

審査の結果の要旨

氏名 ウィラセラニー チョンプーヌット

本論文は、乾式プロセスによる廃棄物からの白金族元素の回収を検討するうえで重要な、スラグならびにコレクターメタル中での熱力学的性質を調査した研究であり、全6章からなる。

第1章では、まず白金族元素の需給動向をまとめており、各元素の用途拡大による近年の需要増加と価格高騰の状況を提示し、白金族元素を持続的に利用するうえでのリサイクルの必要性を示している。電子製品や触媒部品等から白金族元素を回収する手法として、各元素が幅広い温度域にて金属状態としての安定性を有することから、乾式プロセスによる分離回収法の有効性を述べている。その有力なプロセスとして、廃材を銅や鉄などのコレクターメタルとフラックスとともに溶解することで白金族元素をコレクターメタル中に抽出した後、コレクターメタルを酸化除去することで白金族元素を濃縮する手法を説明している。そのプロセスではフラックス、またはコレクターメタルが酸化して生成するスラグに、白金族元素の酸化損失が生じることが課題となっており、それを解決するためのスラグならびにコレクターメタル中の白金族元素の熱力学的性質の重要性を指摘し、本研究の目的を述べている。

第2章では、酸化性雰囲気において $\text{Na}_2\text{O-SiO}_2$ スラグと CaO-SiO_2 スラグ中へのロジウムの溶解挙動を調査し、スラグ中のロジウムの溶解形態について熱力学的に検討を行っている。

第一に、50(mass pct) $\text{Na}_2\text{O-50SiO}_2$ スラグと 56(mass pct) CaO-44SiO_2 スラグを、それぞれ大気下 1423–1623 K、酸素 1 気圧下 1773–1873 K において、ロジウム坩堝中で熔融させることで、スラグ中ロジウムの溶解度の温度依存性を調査している。それぞれのスラグ中で、溶解度が正の温度依存性を示すことから、スラグへのロジウムの溶解が吸熱性であることを示している。

次いで、スラグ中ロジウムの溶解度の酸素分圧依存性とスラグ組成依存性を調査しており、雰囲気中酸素分圧が高く、スラグが高塩基度であるほど溶解度が大きいことを明らかにしている。またスラグの塩基度の一指標であるサルファイドキャパシティとスラグ中ロジウムの溶解度との相関関係から、スラグ中へのロジウムの溶解反応を $\text{Rh (s)} + 3/4\text{O}_2 \text{ (g)} + 1/2\text{O}^{2-} \text{ (in slag)} = \text{RhO}_2^- \text{ (in slag)}$ のように推定している。この溶解反応から、

スラグ中のロジウムの溶解特性の指標としてロデイトキャパシティーを新たに定義しており、種々の組成のスラグ中のロジウムの溶解度を試算できるように同キャパシティーの光学的塩基度を用いた推算式を提示している。

第3章では、実際のプロセスでフラックスあるいはコレクターメタルの酸化滓に混入しうる酸化物成分の、スラグ中ロジウムならびに白金の溶解挙動への影響を調査している。混入成分として、自動車用触媒の担体材料のコーディエライト($\text{MgO-Al}_2\text{O}_3\text{-SiO}_2$)の構成成分の Al_2O_3 と MgO 、コレクターメタルの酸化成分の CuO_x と Fe_2O_3 について調査を行っている。

$\text{Na}_2\text{O/SiO}_2$ 比を 0.97 とした $\text{Na}_2\text{O-SiO}_2\text{-MgO}$, $\text{Na}_2\text{O-SiO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$, $\text{Na}_2\text{O-SiO}_2\text{-Fe}_2\text{O}_3$, $\text{Na}_2\text{O-SiO}_2\text{-CuO}_x$ の各スラグを、大気中 1473K にてロジウムもしくは白金坩堝中で溶解させ、スラグ中のロジウムもしくは白金の濃度を測定している。 Al_2O_3 を添加した場合、その濃度の増加に伴いスラグ中ロジウムと白金の濃度が顕著に減少することを示している。 MgO 、 Fe_2O_3 の添加によっても両元素とも濃度が減少する傾向にあり、一方、 CuO_x を添加した場合には顕著な変化がないことを明らかにしている。以上の結果に基づき、フラックスへのロジウムや白金の酸化損失を抑制するためには、コーディエライトの構成成分の MgO と Al_2O_3 をフラックスの主成分に用いること、またコレクターメタルの酸化滓への損失を抑制するためには、コレクターメタルに鉄を用いることが好適であることを述べている。

第4章では、コレクターメタルの銅中のロジウムの熱力学的性質を調査している。1473 K にて酸素分圧制御下で Cu_2O と Cu-Rh 合金を平衡させることにより、 Cu-Rh 合金中銅の活量を測定している。 Cu-Rh 合金中の成分の活量が理想溶液より正に偏倚することを示している。一方、既報にて Fe-Rh 合金のロジウムの活量は理想溶液より負に偏倚することが報告されていることから、コレクターメタルにより廃棄物からロジウムを抽出する際には、銅より鉄がコレクターメタルとして好適であることが述べられている。

第5章では前章までの結果を踏まえ、コレクターメタルを用いた乾式プロセス中のロジウムならびに白金のスラグへの酸化損失を抑制して収率良く回収するために最適なフラックス組成を示している。

第6章では本研究により得られた成果を総括している。

以上のように、本論文はロジウムと一部白金について、スラグならびにコレクターメタル中の熱力学的性質を調査したものであり、これらの成果は白金族元素の乾式プロセスによる効率的回収を達成するうえでの基礎的知見を与え、白金族元素のリサイクルシステムの最適化に大きく寄与するものである。

よって、本論文は博士（工学）の学位請求論文として合格と認められる。