



## 躍動

若手研究者・技術者の取り組みと将来の夢

# 阪大の製鉄研究を受け継いで

## Start-up of My Ironmaking Work in Osaka University

小西宏和  
Hirokazu Konishi

大阪大学 大学院工学研究科  
マテリアル生産科学専攻 助教

### 1 はじめに

筆者が鉄鋼プロセスの製鉄に関する研究を開始したのは、大阪大学 大学院工学研究科 マテリアル生産科学専攻 確井建夫教授の研究室の助教として採用された平成16年1月、当時、確井先生が製鉄分野における炭材内装塊成鉱の研究に関心を持たれ、新規な研究提案を筆者に熱心にご説明していただいたことを憶えています。その際、確井先生から大阪大学で研究活動を一生懸命に頑張り、良い成果を残すようにとのお言葉を頂いたことも記憶しています。その後、筆者が大阪大学に助教として採用されてから約12年の月日が過ぎましたが、どのような研究を担ってきたのかを少し紹介したいと思います。私は(独)産業技術総合研究所から大阪大学に職場を移した際、研究内容を大きく変更いたしました。それまでは、電気化学、特に金属の電解析出に関する研究を行ってききましたが、大阪大学では確井先生とともに鉄鋼プロセスの中でも最も上工程である製鉄研究に取り組み始めました。研究テーマとしては、石炭および木材を還元材として用いた新規部分乾留チャー・木炭内装塊成鉱の作製と被還元性の評価<sup>1-17)</sup>、水素ガスを利用した酸化鉄の還元挙動の解析<sup>18-20)</sup>、高炉における焼結鉱の融液生成挙動の熱力学平衡計算とその場観察による評価<sup>21,22)</sup>、マグネタイト微粒子を利用したコークスの燃焼反応等があり、これらの研究は製鉄プロセスにおける炭酸ガス排出抑制と省エネルギー化を目的とし、今日の地球温暖化問題と密接に関係しており、非常に重要度の高いものと認識しています。また、確井先生とともに将来のクリーンな水素エネルギー社会を見据えたテーマとして、高温排出ガスからの高純度水素の分離に関する研究にも取り組みました<sup>23-25)</sup>。一方、日本の国家戦略として希少資源・不足資源代替並びに効率の利用が進められています。今後は、製鉄プロセスと関係する希少金属資源の有効利用などの研究も手がけていきたいと考えています。以下に、これまでに取り組んだ研究の中でも、特に製鉄に関する研究についてご紹介します。

### 2 炭材中の残留揮発分による酸化鉄還元促進効果に関する研究<sup>1-17)</sup>

高炉内における熱保存帯温度低下と還元材比低減、さらには製鉄プロセスにおける炭酸ガス排出量の削減を計るため、従来の炭材内装塊成鉱を改良した新たな部分乾留チャー内装塊成鉱の開発を目標としました。一般に、炭材内装塊成鉱は焼結鉱および鉄鉱石ペレットと比較して、1273 K以上の高温域において高速還元の可能な製鉄原料であります。また、炭材内装塊成鉱の作製方法は、焼結などの高温前処理をすることなく、粉鉱石や炭材粉が利用できること、還元材として石炭、ダスト粉などが利用できること、炭材と鉱石粉を密に混合できるため生産性の向上が望めることなどのメリットを有しています。さらに、私たちが提案した部分乾留チャーとは、石炭の昇温乾留時に乾留最高温度 ( $T_{C,max}$ ) を制御することによって、チャーに揮発分を一部残留させたものです。このような部分乾留チャー内装ペレット中の残留揮発分は、昇温過程で  $T_{C,max}$  付近から徐々に発生し始め、酸化鉄の還元反応ならびに連鎖的に内装炭材のガス化反応に大きく寄与することが期待されています。この効果により、従来の炭材内装塊成鉱よりも低温から、気体-固体間反応の開始を起点として、気相を介して固体-固体間反応を促進する可能性があります。ここでは、 $T_{C,max} = 823 \sim 1273$  K で部分乾留したチャーと酸化鉄を混合して炭材内装酸化鉄ペレットを作製し、炭材と酸化鉄間の還元反応に対する残留揮発分の効果をより詳細に検討しました。

$T_{C,max} = 823 \sim 1273$  K で得られた部分乾留チャーを含む炭材内装酸化鉄ペレットの還元促進効果を検討するために、室温から還元最高温度  $T_{R,max} = 1273$  K まで 3 K/min で昇温還元実験を行い、還元後の試料をXRDによって分析しました。還元後の試料のXRDパターンを図1<sup>3)</sup>に示します。すべての試料においてFeのピークが存在し、乾留最高温度が低いほどそのピーク強度は強くなりました。また、還元前に存在した  $Fe_2O_3$  のピークは

存在しませんでした。これらの結果から、乾留最高温度が低いほど、すなわち炭材の揮発分を多く含む試料ほど、その還元促進効果が大きいことがわかりました。

$T_{C,max} = 823$  Kの部分乾留チャーを用いた炭材内装酸化鉄ペレットを用いて、室温から $T_{R,max} = 873, 973, 1073, 1173, 1273$  Kまで、3 K/minで昇温還元実験を行い、X線回折によって還元促進効果を検討しました。得られたXRDパターンを図2<sup>3)</sup>に示します。 $T_{R,max} = 873$  Kにおいては $Fe_2O_3$ のピーク強度が強く、還元があまり進行していないことがわかります。しかしながら、還元最高温度の上昇とともに $Fe_2O_3$ のピークは小さくなり、 $T_{R,max} = 973, 1073$  Kでは $Fe_3O_4$ に起因するピークが強くなります。さらに、 $T_{R,max} = 1173$  KではFeOのピークが、 $T_{R,max} = 1273$  KではFeのピーク強度が最も強いことを確認しました。これらの結果から、1073~1273 Kの温度領域において還元反応は大幅に進行し、 $T_{R,max} = 1273$  Kでは酸化鉄はほぼFeまで還元されることがわかりました。

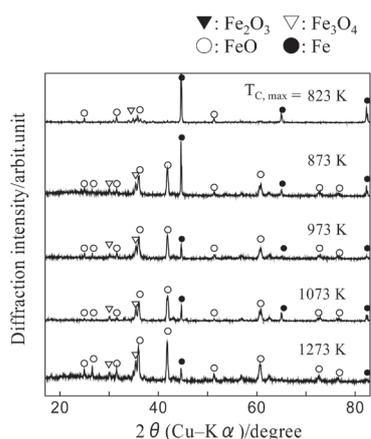


図1 窒素雰囲気下室温から $T_{R,max} = 1273$  Kまで3 K/minで昇温還元した後、 $T_{C,max} = 823, 873, 973, 1073, 1273$  Kの部分乾留チャー内装ペレット試料のX線回折パターン

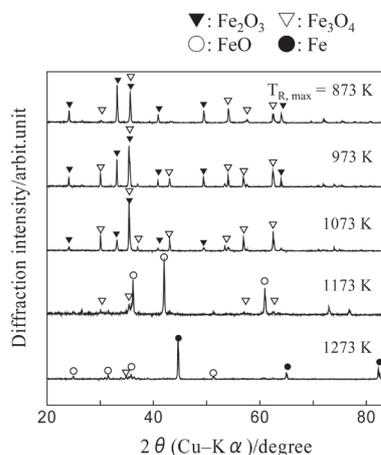


図2 窒素雰囲気下室温から $T_{R,max} = 873, 973, 1073, 1173, 1273$  Kまで3 K/minで昇温還元した後、 $T_{C,max} = 823$  Kの部分乾留チャー内装ペレット試料のX線回折パターン

さらに、炭材内装ペレットの還元反応に対する残留揮発分の効果を検討するため、窒素雰囲気下、還元温度 $T_R = 1073, 1173$  Kで等温還元実験を行い、生成ガス組成および酸化鉄の還元率を算出しました。 $T_R = 1073, 1173$  Kにおける還元率の経時変化を図3<sup>9)</sup>に示します。 $T_{C,max}$ が低い試料ほど、還元反応がより速く進行していることがわかります。特に、 $T_{C,max} = 823$  Kの試料では他の試料よりも初期段階から還元反応が急速に進行しており、 $T_R = 1073$  Kでは還元率は60 minで24%、 $T_R = 1173$  Kでは60 minで50%、80 minで57%となり、その際の $T_{C,max} = 1073, 1273$  Kの試料と比較して、約10~15%も高い値でした。このような顕著な還元率の差は、炭材中の残留揮発分の量に起因しています。以上の結果から、炭材と酸化鉄間の還元反応に対する残留揮発分の効果が明らかになりました。また、炭材として $T_{C,max} = 823$  Kで得られた部分乾留チャーを用いた場合、還元性の高い揮発分を相当量残留させた炭材内装ペレットを作製することができました。 $T_{C,max} = 823$  Kでは石炭中のタール成分はほぼ分解しており、チャーに未分解の重炭化水素由来の水素が多量に残留するという利点を有しています。

一方、部分乾留木炭 ( $T_{C,max} = 823, 1073, 1273$  K) および比較試料としてコークスを用いて炭材内装酸化鉄ペレットを作製し、 $N_2$ ガス雰囲気下、還元温度 $T_R = 1073, 1173$  Kで等温還元実験を行いました。 $T_R = 1073, 1173$  Kにおける還元率の経時変化をそれぞれ図4<sup>13)</sup>に示します。上述した部分乾留チャーの結

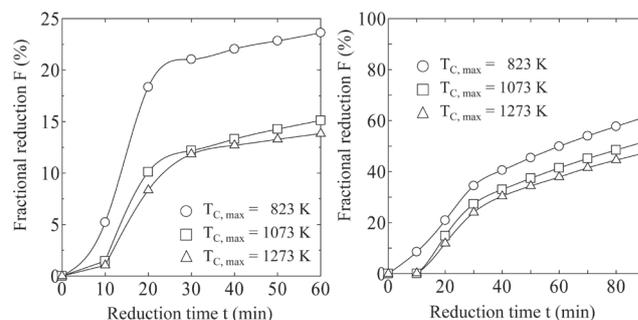


図3 窒素雰囲気下1073, 1173 Kにおける $T_{C,max} = 823, 1073, 1273$  Kの部分乾留チャー内装ペレット試料の還元率曲線

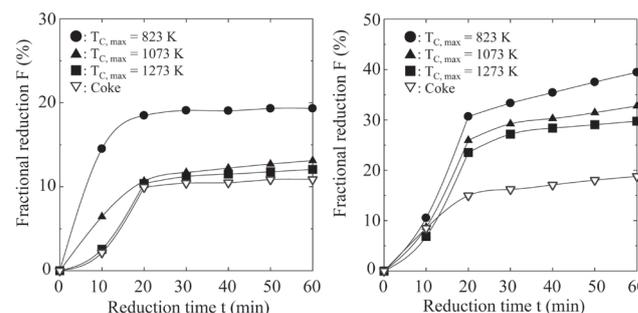


図4 窒素雰囲気下1073, 1173 Kにおける $T_{C,max} = 823, 1073, 1273$  Kの部分乾留木炭内装およびコークス内装ペレット試料の還元率曲線

果と同様に、 $T_{C,max}$  が低い試料ほど、還元反応がより速く進行していることがわかりました。このような顕著な還元率の差は、炭材中の残留揮発分の量、特に水素の量が影響していることが明らかになりました。

### 3 水素ガスを利用した酸化鉄の還元に関する研究<sup>18-20)</sup>

コークスと $Fe_2O_3$ を質量比1：9で混合し、炭材内装酸化鉄ペレットを作製しました。水素添加雰囲気における還元挙動を図5に示します。低温から還元反応が開始し、水素添加率が高いほど還元率が急激に上昇しているため、低温域において水素が酸化鉄還元に及ぼす影響が強いことがわかりました。また、5 vol%の $H_2$ ガスを添加した際、高温域においても急激な還元率の上昇を確認しました。このことから、 $H_2$ ガスを5 vol%添加した場合、低温域に限らず高温域でも還元反応が大幅に促進できることがわかりました。

次に、1273 Kでのガス発生挙動から、式 (1) に基づいて還元反応に影響を及ぼす水素の寄与率 $U_{H_2}$ を求めました。

$$U_{H_2} = \frac{\int_{t_0}^t (N_{H_2O}) dt}{\int_{t_0}^t (N_{H_2O} + N_{CO} + 2N_{CO_2}) dt} \times 100 \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 $N_i$  mol/minは*i*種のガスのモル流量、 $t_0$  minは反応開始時間、 $t$  minは経過時間とします。COKE-bの還元率50%および90%における $U_{H_2}$ を図6に示します。水素添加率が増加するほど、 $U_{H_2}$ が上昇していることがわかります。また、水素添加率の40%では $U_{H_2}$  (F=50%)と $U_{H_2}$  (F=90%)との差がほとんどないことから、還元反応に対して水素が常に強く寄与していることがわかります。

次に式 (2) に基づいて還元反応におけるコークスの反応率 $R_C$ を求めました。

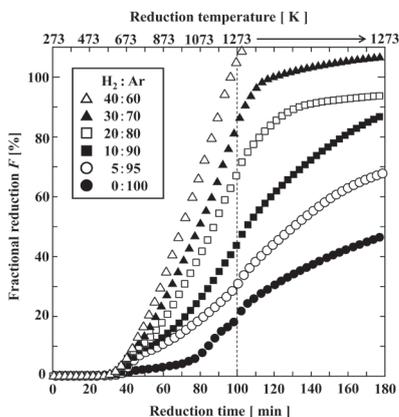


図5 Ar- $H_2$ 雰囲気下室温から1273 Kまで10 K/minで昇温還元し保持したコークス内装ペレット試料の還元率曲線

$$R_C = \frac{\int_{t_0}^t (N_{CO} + N_{CO_2}) dt}{M_C} \times 100 \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 $M_C$  molはコークス中固定炭素のモル数を表わします。COKE-bの還元率50%および90%における $R_C$ を図7に示します。水素添加率の増加に伴い、 $R_C$ が減少しています。また、すべての雰囲気中で $R_C$  (F=90%)は、 $R_C$  (F=50%)と比較してより高い値を示しています。さらに、 $R_C$ の減少と対応して $U_{H_2}$ が増加することから、コークスの反応の減少分を添加水素が補っていることがわかりました。以上の結果を踏まえると、雰囲気中水素添加率の増加により、ペレットとの還元反応に必要なコークスのある程度水素で補えることがわかりました。

一方、 $Fe_2O_3$ 、 $SiO_2$ 、 $CaO$ を質量比80：7.1：12.9 (塩基度1.8)の組成で混合し、球状体に成形しました。その後、1523 Kで90 min保持し塊成化しました。試料を用いて $N_2$ 雰囲気です室温から10 K/minの速度で、1073 Kまで昇温してFeOまで予備還元を行い、1273 Kにおいて、 $H_2$ 濃度を変化させ、 $H_2$ -CO-CO<sub>2</sub>ガス還元実験を行いました。得られた還元曲線を図8に示します。 $H_2$ 濃度の増加に伴い、還元時間が短くなることがわかります。特

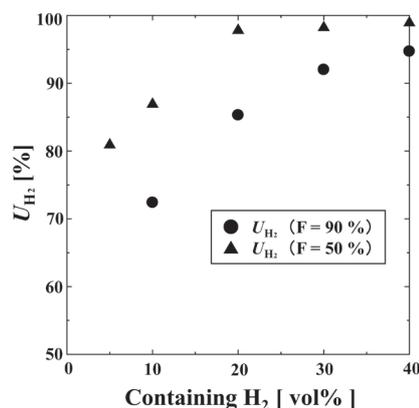


図6 Ar- $H_2$ 雰囲気下1273 Kでのコークス内装ペレット試料の還元反応における水素の寄与率 $U_{H_2}$

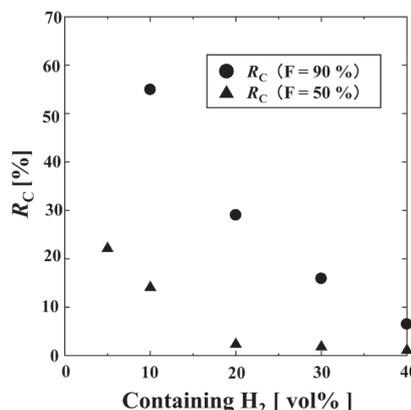


図7 Ar- $H_2$ 雰囲気下1273 Kでのコークス内装ペレット試料の還元反応におけるコークスの反応率 $R_C$

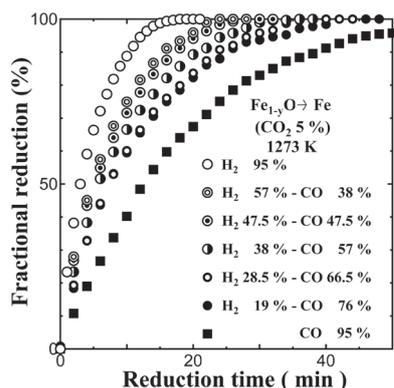


図8 H<sub>2</sub>-CO-CO<sub>2</sub>雰囲気下1273 KにおけるFeO-CaO-SiO<sub>2</sub>塊成鉄の還元率曲線

に、H<sub>2</sub>濃度が0から19 vol%に上昇した際、還元時間が最も短くなりました。この結果から、H<sub>2</sub>は少量添加するだけで還元反応を大幅に促進することがわかりました。これらの知見は、製鉄プロセスにおける水素還元の有効性およびコークス量の削減、さらにはCO<sub>2</sub>排出量の削減への可能性を示しています。

## 4 おわりに

上述した研究成果については、碓井建夫先生・竹内栄一先生・小野英樹先生・川端弘俊様(大阪大学)あるいは製鉄研究に取り組んでいる大学の諸先生方、産業界では新日鐵住金(株)宇治澤優様を筆頭に製鉄プロセス開発に取り組んでいる研究者の方々のご指導のもと、さらに学生諸君の協力のもとで得ることができました。

一方、筆者は学協会活動としては、上述した諸先生方、研究者の方々のご指導のもと、平成16年度～日本学術振興会 製鉄第54委員会 専門・運営委員、平成25年度～日本鉄鋼協会 高温プロセス部会 資源・エネルギーフォーラム資源対応型高品質焼結鉄製造プロセス研究会 委員、平成25年度～日本鉄鋼協会 環境・エネルギー・社会工学会部会 グリーンエネルギーフォーラム 運営委員、平成27年度～日本鉄鋼協会 高温プロセス部会 資源・エネルギーフォーラム 運営委員として活動しています。また、現・新日鐵住金(株)西岡浩樹様の講義を引き継ぎ、平成23, 24, 26年度は鉄鋼工学セミナー(蔵王セミナー)の製鉄分野の講師、平成25年度は製鉄専科の講師として活動しました。

最後となりましたが、今後も教育・研究活動の現場において製鉄研究に全身全霊で取り組み、お世話になった方々に胸を張れるだけの研究成果を残していきたいと思っておりますので、ご指導・ご協力のほど、何卒宜しくお願い申し上げます。

### 参考文献

1) T.Usui, H.Konishi and N.Inoue : Proceedings of 2006 Sohn International Symposium, San Diego, California,

USA, TMS, 2 (2006), 97.

2) H.Konishi, T.Usui, K.Azuma and A.Yamashita : Proceedings of the 4th International Congress on the Science and Technology of Ironmaking, Suita, Osaka, Japan, ISIJ, (2006), 65.

3) 小西宏和, 碓井建夫, 東和宏 : 鉄と鋼, 92 (2006) 12, 802.

4) 小西宏和, 碓井建夫, 原田武士 : 高温学会誌, 34 (2008) 1, 14.

5) H.Konishi, A.Yamashita and T.Usui : Journal of JSEM (Journal of the Japanese Society for Experimental Mechanics), 8 (2008) Special issue, 142.

6) T.Usui, H.Konishi and K.Inada : Proceedings of the 7th Japan-Brazil Symposium on Dust Processing - Energy - Environment in Metallurgical Industries and 1st International Seminar on Self-Reducing and Cold Bonded Agglomeration, Sao Paulo, Brazil, ABM, (2008), 91.

7) H.Konishi, T.Usui and K.Ichikawa : Proceedings of the 7th Japan-Brazil Symposium on Dust Processing - Energy - Environment in Metallurgical Industries and 1st International Seminar on Self-Reducing and Cold Bonded Agglomeration, Sao Paulo, Brazil, ABM, (2008), 188.

8) 小西宏和, 藤森士朗, 碓井建夫 : 高温学会誌, 35 (2009) 1, 33.

9) 小西宏和, 碓井建夫, 山下敦史 : 鉄と鋼, 95 (2009) 6, 467.

10) T.Usui, K.Ichikawa and H.Konishi : Proceedings of the Asia Steel International Conference 2009, Busan, Korea, KIM, (2009), CR-ROM.

11) H.Konishi, K.Ichikawa and T.Usui : Proceedings of the 5th International Congress on the Science and Technology of Ironmaking, Shanghai, China, 1 (2009), 287.

12) T.Nishimura, H.Konishi, K.Ichikawa and T.Usui : Proceedings of the Advances in Theory of Ironmaking and Steelmaking 2009, Bangalore, Karnataka, India, (2009), 207.

13) H.Konishi, K.Ichikawa and T.Usui : ISIJ Int., 50 (2010) 3, 386.

14) H.Konishi, K.Ichikawa, T.Usui and H.Ono : Proceedings of the 8th Japan-Brazil Symposium on Dust Processing - Energy - Environment in Metallurgical Industries, Hakata, Fukuoka, Japan, ISIJ, (2010), 42.

15) T.Usui, H.Konishi, K.Ichikawa and H.Ono : Proceedings of the 6th International Congress on the Science and Technology of Ironmaking, Rio de Janeiro, Brazil, ABM, (2012), 698.

- 16) T.Usui, H.Konishi, K.Ichikawa and H.Ono : Proceedings of the Asia Steel International Conference 2012, Beijing, China, (2009), CR-ROM.
- 17) H.Konishi, T.Usui, H.Ono and E.Takeuchi : Proceedings of the 8th Korea-Japan Workshop on Science and Technology in Ironmaking and Steelmaking, Jeju, Korea, (2012), 28.
- 18) T.Usui, T.Nishimura, H.Ono, H.Konishi and H.Kawabata : Proceedings of the 5th International Congress on the Science and Technology of Ironmaking, Shanghai, China, 1 (2009), 1179.
- 19) 小西宏和, 市川和平, 碓井建夫, 小野英樹 : 実験力学, 10 (2010) 3, 273.
- 20) H.Konishi, K.Ichikawa, T.Usui, H.Ono and E.Takeuchi : Proceedings of the Asia Steel International Conference 2012, Beijing, China, (2009), CR-ROM.
- 21) T.Nishimura, T.Usui, H.Kawabata, H.Konishi, H.Ono, Y.Iwaki, M.Naito and K.Higuchi : Ironmaking for Sustainable Development 2010, Suita, Osaka, Japan, (2010), 41.
- 22) 川端弘俊, 小野英樹, 小西宏和, 碓井建夫, 山村仁, 田村丈, 内藤誠章, 西村恒久, 樋口謙一, 国友和也 : 実験力学, 10 (2010) 3, 278.
- 23) 小西宏和, 西村 広, 碓井建夫, 片山 巖 : 高温学会誌, 34 (2008) 3, 123.
- 24) 小西宏和, 松本卓也, 碓井建夫, 水越朋之 : 鉄と鋼, 96 (2010) 10, 629.
- 25) T.Mizukoshi, Y.Yokoyama, H.Hoshino, I.Ishigami, H.Konishi and T.Usui : Ironmaking for Sustainable Development 2010, Suita, Osaka, Japan, (2010), 165.

(2015年7月15日受付)

## 先輩研究者・技術者からのエール

大阪大学 名誉教授、接合科学研究所 招聘教授、ブラジル・オーロプレット連邦大学 客員教授

| 碓井 建夫

小西先生には、平成16年1月より、大阪大学大学院工学研究科マテリアル応用工学専攻「反応プロセス工学講座」(碓井研究室)に、助教として着任頂いた。鉄鋼製錬を本務とし、平成8年4月に小野英樹先生を助手として迎えて以来の新人であり、当研究室発足時の近江宗一教授(名誉教授、当時は「冶金設備工学講座」)、次に森田善一郎教授(名誉教授、本会元会長、故人、当時は「反応制御工学講座」)の頃から在職の川端弘俊技術専門員の息の長い協力も得て、フルメンバーで製鉄、製鋼、関連する環境問題に取り組む体制が整った。その間、平成19年10月より3年間「新日鐵(製鉄プロセス)共同研究講座」が設置され、内藤誠章氏を招聘教授、西村恒久氏を講師として迎えて、当研究室との共同研究が強力に推進された。

このような状況の中で、小西先生には、大阪市立大学工学部応用化学科、京都大学大学院エネルギー科学研究科修士・博士課程ならびに(独)産業技術総合研究所における研究分野は、化学特に電気化学であったが、そのキャリアをバックボーンとして生かしつつ、主として製鉄研究に携わって頂いた。

内外ですでに炭材内装塊成鉱の研究・開発は進行中であったが、森田研究室の時代から着手していた溶融還元

の前段階としての石炭乾留ガスによる鉄鉱石予備還元の基本実験における知見から、部分乾留で留めたチャーを炭材として用いると、留めた乾留最高温度( $T_{c,max}$ )以降の残留揮発分が、この炭材内装塊成鉱を昇温還元したときに、温度が $T_{c,max}$ に達すると放出し始めて、気固反応で還元促進するのではないかと推察のもとに、小西先生に精力的に研究を進めて頂き、部分乾留木炭の利用にも拡張頂いた。成果の一端は本文に記載されているが、生データを譲り受けて、筆者もブラジルにおいて、現地の学生と乾留ガスの評価等の机上検討を行い、定年退職から5年を過ぎても、この分野の研究で国際学会発表するなど、各方面から今後の発展性が期待されている。

小西先生には、水素還元以外にも、水素含有ガスからの水素の選択的分離にも関わって頂き、Cガスからの水素分離や炭化水素による鋼のガス浸炭における余剰水素除去によるガス極少化の基礎データを論文発表頂いた。さらには、電気化学の基礎のもとに、希土類の分離回収でも貴重な技術的可能性を提示頂いた。このように、異分野から製鉄に引き込んだ小西先生は、両刀使いで着実に成果を上げ、小野先生ともども、“阪大に製鉄・製鋼あり”の伝統を今後とも受け継いで頂けるものと、大いに期待しています。

新日鐵住金(株) 技術開発本部 プロセス研究所 試験高炉プロジェクト推進部長

| 宇治澤 優

この度、製鉄分野における研究でご活躍されている小西先生の躍動記事について、僭越ながら一言コメントさせていただきます。小西先生はこれまで高炉の還元材比低減および炭素代替還元材利用を目的に炭材-酸化鉄複合型の新塊成物、水素富化を想定した酸化鉄還元挙動、高炉融着帯での焼結鉱性状変化等の高炉内還元・融着挙動から観た「高炉機能向上」に資する基礎研究に精力的に取り組まれてきました。「高炉機能向上」は昨今の高炉の取り巻く環境の激変に対応するためにこれまで以上に強く望まれている課題であり、その進展がこの先の日本における一貫製鉄所の上工程の命運を担っているといっても過言ではないと思います。そのためには、高炉の反応容器としての得失を可能な限り定量的に理解することが肝要であり、その理解に基づいて「高炉機能向上」策を考案し、具体策を打ち出していく必要があります。しかしながら、高炉はひとたび火を入れると昼夜休みなく連続的に動かし続けなければならない大型の高温反応容器であるため、高炉内の挙動を実際に目で見て理解することは出来ません。また、機能向上の手段は、「送風操作」と「原料操作」の二つの間接的な操作手段で

のみ可能です。従って、高炉プロセスを理解するためには、高炉内で生起する移動現象を数学的に表現し、考えている操作が操業成績にどのような影響を及ぼすかを予測する事が有効な手段の一つと考えます。先生がご研究された炭材-酸化鉄複合型の新塊成物、水素富化を想定した酸化鉄還元挙動については、企業においても基礎研究、実用化開発が進められておりますが、新塊成物、水素富化が高炉の還元材比低減にいかに寄与するか、使用量とその効果を定量的に把握することがやはり重要ではないでしょうか。一方、高炉融着帯での焼結鉱性状変化については、融着帯での通気抵抗測定を主体とした高炉の荷重条件下における高温性状試験が数多く行われておりますが、還元材に大きな影響を及ぼすと考えられる融着帯での還元挙動の定量化については、未だ未解明な点が多く、「高炉機能向上」策を考える上で、その進展が強く望まれております。是非、この点について研究を更に進めて頂きたいと考えております。小西先生が製鉄分野の研究で、今後、益々活躍されることを切に願っております。