



HOKKAIDO UNIVERSITY

Title	塩化アルミニウム系イオン液体を用いたアルミニウムスクラップの電解精製 [論文内容及び審査の要旨]
Author(s)	布村, 順司
Degree Grantor	北海道大学
Degree Name	博士(工学)
Dissertation Number	甲第15841号
Issue Date	2024-03-25
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/92142
Rights(URL)	https://creativecommons.org/licenses/by/4.0/
Type	doctoral thesis
File Information	Nunomura_Junji_abstract.pdf, 論文内容の要旨



学 位 論 文 内 容 の 要 旨

博士の専攻分野の名称 博士（工学） 氏名 布村 順司

学 位 論 文 題 名

塩化アルミニウム系イオン液体を用いたアルミニウムスクラップの電解精製
(Electrorefining of aluminum scrap using aluminum chloride ionic liquids)

使用済みのアルミニウムは、融点以上の温度で再溶解し、再生地金としてリサイクルされている。この際、他金属や様々なアルミニウム合金が混ざるため、再生合金の Al 純度は低下し、この工程が繰り返されることで最終的にリサイクル困難なアルミニウムスクラップとなり、埋め立て処分される。これら低品質のアルミニウムスクラップから、展伸材などの需要の多いアルミニウムにアップグレードが可能となれば、国内におけるアルミニウム資源の有効活用や環境負荷の低減に大きく貢献できる。本論文は、アルミニウムスクラップの新規リサイクル手法の確立を目指し、現行の電解精製法で用いられる高温の熔融塩よりもはるかに低温の室温付近で使用可能な、塩化アルミニウム (AlCl_3) を主体とするイオン液体を用いて電解精製反応の基礎的検討を行った。本論文は全 7 章から構成されている。その内容を以下に説明する。

第 1 章では、現行のアルミニウムリサイクルプロセス、およびホール・エルー法や三層電解法などの高温の Al 電解プロセスの問題点を挙げるとともに、低温の AlCl_3 系イオン液体を用いる電解精製法の優位性を述べた。その上で、イオン液体と固体のアルミニウムスクラップアノードを用いて電解精製する際、添加元素由来の金属組織に対するアノード溶解挙動とカソード上での電析挙動を解明することが高純度の精製 Al を得るために必要であることの重要性を説明した。

第 2 章では、固体のアルミニウム合金アノードを用いた電解精製に向けた基礎実験として、各種純金属 (Al、Fe、Si、Cu、Mn、Zn) をアノードとした分極測定を行い、Si がイオン液体電解液中にアノード溶解しないこと、その他は溶解開始電位が Al、Mn、Zn、Fe、Cu の順で貴にシフトすることがわかった。これらの結果から、Si はアノード側で除去できる可能性、他の合金元素については電解精製時のアノード電位を適切に制御することで高純度の Al をカソード上で回収できる可能性を示した。

第 3 章では、Al-Cu 合金をアノードとした際の電解精製において、金属間化合物 Al_2Cu からの Cu イオンのアノード溶解電位と溶解した Cu イオンのカソード上での電析機構について明らかにした。 Al_2Cu を含む Al-Cu 合金のアノード分極において、Al の溶解が進行しながら 0.8 V vs. Al/Al(III) 付近で Al_2Cu のアノード溶解の電流密度のピークが現れた。0.8 V で定電位電解後のアノード表面および断面の SEM-EDS 分析により、 Al_2Cu から Cu イオンが電解液中にアノード溶解し、カソードで Al と共に電析することが明らかになった。 Al_2Cu の溶解が生じない 0.3 V では合金表面の Al のみが優先的に溶解し、カソードでは高純度の Al が電析した。これらの結果から、 Al_2Cu のアノード溶解電位の制御により、 Al_2Cu 中の Cu の電解液への溶解が抑制され、電解精製される Al の純度を高められる事を明らかにした。

第4章では、Al-Mn合金をアノードとした際の電解精製において、合金中に存在するMn固溶体、Al-Mn-Fe系およびAl-Mn系の金属間化合物、各々の金属組織からのMnイオンのアノード溶解電位と溶解したMnイオンのカソード上での電析機構について明らかにした。これらMn系の金属組織を含むAl-Mn合金の定電位電解後のアノード表面および断面のSEM-EDS分析により、Mn固溶体の溶解が生じない0.2Vでは、アノード表面にMnの濃化層が形成され、合金中からAlのみが溶解が進行し、カソード上で高純度のAlが電析した。また、Al-Mn-Fe系の金属間化合物は0.6V、Al-Mn系の金属間化合物は1.0VでMnイオンが電解液中にアノード溶解し、カソードでAlと共に電析することがわかった。純Alと純Mnの溶解電位差は約0.1Vと小さいのに対し、Al-Mn合金は形成される金属組織によってMnイオンのアノード溶解電位が純Mnよりも大きく貴になることを明らかにした。以上の結果よりMn-Al合金をアノードとした電解精製では、アノードに用いるAl-Mn合金を予め熱処理し、母相へのMn固溶量を減らし、Al-Mn系の金属間化合物への析出を促進させたアノード合金設計を提案した。

第5章では、金属間化合物 Al_6Fe を有するAl-Fe合金と $\beta\text{-AlFeSi}$ を有するAl-Fe-Si合金とをアノードとした際の電解精製挙動を比較し、金属間化合物中のSiがFeイオンのアノード溶解とカソード上でのFeイオンの電析挙動に与える影響を明らかにした。 Al_6Fe を含むAl-Fe合金のアノード分極においては、Alの溶解が進行しながら0.7V付近で Al_6Fe のアノード溶解のピークが現れ、 $\beta\text{-AlFeSi}$ を含むAl-Fe-Si合金のアノード分極では、 $\beta\text{-AlFeSi}$ のアノード溶解は、0.9Vと1.4Vに現れた。定電位電解後のアノード表面および断面分析より、 Al_6Fe を含む合金では0.7V以下の電位にすることでFeの溶解が抑制され、 $\beta\text{-AlFeSi}$ は0.9VでAlの溶解が進行するが、1.4VにならないとFeの溶解が生じず、Siはいずれの電位でも溶解しないことを明らかにした。Al-Fe合金にSiが添加されることで、金属間化合物 $\beta\text{-AlFeSi}$ が形成され、Feの溶解電位をより貴側に変化させて、電解可能な電位域を広げられることが可能になった。

第6章では、Znが固溶体を形成するAl-Zn合金をアノードとした際の電解精製において、Al-Zn合金からのZnイオンのアノード溶解と溶解したZnイオンのカソード上での電析を抑制するのに最適な電解液組成を明らかにした。Zn固溶体を含むAl-Zn合金の定電位電解後のアノード表面および断面の分析から、60% AlCl_3 -40% EmImCl 電解液中ではアノードの電位が0.7V、67% AlCl_3 -33% EmImCl 電解液中では0.2Vまでの電解条件で高純度のAlがカソードで電析した。60% AlCl_3 -40% EmImCl 電解液中ではZnのアノード溶解時に電解液中の AlCl_4^- との反応によって、 ZnCl_2 の皮膜が形成され、電析Al中へのZnの電析が抑制された。67% AlCl_3 -33% EmImCl 電解液では Al_2Cl_7^- が主としたAlイオンとなり AlCl_4^- 濃度が低いためにZnを沈殿皮膜として固定することが難しいものと考えられ、合金成分によって適切な電解液を使用する知見を得た。

第7章では本論文を総括した。