

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 26 年 6 月 4 日現在

機関番号：11301

研究種目：基盤研究(A)

研究期間：2010～2013

課題番号：22246097

研究課題名(和文)電磁分離法によるアルミニウムスクラップの清浄化と高度リサイクル

研究課題名(英文)Clarification of Aluminum Scrap by Electromagnetic Separation for Advanced Recycling

研究代表者

谷口 尚司(TANIGUCHI, SHOJI)

東北大学・環境科学研究科・教授

研究者番号：00111253

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 35,300,000円、(間接経費) 10,590,000円

研究成果の概要(和文)：アルミニウムの高度リサイクルを実現するために、熔融金属中介在物の基礎研究と電磁サイクロン法の開発研究を行った。基礎研究においては、有害介在物である $Al_3Fe$ の電磁分離実験、放射光を利用した凝固金属中の $SiC$ 凝集粒子のクラスター構造解析、せん断乱流中での粒子挙動の解明を行い、熔融アルミニウム中介在物に関する学術的知見を得た。電磁サイクロンの開発においては、まず、数値シミュレーションおよび水モデル試験装置を用いて、装置内の流体流動と遠心力と磁力による粒子の壁への分離特性を解明し、その結果に基づいて熔融アルミニウムを用いた実証試験装置を試作し、熔融アルミニウム中酸化物粒子の高い分離効率を確認した。

研究成果の概要(英文)：Fundamental and applied researches have been made of inclusion behaviors in molten aluminum and their elimination by electromagnetic cyclone to realize the advanced aluminum recycling. In the fundamental studies, electromagnetic separation of harmful inclusion,  $Al_3Fe$ , structural analysis of  $SiC$  cluster by the synchrotron radiation, and fluid-dynamic behavior of solid particle in a turbulent shear flow have been made to obtain academic knowledge of inclusion particle behaviors in molten aluminum. In the development study of the electromagnetic cyclone, numerical simulation and water model study have been performed to make clear the fluid-flow characteristics and particle transfer toward the wall by centrifugal and magnetic forces. Based on these results, a test equipment has been fabricated and utilized for separating oxide inclusions from molten aluminum. High separation efficiencies have been verified by the test.

研究分野：工学

科研費の分科・細目：材料工学・金属生産工学

キーワード：リサイクル アルミニウムの清浄化 液体サイクロン 介在物の電磁分離 介在物凝集 せん断流れ  
金属間化合物

### 1. 研究開始当初の背景

アルミニウムはボーキサイトから製造されるが、その製錬過程で多量の電気を消費するために電気の缶詰と呼ばれている。一方、スクラップから新たな製品を再生するリサイクルには、ボーキサイトからの製錬に要する電気エネルギーのわずか3%しか消費しない。したがって、アルミニウムのリサイクルを推進することは、エネルギー問題およびCO<sub>2</sub>排出に伴う地球温暖化問題を緩和するために、有効な手段となり得る。

わが国の2013年におけるアルミニウム生産量は421万トンで、その内、展伸材は195万トン、ダイカストを含む鋳造材は138万トンであった(アルミニウム協会統計)。これらの製品に向けられている新地金の割合は、展伸材が45%、鋳造材が15%であり、展伸材の原料には電気エネルギーの消費量の大きい新地金の割合が高い。これは、スクラップから混入する不純物や固体介在物が展伸性を妨げることから、新地金で希釈せざるを得ないためであり、現状では、スクラップの多くは需要の大きい展伸材よりも、鋳造材に振り向けられている。アルミ缶の高いリサイクル率から、一般にアルミニウムのリサイクルは良好な状況にあると思われているが、実際はカスケードリサイクルに止まっている。循環型社会を早急を実現するためには、アルミスクラップに含まれる有害な不純物および固体介在物を効率よく分離除去できる技術の開発を急がねばならない。

### 2. 研究の目的

溶融Al中にはAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>やMgOなどの固体介在物が含まれ、その存在が展伸性を大きく阻害する。また、Al中の不純物にはFe、Cu、Mn、Siなどがあり、溶融Al中に固体金属間化合物として晶出すると、展伸性のみならず製品の品質にも悪影響を及ぼす。

本研究では熱力学データに基づいて金属間化合物の生成条件や密度等の物性、ならびに電磁分離の可能性を明らかにし、新しい物理精錬法を提案する。すなわち、溶融Alよりも比重の大きい上記の介在物を、高速かつ高効率で除去可能な液体サイクロン法に着目し、これに電磁分離法を組み合わせた新たな大量処理法を開発する。実験では、装置内の介在物粒子の挙動を水モデル実験によって明らかにした後に、国内アルミメーカーと連携して小型装置を試作し、実際の介在物分離性能の検証を行う。

### 3. 研究の方法

#### (1)溶融Al中介在物粒子の電磁分離試験

周波数30kHzの高周波誘導炉内に設置した内径22mmの石英管内に、予めFe濃度を調整して溶解・鋳造した溶融Al-Fe合金を入

れ、高周波磁場中で金属間化合物の晶出温度で所定時間保持後、ガス冷却によって凝固させた。凝固後の試料を切断研磨し、Al合金中の晶出粒子(Al<sub>3</sub>Fe)の分布を調査することにより電磁分離の可能性を検討した。

#### (2)SiC粒子凝集体の構造解析

後述する模擬介在物分離実験において、SiC粒子が凝集・肥大化し、重力沈降も促進された。そこでSiC粒子凝集体を定量的に評価する方法を検討した。凝集体は通常の試料断面観察法では、正確なサイズおよび個数濃度を測定することが難しい。そこで、凝固後のAl試料を高強度放射光によるX線マイクロCT解析に供して、2次元画像と3次元構造との関係を定量的に検討し、2次元画像から凝集体サイズおよび個数濃度を統計的に導出する手法を開発した。

#### (3)せん断水流中における固体粒子挙動解析

速度勾配中の粒子には揚力が作用し、粒子が流線と直角方向に泳動することが知られている。この揚力泳動が乱流速度勾配中でも作用するか否かを確認するために、水中に鉛直に設置した2つのベルトを互いに逆向きに走行させ、ベルト間にせん断流を形成し、その中でガラス粒子の泳動現象を調査した。流体および粒子の速度は、PIV法およびLDV法により測定した。

#### (4)電磁サイクロンによる介在物分離試験

①数値シミュレーション：熱流体解析ソフトFLUENTを用いた装置内流動状態の解析、電磁場解析ソフトJ-MAGを用いた電磁力計算、限界軌道法による粒子捕集率の解析を行った。

②水モデル試験：実験装置の外観を図1に示した。



図1. 液体サイクロンの水モデル実験槽

水はポンプによりサイクロン、フィルター、貯水槽等からなる流路内を一定流量で循環させた。所定量の磁性粒子をサイクロン入口に一度に投入し、所定時間後にサイクロン及びその下部の捕集容器内に捕集された粒子

量から捕集効率を求めた。電磁分離特性は、サイクロン下部を囲むように設置したラバーマグネットおよび底部に設置した捕集容器内に集められた磁性粒子量から求めた。粒子径は 20~60 $\mu\text{m}$  で、粒径の測定にはコールター法を使用した。サイクロンは直径 150mm および実機に近い 112mm の 2 種を用い、液流量は最大 25L/min の条件とした。③実機試験：耐火物で作成したサイクロン装置の下部に高周波コイルを付設して、容量 360kg の溶解炉から中間容器を経て熔融 Al を装置内に流入させた。試験条件は熔融 Al による試験条件で推算した流動および粒子分離条件を参照して、平均粒径 50 $\mu\text{m}$  の SiC 粒子を使用した。また実際の介在物として、0.5%Mg を含む Al 合金を大気下で溶解し、生成した酸化物粒子の除去試験も行った。熔融 Al の流量は手動により約 15L/min に保った。実験は日本軽金属(株)蒲原工場で実施した。図 2 に試作した装置本体の概要を示す。

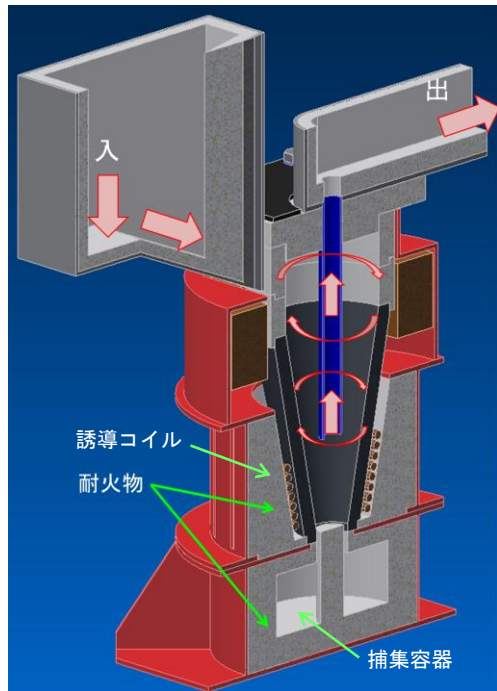


図 2. 電磁サイクロン装置本体の概要

#### 4. 研究成果

##### (1) 熔融 Al 中介在物粒子の電磁分離試験

図 3 に、熔融 Al-4%Fe 合金を加熱溶解し、液相線直下の 800 $^{\circ}\text{C}$  で 20min 保持して Fe の一部を  $\text{Al}_3\text{Fe}$  の固体粒子として晶出させ、それを電磁分離後、空冷凝固した試料の断面写真を示した。石英管の壁面に多くの結晶が集積しており、電磁分離の存在が確認された。電磁分離を行わない場合には容器底部に結晶の沈降が見られた。XRD 分析により、この結晶が  $\text{Al}_3\text{Fe}$  であることを確認した。これよ

り熔融 Al に含まれる有害不純物を金属間化合物として晶出させ、それを遠心力あるいは電磁力で分離除去する清浄化プロセスの可能性を確認した。

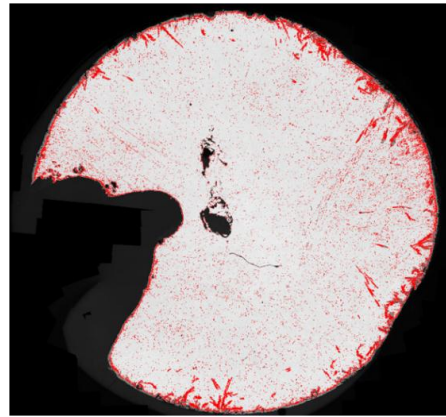


図 3. Al-4%Fe 合金から晶出した  $\text{Al}_3\text{Fe}$  粒子の容器壁面への電磁分離

##### (2) SiC 粒子凝集体の構造解析

一般に介在物の評価は、金属試料断面の顕微鏡観察に基づいているが、疎に凝集したクラスター状の凝集体では、その粒径および個数の判定は容易ではない。そこで本研究では、放射光を利用した X 線マイクロ CT によって、固体 Al 中の SiC 粒子凝集体の 3 次元像と断面上の 2 次元像との比較によって、2 次元像から正確な粒子径と個数濃度を推定する手法を開発した。図 4 に SiC クラスターの 2 次元画像と 3 次元画像とを対比して示した。3 次元画像から 1 つの凝集粒子であることを確認した数千の凝集粒子について、対応する 2 次元画像から(1)式で定義されるフラクタル次元  $D_f$  を求めると、その平均値が 1.69 となった (粒子が円形なら  $D_f=2$  となる)。

$$S = (\pi/4)d_{\max}^{D_f} \quad (1)$$

ここに  $S$  は 2 次元画像における粒子凝集体の占める面積、 $d_{\max} = \max(d_x, d_y)$  である。この関係を利用すれば、介在物凝集体の 2 次元画像から統計的に正確な凝集体のサイズおよび個数濃度を推定することができる。

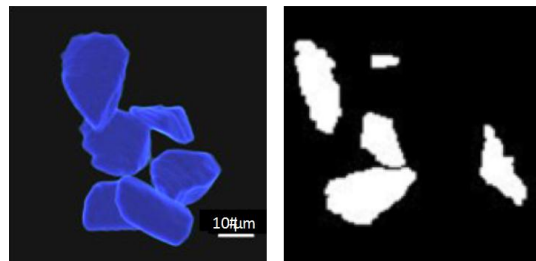


図 4. SiC 凝集体の 3 次元像と 2 次元像の比較 (6 個の単位粒子の凝集体)



(3)せん断流れ場における固体粒子挙動解析

固体壁近傍の速度勾配中にある粒子は、速度勾配に起因する揚力の作用によって、主流と直角向きに泳動することが知られている。この泳動が電磁力と逆に作用すれば、粒子の電磁分離を阻害する。乱流中の粒子移動に揚力が作用するか否かについては、これまで十分な知見が得られていない。そこで、2つのベルトを並べて鉛直に設置し、互いに反対方向に走行させて乱流速度勾配を作り、中心に落としたガラス粒子の運動を調べた。ガラス粒子の軌跡を  $k-\epsilon$ モデルによる乱流計算によって推算したところ、揚力の有無による軌跡の変化は認められなかった。これより乱流状態では揚力の影響は無視できると結論した。

(4) 電磁サイクロンによる介在物分離試験

図5に液体サイクロンの原理を示した。サイクロン入口から流入する原液は、円錐状の壁に沿って回転しながら下方に流れ、液中の高密度粒子は遠心力で壁面に向かって輸送され、壁面に到達すると重力によって下降し、集塵容器に集積される。粒子が取り除かれた浄化液は容器中心の流出管を通して容器外に排出される。

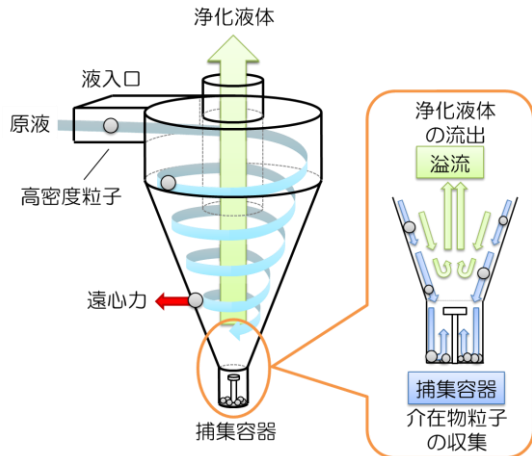


図5. 液体サイクロンの原理

この液体サイクロンの溶融 Al 中 介在物除去への応用が Turchin ら[1]によって提案され、シミュレーションが行われたが、介在物除去効率の予測値は低く、実用には至っていない。一般に液体サイクロンでは粒子と液の密度差が小さいために慣性が弱く、壁面に到達する前に主流に乗って排出されてしまうためであると思われる。本研究では、この液体サイクロンの下部に高周波コイルを設置して、壁面近傍で強く作用する電磁分離力によって介在物粒子の分離効率の向上を図った。

①水モデル実験：口径 150mm と 112mm の 2 つのサイクロンの圧力損失と液流量との関係を図6に示した。図には経験式である

Dahlstrom の式[2]を合せて示したが、実測値と計算値とはよく一致している。同じ液流量で比較すると、サイクロン口径が小さい方が圧力損失は大きくなっている。サイクロンの圧力損失は、器内の液の回転速度に依存するが、口径の小さい方が回転速度が大きいためである。

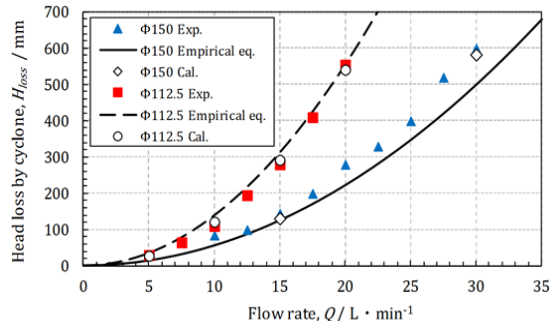


図6. 圧力損失と液流量との関係

液流量が 15L/min の場合の粒子径と粒子捕集効率との関係を、口径 112mm と 150mm の 2 つのサイクロンについて図7に示した。図には磁気分離がない場合とある場合とを比較して示したが、粒子径 15~40 $\mu$ m の範囲で磁気分離がある方が大きな捕集効率を得られている。図中に限界軌道法によって求めた捕集効率の計算値を示したが、計算値は実測値とほぼ一致している。

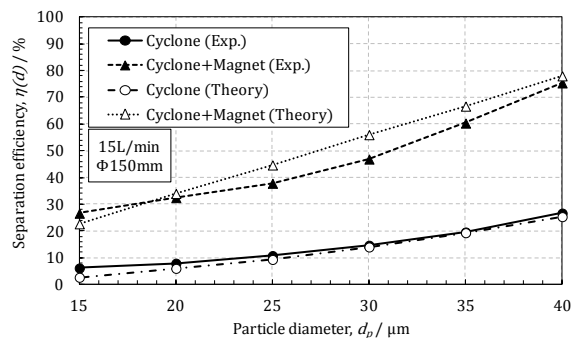
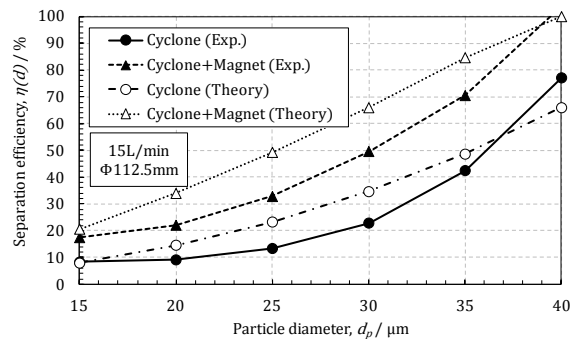


図7. 粒子捕集効率の実測値と計算値の比較 (上図：口径 112mm、下図：口径 150mm)

粒子捕集効率の計算値が水モデル実験結果と一致したことから、溶融 Al 中の  $Al_2O_3$

粒子の捕集効率を推算した。その結果を図8に示した。計算条件は、サイクロン口径118mm、液流量  $Q=15\text{L}/\text{min}$ 、高周波磁場  $B_0=0.03\text{T}$ 、周波数  $12\text{kHz}$  である。

図より、 $\text{Al}_2\text{O}_3$  の粒径が大きいほど捕集効率が大きく、粒径  $50\sim 60\mu\text{m}$  を超えると捕集率が100%に達している。電磁分離効果は小さい粒径で顕著であり、例えば  $30\mu\text{m}$  の粒子の捕集効率は電磁分離がないときの約2倍に達している。

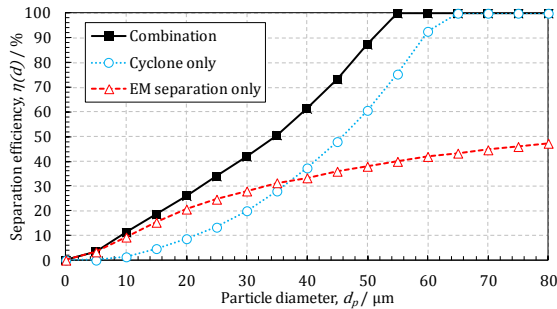


図8. 溶融Al中  $\text{Al}_2\text{O}_3$  粒子の分離効率

②実機試験：口径118mmの電磁サイクロンを試作し、模擬介在物として粒径  $50\mu\text{m}$  のSiC粒子を用いた介在物分離試験を試みた。溶融Alへの粒子混入にはAl粉末とSiC粒子とを良く混合し、圧粉成形した後に溶融Alに投入する方法を適用した。しかし、(a)SiC粒子が凝集して一様分散できない、(b)粒子が入口流路の底に沈降して装置に流入しない、という問題が生じたため、意味のある試験結果が得られなかった。凝集粒子の分散には、超音波振動やホモジナイザーの利用が効果的と考えられたが、いずれも十分な分散には至らなかった。そこで溶融AlにMgを0.5%添加して、大気雰囲気中で自然酸化させることにより、金属酸化物を溶融Al中に生成させ、それをサイクロンで分離する方法を採用した。その結果、以下のように酸化物等からなる介在物は70%以上除去された。しかし電磁分離による更なる効率向上は認められなかった。

表1. 実機による介在物の分離効率

No	条件	効率
1	サイクロン+電磁分離	-75%
2	サイクロン単独	-73%
3	サイクロン+電磁分離	-72%

これは、介在物の大きさが数  $100\mu\text{m}$  に達しており、図8より明らかのように、サイクロンによる分離に電磁分離を加えても、分離効率がさらに向上することはないためである。図9に表1の最初の試験条件でサイクロン入口、出口の介在物分析結果をまとめて示した。介在物の分析は溶融Alをフィルターで

ろ過し、フィルター上に捕捉された介在物や酸化被膜を顕微鏡で調べる方法(PoDFA法)を用いた。サイクロン入口における介在物にはMgOおよびスピネル( $\text{MgAl}_2\text{O}_4$ )が多いが、出口ではそれらは極めて少なくなっていた。一方、入口には見られなかった接種剤起因の微細なカーバイドが見られた。

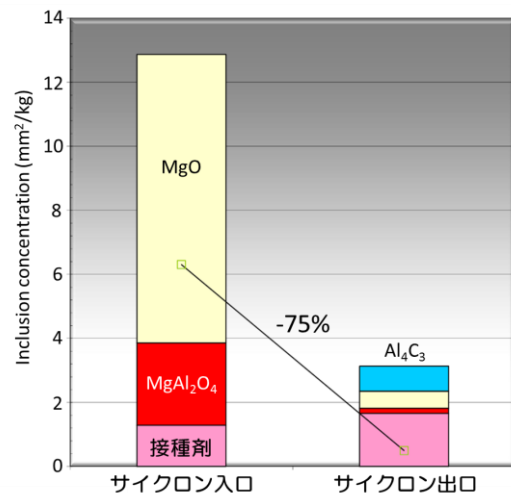


図9. サイクロン前後の介在物変化

#### (5)まとめ

以上、本研究では不純物や介在物を多く含む溶融Alを効率的に清浄化するための電磁サイクロン法を開発し、水モデル実験および実機試験によって、その除去性能を検討した。模擬介在物の凝集が防止できなかったために、実機を用いた定量的な実証試験には至らなかったが、サイクロン単独によっても大きな介在物の除去効果が認められた。今後は模擬介在物の均一分散を実現し、電磁サイクロンの介在物除去性能を定量的に解析する予定である。

なお、2013年1月25日に、軽金属の新しいプロセッシング技術に関するワークショップを、軽金属学会東北支部および日本金属学会東北支部の協賛により開催し、企業研究者、大学関係者、学生、計35名の参加の下に、本基盤研究成果の報告を行った。本報告会には英国グリニッジ大学のV.Bojarevics博士、フランスIRSID研究所のP.Gardin博士、ノルウェーSINTEF研究所のS.T.Johansen博士を招聘し、本基盤研究に関連する招待講演を行った。

#### 引用文献

- [1] A. N. Turchin, et al., Metall. Mater. Trans. B, 39 (2008), p.364.
- [2] 吉岡直哉、日刊工業新聞社、続・新化学講座 12 液体サイクロン、1960

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3件)

① T.Li, S.Shimasaki, S.Taniguchi, K.Uesugi, S.Narita: Stereological Analysis of Nonspherical Particles in Solid Metal, Metall. Mater. Trans. B, 査読有, 44B(2013), pp.750-761.

DOI: 10.1007/s11663-013-09824-x

② T.Li, S.Shimasaki, S.Taniguchi, K.Uesugi, S.Narita: Morphology of Nonmetallic Inclusion Clusters Observed in Molten Metal by X-ray Micro-Computed Tomography (CT), INSJ Int., 査読有, 53(2013), pp. 1943-1952.

DOI: 10.2355/isijinternational.53.1943

③ T.Li, S.Shimasaki, S.Taniguchi, K.Uesugi, S.Narita: Particle Coagulation in Molten Metal Based on Three Dimensional Analysis of Cluster by X-ray Micro-Computer Tomography (CT), INSJ Int., 査読有, 53(2013), pp. 1958-1962.

DOI: 10.2355/isijinternational.53.1958

[学会発表] (計11件)

①石渡保生: 溶融 Al 清浄化サイクロンの試作と溶湯試験, 軽金属の新しいプロセッシング技術に関するワークショップ—科研費基盤 A 成果報告会, 2013 年 1 月 25 日, 仙台, (2013).

②中林昭弘: サイクロンと電磁分離を組み合わせた溶融 Al 清浄化技術開発, 軽金属の新しいプロセッシング技術に関するワークショップ—科研費基盤 A 成果報告会, 2013 年 1 月 25 日, 仙台, (2013).

③A.Nakabayashi, H.Kim, S.Shimasaki, S.Taniguchi: Development of Clarification Technology for Molten Al by Combination of Cyclone and Electromagnetic Separation, EPM2012, 25 Oct. 2012, Beijing, China, (2012).

④S.Shimasaki, K.Takahashi, Y.Kanno, S.Taniguchi: Separation of Inclusion Particle from Liquid Metal by Electromagnetic Force, ICAA13, 5 Jun. 2012, Pittsburg, USA, (2012).

[図書] (計0件)

[産業財産権]

○出願状況 (計1件)

名称: 溶融金属中の介在物の分離除去方法およびその装置

発明者: 谷口尚司外 5 名

権利者: 東北大学、日本軽金属(株)

種類: 特許

番号: 特願 2013-81406

出願年月日: 2013 年 4 月 9 日

国内外の別: 国内

○取得状況 (計0件)

[その他]

ホームページ等

なし

6. 研究組織

(1)研究代表者

谷口 尚司 (TANIGUCHI, Shoji)

東北大学・大学院環境科学研究科・教授

研究者番号: 00111253

(2)研究分担者

嶋崎 真一 (SHIMASAKI, Shin-ichi)

香川高等専門学校・機械電子工学科・准教授

研究者番号: 00447145

上野 和之 (UENO, Kazuyuki)

岩手大学・工学部・教授

研究者番号: 20250839

松本 克才 (MATSUMOTO, Katsutoshi)

八戸工業高等専門学校・物質工学科・教授

研究者番号: 701950519

(3)連携研究者

なし

(4)研究協力者

石渡 保生 (ISHIWATA, Yasuo)

日本軽金属株式会社・鑄造開発センター・

主任研究員

研究者番号: なし

中林 昭弘 (NAKABAYASHI Akihiro)

東北大学・大学院環境科学研究科・院生

研究者番号: なし