The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	金属２液相分離を利用した溶鉄中トランプエレメントの除去
Author(s)	山口, 勝弘
Citation	大阪大学, 2012, 博士論文
Version Type	VoR
URL	https://hdl.handle.net/11094/26860
rights	
Note	

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

【117】

氏　　名	山　口　勝　弘（やま　ぐち　かつ　ひろ）
博士の専攻分野の名称	博　士（工学）
学　位　記　番　号	第　２５５０８　号
学 位 授 与 年 月 日	平成 24 年 3 月 22 日
学 位 授 与 の 要 件	学位規則第４条第１項該当 工学研究科マテリアル生産科学専攻
学　位　論　文　名	**金属２液相分離を利用した溶鉄中トランプエレメントの除去**
論 文 審 査 委 員	（主査） 教　授　竹内　栄一 （副査） 教　授　田中　敏宏　　教　授　山下　弘巳 福井工業大学工学部機械工学科教授　碓井　建夫　　准教授　小野　英樹

論 文 内 容 の 要 旨

鉄スクラップのリサイクルは従来一般に実施されている技術である一方、近年大きな関心を集めている資源・環境問題の流れを受けて急速に重要性を増している。しかしながら鉄スクラップに混入する不純物の除去技術が十分ではなく、そのリサイクルは量・質ともに、補完的に行われているのが実態である。本研究は、従来困難であると考えられてきた不純物元素、特にCuやSnの除去に関して、熱力学の観点から従来のアプローチの限界を見極めるとともに、新たな原理を提案、実験的に検証することにより、鉄スクラップのリサイクル技術を将来の鉄鋼製造の主要プロセスとして組み込む上での理論的指針を提供するものである。

溶融鉄スクラップ中に第3元素を添加し、2相分離を促進することによるCuの除去方法が提案されている。その第3元素としてはCが有効であることが知られているが、同じく侵入型元素であるBに着目し、その分離促進効果を調査した。また、溶融Fe, Agを接触させて溶鉄中Cuを分配除去する方法も報告されているが、そのCu分配におけるC, Bの効果についても調査、解析を行った。その結果、両プロセスにおけるBの効果はCと同程度であることを見出した。

本研究における第一の提案は、溶融金属媒介相を用いてCuを除去する手段である。この金属媒介相としては、溶融Feに対してCuの分配比が高く、Cuを媒介相から酸化除去する目的から、Cuよりも酸化雰囲気で安定なAgを用いるものとした。最初の研究結果を考慮し、溶融Agを介した炭素飽和溶鉄中Cuの酸化除去実験を行い、Cu濃度が大きく低減可能（4 mass%→0.4 mass%）であることを示した。さらにSnについて調査したところ、分析検出限界以下の濃度まで除去可能であることを見出した。Snの除去に関しては満足できる結果が得られたものの、Cuの除去効果をさらに高める必要があり、第2の提案として、媒介相からCuを直接酸化除去せず、Cu吸収能をもつB_2O_3系フラックスを介した間接酸化除去を検討し、実験によってFe中Cu濃度を0.2 mass%以下に低減できることを明らかにした。このCu濃度は鉄スクラップのリサイクルにおいて表面欠陥を引き起こす濃度以下の値である。

続いてより一層のCu濃度の低減に向けて、CuがFeより硫化しやすい性質に着目し、Fe-Ag-Na_2Sフラックス系におけるCuの硫化除去について検討を加えた。硫化除去実験の結果、Fe中Cu濃度は0.06 mass%まで大きく低減することを確認し、本手法が鉄スクラップ中Cuの除去方法として実用的な手段になり得ることを明らかにした。

本研究は熱力学的平衡論に基づく提案からスタートし、媒介相中溶質元素の移動速度論的考察を加え、従来困難とされていた鉄スクラップ中のCu, Snを最終的に実用化レベルまで低減する理論、プロセス原理を構築した。ここで得られた知見は、将来における理想的な鉄資源循環プロセスを企画設計する上での指針になると考えられる。

論 文 審 査 の 結 果 の 要 旨

原料の劣質化、原料価格の高騰、および炭酸ガスの排出削減要求は、国内の鉄鋼製造における大きな問題である。老廃スクラップのリサイクルはこれらの解決方法の一つとして有効である。このため国内の老廃スクラップを、品質を落とさずにリサイクルできることが資源面、環境面から望ましい。本論文は、老廃スクラップのリサイクルに必要な不純物除去方法として、金属液相を媒介として用い、媒介相内の化学ポテンシャル差を利用して強酸化／硫化精錬する方法を提案し、その原理の検証としてAg相を介した鉄鋼中のトランプエレメントであるCu, Snの除去を検討している。得られた結果は以下のとおりである。

（1）溶鉄中Cuの分離促進に対してCと同様に有効な添加元素とみられるBに着目し、Fe-Cu-B系の2液相分離、Fe-Ag間のCu分配について調査し、BのCu分配比に与える熱力学的影響を調査している。Fe-Cu-B系のFe, Cu-rich相の2液相分離を低B濃度領域において調査し、BがFe中Cuの活量係数増大に寄与することを明らかにしている。またFe-Cu-B-Ag系のFe-B, Ag間のCu分配比を調査しており、Fe中B濃度が高いほどFe中からCuが除去されることを明らかにしている。

（2）金属媒介相としてAgを用いた溶鉄中Cu, Snの酸化除去を1523 Kにおいて検討している。その結果、溶鉄中Cu濃度が4 mass%から0.3-0.6 mass%に低減し、Sn濃度は0.001 mass%以下に低減されることを明らかにしている。この結果は、従来除去困難であった溶鉄中Cu, Snを、Ag相を介して同時に除去できることを示しており、特にSnの除去に効果的であることを示している。またCuの除去に関して、得られた酸化銅の活量が高いため、さらに濃度を下げるために酸化銅の活量を低下させるフラックスの利用を提言している。

（3）フラックスのCu吸収能を利用したCuの酸化除去を検討している。Ag相を介した炭素飽和溶鉄中CuのB_2O_3系フラックス中への酸化除去を検討し、フラックス中にCuが酸化除去され、Fe中Cu濃度が0.2 mass%以下に低下することを明らかにしている。またAg相中Cu, Fe, Oの挙動を数値計算により推定し、Fe, Ag中Cuを効果的に酸化除去するための手法について考察を加えている。

（4）CuがFeより硫化しやすい性質に着目し、溶鉄中Cuの硫化除去を検討している。Feの硫化を防ぎ、高硫黄ポテンシャルでCuを硫化するためにAgを媒介相として用い、溶鉄中Cuの硫化物フラックス相へ除去することを検討しており、溶鉄中Cu濃度が初期濃度0.1 mass%から0.06mass%まで低下することを明らかにしている。またAg相内で硫黄ポテンシャルの勾配が生じていることが推察され、Fe中よりも高い硫黄ポテンシャルでCuを除去していることを示している。

以上のように、本論文は媒介相内の化学ポテンシャル差を利用した不純物除去方法を提案し、その基礎原理を証明するために溶鉄中Cu, Snの除去を検討している。このような原理に基づく精錬方法は独創的であり、材料工学の発展

に寄与するところが大きい。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。