

学位論文の要旨

氏名	橋口 智和
学位論文題目	シラス化合物法によるアルミニウムスクラップ溶湯からの Mg 除去

本論文は、カスケードリサイクルの要因となる主な不要元素の中でMgをターゲットに既存の除去技術で問題となっている環境とコスト双方を考慮したMg除去技術の開発を目的に、SiO₂を多量に含み、南九州に膨大な天然資源として存在する無害かつ安価なシラスを添加剤として、化合物法によりスクラップ溶湯中のMg除去を試み、シラスの添加条件とMg除去量の関係およびシラスとMgの反応メカニズムについて調べた結果をまとめたものである。

第1章では、序論として本研究に着手するに至った背景を述べて、従来の研究を概説し、本研究の目的と構成を述べた。

第2章では、シラスの凝集による未反応を避けるために、シラスを数回に分ける添加方法として、段階添加法および連続添加法の2種類のMg除去におよぼす影響について検討した。その結果、シラスをスクラップ溶湯に添加すると、シラス中のSiO₂およびAl₂O₃がMgおよびAlと反応してMgAl₂O₄およびMgOが形成され、これらをドロスとして分離除去することによって、Mg含有量を低減できることを明らかにした。そして、段階添加法では、各段階添加後に伴う凝固過程で、シラス中のSiO₂の解離によって生じたSiと除去されなかった残留MgによりMg₂Siが晶出し、溶湯中のMg₂Si量が多くなるために、Mg除去量は次第に飽和した。連続添加法では、シラス添加途中で鋳造を行わないので、Mg₂Siは形成されず、シラス添加回数が増えるほど、Mg除去量は増大した。

第3章では、Mg除去を促進させることを目的に、シラスの添加温度および攪拌時間を変化させ、Mg除去への影響を検討した。その結果、Mg除去量は攪拌時間とともに直線的に増加した。これにより、シラスとMgの反応が拡散律速過程ではなく、界面律速過程で支配されていることが示された。一方、シラスの添加温度が上がればMgの除去量は増えるが、添加温度の影響は攪拌時間の影響より小さい傾向を示した。すべてのシラスが溶湯中のMgと反応すると仮定して、Mg残留量を計算した結果、理論値とインゴット中のMg含有量はほぼ一致した。このことから、Mg除去量はシラスの添加量によってもコントロールできることを示した。

第4章では、前章でシラスの粒径により反応が変化することとシラス添加量によりMg除去量を調整できることが示されたことから、Mg除去におよぼすシラスの粒径および添加量の影響について検討した。その結果、シラスの粒径が<63 μmおよび63-150 μmの場合、Mg除去量は攪拌時間に伴いほぼ直線的に増加した。一方、粒径300-590 μmの大きなシラスではほぼ放物線的に増加した。これにより、粒径の小さいシラスでは界面律速過程に、粒径の大きいシラスでは拡散律速過程に反応が支配されていることが示された。添加量の影響では、添加したシラスがすべてMgと反応するような条件下では、Mg除去量はシラスの添加量に比例して増加した。一方、インゴット中のSi含有量はシラスの解離で生じるSi量に比べてかなり低い値となった。これは、生じたSiがすべて溶湯中に溶解するわけではなく、一部は反応生成物に残留することによると考察した。

第5章では、本論文の総括を述べた。

論文審査の要旨

報告番号	理工研 第328号	氏名	橋口 智和
審査委員	主査	末吉 秀一	
	副査	鮫島 宗一郎	上谷 俊平
<p>学位論文題目 シラス化合物法によるアルミニウムスクラップ溶湯からのMg除去 (Removal of Magnesium from Molten Aluminum Scrap by Compound-Separation Method with Shirasu)</p> <p>審査要旨</p> <p>提出された学位論文及び論文目録等を基に学位論文審査を実施した。本論文は、シラス化合物法によるアルミニウムスクラップ溶湯からのMg除去についてまとめたもので、全文5章より構成されている。</p> <p>第1章は序論であり、本研究に着手するに至った背景および本研究の目的について述べている。</p> <p>第2章では、シラスの添加方法として段階添加法と連続添加法の2種類を用い、Mg除去におよぼす添加法の影響について検討している。そしてシラス中のSiO_2およびAl_2O_3がMgおよびAlと反応してMgOおよびMgAl_2O_4が形成され、これらをドロスとして分離除去することによって、Mg含有量を低減できること、段階添加法ではシラス添加回数の増加にともなってMg除去量は次第に飽和するが、連続添加法ではシラス添加回数が増えるほどMg除去量は増大することを明らかにしている。</p> <p>第3章では、Mg除去におよぼすシラス添加温度および攪拌時間の影響を検討している。そして、Mg除去量は攪拌時間とともに直線的に増加すること、シラスとMgの反応は界面律速過程に支配されていることを明らかにしている。また、シラスの添加温度が高くなるとMgの除去量は増えるが、添加温度の影響は攪拌時間の影響より小さいこと、すべてのシラスが溶湯中のMgと反応すると仮定して理論的に計算したMg残留量とインゴット中のMg含有量はほぼ一致すること、Mg除去量はシラスの添加量によってもコントロールできることを明らかにしている。</p> <p>第4章では、Mg除去におよぼすシラスの粒径および添加量の影響について検討している。そして、粒径の小さいシラスでは界面律速過程に、粒径の大きいシラスでは拡散律速過程に反応が支配されていることを明らかにしている。また、添加したシラスがすべてMgと反応するような条件下では、Mg除去量はシラスの添加量に比例して増加すること、シラスの解離で生じるSiがすべて溶湯中に溶解するわけではなく、一部は反応生成物に残留するため、インゴット中のSi含有量はシラスの解離で生じるSi量に比べてかなり低いことを明らかにしている。</p> <p>第5章は総括である。</p> <p>以上本論文は、アルミニウムスクラップ溶湯からMgを除去する技術に関して貴重な資料を提供すると共に、アルミニウムスクラップの水平リサイクルに関して工学上有用な指針を提供している。よって、審査委員会は博士(工学)の学位論文として合格と判定した。</p>			

最終試験結果の要旨

報告番号	理工研 第328号	氏名	橋口 智和
審査委員	主査	末吉 秀一	
	副査	鮫島 宗一郎	上谷 俊平

平成22年2月16日に行われた論文発表会において、学位論文の内容について1時間の説明を受けた後、30分間の質疑応答を行った。以下に質疑応答の主なものを示す。

質問1：「Mg除去における目標値はあるのか？その目標値は達成できたのか？」

回答：水平リサイクルを達成するためには、Mg含有量を1 mass%以下にする必要があり、これを目標値として設定した。シラスの粒径、添加温度および攪拌時間を制御することでこの目標値を達成できた。

質問2：「シラスの解離によってSiがスクラップ溶湯中に入ってくるが、リサイクルにとって問題はないのか？」

回答：水平リサイクルを達成するためには、Si含有量を0.20 mass%未満に抑えなければならない。Siの除去技術については現在検討中であるが、目標値の達成は可能と考えている。

質問3：「シラスの粒径が大きいと溶湯中のSi量はどうなるか？」

回答：シラスの粒径が大きい場合、多孔質で複雑形状をしたものが多くなる、そのため解離によって生じたSiの一部は反応生成物中に取り残され、溶湯中に溶解するSi量は減少する。

質問4：「Mg除去にとって最適条件というのは無いのか？」

回答：目標値までMgを除去するための最適条件は、粒径300-590 μm 、添加量6 mass%、添加温度1023 K、攪拌時間40 minということになる。

質問5：「ドロスはどのように処理するのか？」

回答：ドロスには酸化物が多量に含まれているので、余分に付着しているAl分を取除けば、セラミックスの原材料としての利用が考えられる。

質問6：「本技術をスケールアップした場合の問題点は？」

回答：本実験ではシラスをAl箔に包んで添加し、溶湯中にシラスが均一に分散するようにした。スケールアップする場合、このシラスの均一分散が問題であると考えている。

質問7：「シラス以外の添加剤はないのか？」

回答：Mgよりも酸素親和力の弱い元素を有する酸化物、例えばアルミナやシリカも添加剤として有効と思われる。本研究では、安価でかつ地域の天然資源である物質を有効利用しようと考え、シラスを選んだ。

質問8：「シラスを添加する際、粒径を大、中、小と順次変えていけばよい結果が得られるのでは？」

回答：反応を抑えたい場合はこの方法を用いるとよいと思われる。

その他多くの質疑応答が行われたが、いずれに対しても明瞭かつ適切な回答がなされた。

以上の結果から、3名の審査委員は、申請者が大学院博士後期課程の修了者として十分な学力ならびに見識を有するものと認め、博士(工学)の学位を与えるに足りる資格を有するものと判定した。