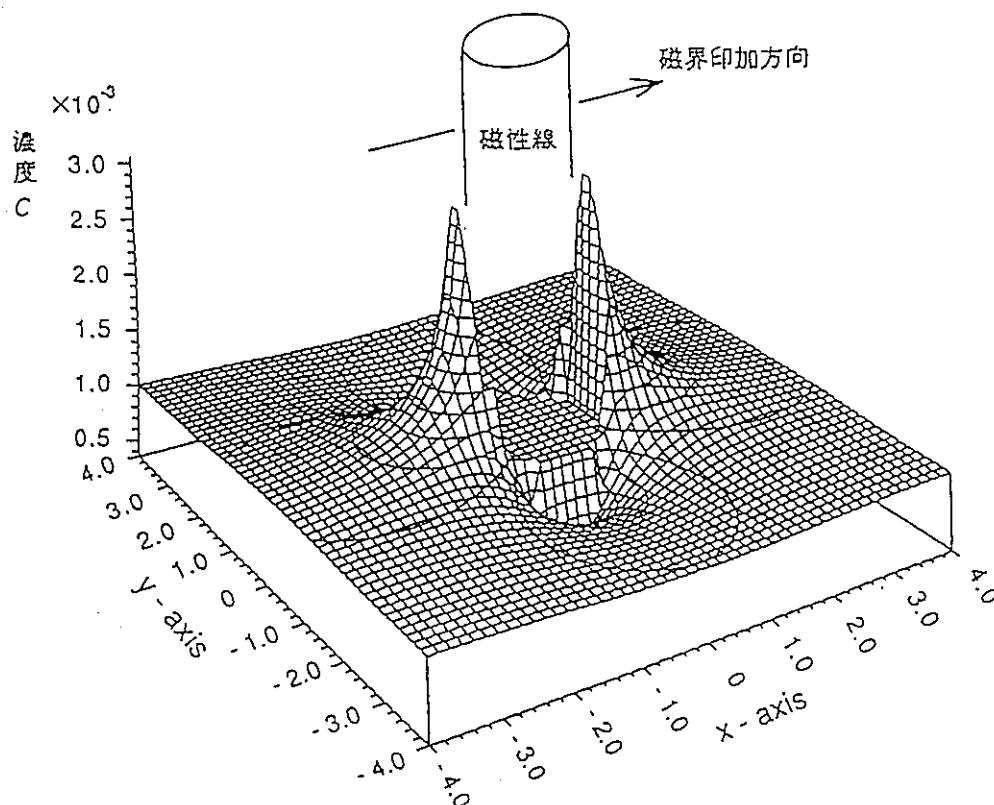


図 単一磁性線近傍の懸濁微粒子の濃度分布の計算例

(磁性線周囲には磁界印加方向(この場合  $x$  方向)に高濃度領域ができ、それと直交する方向(同  $y$  方向)には低濃度領域ができる。懸濁微粒子は粒径 100 [Å] の単体 Nd)

超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発  
 ～シミュレーションモデル～

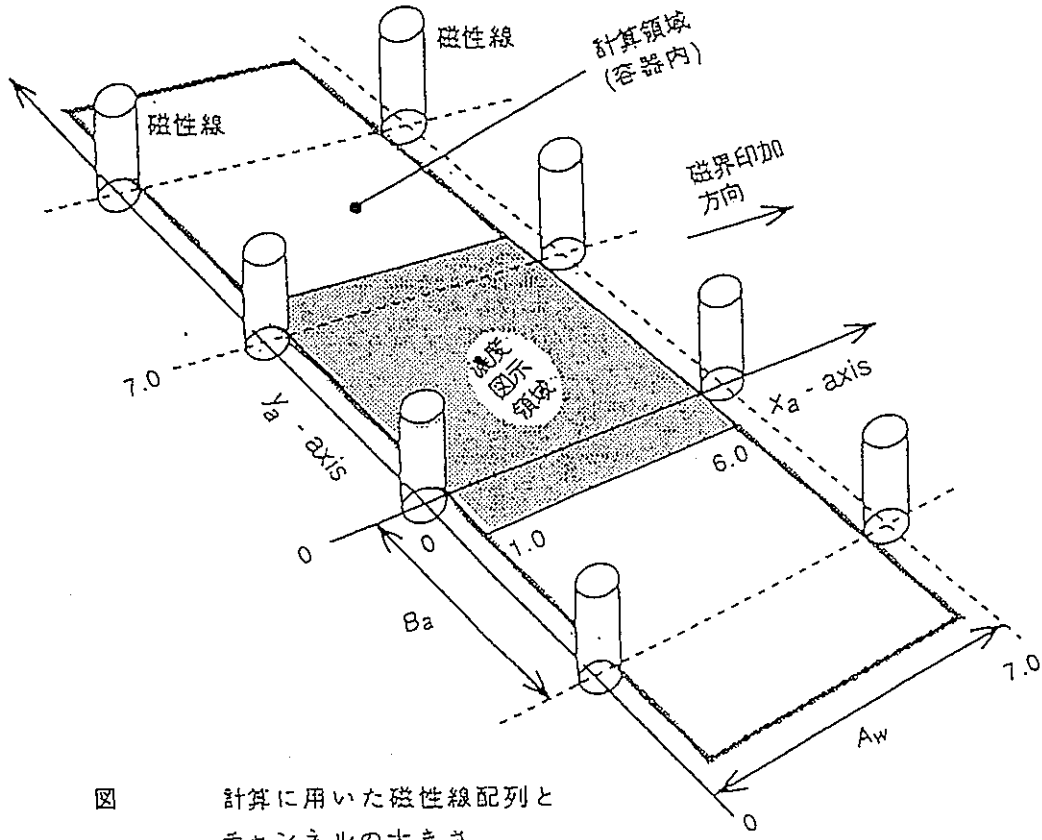


図 計算に用いた磁性線配列とチャンネルの大きさ

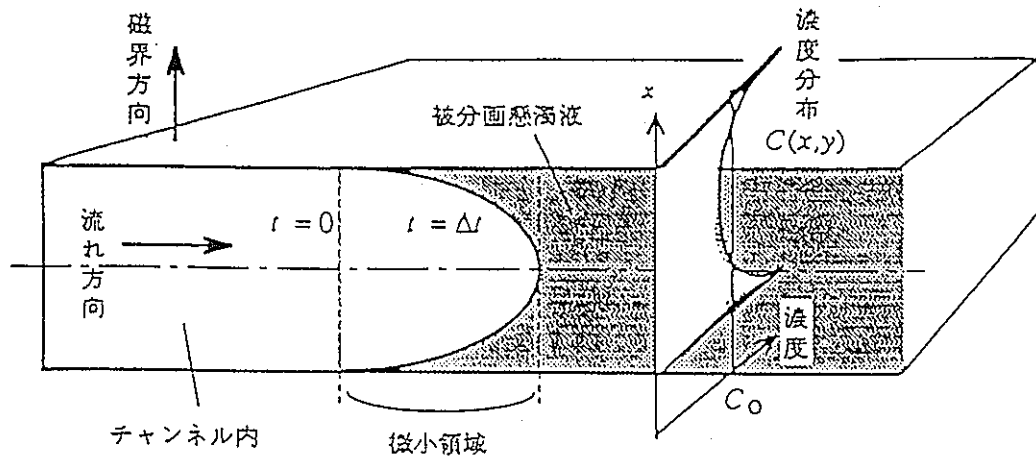


図 保持係数  $C_e$  の計算

超電導磁気クロマトグラフィーによる新分離法の開発  
～モデル中の濃度分布～

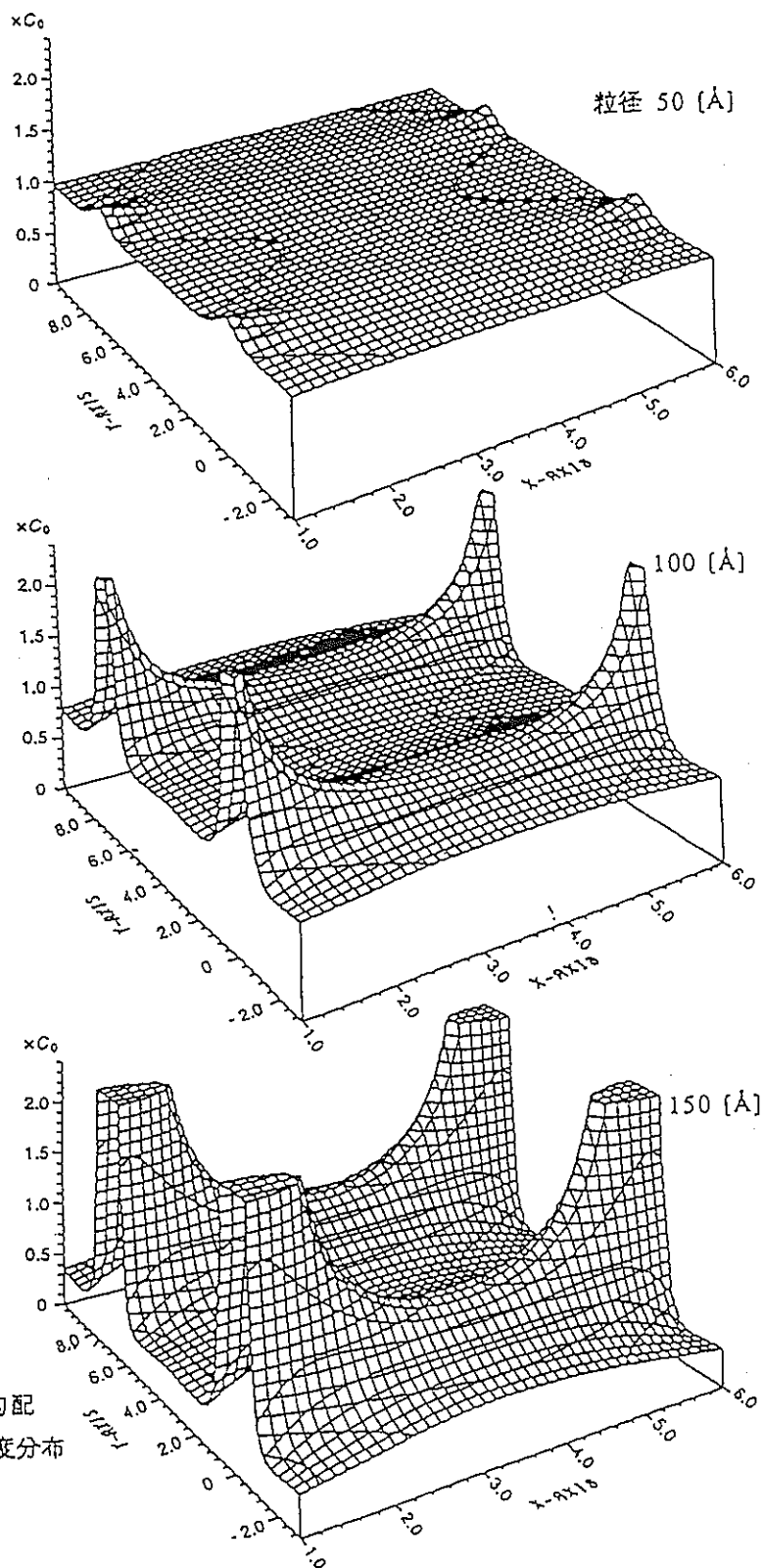
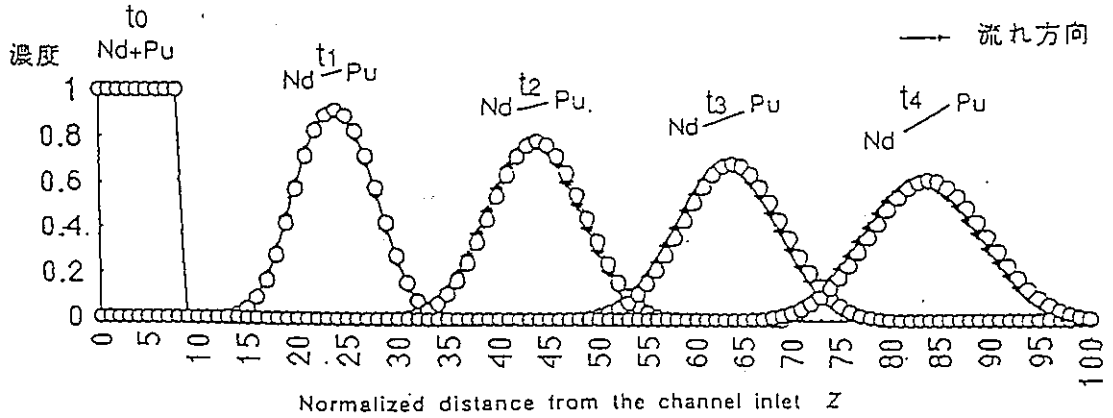
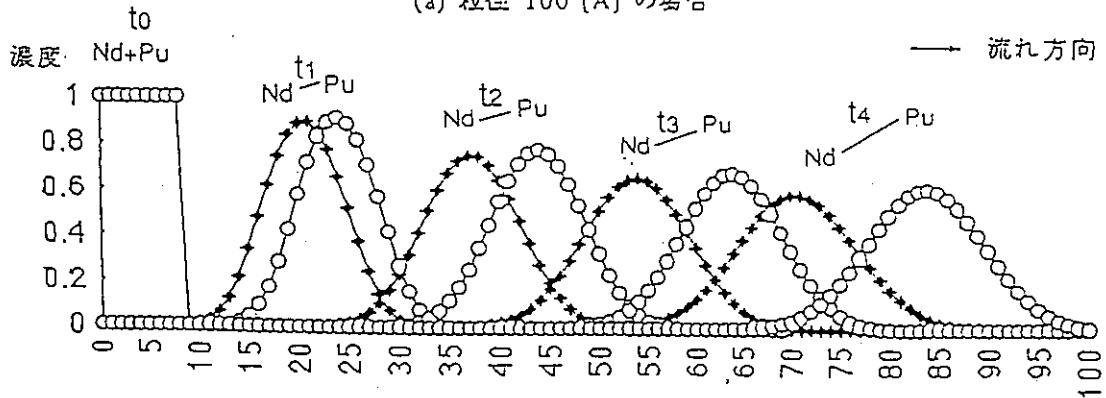


図  
8本の磁性線の磁界勾配  
が作るNd懸濁液の濃度分布

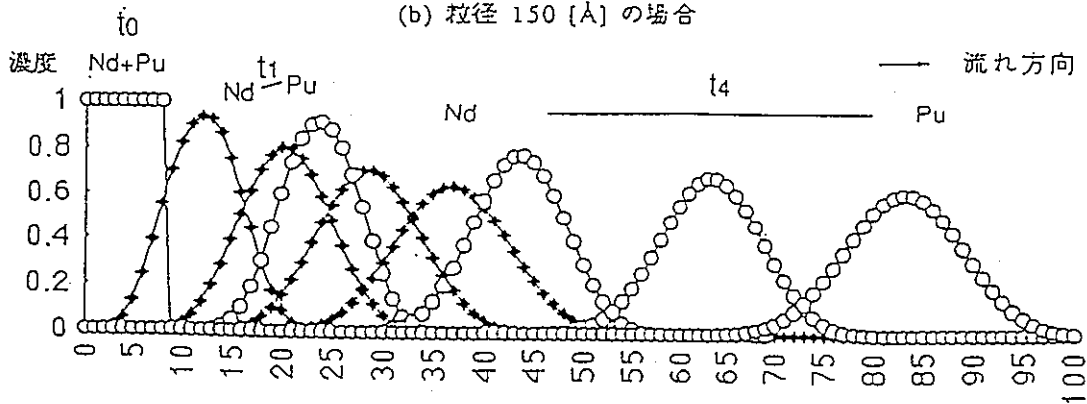
超電導磁気クロマトグラフィーによる新分離法の開発  
 ～シミュレーション結果～



(a) 粒径 100 [Å] の場合



(b) 粒径 150 [Å] の場合



(c) 粒径 180 [Å] の場合

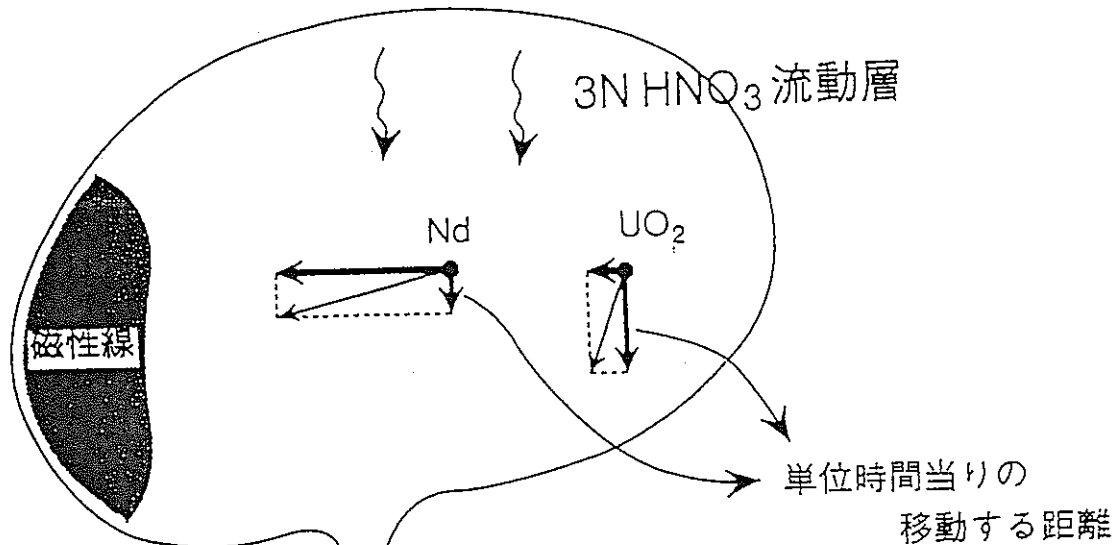
分画プロセスの計算結果

(チャンネル厚み方向に 7 [T] の磁界印加、使用磁性線の線径 200 (μm))

Ndの磁化率 :  $3.51 \times 10^{-3}$

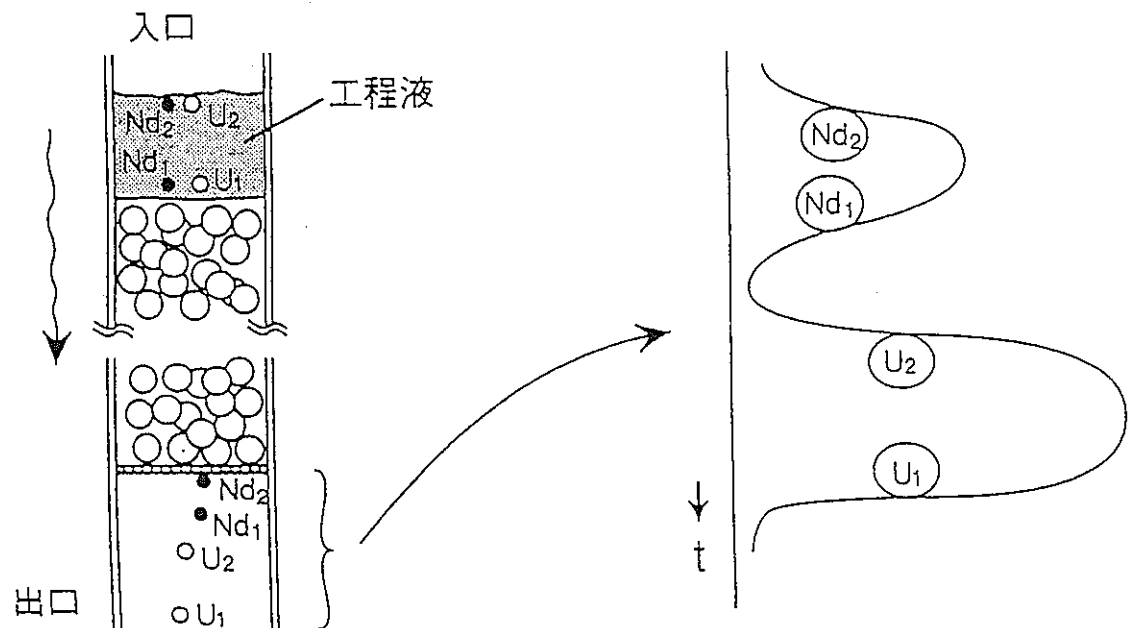
Puの磁化率 :  $6.23 \times 10^{-4}$

超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発  
 ～磁気クロマトカラムの例～



(磁化率の大きい元素ほど、移動速度)が遅い。

- 磁化率 :  $\times 10^{-6}$  cgs
- Nd : 5390
  - U : 400
  - (UO<sub>2</sub> : 2360)



超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発  
～今後の課題～

磁気クロマトグラフィー法の分離性能を明らかにするために、被分離粒子の磁化率・粒径とチャンネルの必要な長さや印加磁界強度との関係、拡散による濃度低下に起因する分離能の限界を明らかにする必要がある。

(1) 計算機シミュレーション

- ・高度なモデルの構築と、計算手法の確率。

(2) 磁気クロマトグラフィー基礎試験

- ・微細なチャンネルを作るための超微細加工技術

超電導磁気クロマトグラフィー法による新分離法の開発  
 ～タイム・スケジュール～

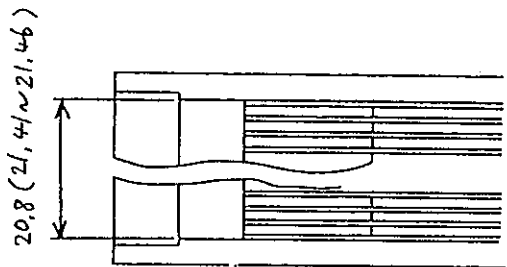
	H 7	H 8	H 9	H 10	H 11
計算機シミュレーション ・超電導磁気クロマト グラフィー法の モデル化	モデルの構築		モデルの検証及び高度化		
分離基礎試験 ・カラムの設計・試作 ・分離基礎試験	カラムの設計・試作		磁気クロマトグラフィー基礎試験		

## 4。8 磁気クロマトカラム設計

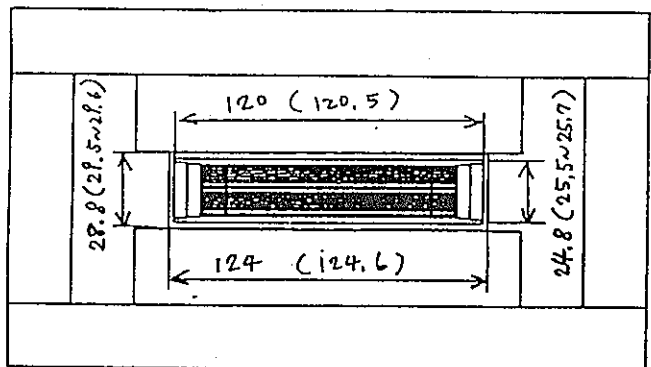


寸法検査記録

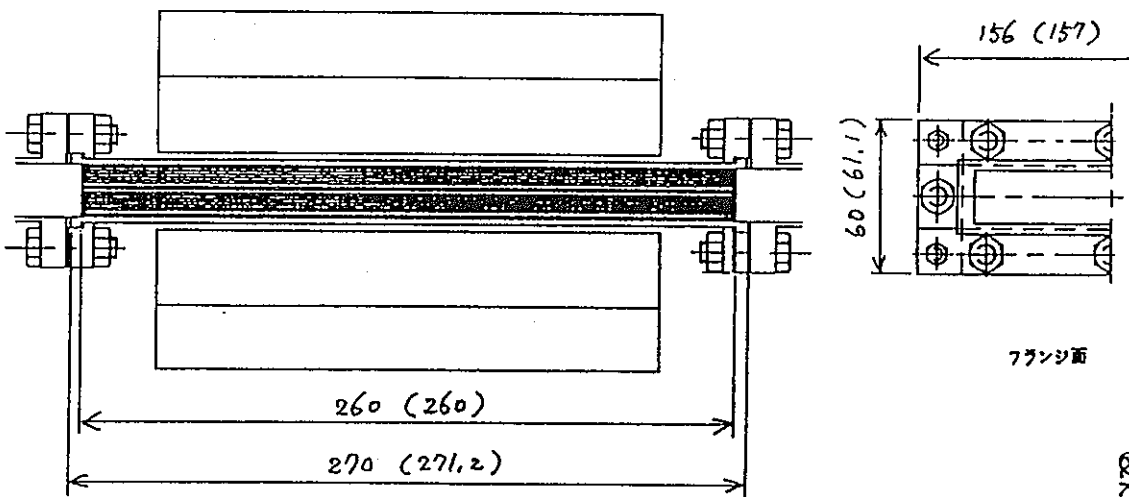
単位: mm  
( )内: 実測値



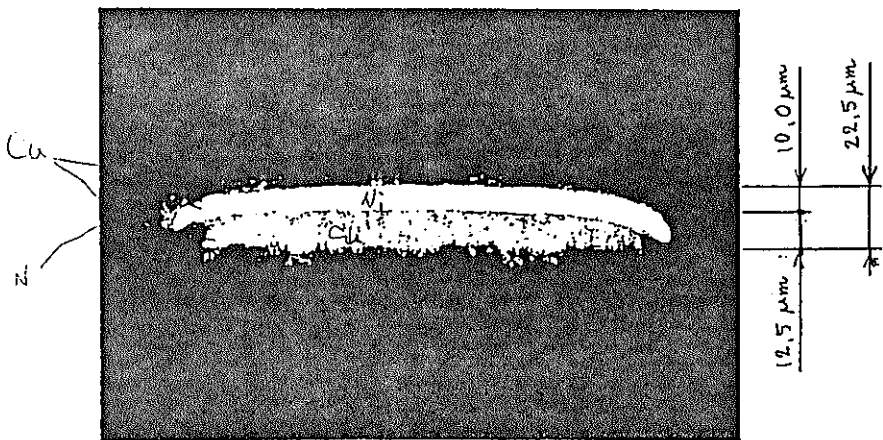
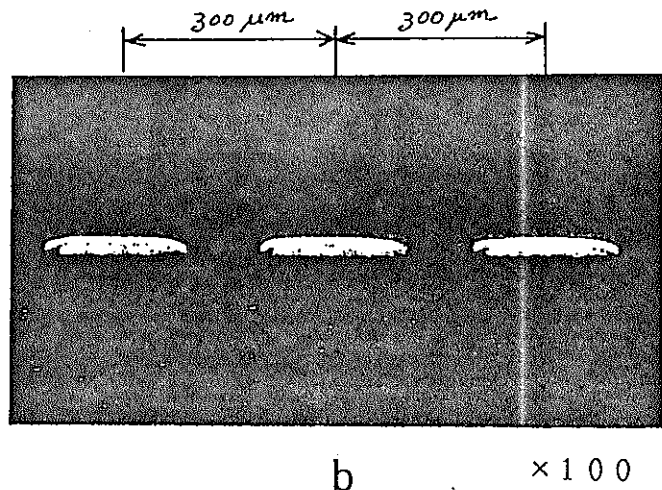
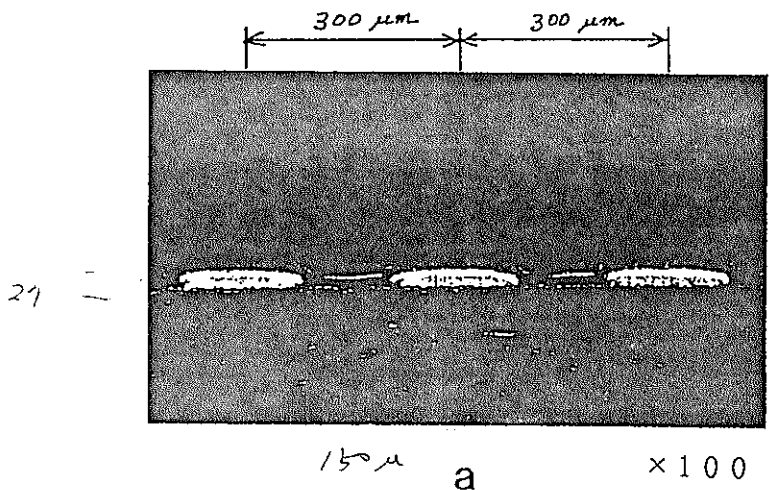
カラム部取合詳細



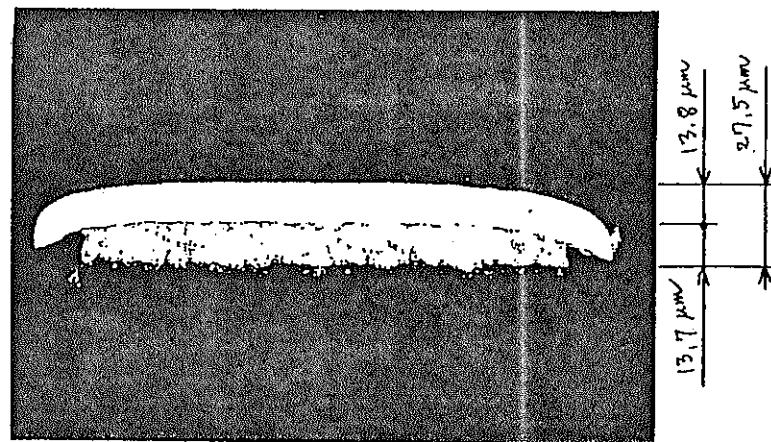
- 77 -



QR-K968A053-A



同上拡大 ×400



同上拡大 ×400

カラム基板断面形状SEM写真

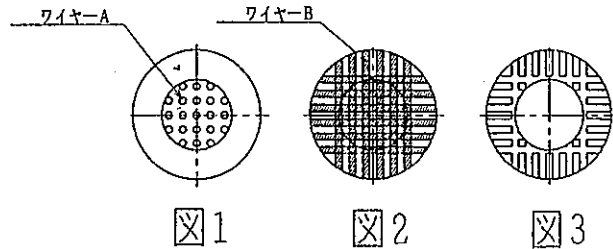
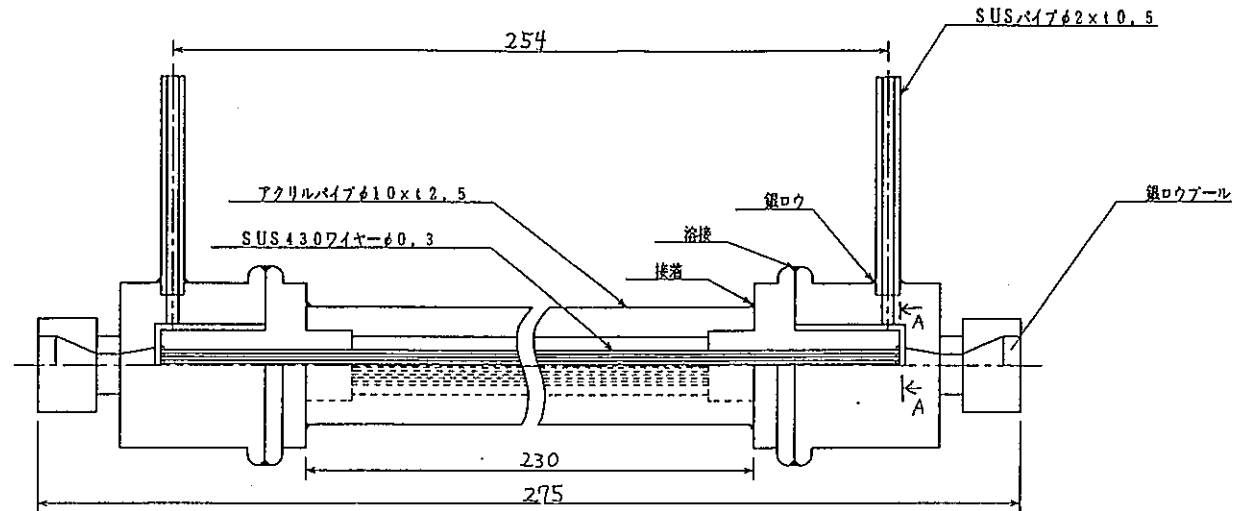
QR-K96BA053-A

6/7

図面番号 DRAWING NO.  
REV. MARK

C/H F1	図面番号 DRAWING NO.	名称 TITLE (ABBR.)	品質管理 REMARKS	提出 PREP.	M.F.	普通許容差 下記ニヨル
MODEL CODE						

この図面が指定される限り、著作権が、  
発行者・著者記号/権利がタイム/ハ  
最新版に適用スルコト



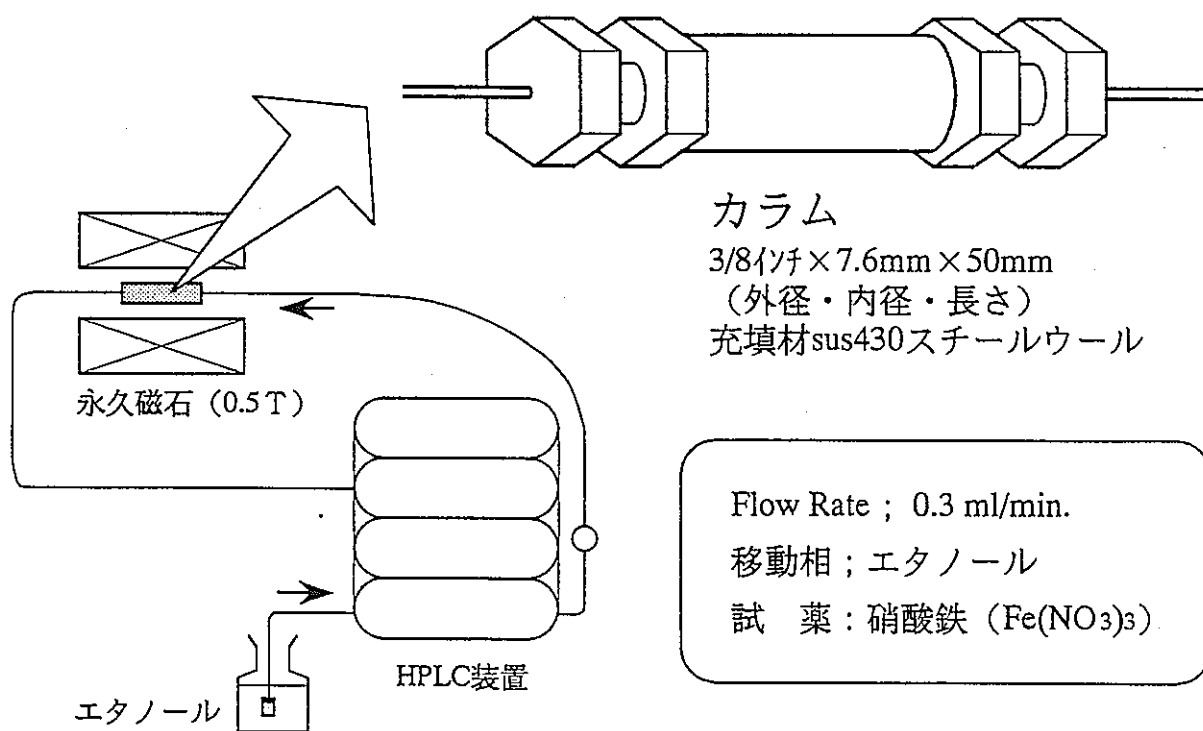
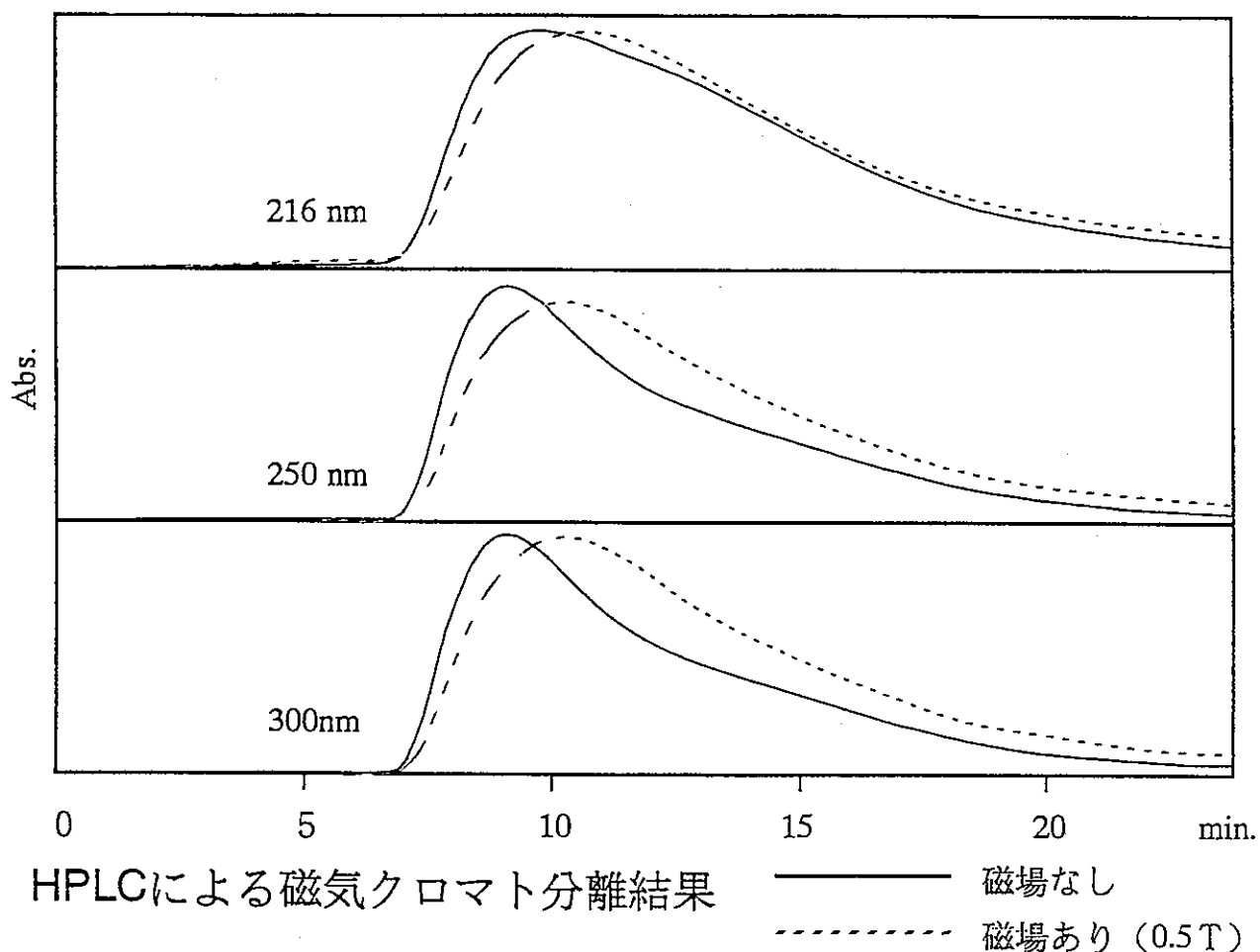
- 図1 : 磁気クロマト用ワイヤー-Aの配置図。ワイヤーはφ0.3のSUS430
- 図2 : ワイヤー-Aを固定するために、ワイヤー-Bが交互に張ってある。
- 図3 : ワイヤー-Bの位置決めのため、パイプに溝が斬ってある。

承認 APPROVED BY	承認 APPROVED BY	図差 REVIEWED BY	図差 REVIEWED BY	名称 TITLE
	NA	図差 REVIEWED BY	図差 REVIEWED BY	カラム 試作
図差 REVIEWED BY	図差 REVIEWED BY	担当 PREPARED BY	担当 PREPARED BY	アクリルパイプ
担当 PREPARED BY	担当 PREPARED BY	REV. 場所	REV. 場所	
記事 CONTENTS	TOSHIBA 株式会社 東芝 TOSHIBA CORPORATION			図面番号 DRAWING NO.

保管 REGISTERED

## 4. 9 磁気クロマト分離予備基礎 試験結果

磁気クロマト分離予備基礎試験結果



磁気クロマト試験装置概略図

## 5。外部発表および工業所有権

5. 外部発表および工業所有権

(1) 外部発表

- ① 小原、森、三宅、山本、和田、塚本：“高勾配高磁界を用いた懸濁粒子の流動分画法プロセス解析”、第17回日本応用磁気学会学術講演会、1993年9月10日。
- ② T. Ohara, S. Mori, Y. Oda, K. Yamamoto, Y. Wada, O. Tsukamoto: The Fourth Int. Sym. on Field-Flow Frac.(FFF'94), Sweden, June 13, 1994.
- ③ O. Tsukamoto, T. Ohizumi, T. Ohara, S. Mori, Y. Wada: Applied Superconductivity Conf., Boston, LED-1, Oct. 17, 1994.
- ④ 小原、海保：“超電導磁気分離研究の経緯と動向”、低温工学協会・第2回超電導応用研究会シンポジウム、東京都立大学、1994年11月17日。
- ⑤ 三宅、和田：“原子力分野における磁気分離技術の応用の可能性”、低温工学協会・第2回超電導 応用研究会シンポジウム、東京都立大学、1994年11月17日。
- ⑥ T. Ohara, S. Mori, Y. Oda, K. Yamamoto, Y. Wada, O. Tsukamoto: “Feasibility of Using Magnetic Chromatography for Ultra- Fine Particle Separation” , Intr. Session in IEE JAPAN-Pow. and Ene. Soc. Ann. Con., Nagoya, Japan, Aug. 2-4, 1995.
- ⑦ T. Ohara: “Feasibility of Using Magnetic Chromatography for Ultra- Fine Particle Separation” , High Magnetic Fields: Industry, Materials and Technology Workshop, Tallahassee, Florida, Feb. 27-March 1, 1996.

(2) 工業所有権

和田、山本、塚本、小原、三宅、森：“磁気クロマトグラフィー法による群分離方法”、特願平6-51305。