

平成 30 年 4 月 23 日現在

機関番号：11301

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2016～2017

課題番号：16K12628

研究課題名(和文) 溶融アルミニウムのバキュームクリーナー

研究課題名(英文) Vacuum processing for molten aluminum

研究代表者

長坂 徹也 (Nagasaka, Tetsuya)

東北大学・工学研究科・教授

研究者番号：30180467

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 2,900,000円

研究成果の概要(和文)：マグネシウムはアルミニウム合金の主要添加元素である。しかし、アルミニウムの溶湯処理においてマグネシウムは副生廃棄物であるドロスの発生を促進させることから、濃度管理が重要である。マグネシウムの除去は一般的に酸化か塩化が適用されるが、ドロスの発生やドロスの汚染を引き起こす。本研究では真空処理によりアルミニウム溶湯中のマグネシウムを揮発除去するプロセスを調査した。そこでは、気液分離方法としてセラミックフィルターを用いた画期的な真空吸引プロセスを提案し、800 1Paにおいて溶湯からマグネシウムを揮発除去可能であることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：About twenty kilo ton of magnesium per year is used for aluminum alloy such as Al-Mg-Si alloy. During dross formation, not only magnesium but also molten aluminum is oxidized. It is very important to control the Mg concentration for sustainable Al recycling. In this work, Mg removal from molten Al by vacuum processing with ceramic filter. Mg was removed from Al-10%Mg alloy at 800 degreeC and 1Pa vacuum condition.

研究分野：金属冶金工学

キーワード：アルミニウム リサイクル ドロス 酸化 真空処理

### 1. 研究開始当初の背景

インゴット溶解、合金調整、リサイクルなど金属アルミニウムの溶解工程では、ドロスと呼ばれる残渣が不可避に発生する。ドロスの主成分は大気中の酸素や窒素と金属アルミニウムが反応して生成する酸化物・窒化物と、フラックス由来の塩化物である。溶解後のプロセスにおいて不純物となるドロスは溶湯から掻き出されるが、金属アルミニウムの混入を避けられず、結果として回収したドロスには金属アルミニウムが大量に含まれている。我が国では新地金の製錬をほとんど行っていないことから、ドロス生成に伴うメタル分の損失低減は極めて重要である。また、輸送分野におけるアルミニウムを始めとした軽金属の需要は世界的に高まる一方であり、ドロス生成量すなわちメタル損失量の対策は急務の課題である。

一方、アルミニウム合金の添加元素として使用されるマグネシウムは年間約2万トンに上り、マグネシウムの国内総需要の約半数を占める。5000系をはじめ非常に多くの合金でマグネシウムが添加元素として使用されるが、マグネシウムを含む合金の溶湯処理においてはドロスの発生量が比較的多いことも知られている。これは、マグネシウムが極めて酸化しやすい特性を有しており、さらに生成したスピネル( $MgAl_2O_4$ )がドロスの発生を促進させているためと考えられている。また、マグネシウムは展伸材用合金の添加元素としては主要であるにもかかわらず、鋳造・ダイカスト材においては不純物となる元素である。すなわち、展伸材 to 鋳造材が主なりサイクルのフローであるアルミニウム産業において、マグネシウムは意図的に除去が必要な元素にもなる。脱マグ処理と呼ばれるこのプロセスでは、フラックスを大量に使用し、金属アルミニウムの酸化を伴いつつ溶湯からマグネシウムを除去するため、フラックスに汚染されたドロスが大量に発生する。ドロスの生成メカニズムは不明な点が多く、有効な発生抑制対策ができていない。

アルミニウム合金からの添加元素の除去は、大部分が非常に困難であるものの、例外的に蒸気圧が大きなマグネシウムと亜鉛は揮発除去が可能である。図1に示すように、純マグネシウムと純アルミニウムの蒸気圧差は103Pa以上であり、アルミニウム合金からのマグネシウムの揮発除去が可能であると考えられる。Mgの分離手法としては、セラミックフィルターを備えた真空吸引プラグ(バキュームクリーナー)を溶融アルミニウム合金浴中に装入し、ドロス発生原因物質であるマグネシウムを優先吸引する手法を考えた。これにより、アルミニウム合金中のマグネシウム濃度を減少させてドロスの発生が大幅に低減できると考えた。本研究ではAl-Mg合金浴におけるマグネシウムのコントロールを目的とし、真空プロセスによるAl-Mg合金からのマグネシウム揮発除去に

ついて検討した。また、気液分離手法としてセラミックフィルターに着目し、セラミックフィルターを用いたマグネシウムの揮発除去を調査した。

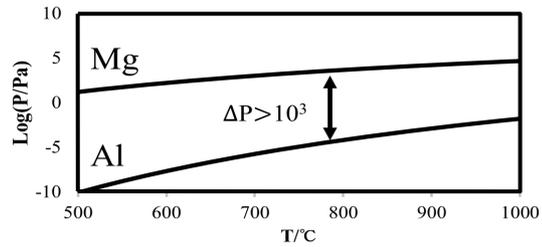


図1 Al-10wt%Mg中のAlとMgの蒸気圧差

### 2. 研究の目的

本研究では、Al-Mg合金からのマグネシウム除去技術の開発を目的としてセラミックフィルターを用いた真空処理を提案し、アルミニウムドロス発生を抑制したマグネシウム除去の評価を行った。

### 3. 研究の方法

試薬金属アルミニウム(99.0%)と試薬金属マグネシウム(99.9%)を17mmのアルミナるつぼ内で所定の量に調整し、高周波誘導加熱炉にて合金化したものを試料とした。

図2に横型真空加熱実験炉の概略図を示す。Al-10wt%Mgの試料8.7gを炉内に設置し、1kPaの真空度において800で3時間溶融した。その後、合金中のマグネシウム組成をSEM-EDSで分析した。

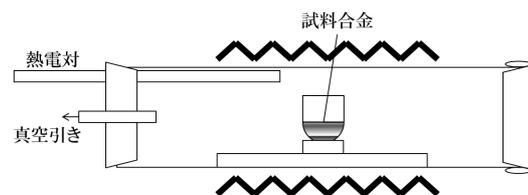


図2 横型真空加熱実験炉概略図

Al-10wt%Mg合金試料20gを図3に示す真空吸引プラグ付きの高周波炉に設置し、アルゴンガスを200cm³/minで流通させながら合金温度が800°Cになるまで加熱した。合金溶融後、セラミックフィルターを備えた真空吸引プラグを溶融合金に浸し、1kPaの真空度まで真空引きする。1時間後試料をアルゴンガス流量下で冷却し、合金組成をSEM-EDSにより分析した。

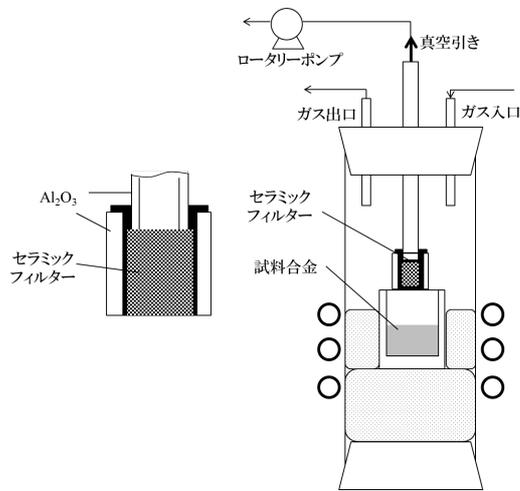


図3 真空吸引プラグ付きの高周波炉概略図

#### 4. 研究成果

横型真空加熱実験後の合金組成を表1に示す。初期組成 Al-10wt%Mg 合金中のマグネシウム濃度は 1wt%以下まで減少した。すなわち、合金から 9wt%以上のマグネシウムが除去されたと考えられる。また、実験前後で実験装置中の石英管が黒く変色していた。黒色部の成分を分析したところ、金属マグネシウムであったことから、マグネシウムが揮発して周囲の石英管に付着したと考えられる。また合金重量は 0.93g 減少していた。これらの結果より、真空状態で熔融 Al-Mg からマグネシウムを揮発除去することは可能であることがわかった。

表1 実験前後試料合金中マグネシウム濃度 (wt%) / 横型真空加熱実験

	実験前	実験後	変化
上部	10.00	0.61	-9.39
中部	10.00	0.75	-9.25
下部	10.00	0.29	-9.72

真空プラグに用いたセラミックフィルターの諸特性を表2に示す。実験直後、セラミックフィルター内部には完全に合金が侵入しており、さらにセラミックフィルターを通過して合金がセラミックフィルター上部へ飛び出していた。実験前後の真空吸引プラグと合金の合計重量の重量変化を表3に示す。実験前後の重量変化をすべて合金中のマグネシウムの揮発と考えると、熔融 Al-Mg 合金からマグネシウムが約 20%揮発したことがわかった。

表2 セラミックフィルターの特性

	単位	AZPW-40
全気孔率	%	40
気孔径	μm	50~100

表3 フィルターを含む合金の重量変化

実験前	実験後	変化
213.03	212.64	-0.39

図4に真空プラグと合金中の各位置における組成を示す。ろつば内に残留した合金中のマグネシウムの組成はほぼ変化がなかったものの、セラミックフィルター内部に浸透した合金中のマグネシウム濃度はセラミックフィルター上部へ移るほど低下したことがわかった。すなわち、セラミックフィルター内の Al-Mg 合金からマグネシウムが揮発したと言える。また、セラミックフィルター内部でマグネシウムの濃度勾配が出たため、合金内部のマグネシウムの拡散とセラミックフィルター内部のマグネシウムの揮発速度が合金中のマグネシウムの揮発の律速段階であると考えられた。

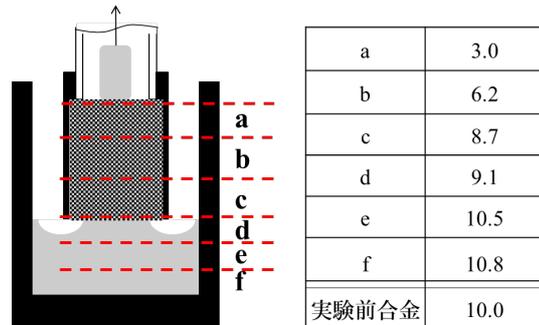


図4 セラミックフィルター内部と合金中のマグネシウム濃度(wt%)

#### 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文](計1件)

T. Hiraki, H. Noguchi, N. Maruoka, T. Nagasaka: "In Situ Observation of Dross Formation During Melting of Al-Mg Alloy", In: TMS Annual Meeting & Exhibition. Springer, Cham, pp. 1141-1146 (2018), 査読有り

〔学会発表〕(計2件)

野口仁美、平木岳人、丸岡伸洋、長坂徹也：  
“アルミニウムドロス生成機構の解明に向けた Al-Mg 合金酸化のその場観察”、軽金属学会第 132 回春期大会、2017 年 5 月 20 日、名古屋大学 名古屋

窪田大悟、平木岳人、長坂徹也：“多孔質セラミックスを用いた溶融 Al からの Mg 除去”、軽金属学会第 130 回春期大会、2016 年 5 月 28 日、大阪大学 吹田

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

長坂 徹也 (Nagasaka, TETSUYA)  
東北大学・大学院工学研究科・教授  
研究者番号：30180467