

論文審査の結果の要旨

氏名 崔 陽

本論文は、日本において多量に発生する銅スクラップを有効利用することを念頭におき、ポリ塩化ビニルなどを塩素源として、銅からの鉛やアンチモンなどの不純物を除去するプロセスを検討するため、塩化反応によるスクラップ銅中からの鉛やアンチモンなどの金属不純物元素の分離の物理化学について明らかにした研究であり、7章からなる。

第1章は序論であり、銅の製造プロセスおよび銅のリサイクル処理プロセスの現状について調査した結果を述べている。不純物除去についての塩化反応の適用可能性についての検討を行い、塩化反応を利用した新しい不純物分離、リサイクルプロセスの可能性を示し、本研究を行う背景、重要性、目的について述べている。

第2章では、MgO 飽和 $\text{Cu}_2\text{O-SiO}_2$ 系、MgO 飽和 $\text{Cu}_2\text{O-CaO}$ 系、および MgO 飽和 $\text{Cu}_2\text{O-CaO-SiO}_2$ 系フラックスと溶銅の間の鉛とアンチモンの平衡分配比を 1523~1673K で測定した結果について述べている。MgO 飽和 $\text{Cu}_2\text{O-CaO}$ 系フラックスを用いた場合、鉛の分配比は CaO 濃度に影響されなかったが、アンチモンの分配比は CaO 濃度の増加とともに増加した。MgO 飽和 $\text{Cu}_2\text{O-CaO-SiO}_2$ 系フラックスを用いた場合、カルシウムシリケート液相と Cu_2O 濃度の大きい液相の二液相分離状態が存在した。二液相分離状態を利用することにより、アンチモンのフラックス相への有効な除去が可能であることを説明している。

第3章では、CuCl、および $\text{CuCl-Na}_2\text{CO}_3$ 系フラックスを用いて、溶銅からの鉛とアンチモンの除去速度を 1423~1523K で測定した結果について述べている。CuCl 単一のフラックスを用いた場合は、鉛は溶銅から容易に除去可能であることを示した。アンチモンについては $\text{CuCl-Na}_2\text{CO}_3$ 系フラックスで Na_2CO_3 を 23.8、51.7、61.6mass% と添加量を増加すると、溶銅からのアンチモンの除去速度は大きくなることを示した。

第4章では、 CuCl-CaO 系フラックスを用いて、溶銅からの鉛とアンチモンの除去速度を 1423~1523K で測定した結果について述べている。 CuCl-CaO 系フラックスで CaO を 5 から 25mass% へと添加量を増加すると、溶銅からのアンチモンの除去速度、除去率は大きくなることを示した。

反応前後のアンチモンの物質収支から、アンチモンの気相への蒸発量を見積もり、その結果、一部のアンチモンは気相へ蒸発するが、CuCl-CaO 系フラックスは溶銅からのアンチモンの除去・回収に有効であることを示している。

第5章では、CuCl 系フラックスを用いた溶銅からのアンチモンの除去反応機構を検討した結果について述べている。CuCl-Sb₂O₃ 系、CuCl-CaO-Sb₂O₃ 系、および CuCl-NaSbO₃ 系フラックスを 1423K、Ar 雰囲気中で蒸発させ、蒸発量を測定し、蒸発・凝縮したダストの X線回折分析結果から、塩化物 SbCl₃、酸塩化物 SbOCl の生成を確認した。また、CuCl-Cu₂O 系フラックスと溶銅反応挙動を 1423K、Ar 雰囲気中で調べ、Cu₂O の分解反応が起こることを確認した。これらの結果から、溶銅中のアンチモンの塩化による塩化物 SbCl₃、酸塩化物 SbOCl の生成による蒸発が起こるといふ機構を明らかにし、塩化反応の制御が重要であると結論している。

第6章では、第2章から第5章で得られた結果をもとに、塩化反応を利用した銅スクラップの新たな不純物除去、リサイクルプロセスを検討した結果について述べている。Cu₂O-SiO₂、Cu₂O-CaO および CuCl-CaO 系フラックスを用いた新たな生成プロセスを提案し、塩化物生成・リサイクルプロセスの物質収支の計算から、Cu₂O-SiO₂、Cu₂O-CaO および CuCl-CaO 系フラックスを用いて、銅スクラップから高純度銅が得られることを示している。また、ポリ塩化ビニル廃棄物を塩素源として有効利用した場合のプロセスの検討を行い、可能性のあるプロセスを提案している。

第7章は本論文の統括である。

以上のように、本論文では塩化反応を利用した銅スクラップからの不純物の除去反応の物理化学について検討し、その反応機構を明らかにし、廃ポリ塩化ビニルを塩素源に用いた塩化反応を利用したスクラップ銅の精製プロセスを提案して、物理化学的に重要な新たな知見を得ており、本研究の成果はマテリアルプロセス工学への寄与が大きい。

なお、本論文第2章は都興紅、濱野翼、月橋文孝、第3章は松浦宏行、濱野翼、月橋文孝、第4章は松浦宏行、濱野翼、月橋文孝、第5章は月橋文孝、第6章は月橋文孝との共同研究であるが、論文提出者が主体となって分析及び検証を行ったもので、論文提出者の寄与が十分であると判断する。

したがって、博士（科学）の学位を授与できると認める。