



鉄の歴史

戦後復興・発展期における我が国鉄鋼製造技術史—学術編 原料技術の進歩とそれを支えた研究開発

下村泰人

Yasuto Simomura

(株)日鉄技術情報センター
調査研究部 客員研究員

Progress of Agglomeration Technologies Supported by The R&D Efforts after the War in Japan

1 はじめに

一貫製鉄所の原料処理の主要な成品である焼結鉱は、一般には人々の目に触れることなく直ちに高炉に装入されて鉄鉄に変わってしまう。しかしこの焼結鉱が、これまで製鉄所の縁の下の力持ちとして大きな役割を担い、高炉の生産性を高め鉄鉄コストを低下させて、わが国鉄鋼業の国際競争力を維持することに貢献してきた。

製鉄における焼結の最初は、製鉄所で溜まってきた高炉ダストを高炉に装入できるような塊に焼き固めることであった。戦後、わが国では安い輸入粉鉱石の積極的な利用と、鉄鉄のコスト低減のために、焼結鉱を単に焼き固めた原料から高炉操業に適した性質を持つ装入原料にまで進歩させた。戦争直後から1950年代の半ばまでは、国内の微粉鉱石をいかに焼き固めるかが焼結操業の苦勞だった。1960年代になると輸入粉鉱石の増加で焼結性が改善され、このような時に石灰石を添加した自溶性焼結鉱と呼ばれる新技術が導入され、現場での操業改善に並行して焼結鉱の鉱物組織を改善してより良い品質の装入物を開発するという研究が始まった。1970年代までは原料変化への対応に追われ、焼結研究は操業の後追いの形であったが、1980年代になると、研究が主導する形で鉱物学、冶金、化学工学などの科学を総合して焼結研究が行われ、高炉に最適な装入物を造り上げるための操業指針を提示してきた。

今日振り返ってみると、粉鉱石を単に焼き固めることから高炉に適した焼結鉱を製造するようになった今日まで30余年にわたって、私自身が実際の操業と研究開発の両方を体験しつつ、またペレットの技術についても経験し、わが国の原料技術の発展に取り組むことが出来たことはまことに幸いであった。以下に焼結技術の発展と研究開発の相互作用の大きな流れを概観しつつ、その中の幾つかの重要なトピックスを取り上げた。

2 原料技術と研究開発の大きな流れ

広い意味の原料技術は、採掘された鉄鉱石原料を高炉などで最適な精錬が行えるような状態に処理して装入物とすることで、鉱石の破碎、篩分け、選鉱、輸送、焼結、ペレタイジングなどの各種処理プロセスを含むものである。しかしわが国ではほとんどの場合原料技術は高炉用の焼結鉱の製造技術を意味してきたので、ここでも主に焼結を取り上げ、ペレタイジングについては少しだけ述べることにした。

戦後わが国は、戦前からの鉄鋼一貫生産方式を踏襲したが、それには1946年に日本鉄鋼協会に設けられた鉄鋼対策技術委員会(湯川正夫委員長)が同年10月に出した報告書の提言が大きな影響を及ぼした¹⁾。報告書は、鉄鋼一貫方式が資源の最有効活用を可能とする最も合理的かつ効果的な製鉄方式であり、高炉の装入原料は可及的にサイジングを厳密に行い、焼結鉱の使用を強化する必要があると述べて、後年の貴重な指針を示している。このような製鉄プロセスの選択で、わが国の製鉄作業は資源の確保とコスト競争力の向上に迫られたが、同時に精力的な研究で今日の優れた焼結技術を確立することができた。

まず原料技術関連の各種指標の推移を示す。図1に高炉燃料比、焼結鉱の配合比と生産量の推移を、図2に焼結で使用された原料鉱石の内容の変化を示した。戦後しばらくは鉄源を国内に依存したが、それらは焼結性の悪い砂鉄、硫酸滓など微粉劣悪原料が主で、品質は二の次で焼結鉱の量を確保するためにまず焼き固めることが重要だった。鉄鋼生産量の増大につれ、国内鉄源では賄いきれず次第に外国の鉱山開発や輸入が増大し、1960年代末には今日の豪州、南米の輸入鉄鉱石依存状態が確立された。1952年に鉄鋼各社が共同で海外製鉄原料委員会を発足させ、海外鉱山の開発投資、鉱石専用船の建設などの検討を開始した。まずゴア、フィリピン、マレーなど東南アジアの鉱山が開発

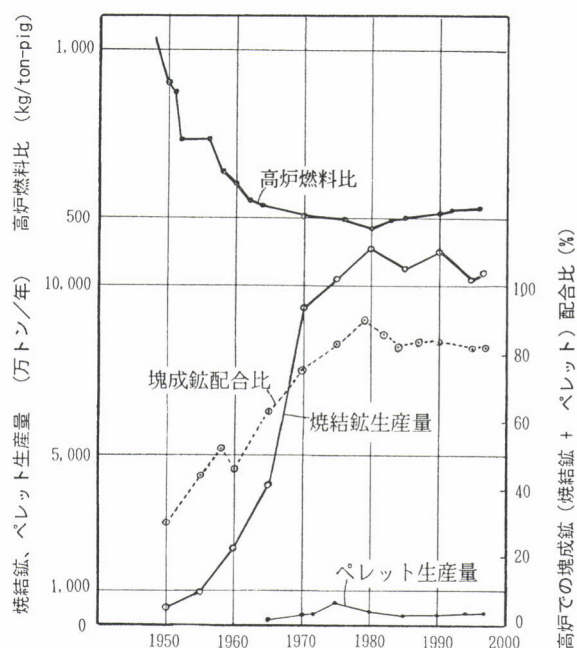


図1 高炉の燃料比、塊成鉄配合比および焼結鉄・ペレットの生産量の推移

され、続いてインド鉱山が開発された。これらと並行して北米の鉱石も輸入されるようになった。東南アジアの鉱石は粒度的には国内鉱に優ったが、高アルミナ、粘性でやはり焼結性は良くなかった。しかし当時の原料配合は比較的磁鉄鉱系が多く、この点では焼結性を補っていた。このような状況で1960年頃にはすでに輸入鉱石割合が70%以上に達し、輸入鉱の内容が急激に変化してきたことが図2からよく分かる。この間焼結鉄の高炉での使用割合も急速に増加したが、その理由は、1) 鉱石の破碎・篩分けによる整粒を強化したため粉鉱石の発生が増加した、2) 高炉の燃料比低減には焼結鉄の使用増が効果的であることが認識された、3) 粉率の高いブラジルなどの輸入鉱石に移行した、などであった。

戦後から今日までの原料技術へのニーズとそれへの対応を表1にまとめた。戦後の高炉操業では、高価格の米炭使用のために、高炉の燃料比を下げるのが至上命題となり、まず戦後から1960年代までは、高炉操業の安定と鉄鉄コスト低減という外部からの要求に焼結技術が対応してきた時代である。その後1970年代からは、必要な焼結鉄を製造するために自主的な技術対応を行ってきたといえる。以下に表に示したような2つの大きな時代の特徴で区切られた流れに沿って技術の変化を紹介する。今回の報告は紙数が限られているため十分な技術の紹介が出来ないので、詳しくは文献2), 3), 4)を参照していただきたい。また鉄鋼協会は1965年に創立50周年を記念して「わが国の鉄鋼技術の進歩」なる「鉄と鋼」特集号を出版したが、その後10年ごと

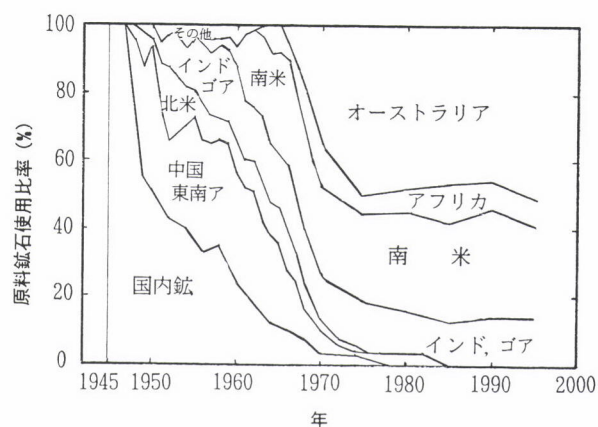


図2 戦後から現在までの焼結配合原料の変化

表1 戦後の製鉄所と製鉄操業を支えてきた原料技術の進歩と研究開発の対応

製鉄へのニーズと変化	製鉄での対応とトピックス	技術開発・研究の課題と対応
〔原料技術の特質〕 外部からの要求に焼結技術が対応してきた時代 1945～1970 年頃まで		
・鉄鋼業の再建 ・コスト競争力の維持 ・米炭の節減 ・安い鉄源の利用	・高炉コークス比の低減 ・高炉の出鉄増 ・未利用微粉鉄石の使用 ・焼結鉄の配合増 ・焼結鉄の強度、歩留り向上対策	・焼結原料の微細粒化と装入層の通気性向上対策
・溶鉄の増産 ・輸入鉄石への転換 ・メリット価格による購入	・高炉の生産性向上 ・高炉のコークス比低減 ・鉄石の整粒強化と粉鉱石発生増 ・焼結鉄の使用増 ・焼結での石灰石添加、自溶性焼結	・溶着鉄（融着鉄）から本来の焼結へ ・石灰配合焼結の研究 ・焼結鉄の鉱物組織と還元性 ・焼結鉄の還元粉化対策
・鉄鋼生産の増加 ・製鉄所の大規模化	・高炉の大型化と安定操業 ・高炉の出鉄増とコークス比低減 ・高炉解体調査と炉内反応の解明 ・焼結機の大規模化	・カルシウム・フェライトの基礎研究 ・焼結鉄の高温性状とその試験法の確立
〔原料技術の特質〕 外部からの要求が減り、焼結の自主的技術開発の時代 1970～現在		
・省エネルギー ・環境対策 ・輸入鉄石の内容変化 ・製鉄所内リサイクル対応	・焼結操業での省エネルギー ・焼結工場の公害対策から環境改善へ ・焼結鉄とペレットの比較 ・製鉄所内リサイクル鉄源の使用強化 ・製鉄のコスト低減	・排ガスの脱硫と脱硝の基礎研究 ・低NO _x 、焼結操業の基礎研究 ・鉄石特性に基づく疑似粒子構造と焼結反応制御法 ・焼結の気孔構造と通気構造の解明

の1975、1985、1995年に同様の特集号を出しており、この中に原料技術の10年ごとの進歩も記述されている⁵⁻⁸⁾。

3 焼結原料と通気性の改善

私は1955年に当時の富士製鉄(株)(現新日鉄)広畑製鉄所の製鉄部焼結掛に配属されたのが製鉄の現場操業に携わった最初である。当時の焼結工場にはグリーンワルト式(GW式)と呼ばれた8基のバッチ式焼結鍋があって、1日約1600トンの焼結鉄を生産していた。広畑の主原料は近辺の硫酸滓と砂鉄などが50%を占め、まだ輸入の粉鉄石は30%と少なかった。したがって、原料が微粒のために焼結性が悪く、固い焼結鉄を焼くのに苦勞した。当時は焼結鉄よりは溶結鉄と呼んだほうが相応しいような塊を造っていた。十分に焼結していないと工場内も粉塵でもうもうとなるし、煙突からも茶色の煙が排出された。歩留りを高める手段としてはコークス配合を増加するとか水分の添加量を調節するな

どだった。

粉鉱石を焼き固めるためには焼結機に30～40cmの厚さに装入された原料層に適当量の空気を通し、鉱石中に混合された4～5%の粉コークスを燃焼させて高温で鉱石を半溶融ないし部分的な溶融状態にして結合させる。1950年代の焼結原料はどの工場も良好とは言えず、硫酸滓の粒度は200ミクロン以下が50～60%と非常に微粉であった。これら原料が焼結層の通気性を悪化させて良好な焼結鉱が得られなかった⁹⁾。

このため当時の広畑製鉄所で取られた対策の1つに、セミペレット法と呼ばれた技術開発があった。これは硫酸滓などの微粒子原料を皿型の造粒機で造粒して約10mm径のグリーンペレットとしてその他の原料に混合し、原料全体の疑似粒度を高める方法であった。広畑ではこの方法を1956年から実施し、焼結操業の改善に効果があった¹⁰⁾。その後他の焼結工場でも、微粉を含む原料全部を混合して、微粉を粗粒にくっつけて疑似粒子化するフォアペレット法と呼ばれた方法をなどが採用され、焼結性の改善に効果があった。図3に微粉原料の疑似粒化からスタートした今日までの焼結原料事前処理の変化を示した¹¹⁾。通気性の改善でスタートしたこのような微粉鉱の疑似粒化の考え方は、輸入原料により粒度が改善されてきた1960年代末からは、後述のような反応制御、鉱物組織制御などに利用されて、焼結操業での重要な技術に変化してきている。

4 石灰焼結の開始

1958年に住友金属工業小倉製鉄所で100%自溶性焼結鉱の高炉使用試験が成功してから、わが国の焼結技術に大きな変化がもたらされた¹²⁾。これは単に高炉で装入されていた石灰石が焼結で配合されるようになったというだけでなく、高炉における焼結鉱の重要性を認識させる契機となった。原料の中に10～15%もの新しい原料が入ってきたことで、焼結の品質が大きな変化を受け、それを技術化するために研究の役割が高まった。それまでの研究は新原料の焼結鍋試験や疑似粒化のような操業改善が主であったが、以後新しい品質の焼結鉱を造ることで原料技術発展の先導的役割を果たすように変化した。

自溶性焼結鉱(高炉で必要な石灰分を全部焼結鉱に添加したもので、その塩基度CaO/SiO₂は普通1.2位である)は戦前にスウェーデンで高炉のコークス比低減と磁鉄鉱精鉱の焼結性を高めるために導入された技術である。1950年代のわが国の高炉操業の最大のニーズは高炉コークス比の低減で、それを目的に自溶性焼結鉱が導入された。小倉製鉄所の高炉で100%自溶性焼結鉱の使用試験が行われ、好成績

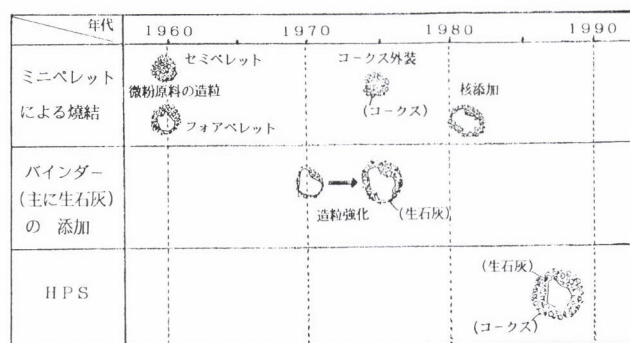


図3 疑似粒化を主とした事前造粒技術開発の経緯

が得られたことから自溶性焼結鉱が注目されるようになり、焼結は粉原料をただ単に固めることから、高炉の装入原料としてできるだけ最適なものを造ろうというように焼結鉱製造の思想が変わった。

1950年代の原料はすでに述べたように微粉鉱が主のため、住友金属工業では高炉試験のため良好な自溶性焼結鉱を製造することに苦労したが、この試験の前後から品質のよい輸入粉鉱石の割合が増加したことが好条件になって、各社とも自溶性焼結鉱の製造と高炉使用に踏み切ることとなった。それまでの焼結鉱は高炉内での強度維持のために、被還元性の悪い鉱物組成であるファヤライトに依存していたが、石灰石の添加によって被還元性も強度も良好な各種の緻密なカルシウム・フェライトを主とするマトリックスを造り込むことができるようになった。

各社とも自溶性焼結鉱の使用で良好な高炉の成績を得たため、焼結鉱の生産増と品質向上に一層の関心が集まった。しかし必ずしも問題なく自溶性焼結鉱に移行したわけではなく、基本的な研究が必要と考えられた。石灰石添加で焼結鉱の品質は改善されたが、同時にそれで高炉の生産性も向上し、その新しい高炉条件が今度は焼結の品質に新しい問題を投げかけるようになったわけである。そこで研究は、より良い品質の石灰焼結鉱(この頃には次第にいわゆる自溶性焼結鉱より多くの石灰分を含む高塩基度焼結鉱の製造も行われるようになったので、以下では石灰焼結鉱なる呼び方を使用した)を製造し、高炉の生産性をさらに高めること、2つは、石灰焼結の基礎研究を行うことに向かった。

石灰焼結鉱の使用が始まった1960年代は、輸入鉱石の配合が急増した時代で、原料の安定と粒度向上は好ましい方向であったが、化学成分的にはシリカ、FeOの低下、アルミナ増といった変化が起こり、これは焼結中の融体スラグ量減とアルミナ増による鉱物組織すなわち融体物性の悪化という結果をもたらし、それが焼結鉱の強度や生産を悪化させた。このような原料変化に対応する石灰焼結の操業条件が、鉱物組織と焼結機構の両方から研究され、具体的には、

スラグ組成と塩基度の適正化、原料粒度の改善のために生石灰添加による造粒強化、装入層厚の増加などが行われた。またカルシウム・フェライトと焼結鉱の還元性状に関する基礎研究が始まった。

5 焼結鉱の還元粉化とその対策

石灰焼結鉱の高炉での配合が60%を越えるようになり、高炉の操業速度の上昇と焼結の品質変化とが重なって出鉄比も2を狙えるようになった1963年冬に、八幡製鉄所戸畑高炉で炉頂温度と風圧が上昇し、棚吊り、スリップが多くなり、最終的に操業で減風を余儀なくされる炉況不調を起こした。その後同様の不調がその他の高炉でも見られるようになった。そこで戸畑では原料から高炉までの操業条件を全面的に検討した結果、不調前後で焼結鉱のFeOが11.5~13%から10%程度に低下していたので、当面の対策としてコークスの添加量を元に戻し、FeOを12~13%にしたところ、炉の変調が直り増風が可能となった¹³⁾。

そこでその前後に使用された焼結鉱の試料を還元試験したところ、不調時のサンプルで粉化の激しいものが見られた。さらに詳しく還元条件、化学成分を変えて、調べたところ、1)500℃の長時間還元で粉化が大になった、2)昇温速度が大になると粉化も大になる、3)成分との関係では、FeOを含むスラグ量の増加が粉化防止に有効だった、4)還元粉化にはカーボン・デポジションが関係することが確認された、などの結論が得られた。かくして、高炉不調を起こしたのは焼結鉱の還元粉化であったことが解明され、当面の対症療法は確立されたが、どんな条件でも粉化しない焼結鉱を製造するには、焼結鉱の鉱物組織と還元での変化の基礎研究が必要だとの認識となった^{13,14)}。

焼結鉱の品質は、鉱物組成と気孔などを含めた鉱物組織の両方で決まるので、自溶性焼結と還元粉化を契機としてそれらの研究が精力的に行われるようになった。まず日本鋼管の坂本らは、焼結鉱に見られる各種鉱物相を合成し、それらの還元メカニズムを研究した¹⁵⁾。高炉内の焼結鉱の粉化は比較的低温領域で起こるので、通常この現象を低温還元粉化と呼んできたが、粉化の原動力はヘマタイト相が還元されるときに起こす還元膨張に起因することが分かった。低温域でまずヘマタイトがマグネタイトに還元されるが、その時にミクロンサイズのマクロ気孔が発生し、25%の体積膨張がある¹⁶⁾。

したがって純粋のヘマタイト相を含まない焼結鉱を造る、膨張時の応力集中を起こさないヘマタイト相の配列にする、強度の高いマトリックスにするなどが対策となる。当時の研究で得られた単一鉱物組織と還元粉化の関係を図

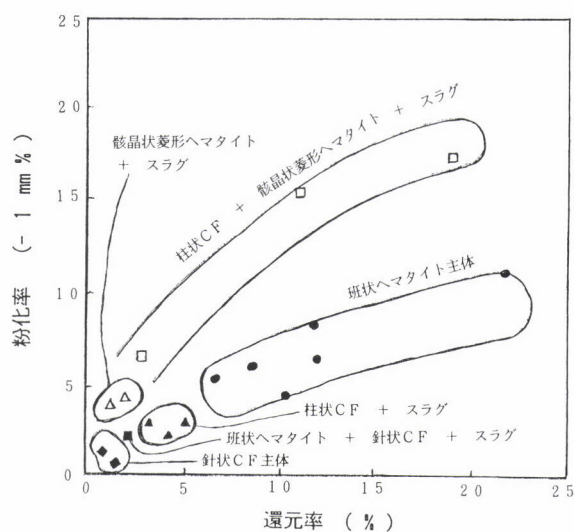


図4 ヘマタイトの種類と還元粉化との関係

4に示した¹⁷⁾。焼結鉱に特有の骸晶状菱形ヘマタイトが他の形態のヘマタイトに比べて数倍粉化し易いことがわかった。これは高温焼結過程で生成する多成分系マグネタイトの冷却時に生成するもので、気孔周辺に生成し易く、還元時に微細クラックを発生するため粉化しやすいものである。またこのような粗大な二次ヘマタイトの周囲の組織構造についても議論され、これとカルシウムフェライトの共存する部分にも還元による亀裂が発生しやすいことも確認されている¹⁸⁾。結局還元粉化を防止するには、斑状ヘマタイトやカルシウムフェライトを主体とする鉱物組織と、還元膨張を吸収する気孔構造を造り込むことが重要である。

6 高炉解体と焼結の高温性状

焼結鉱に付与されるべき性状は、高炉操業の要求の中から決められるが、主なものとして化学成分、鉱物組成、物理的強度、還元性状などがある。特に還元性状は高炉の装入原料に特有の性質なので、製鉄部門として標準化が必要であった。1943年に製鉄技術の進歩のために業界と大学関係者の討議の場として発足した学振製鉄第54委員会の下で、戦後、特定の方法について各社が共同実験し多くの試験法の標準制定が行われた。焼結に關係するものとしては、1955年に「粒状鉄鉱石標準還元試験法」、1960年に「鉄鉱石類の荷重軟化試験法」、1963年には「焼結鉱の還元粉化試験法」が討議されて学振法として制定された¹⁹⁾。この中から後にはJIS,ISOの試験法に制定されたものもある。

これら試験法と焼結の性状は、良好な高炉操業を保証する品質値を前提に設定されてきたことは当然であるが、必ずしも高炉の操業条件と一致しているとは限らないし、作業性、時間制約などから一般的に試験法は簡便なものに

なっている。また日常実施されてきた試験は、高炉のシャフト部での焼結鉱の挙動を推定するもので、高炉全体での挙動を示すものはなかった。

1960年代の終わりになって一部で高炉の下部領域での焼結鉱の挙動を推定する荷重軟化試験が行われたが、高炉の生産性を一層高めるには、高炉内の状況を明確にする必要があるとして、1970年代から八幡東田と富士広畑の高炉を皮切りに幾つかの高炉の解体調査が行われ、焼結鉱はガス還元と高温での還元による軟化、溶融、スラグと金属の滴下までの全部の性状が重要であることが認識された^{20,21)}。解体調査の結果から、高炉の代表的な温度とガス組成の変化をシミュレートした荷重還元から溶融滴下までの試験が実施され、1975年頃から焼結鉱の高温性状が測定されるようになった²²⁾。この方法は広畑で試験され、次いで新日鉄のBIS法と呼ばれる高温試験法に発展した²³⁾。しかし設備が大掛りで時間もかかったので、標準試験法には制定されなかった。

高炉の装入物に必要な高温性状としては、軟化開始温度が高いこと、高温でのガス流の圧損が低いこと、溶融滴下の温度範囲が狭いことなどが推奨され、そのためには従来の品質評価値との関係では、還元粉化値の低減、被還元性の向上、塩基度やMgOが高いこと、シリカ、チタン、FeOなどが低いことが必要とされた。すなわち従来から良好といわれる焼結鉱を造れば高温性状も良好なものが得られるとの結果となって、高温試験は確認のために時々行えばよいとの認識となっている。

7 焼結組織の造り込み

高炉に必要な性状が認識されるにつれ、それらを焼結鉱に造り込むための基礎研究が盛んになった。一つの重要な研究は、石灰焼結鉱の鉱物組成の主体をなす各種カルシウ

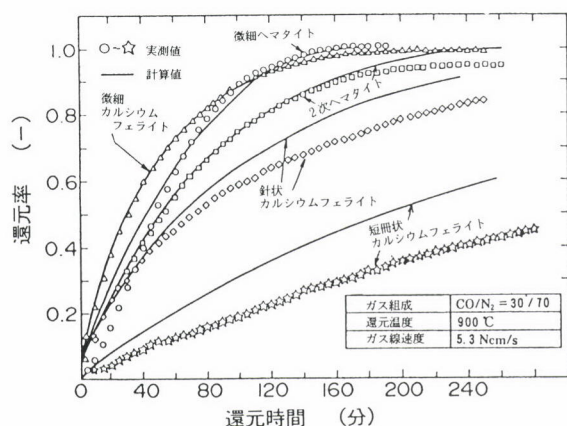


図5 各種単一鉱物相の被還元性の比較

ムフェライトの還元性に関するものであった。図5に各種単一鉱物相の還元性を示したが、針状カルシウムフェライトの良好さが確認された¹⁵⁾。このようなヘマタイトとカルシウムフェライトの中に微細気孔が分散する組織が、被還元性、耐還元粉化性、および高温性状を満足する良好な組織である。これまで純粋カルシウムフェライトの状態図しかなかったが、実際成分に該当する4元系カルシウムフェライトの還元状態平衡図、還元速度、またそれらの高炉内での還元メカニズム(スラグ成分を放出しつつウスタイトから金属鉄への還元過程)などが解明された。

これらの基礎研究の成果が焼結原料配合から焼結中の融液成分の変化、そして鉱物組成の生成過程までとして図6に示したように整理された²⁴⁾。主な過程は、酸化鉄がスラグ成分を取り込みながら4元系カルシウムフェライトを生成し、これが1300°C付近で二次ヘマタイトと融液に分解する。次いで冷却時に融液からさらに二次ヘマタイトとカルシウムフェライトを晶出させる。この時に融液の塩基度と温度レベルなどがカルシウムフェライトの形状に影響する。例えば高塩基度では針状カルシウムフェライトを生成し易い。また低温焼結は、骸晶状菱形ヘマタイトの生成と針状カルシウムフェライト結晶の粗大化を抑制し、良好な品質の焼結を製造する。

基礎研究の進展により焼結反応過程が解明され、それを操業指針として焼結操業が改善されると共に、焼結組織の造り込みが実用化されるようになった。このためには疑似粒子の中で鉱物反応を行わせる必要があり、疑似粒子構造の研究が行われるようになった。図3に示したように、それまでに確立されてきた事前処理法を利用した2層構造のセミペレットが葛西らによって研究された²⁵⁾。すなわち還元性の良い微細なカルシウムフェライトを表層に造るために、外部に石灰石とヘマタイトの微粉を持つ疑似粒子が提案された。これは低融点のために低温焼結による省エネルギーをも可能とした。このような研究を受けて、実際面で

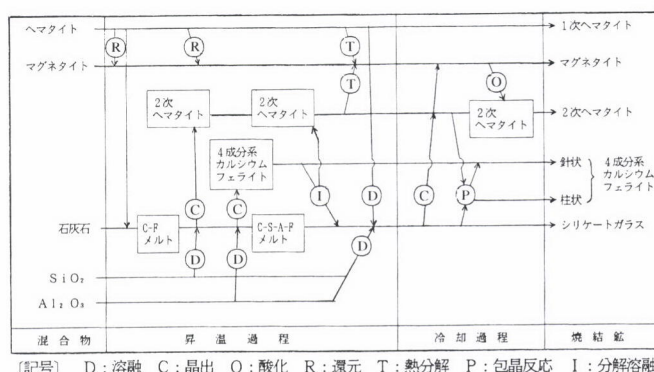


図6 焼結鉱鉱物生成反応過程模式図

は図3のHPSなどの選択造粒法につながるような、疑似粒子構造による焼結組織の造り込みの基本が肥田らによって明らかにされると共に²⁶⁾、焼結機で実施されて厳密に制御された品質の焼結鉬が生産されるようになった。

8 低NO_x操業

わが国では1973年にばい煙発生施設を対象とするNO_x排出基準が環境庁によって設定され、排出基準値の規制が強化された。この基準を満足させるには発生源での排出量を減少させねばならなかった。焼結から発生するNO_xの除去方法としては、排煙脱硝と焼結中の発生の抑制の2つがあるが、後者のために精力的な研究が行われた。それまで経験したことのない問題だったので、各社とも焼結工場の排ガス中のNO_xの測定から始まって、その生成機構の基礎研究が行われた。

日本鋼管の焼結鍋試験で、NO_xは空気中の窒素からの生成はほとんどなく、焼結の燃料中の窒素から生成することが示された²⁷⁾。新日鉄の基礎研究所では、焼結中の生成を抑制する方法の研究が行われ、発生したNOは焼結層内ではほとんど還元されないで、その生成反応を抑制するためには燃焼コークスの周辺ガスのCO/O₂を高める必要があることが示された²⁸⁾。すなわち実操業での対策としては、コークスの燃焼速度と燃焼温度を高めて、コークス周辺のCOまたはCO₂濃度を高めることで、そのためには、酸素添加、コークス分割添加、生石灰添加、スケール添加など、各所の事情に応じた色々な方法が実施された。かくて研究で得られた操業指針を採用した焼結工場の操業改善や、一部の工場での脱硝設備投資でNO_x発生量を大幅に下げることができて、製鉄所の環境改善に大きく貢献した。

9 1970年代からの原料状況と褐鉄鉬多量使用技術開発

1970年代には高度成長で粗鋼1億トン時代に発展したために、原料についても長期大型ソースの確保が検討され、今日の主要鉬石となっている南米、オーストラリア、アフリカの大型鉬山の開発と大型鉬石専用船による輸送時代が始まった。これら鉬山からは、まず結晶水の少ない高品位ヘマタイトが優先的に掘られたため、従来の鉬石に比べ、鉄分、アルミナは増加し、逆にシリカ、FeOは低下した。また採掘における粉鉬石の比率の高い鉬山が多くなった。この状況は1980年代になっても続くが、わが国にとっては比較的良質な安定した原料配合の時代であったともいえる。すでに7.で述べたように、このような時期に高塩基度焼結

鉬の生産開始などを契機とした焼結鉬の鉬物組成の解明の基礎研究が行われ、高炉で好ましい組織を有する焼結鉬の生産と操業の指針が確立された。

1980年代中頃になると、このような緻密で高品位なヘマタイト鉬床が枯渇の傾向となり、豪州で残された鉬床は褐鉄鉬系のものが大部分で、それらは、高燐で結晶水のやや低いブロックマン鉬石や低燐で結晶水の多いマラマンバ鉬石、また褐鉄鉬主体だが前者と成因が異なる結晶水の多いピソライト型の鉬石などである。1990年代になるとこれらのタイプの鉬石の使用が徐々に増加し、現在30%を超える状況になっている^{3,4)}。ピソライト鉬石を多配合すると結合水の吸熱反応と亀裂生成で、粗大気孔の多い弱い焼結になり、また高シリカでガラス質シリケートを造りやすいために、焼結鉬品質を悪化させる。すなわち褐鉄鉬の欠点である易溶解性と多孔性を克服する手段が必要であった。幸いにも上述のように原料の安定していた1970年代から1980年代前半に焼結の基礎研究が進んでいたので、1990年代の褐鉄鉬の増加には、原料の混合、造粒、および装入法などの焼結操業における結晶水増加対応のための技術開発を主にすればよかった。

1980年代になると安価なPF(ペレットフィード)がかなり輸入されるようになった。これは化学成分では低シリカ、低アルミナの優れた原料だが、微粉のために配合量に制限があった。そこでピソライト鉬石やPFの使用のために、図3で示したような経緯で採用されてきた疑似粒化の技術が利用された。ピソライトとPFを配合して造粒する方法や、微粉コークスとの予備造粒、スケール添加などの方法で、粗粒ピソライト粉に微粒の高融点粉を選択的に造粒して、急激な同化を抑制する等、各種組み合わせの選択造粒法が開発されて、ピソライト粉鉬の40%配合まで実施されてきた¹¹⁾。この中でも極めて特徴的なものとしてNKK福山製鉄所で開発されたHPS(ペレット・焼結鉬ハイブリッド焼結法)と称される技術がある²⁹⁾。これは皿型造粒機で粗粒の周りに微粉のPFと石灰石粉を付着させた生ペレットに、さらにドラムミキサーで微粉のコークスを表層にまぶして、この燃焼で粒子同志を結合させるとともに、高被還元性のカルシウムフェライトを形成させる方法である。PFを50~55%使用できて低シリカの焼結鉬を造る画期的な方法となっている。

10 焼結の歩留り向上と省エネルギー対策

1970年代を境にして、製鉄部門は生産増から低コスト、省エネルギー指向の操業へ転換を迫られるようになった。

それに従って原料部門でも高炉の操業ニーズに沿った品質の焼結鉱を製造するとともに、焼結操業でも同様に低コスト、省エネルギーを迫られた。

この目的のためには、焼結のコークス添加量を下げて歩留りを上げられるような操業をすればよいが、両者は相反する条件で、両者を満足させる操業方法を取るには、改めて焼結操業機構、すなわち焼結鉱の生成機構を研究しなければならない。すなわち、適正な気孔構造を持つ焼結鉱は、強度（ひいては歩留り）も被還元性も良好となるが、そのような気孔構造を造り込むには、焼結過程における気孔形成機構を解明して、焼結機での原料装入を制御して適当な原料層を形成させなければならない。

このような観点から、稲角らは1980年代に高透過性・高分解性の鉄鋼用のX線CT装置およびCT画像解析法を初めて採用した独自の手法による研究を行い、今日の焼結鉱構造解明の端緒をつくった³⁰⁾。図7は解析システムの概要である³¹⁾。焼結はコークス燃焼下で粉鉱石を半熔融状態にして結合させるという単純な過程ではあるが、その割には塊成化のメカニズムが十分に研究されてこなかった。そこで稲角らは、鉱物組織形成と最終品質の決定に不可分の関係のある気孔構造とその形成過程の研究を行った。従来からも、ある特定断面の気孔分布や焼結ボンドは観察されていたが、三次元の構造を解析したのは初めてのことであった。この研究によって、シンターケーキ内の固体ボンドの大きさ分布と焼結条件および焼結鉱性状との関係が明確に解析されることになった。焼結過程は粉体の空隙が減少して新しい気孔が形成される変化過程であり、この気孔の大きさと数を適正に制御することで、強度もあり還元もされ易い焼結鉱が製造できる。

このような焼結構造解析研究は、直接にその構造を生成する方法には結びつかないが、どうすればこのような組織

を造ることができるかが、大きな目標として取り上げられ、近年の歩留りや品質の向上のための原料装入方法の改善研究に発展した。

焼結機への原料の装入が終わった時に焼結の成否が決まるとも言われるほど装入は重要な作業である。粒度分布のある原料を焼結する時に、通気、コークス燃焼、伝熱などを適正にバランスさせることが重要で、このために充填密度の制御とコークスを含めた層内の粒度偏析を可能とする装入が求められる。この方向で研究が行われ、熱不足の表層にコークスを多く偏析させるための2段装入法、風力分級によるSF方式、スリットバー方式などが実施された³²⁾。さらに従来のシュート式装入では、傾斜して挿入された原料層がなだれ現象で崩れて充填状況を悪化させるので、この解消法として整粒分散式装入装置(ISF)が開発された。装入方向に拡大する篩目を持つバー式篩によって、安定した粒度偏析の装入層を形成できるようになり、焼結歩留り、品質が大きく改善された³³⁾。

11 焼結鉱の品質とその変化

焼結鉱の品質は、高炉の最適操業を最終目標に設計されねばならない。同時にその品質を造り込む焼結操業も低コストが希望される。また焼結鉱の品質スペックも、高炉内の変化する還元と熔融条件に対応して高炉内で必ずしも同じ品質が要求されるわけではない。高炉の上部と下部の操業条件に対して矛盾した品質が要求されることもあり、それらに対応できるバランスした品質の設計が必要になる。

このような焼結鉱の生産の下に焼結技術の改善進歩が行われ、優れた高炉操業を支える原料が生産されてきた。表2に1950年代からの焼結鉱の生産と品質の幾つかの指標を示したが、上記のような難しい要求を充たしつつ、全ての指標が向上してきたことがわかる。この間原料内容にも大きな変化があり、省エネ、コストといった操業の要件を満足させつつ、それと相矛盾することの多い品質を向上させてきた所に研究の努力が認められる。

表2 焼結鉱の生産と品質に関する指標の推移

年代	鍋歩留り (%)	燃料比 (kg/t)	強度		被還元性 RI ¹⁾ (%)	還元粉化 RDI ⁴⁾ (%)	塩基度 CaO/SiO ₂
			落下強度 ¹⁾	TI ²⁾			
1950～	55～80	70～50	60～70				0.1～0.5
1960～	65～75	51	75～80				1.2
1970～	68	55	82	63	64	37	1.2～1.7
1980～	72	45	85	72	65	35	1.6～1.8
1990～	78	47	90	75	68	31	1.8～1.9

注 1) 10mm以上の粒度のサンプル20kgを、鉄板上に2m 高さから4 回落下させた後の10mm以上の(%)
 2) 10～50mmの試料を 1m 径のドラムで 200回転した後の10mm以上の(%)
 3) 500gの試料をCO 30% N₂70% の還元ガス中で、900℃で180 分還元した後の還元率
 4) 15～20mmの試料を 3) と同じ還元ガス中で、550℃で30分還元後ドラムで900 回転し、その3mm 以下の割合で表示

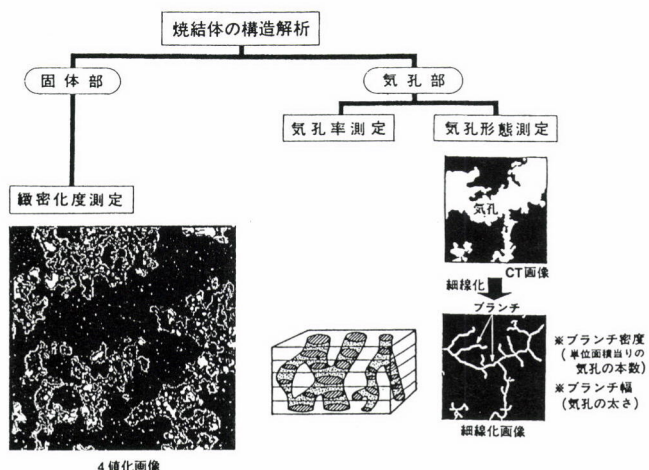


図7 X線CTによる焼結体解析法

12 ペレットと焼結鉱

これまで焼結を中心にわが国の原料技術の発展を眺めてきたが、ペレタイジングについても少し触れておく必要がある³⁴⁾。ペレタイジングは、鉄分の低い鉱石を磁選して得られた精鉱と呼ばれる極微粉の鉱石を塊成化する方法として、1940年代に米国とスウェーデンで開発された原料処理技術で、北米(タコナイト)、南米(ブルダスト)、アフリカ、スウェーデンなどで工場が建設され生産量が增大してきた。わが国では焼結鉱が高炉の主要原料であるが、北米などではペレットが高炉の主要原料の位置を占めている。

わが国におけるペレットの生産も欧米とほぼ同時の早い時期にスタートしている。すなわち1951年に日立金属が30t/dのプラントを建設し、続いて1953年に川崎製鉄が千葉製鉄所内に400t/dの本格的なプラントの操業を開始した。いずれもほぼ独力の研究開発によるペレタイジングの実用化であった。しかしわが国では微粉鉱石の入手が困難で1971年に川鉄はペレット工場を休止し、国内では焼結鉱が大部分を占めるようになった。川鉄以外の製鉄所ではペレットの使用経験がなかったが、外国での生産が増加しはじめたために、1961年に米国からペレットが輸入され、高炉で焼結鉱との比較試験が行われるようになった。一部の高炉でペレットの多量配合試験が行われ、最初は焼結に比べ優位な結果が得られたが、自溶性焼結鉱の品質が安定してくるや、焼結鉱が優れているとの結論となった。もちろんその時比較されたペレットは石灰を含まない酸性ペレットであった。わが国でペレットを生産するニーズはほとんどなかったが、1964年に神戸製鋼が米国からアリスチャーマー式ペレタイジング技術を導入した時に、そのデモンストレーションのため神戸にプラントを建設した。次いで1970年には同社が加古川製鉄所内に世界最大級のペレット工場を建設した。同じ頃ペルーのマルコナ鉱山でペレットフィードと水を混合しスラリー状にして船で輸送する技術が開発されて、安いコストで原料が入手出来るようになった。1973年に広畑製鉄所にマルコナ・スラリーを原料とするペレットプラントが建設された。わが国のペレット工場では、世界的にほとんど生産されていなかった自溶性ペレットの製造研究を精力的に行い、良質な高炉用ペレットが生産された^{35,36)}。

しかし1978年のオイルショックで重油価格が高騰したため、国内でペレットを製造するメリットが失われ、広畑ペレット工場は休止された。現在神戸製鋼の加古川ペレット工場のみが操業されている。

13 おわりに

戦後の原料処理技術における研究の寄与を眺めてきたが、この間に焼結技術は単に粉鉱石を焼き固める所から、高炉に必要な性状を持った焼結鉱を、原料の変化に応じて製造できる状態にまで発展してきた。

戦後の早い時期には国内の微粉をベースとした焼結のために、原料の通気性を高めるための疑似粒化技術がある程度確立され、その後の良好な輸入鉱をベースにした時代に石灰焼結鉱が導入され、比較的早期に技術が確立された。石灰焼結鉱の導入でカルシウムフェライトの生成と被還元性の基礎研究が行われ、ここに疑似粒化を応用した選択造粒で焼結の鉱物組成の造り込みの技術が確立された。その後現在の様な褐鉄鉱配合が増加する状況になったわけだが、原料変化に対する操業を追求することで技術的な対応ができた。近年は焼結装入層と気孔構造の解析で焼結操業の一層の改善が進んでいる。

この間、焼結は科学的研究とそれから得られた知見で大きく発展したが、研究と現場のどちらかが主導したということではなく、研究が現場の問題点をよく解決し、操業指針を提示し、現場はその知見を十分に理解して操業・設備技術を開発・改善することで実際の成果をあげてきたといえる。両者の密接な協力が実って今日の原料技術が確立されたというのが最も適切な表現であろう。このような点がわが国の製鉄技術発展の1つの特色でもあった。

引用文献

- 1) 戦後復興期におけるわが国鉄鋼技術の発展, 日本鉄鋼協会編, (1992), 16.
- 2) 吉永真弓: 第116, 117回西山記念技術講座, 日本鉄鋼協会編, (1987), 85.
- 3) 稲角忠弘: 第146, 147回西山記念技術講座, 日本鉄鋼協会編, (1993), 87.
- 4) 稲角忠弘: 鉄と鋼, 82 (1996), 965.
- 5) 鉄鋼技術の進歩, 鉄と鋼, 51 (1965), 320.
- 6) 鉄鋼技術の進歩, 鉄と鋼, 61 (1975), 453.
- 7) 鉄鋼技術の進歩, 鉄と鋼, 71 (1985), 323.
- 8) 鉄鋼技術10年の軌跡, 鉄と鋼, 81 (1995), 263.
- 9) 最近における製鉄技術の展望, 製鉄技術共同研究会編, (1957), 196.
- 10) 芹沢正雄, 小田部精一, 高橋愛和, 宮川一男: 鉄と鋼, 44 (1958), 286.
- 11) 稲角忠弘: 第17回鉄鋼工学セミナー資料, 日本鉄鋼協会編, (1991), 92.
- 12) 河西健一, 実松竹二: 鉄と鋼, 45 (1959), 491.

- 13) 児玉惟孝, 重見彰利, 斧 勝也, 堀尾竹弘: 鉄と鋼, 51 (1965), 2203.
- 14) 渡辺正次郎, 大竹康之, 道祖田盾力: 鉄と鋼, 50 (1964), 349.
- 15) 坂本 登, 福与 憲, 岩田嘉人, 宮下恒雄: 鉄と鋼, 70 (1984), 504.
- 16) J. O. Edstrom: JISI, 175 (1953), 289.
- 17) 高田 司, 神坂栄治, 相馬英明: 鉄と鋼, 69 (1983), S741.
- 18) 稲角忠弘, 品田功一, 川辺正行: 鉄と鋼, 68 (1982), 2207.
- 19) 原燃料から見たわが国製鉄技術史の展望, 日本鉄鋼協会編, (1984), 239.
- 20) 神原健二郎, 萩原友郎, 重見彰利, 近藤真一, 金山有治, 若林敬一, 平本信義: 鉄と鋼, 62 (1976), 535.
- 21) 下村泰人, 西川 潔, 有野俊介, 片山 力, 肥田行博, 磯山 正: 鉄と鋼, 62 (1976), 547.
- 22) 下村泰人, 九島行正, 有野俊介, 沖川幸正: 鉄と鋼, 64 (1978), S82.
- 23) 岡本 晃, 内藤誠章, 斧 勝也, 井上義弘: 学振製鉄第54委員会資料, 1647 (1983)
- 24) 井上勝彦, 林 秀高, 西田 功, 吉岡 宏: 鉄と鋼, 69 (1983), No. 2, A17.
- 25) 葛西栄輝, 許 彦斌, 小林三郎, 大森康男: 鉄と鋼, 70 (1984), 520.
- 26) 肥田行博, 佐々木 稔, 下村泰人, 春名淳介, 相馬英明: 鉄と鋼, 69 (1983), A13
- 27) 鈴木驍一, 安藤 遼, 吉越英之, 山岡洋二郎, 長岡清四郎: 鉄と鋼, 61 (1975), 2775.
- 28) 肥田行博, 佐々木 稔, 榎戸恒夫, 梅津一善徳, 飯田孝司, 宇野成紀: 鉄と鋼, 68 (1982), 400.
- 29) 坂本 登, 野田英俊, 岩田嘉人, 齊藤 汎, 宮下恒雄: 鉄と鋼, 73 (1987), 62.
- 30) T. Inazumi, S. Kasama, K. Sato, M. Sasaki and T. Tanaka: Proc. 5th Int. Symposium Agglomeration, Brighton (1989), 559.
- 31) 稲角忠弘, 中野 司, 笠間俊次: 地質調査所月報, 46 (1995), 573.
- 32) 稲角忠弘: 第146, 147西山記念技術講座, 日本鉄鋼協会編, (1993), 103.
- 33) 稲角忠弘, 藤本政美, 笠間俊次, 佐藤勝彦, 下沢栄一, 貝島 昭: 材料とプロセス I (1988), 958.
- 34) 原燃料から見たわが国製鉄技術史の展望, 日本鉄鋼協会, (1984), 221.
- 35) 藤井成美, 田村節夫, 田口和正, 国井和扶, 西田礼次郎: 鉄と鋼, 54 (1968), 1241
- 36) A. Tayama, Y. Shimomura, K. Fujita and T. Takemura: TransIJIS, 18 (1978), 50.

(1998年12月4日受付)