

氏名（本籍）	山 川 治（岐阜県）
学位の種類	博 士（工学）
学位授与番号	乙第 68 号
学位授与日付	平成 23 年 3 月 25 日
専攻	物質工学専攻
学位論文題目	熔融アルミニウム用チューブフィルタの結合材とろ過性能に関する研究 (Studies on bond materials and filtration efficiency of rigid media tube filter for molten aluminum)
学位論文審査委員	(主査) 教授 大 矢 豊 (副査) 教授 海老原 昌 弘 教授 上 宮 成 之 准教授 櫻 田 修

### 論文内容の要旨

アルミニウムはリサイクル時に必要なエネルギーが地金製造時の 3 %で済むことから、省エネ性に優れた金属材料である。アルミニウムの特徴は軽量で高強度、加工性に優れ、高い耐食性と導電性や熱伝導性を有することで、その用途は窓用サッシなどの建築部材をはじめ、輸送用機材、飲料用缶や食品包装などの食品関連分野、銅代替材料としての送電線や配電線の分野、更には、磁気ディスク材や電解コンデンサー箔などの電子分野など幅広い分野で使用されている。最近では CO<sub>2</sub> 排出削減の地球環境改善の観点から、製品の軽量化や薄肉化が求められ、より高品質なアルミニウム圧延素材の要求が高まってきている。

高品質なアルミニウム圧延素材を得るために、熔融アルミニウム中の水素ガスや非金属介在物を除去する溶湯処理が行われている。特に介在物除去にはろ過材によるインライン処理が行われ、そこで利用されるろ過材のうち、Rigid Media Tube Filter (RMF：通称、チューブフィルタ) が最も介在物捕集性能が高いと言われている。従来の RMF はホウケイ酸ガラス（結合材）を用いて骨格となる酸化アルミニウム粒子を結合させて作製されてきた。この場合、熔融アルミニウムとの濡れ性には優れるが、結合材として用いたホウケイ酸中の SiO<sub>2</sub> が熔融アルミニウムに還元されることによって耐食性が低下し、その成分の溶出も問題となってきた。また、700℃の操業温度域で結合材が軟化し、強度低下の原因ともなってきた。そこで、本研究では金属溶解炉内張材の結合材やセラミックス繊維強化材として使用されているホウ酸アルミニウム 9Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>・2B<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (9A2B) に着目し、RMF の結合材としての適合性と結晶生成条件を検討した。その結果、9A2B 結晶生成は結合材組成と焼成条件に依存し、9A2B 結晶を結合材とした RMF は熔融アルミニウムに対し耐食性に優れ、有害成分の溶出が少なく、1200℃の高温域まで強度を維持し、熱膨張率が小さくなることを明らかにした。しかし、9A2B 結晶生成量が多い RMF では熔融アルミニウムに濡れ難く、ろ過材への熔融アルミニウムの含浸性は低下した。そこで、結合材組成に溶解アルミニウムに還元される SiO<sub>2</sub> を添加した。SiO<sub>2</sub> 添加量の増加に伴い、9A2B 結晶生成量は減少し、熔融アルミニウムの含浸性は向上するが、熔融アルミニウム中へのケイ素の溶出は増大し、高温での強度低下も認められた。検討結果から、含浸性が改善でき、シリコン溶出が抑制され、強度低下しない SiO<sub>2</sub> 添加量は 10 mass%であることを見出した。

一方、RMF のろ過性能評価に関する研究がいくつか報告されているが、どれも定量的でなく、実操業とは条件などが異なっていた。また、熔融アルミニウムを使用した方法では測定精度が低く、測定に時間も要していた。そこで RMF のろ過性能評価についてセラミックス粒子を添加した水系懸濁液を用いる簡易方法の検討を行った。水系懸濁液を用いる方法でろ過性能を評価した結果、介在物捕集性能はろ過材の気孔径に依存し、気孔径が大きいろ過材は粗い介在物の流出が多く、気孔径が小さいろ過材は微細介在物のろ過に優れていることを見出した。RMF の介在物捕集性能を維持したまま、ろ過量を増すことを目的にして、RMF チューブの内側と外側で気孔径の異なる 2 重構造体を製作して、そのろ過性能についても評価した。その結果、2 重構造体のろ過性能は気孔径が小さいろ過層のろ過性能に依存し、気孔径が小さい層が薄くなることによって、溶解アルミニウムの通過抵抗が小さくなり、ろ過量を増すことができることに成功した。また、2 重構造体は熔融アルミニウム入側の層の気孔径を大きくすることで、アルミニウムの含浸性を向上させることができた。

RMF はろ過速度が遅い時に高いろ過性能を示すためろ過材全体がろ過に寄与させる必要があり、ろ過材へのアルミニウム含浸率が高いことが前提となる。実操業では RMF チューブを何本か組にした RMF カートリッジとして用いる。アルミニウム溶湯の含浸が不十分であった RMF カートリッジの含浸状態を調査した結果、含浸が不十分である部位は RMF チューブ長手方向の中央部分で、カートリッジ内では内側に配置されたチューブであった。ろ過槽内の流れについて有限要素法 (FEM) を用いてシミュレーション解析を行った結果、アルミニウム含浸が不十分な部位はろ過槽内で流速が遅く、流れが少ない箇所であることを明らかにした。

アルミニウムのリサイクルが促進されることによりアルミニウム中の介在物が増加する一方、軽量化、薄肉化の観点より高品質なアルミニウムの要求が高まっている。また、ろ過性能を維持してろ過処理量を増加させる必要もある。これらの相反する要求を満たすために、本研究の成果である結合材に 9A2B 結晶を用いて作製した RMF の利用、RMF チューブの 2 重構造化、水系懸濁液による簡易ろ過性能評価、アル

ミニウム含浸性向上の検討結果は非常に有効であると考えられる。

### 論文審査結果の要旨

本論文は、高品質なアルミニウム圧延素材を得るために必要不可欠な熔融アルミニウム中の非金属介在物を除去するセラミックス製チューブフィルタの結合材とろ過性能に関する研究成果をまとめたものである。チューブフィルタの高い介在物捕集性能を維持し所定のろ過量を得るためには、結合材の熔融アルミニウムに対する耐食性を向上させるとともに、チューブフィルタへの熔融アルミニウム含浸性を向上させる必要がある。これらに関する本論文の成果は、以下の3項目にまとめられる。

#### 1) チューブフィルタの結合材に関する研究

従来のチューブフィルタの結合材はホウケイ酸ガラスであったため、熔融アルミニウムと反応し耐食性が劣り、結合材成分が溶出する問題があった。そこで、 $9\text{Al}_2\text{O}_3 \cdot 2\text{B}_2\text{O}_3$  (以下、9A2Bと略記) 結晶に着目し、結晶生成の条件と結合材への適性を検討した。その結果、9A2Bは $\text{Al}_2\text{O}_3\text{-B}_2\text{O}_3$ 系融液から析出し、特に第3成分としてMgOを添加した系で結晶析出量が多く、その量は焼成時の熱負荷量に依存することを明らかにした。この9A2B結晶を多く含む結合材を有するチューブフィルタは熔融アルミニウムに対する耐食性に優れ、有害成分の溶出が少なく、 $1200^\circ\text{C}$ まで強度を維持し、さらに熱膨張率が小さいという優れた特性を持つものであった。しかし、熔融アルミニウムと濡れ難く、チューブフィルタへの熔融アルミニウムの含浸性は低下した。そこで、結合材に熔融アルミニウムと濡れ易い $\text{SiO}_2$ の添加を試みた。その結果、添加した $\text{SiO}_2$ は結合材表層の9A2B結晶層中に存在するため、10 mass%という少ない量でチューブフィルタへのアルミニウムの含浸性が改善できることを明らかにした。さらに添加量が少ないため、熔融アルミニウムへの溶出を少なくすることが可能であった。

#### 2) ろ過性能評価に関する研究

チューブフィルタのろ過性能を簡易に精度良く評価する方法として、水系懸濁液を用いる方法を新たに提案した。水系懸濁液による評価結果は、熔融アルミニウムに模擬介在物としてチタン化合物を添加して評価したチューブフィルタのろ過性能と良い一致を示したため、水系懸濁液によるチューブフィルタろ過性能評価方法は有効であると結論している。さらに、水系懸濁液を用いる方法で2重構造体チューブフィルタのろ過性能を評価した結果、2重構造体の介在物捕集性能は気孔径が小さい層に依存し、これは熔融アルミニウムにチタン化合物を添加した結果も同様であった。2重構造体は外側の気孔径を大きくすることができるためアルミニウム含浸性は向上し、気孔径が小さい層の厚みが薄くなることからろ過抵抗が小さくなりろ過量が増加することを明らかにした。

#### 3) ろ過槽内の溶湯流れの影響に関する研究

アルミニウム含浸が不十分であったフィルタカートリッジについて、そのアルミニウム含浸状態を検討した。その結果、アルミニウム含浸が不十分なチューブフィルタはカートリッジの中央付近に位置するものであり、さらにそのチューブの中央部分で含浸が不十分であると指摘している。この理由を明らかにすべく、ろ過槽内の熔融アルミニウムの流れを有限要素法でシミュレーション解析を行った結果、アルミニウム含浸が不十分な部位は熔融アルミニウムの流速が遅い部分であることを見出した。この結果は、フィルタカートリッジの設計についての指針となるものである。

以上、本論文はチューブフィルタの結合材に9A2Bという新規結晶材を提案し、その結晶化メカニズムや濡れ性の改善、耐食性に関して学術的な考察を行っている。また、簡易ろ過性能評価方法やチューブフィルタの2重構造化を提案し、ろ過槽内の熔融アルミニウム流れのシミュレーション解析も行い、工学的にも優れたものである。ろ過性能を維持しつつ、長寿命化を図り、高品質なアルミニウム素材が得られるチューブフィルタに関する重要な知見を与えており、博士(工学)の学位論文として十分な内容であると判断した。

### 最終試験結果の要旨

#### (1) 公表論文

本論文の主要部分は査読付きの研究論文として5編発表・掲載済みであり、物質工学専攻の判定基準を満たしていることを確認した。また、参考文献としても3編発表している。

#### (2) 公聴会

公聴会を平成23年2月3日に論文審査委員と一般職者を含めて開催して審査を行った。出席者は大学教員・名誉教授計7名、研究機関職員4名他、合計20名であった。発表内容および質疑に対する回答状況などを踏まえ、学位審査委員会にて審査を行い、最終試験に合格と判断した。