

# アルミニウム溶湯処理プロセス中の 環境負荷の低減にむけた技術開発

山本 卓也\*

## 1. はじめに

この度、第30回日本金属学会奨励賞に選出頂き、誠にありがとうございます。本賞を受賞することができ、大変嬉しく思います。コロナ禍の大変な状況の中、本賞の選考に関わった委員の皆様、日本金属学会事務局の方々に御礼を申し上げます。また、大変恐縮ではございますが、近年取り組んでいる研究に対して紙面を割いて紹介させて頂ければ幸いです。私は、大阪大学大学院基礎工学研究科において2017年に学位を取得後、金属生産工学分野に研究領域を変更し、現在に至るまでアルミニウムの溶湯処理プロセスの環境負荷低減技術開発を中心に研究を行っております。以下にその研究背景、動向に関して紹介致します。

## 2. アルミニウム生産プロセスにおける研究背景

近年、持続可能な社会実現のため、温室効果ガス利用量低減が叫ばれており、輸送機器の軽量化に取り組まれている。アルミニウムは軽量且つ生産量も鉄に次いで多い金属であるため、高級車や鉄道におけるアルミニウムの使用比率は向上している。また、軽量且つ熱伝導性が良いことから、燃料電池用ケース材、外装材、さらには食品包装材等での利用拡大が見込まれている。

材料の応用先としては上記のようなものが期待されているが、材料プロセスの点から見ると、日本の置かれた状況と環境対策の2点から解決せねばならない問題が多い。日本は他国と比較して電気料金がいため、電力を大量に消費するアルミニウムの電解精錬を行っておらず、地金は100%

輸入に頼っている。また、精錬までは海外資源メジャー、海外アルミメジャーが占めており、国内メーカーは地金を利用した加工専業となっている。このため、産業競争力を高めるためには、リサイクル比率を向上させる必要がある。現状では、アルミ缶の2018年リサイクル率は93.6%<sup>(1)</sup>であるものの、アルミニウム全体で見ると2019年の国内でのリサイクル率は48%<sup>(2)</sup>に留まっている。もう少し詳しくデータを見ると、鋳物のリサイクル率はほぼ100%に近い一方で、展伸材のリサイクル率は10%程度<sup>(2)</sup>である。このような比率になる原因は展伸材の2次合金は鋳物に利用されるというカスケードリサイクルが行われているからである。このため、展伸材から展伸材へのリサイクル技術の開発が必要とされている。

また、Sustainable Development Goals (SDGs) が国連で掲げられて以降、生産プロセス中の環境問題がますます重要視されている。輸入した地金は、溶解炉において溶湯にした後、母合金やスクラップ等の2次地金を加え、溶湯清浄化を行い、鋳造を行う。溶湯清浄化操作においては、ハロゲン化合物を使用し不純物を取り除いているが、ハロゲン化合物は環境負荷が大きいため、使用量を低減する、もしくはハロゲン化合物を利用しない技術開発が求められている。また、国内では行っていないがアルミニウムの電解精錬時に消費するエネルギー、CO<sub>2</sub>等の温室効果ガス排出量が多い。リサイクルした2次地金を利用した場合、電解精錬時と比較し、エネルギー消費量が4.6%<sup>(3)</sup>、CO<sub>2</sub>排出量が4.6%、NO<sub>x</sub>排出量が4.4%<sup>(4)</sup>となる。具体例を挙げると、アルミ缶のリサイクルによって、年間256億 MJのエネルギー、電力換算として71億 kWh (国内全世帯約15日分)を節約していることになる<sup>(1)</sup>。このため、リサイクル率を向上させることが環境負荷

\* 東北大学大学院工学研究科金属フロンティア工学専攻；助教(〒980-8579 仙台市青葉区荒巻字青葉 6-6-02)  
Development of Technologies for Reduction of Environmental Impact in Aluminum Melt Treatment; Takuya Yamamoto (Research Group, Department of Metallurgy, Graduate School of Engineering, Tohoku University, Sendai)  
Keywords: aluminum purification, flux treatment, ultrasonic treatment of molten metal, acoustic cavitation, numerical simulation  
2021年2月9日受理[doi:10.2320/materia.60.347]

低減に大きく貢献できる。

このような背景のもと、当研究室では環境調和型プロセスを開発することを掲げ、速度論を用いたアルミニウム清浄化処理時のハロゲン化物使用量低減、超音波鋳造による展伸材リサイクル率向上のための研究を行っている。特に、著者は移動現象論の観点から上記課題を解明することを試みている。以下に、著者らが行ってきた研究を中心に、研究進展を説明する。

### 3. 課題に対する近年の研究進展

#### (1) ハロゲン化物使用量低減のためのフラックス、ガス吹き込み処理効率の向上

アルミニウムの溶湯処理では、溶解炉や保持炉において塩素ガスや不活性ガス、フッ化物、塩化物を含むフラックスを溶湯中へ吹き込み、ガス種やフラックスと不純物を反応、浮上分離させ、最終的に溶湯表面から掻き取る。坩堝実験では強攪拌すれば、反応は迅速に終了し不純物を除去できるが、数10から100 t近くにもなる炉内では、物質移動が律速となる<sup>(5)</sup>。このため、回転翼の下側からガスやフラックスを吹き込む Rotary Gas Injection (RGI) や Rotary Flux Injection (RFI) が利用されている。近年開発されている低環境負荷のフラックスは分散性等が悪く、炉内処理で望まれる反応速度に達しない。また、従来処理でもハロゲン化物の利用量を低減することが期待されるが、当然反応速度が下がる。これらの背景のもと、炉内処理における RGI, RFI 処理時の物質移動向上が望まれている。

炉内での不純物除去における律速段階は、RGI, RFI 周辺の局所物質移動である<sup>(6)</sup>。この場合、フラックスの熔融塩表面、もしくは塩素ガス等の気泡界面での物質移動に着目すべきである。界面付近の局所物質移動に支配される場合、物質移動速度は反応界面積と反応界面における物質移動係数に依存する。著者らは、吹き込まれた気泡や液滴の反応界面積増加による物質移動の向上を目的とし、RGI, RFI 中の気泡、液滴の分裂挙動を解明している。

また、同時に着目すべき現象として、酸化皮膜の巻き込みがあげられる。RGI や RFI では溶湯を機械的に攪拌するが、溶湯は空気中の酸素や水蒸気と反応し、生成した酸化皮膜が攪拌に伴い溶湯中へ巻き込まれる。巻き込まれた皮膜は bifilm と呼ばれる二重酸化皮膜となり、鋳物の機械特性を著しく悪化させる<sup>(7)</sup>。これらのことから、気泡や液滴の分断が必要であるものの、激しい攪拌は皮膜巻き込みを増大するので避ける必要がある。

上記の研究方法として炉内実験が好ましいが、大型炉内で多数の実験を行うことは現実的ではない。このため、炉内で生じる現象を水モデル実験系において模擬し、無次元数を用いて整理される方法が古くから用いられてきた。また、近年では、数値シミュレーションによっても現象が解明されている。著者らは、RGI, RFI での気泡分断現象<sup>(8)(9)</sup>、巻き込み現象<sup>(10)(11)</sup>を数値シミュレーションによって解明し、応用研

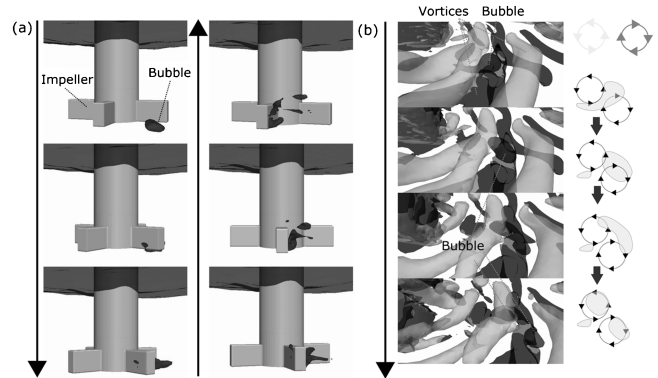


図1 機械攪拌中の気泡分裂挙動：(a) 翼付近の気泡の運動<sup>(8)</sup>と(b) 翼端渦と気泡の関係性<sup>(9)</sup>。

究として、炉内処理を模擬できる水モデル実験系<sup>(12)(13)</sup>を提案している。

乱流中の気泡、液滴分断現象は Liao and Lucas<sup>(14)</sup>によって review されているが、乱流変動、粘性せん断応力、切断、表面不安定性の4種類のメカニズムで分断される。著者らは RGI, RFI のような機械攪拌を伴う系での支配的な分断メカニズムを特定するため、機械攪拌中に単一気泡を吹き込み、その分裂機構を解明することとした。図1に数値解析による気泡分裂挙動を示す。図1(a)に示すように気泡は翼後方で分断し、翼端から発生する渦対(翼端渦)に気泡が巻き込まれ、分断した<sup>(8)</sup>。さらに、多数の条件でこの気泡分裂挙動を解明すると、攪拌 Reynolds 数が大きい条件では大半の気泡は翼端渦によって分断された<sup>(9)</sup>。産業応用においては攪拌 Reynolds 数が大きいため、翼端渦による気泡分断が支配的になると考えられる。また、翼端渦と気泡の関係性を詳しく調査すると、図1(b)に示すように、渦対間のせん断流によって分断していた。Liao and Lucas<sup>(14)</sup>の分類によると乱流変動と粘性せん断応力が個別に議論されていたが、乱流変動(乱流渦)によって渦間に粘性せん断応力が発生し、それにより気泡が分断されるという現象になっており、この分類分けには当てはまらない。

また、気液界面からの巻き込み現象を解明するため、機械攪拌中の界面変動メカニズムを水モデル実験と数値解析を行った。機械攪拌中の界面変動挙動を図2に示す。界面変動は(1)マクロ不安定性による大変形、(2)翼端渦等によって誘起される局所変形、(3)局所表面渦の3種類に分類分けすることができた<sup>(10)</sup>。また、この変形メカニズムは攪拌方法や翼を変更した場合でも支配的な変形パターンが変わるだけで、この3種類から変形を説明できた<sup>(10)(11)</sup>。つまり、巻き込みに寄与する湯面変形は3種類のメカニズムのどれか、もしくは複合的に関与していると考えられるが、巻き込み現象の定量評価は、今後の課題として残っている。巻き込み現象を低減するための応用研究としては、邪魔板<sup>(15)</sup>、偏心<sup>(10)</sup>等があるが、邪魔板は表面渦深さを低減するが、邪魔板部での巻き込みを引き起こし<sup>(16)</sup>、偏心はインペラと軸に強い応力が加わることから、単純に設備導入すれば良いという訳で

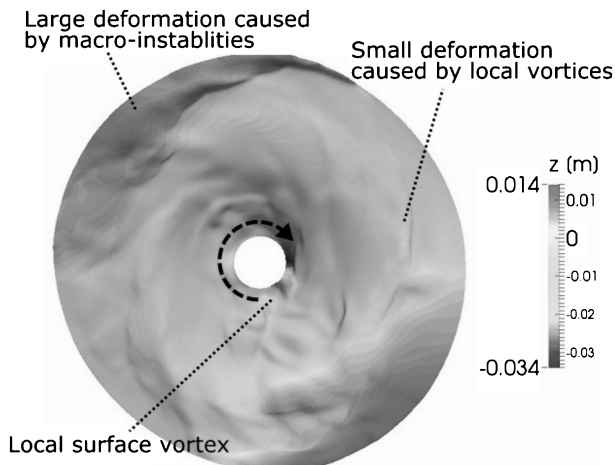


図2 数値解析によって求めた機械攪拌中の液面形状<sup>(10)</sup>。

もない。

上記のように基礎現象を解明することで、新しい装置構造や制御指針を示すことができる。例えば、気泡分裂に関してはどのように翼端渦と気泡を衝突させ、分裂させるかが反応効率向上の指針となり、それに応じて翼や装置構造を変化させることが重要となる。今後、基礎的知見を元に装置改良されることが期待される。

## (2) 不要金属間化合物無害化のための超音波 casting 中基礎現象解明

超音波 casting は、ある合金系において液相線と固相線の間の温度において超音波を照射し casting する技術であり、様々な効果が得られる。よく知られている効果としては、 casting 時に金属組織を微細化できるというものである<sup>(17)</sup>。超音波を照射した際に生じている現象は様々なものがある。例えば、超音波を溶湯中へ照射するとキャビテーションと呼ばれる気泡の生成、崩壊が生じる<sup>(18)</sup>。このキャビテーションによって核生成が促進される、金属間化合物に向かって 100 m/s を優に超える液体ジェットが発生することで金属間化合物が分断される、キャビテーション崩壊時に衝撃波が発生し金属組織が分断される、キャビテーション気泡の運動によって汚れや気泡によって不活性化されていた微細化剤が活性化される等、様々なことが提案されている。また、キャビテーションによる効果以外にもソノキャピラリー効果によって金属組織が溶断する、大域的な音響流によって溶湯温度が均一化し核生成サイトが増える等の金属間化合物微細化メカニズムが提案されている。これらの現象を一つ一つ解き明かしていくことが必要であるが、溶湯中の現象を計測するのは一般に困難である。音響キャビテーションや音響流による金属間化合物微細化の直接観察<sup>(19)</sup><sup>(20)</sup>やサクシノニトリルを利用したモデル実験での観察<sup>(21)</sup>も見られるが、未だに組織微細化メカニズムについて決着がついていない。また、超音波 casting 実用化に向けては、音響流やマクロ的流動、熱物質移動、偏析等を制御する必要がある。

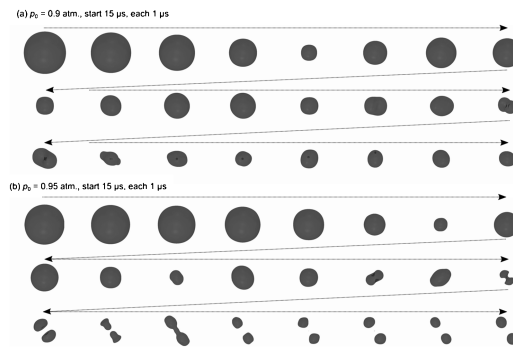


図3 音響キャビテーション分裂時の気泡分裂挙動<sup>(26)</sup>。

著者らは、主に超音波 casting プロセス技術に着目して研究を行っている。超音波 casting 実用化のためには、音響流やキャビテーション生成領域、熱、物質輸送までを予測する必要がある。このため、筆者らはこれらを同時に解析できる数値モデルを構築し<sup>(22)</sup>、アルミニウム中での音響流を数値的に予測し<sup>(23)</sup>、その結果を検証するため、アルミニウム溶湯中での音響流を実験的に初めて計測した<sup>(24)</sup>。実験、数値解析結果から、音響流はアルミニウム中では水中と同程度、もしくは流速が小さくなるが、水モデル実験等の結果と大差はない。このため、水モデル実験でも大まかには溶湯中と同様の現象を表現できていると考えられる。ここで開発した数値モデルを活用し、アルミニウムの超音波半連続 casting 時に発生する現象<sup>(25)</sup>を予測した。超音波 casting 時には、音響流の影響で特に casting 初期にサンプル(溶融領域)が深くなる。また、超音波音響流が対流伝熱を促進することで、従来 casting と比較して固液共存領域が減少し、固液共存領域の再溶解もみられる。上記の現象が理解されたものの、現状の数値モデルは固液共存領域の流動等の数多くの要素が入っておらず、より詳細な数値モデル開発に取り組んでいる段階である。

また、音響キャビテーションと金属組織微細化の関係性を明らかにするため、キャビテーション気泡の動力学についても調査している<sup>(26)</sup><sup>(27)</sup>。例えば、アルミニウム溶湯中で音響キャビテーション気泡サイズを推定するため、音響キャビテーションの分裂挙動を解明した。ここでは、気泡分裂条件を求めることで、疑似的に気泡サイズを予測することとした<sup>(26)</sup>。数値解析によって得られた気泡分裂挙動を図3に示す。外部音圧が低下することで気泡は膨張し、音圧が上昇することで気泡が圧縮する。音圧振幅が大きい条件では気泡振動と音圧振動の位相がずれ、気泡が急速に圧縮され、対称性が崩れ、最終的に気泡が分裂する。この分裂条件は対称性が崩れる条件<sup>(28)</sup><sup>(29)</sup>とほぼ一致している。つまり、気泡振動時の気泡形状に対して線形安定性解析を行えば、気泡サイズを理論的に予測可能であると考えられる。また、音響キャビテーションと金属組織の関係性を解明するため、モデル系として音響キャビテーションと溶湯とは別の第三相の相互作用も調査した<sup>(30)</sup>が、第三相によってもキャビテーション気泡の動力学は変化する。具体的には第三相に応じて発生する液体ジェットの方向性が反転する。このように、金属組織とキャ

ビテーション間の相互作用は複雑な現象が絡み合うと予想される。今後は、金属組織分断とキャビテーションの関係性や音響キャビテーションによる核生成促進機構の解明等のより複雑な現象に取り組む予定である。

#### 4. さ い ご に

アルミニウムのリサイクルや環境問題を起点とした溶湯処理プロセスの効率化、現象解明に関する研究を紹介した。フラックス処理、超音波铸造共に古くから知られている技術ではある。一方で、近年 SDGs や社会の流れから環境負荷低減が叫ばれており、再度取り組むべき課題だと著者らは考えており、今後一層、上記課題解決に向けて邁進していく予定である。また、超音波铸造中の諸現象は理解されていないものが多く、全容が解明できているとは言い難い。この現象解明に向けてさらに今後取り組んでいく。本稿の研究内容は、当研究室主宰 Komarov Sergey 教授の元で研究室にて行われたものである。Komarov 教授をはじめ、研究室の皆様には感謝申し上げます。

#### 文 献

- (1) アルミ缶リサイクル協会：2019年度飲料用アルミ缶のリサイクル率について、(2020), 1-4.
- (2) 日本アルミニウム協会：アルミニウム Vision 2050, (2020).
- (3) J. A. S. Green: ASM International, (2007), 67-90.
- (4) N. Ding, F. Gao, Z. Wang, X. Gong and Z. Nie: Procedia Eng., **27**(2012), 465-474.
- (5) V. S. Ware, S. Shankar and M. M. Makhlof: J. Mater. Process. Technol., **168**(2005), 119-126.
- (6) J. F. Bilodeau and Y. Kocafe: Light Met., **2001**(2001), 1009-1015.
- (7) J. Campbell: Mater. Sci. Technol., **22**(2006), 127-145.
- (8) T. Yamamoto, Y. Fang and S. V. Komarov: Chem. Eng. Sci., **197**(2019), 26-36.
- (9) T. Yamamoto and S. V. Komarov: Chem. Eng. Sci., **207**(2019), 1007-1016.
- (10) T. Yamamoto, Y. Fang and S. V. Komarov: Chem. Eng. J., **367**(2019), 25-36.
- (11) T. Yamamoto, W. Kato, S. V. Komarov and Y. Ishiwata:

- Metall. Mater. Trans. B, **50B**(2019), 2547-2556.
- (12) K. Kato, T. Yamamoto, S. V. Komarov, R. Taniguchi and Y. Ishiwata: Mater. Trans., **60**(2019), 2008-2015.
- (13) T. Yamamoto, K. Kato, S. V. Komarov, R. Taniguchi and Y. Ishiwata: Metall. Mater. Trans. B, **51B**(2020), 1836-1846.
- (14) Y. Liao and D. Lucas: Chem. Eng. Sci., **64**(2009), 3389-3406.
- (15) H. Bagherpour-Torghabeh, R. Raiszadeh and H. Doostmohammadi: Metall. Mater. Trans. B, **49B**(2018), 3456-3469.
- (16) S. T. Johansen, S. Graadahl and T. F. Hagelien: Appl. Math. Model., **28**(2004), 63-77.
- (17) G. I. Eskin and D. G. Eskin: Ultrasonic treatment of light alloy metals, CRC Press (2015).
- (18) K. Yasui: Acoustic cavitation and bubble dynamics, Springer (2017).
- (19) T. Nagira, N. Nakatsuka, H. Yasuda, K. Uesugi, A. Takeuchi and Y. Suzuki: Mater. Lett., **150**(2015), 135-138.
- (20) F. Wang, D. Eskin, J. Mi, C. Wang, B. Koe, A. King, C. Reinhard and T. Connolley: Acta Mater., **141**(2017), 142-153.
- (21) F. Wang, J. Kang, Z. Guo, T. L. Lee, X. Zhang, Q. Wang, C. Deng and J. Mi: Acta Mater., **165**(2019), 388-397.
- (22) Y. Fang, T. Yamamoto and S. Komarov: Ultrason. Sonochem., **48**(2018), 79-87.
- (23) T. Yamamoto and S. Komarov: Light Metals, **2019**(2019), 1527-1531.
- (24) T. Yamamoto, K. Kubo and S. V. Komarov: Ultrason. Sonochem., **71**(2021), 105381.
- (25) S. V. Komarov and T. Yamamoto: Materials, **12**(2019), 3532.
- (26) T. Yamamoto, S.-i. Hatanaka and S. V. Komarov: Ultrason. Sonochem., **58**(2019), 104684.
- (27) T. Yamamoto and S. V. Komarov: J. Appl. Phys., **128**(2020), 044702.
- (28) M. P. Brenner, D. Lohse and T. F. Dupont: Phys. Rev. Lett., **75**(1995), 954-957.
- (29) R. G. Holt and D. F. Gaitan: Phys. Rev. Lett., **77**(1996), 3791-3794.
- (30) T. Yamamoto and S. V. Komarov: Ultrason. Sonochem., **62**(2020), 104874.



山本卓也

★★  
 2017年3月 大阪大学大学院基礎工学研究科博士後期課程修了  
 2017年4月 東北大学大学院環境科学研究科先端環境創成学専攻 助教  
 2020年4月- 現職  
 専門分野：移動現象論、数値解析  
 ◎移動現象論を活用した数値シミュレーションによって、アルミニウムの溶湯処理や超音波利用プロセス技術開発を中心に活動。  
 ★★★