

製銑一製鋼技術を融合した新しい製鉄技術を目指して

Development of Innovative Ironmaking Process by Utilizing Iron and Steelmaking Technologies

九岡伸洋 東北大学 多元物質科学研究所 Nobuhiro Maruoka 助教

「躍動」執筆という、著者のこれまでの研究を振り返る機会を頂き、現在まで多くの人に支えられ、導かれて研究してきた事を実感した。まず、これまでの研究内容を振り返った上で、今後取り組みたい研究課題を紹介する。著者の研究生活は2000年大阪府立大学化学工学科の秋山友宏助教授(現在、北海道大学教授)との出会いで始まり、潜熱蓄熱、化学蓄熱を利用した熱回収法を学んだ。2006年に東北大学多元物質科学研究所の北村信也研究室に赴任し、鉄鋼精錬・副産物の有効利用の研究に従事し、2014年に同研究所の埜上洋研究室に異動し、現在は製銑およびエネルギー有効利用の研究を進めている。

製鉄業における エネルギー有効利用

日本で使用される一次エネルギーのうち、有効利用されているのはわずか約30%で、残りの約70%は排熱として利用されずに捨てられている。現在までの技術革新により製鉄業のエネルギー効率は飛躍的に向上したが、未だなお高温排熱はほとんど回収されずに捨てられているのが現状である。その理由の1つに排熱が断続的に排出されていることがあげられ、この排熱を相変化物質(Phase Change Material, PCM)に貯蔵することで連続した一定温度の熱源に変換する潜熱蓄熱システム¹⁵⁾を提案した。PCMは物質の相変態時の潜熱を利用して高密度に蓄熱することができる物質である。PCMに融点1083℃の銅を選択した図1³⁾に示す転炉排熱回収を検討した。バッチプロセスである転炉から断続的に排出される高温排ガスをPCMに蓄熱、一定温度の熱源に変換した上で、最終的に水素を製造するシステム²⁷⁾を、実験および熱物

質収支、エクセルギー解析の観点から評価した。つまり、「潜熱蓄熱」により「不連続排熱」を「恒温熱源」に変換し、「化学蓄熱」により「エネルギーを変換・固定化」するシステムである。また、工業排熱を蓄熱し、民生へ輸送するトランスヒートシステム⁸¹⁰⁾の開発にも従事し、産業間連携の重要性を明らかにした。化石燃料は高レベル(高エクセルギー)のエネルギーで、鉄鋼業などの高温プロセスを駆動しうるエネルギーソースであるにも関わらず、民生での給湯・空調など低レベルのエネルギーに変換して利用しているのが現状である。高温排熱の低温産業や民生での利用(エネルギーのカスケード利用)は今後積極的に推進していくべき課題であると考えている。

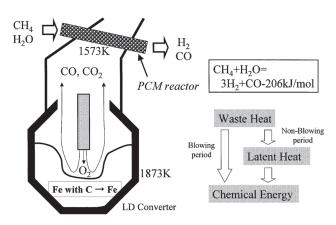


図1 潜熱蓄熱および化学蓄熱による転炉排熱回収システム。断続排出 される転炉排熱を潜熱蓄熱材 (Phase Change Material, PCM) で蓄 熱することで一定温度の連続熱源に変換し、化学吸熱反応との 組み合わせにより、高温排熱を水素に変換する³⁾

45 397

2

鉄鋼精錬(製鋼)

製鋼プロセス、特に溶銑予備処理11) や転炉工程である一次 精錬は高炉で生産された溶銑中の不純物を「酸化」させて取 り除くプロセスで、その平衡論、速度論は重要である。製鋼ス ラグ中のリン (P) は図2¹²⁾ の球形相 (B2, B3相) のダイカル シウムシリケート相 (2CaO・SiO₂, C₂S相) に濃化することが 知られており、不純物元素のメタルースラグ、スラグ中マト リックスーC₂S相間平衡分配¹³⁻¹⁵⁾、耐火物の反応^{16,17)}、フラッ クスの溶解¹⁸⁻²²⁾、メタル-スラグ分散による反応界面積の増大 などの高温実験、精錬の反応速度モデルの開発23-27)といった 現行の製鋼プロセスに直結した研究に従事した。その中で、 高温反応場で何が起きているかを「実際に見る」ことに興味 を持った。たとえば、図3に示す装置を用いて生石灰の溶融 スラグへの溶解挙動を直接観察1922)することで、生石灰内部 から発泡する試料は高速に溶解することを見いだした。この 発泡現象は生石灰中に残留する未分解のCaCO。核の熱分解 により引き起こされる。生石灰の溶融スラグへの溶解速度測 定は数多くの研究者により検討されており、古くは1967年に Konigら²⁸⁾ が報告し、1977年に松島ら²⁹⁾ が回転浸漬法による 溶解速度測定法を確立し、その後はこの回転浸漬法により数 多くの固体酸化物の溶解速度が測定されてきた。回転させる ため、緻密に焼結した堅い固体酸化物が用いられており、実 機で使用する生石灰のようないびつで脆い酸化物の測定はな されておらず、生石灰中に残留するCaCO。核が溶解速度に 寄与するパラメーターの1つであることは本研究で明らかに なった成果の1つである。このような中心にCaCO3核を持つ 生石灰の製造には新規の設備投資は必要なく、生石灰焼成プ ロセスでの焼成度を制御する(低下させる)ことで実現でき る。つまり、石灰製造プロセスでの消費エネルギー削減が可

図2 製鋼スラグ断面のCOMP像。マトリックス相(B1) にダイカルシウムシリケート(C_2S) 相(B2およびB3) が晶出しており、この C_2S 相にリン酸が濃化する 12

能で、さらに溶解速度高速化により製鋼工程の精錬時間短縮、 エネルギー消費量削減、スラグ中フリーライム (f-CaO) 低減 によるスラグリサイクルの促進などの効果をもたらす技術で あり、現在も引き続き精力的に研究を進めている。

3

製鋼副産物の有効利用

製鉄プロセスからはスラグが副産物として排出される。高炉スラグはセメント原料などとして概ね利用方法が確立している。しかしながら、製鋼スラグはスラグの膨潤やアルカリ成分溶出などの問題があるためその利用方法は限定的で、現在は製鋼スラグを蒸気エージングしてスラグ中のfCaOを蒸気と反応さることで安定化させてから路盤材などとして利用している。一方、製鋼スラグからはCa, Si, P, Mgなどが溶出することが知られており、その特性を活かした海洋や農地での利用などの有効利用方法が検討されている。Caは主に製鋼スラグ中のfCaOおよびC₂S相から溶出する³⁰⁾。製鋼スラグの水溶液への溶解特性を調査した結果、酸処理によりスラグ表面に図4のような空孔が観察され、C₂S相のみを選択的に除去できる¹²⁾ことを明らかにした。このC₂S相にはPが濃化しているので、酸処理によるスラグからのP回収、スラグの鉄鋼プロセスでの再利用が期待できる。

また、2011年の東日本大震災により、東北地方の沿岸部は 津波で大きな被害を受けた。農地は物理的な破壊はもちろん、化学的な被害を受けた。農地の土壌粒子はイオン交換能 を有しており、その表面には植物育成には欠かせない元素を 保持している。津波による海水流入は、Na過剰による浸透圧 バランスの崩壊だけでなく、Na過剰流入による土壌粒子表

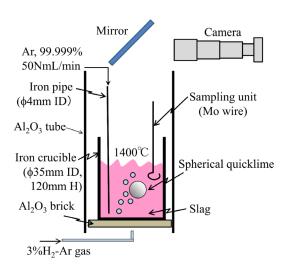


図3 実機で用いられている脆くていびつな生石灰の溶融スラグへの溶解 速度測定および溶解挙動観察装置。溶融現象を上部より観察でき る。溶融時にガス発生を伴う生石灰が高速溶解することを明らかに した²²⁾

398 46

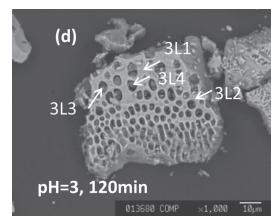


図4 酸浸漬実験後の製鋼スラグ表面のCOMP像。多数の空孔があり、 図2で示したC。S相が選択的に溶解したことを示している¹²

面のCa, K, Mgなどの溶脱によるイオンバランスの崩壊を招 いた。これらの成分は製鋼スラグに含まれており、製鋼スラ グによる塩害土壌再生に関する日本鉄鋼協会 産発プロジェ クト (代表:東北大学 北村信也教授) が発足した。このプロ ジェクトは、山形大学 藤井弘志教授、東北大学 伊藤豊彰准 教授、宮城県農業・園芸総合研究所、宮城県古川農業試験所 など農学系研究者と共同で行った、「農工連携プロジェクト」 で、植物や微生物研究の面白さ、むずかしさ、奥深さを知る 機会となった。その中で図5に示す湛水水田を模擬したカラ ム実験装置^{31,32)} を開発し、長期にわたる水田土壌水溶液中の 製鋼スラグの溶解挙動を調査した。湛水初期の水田土壌中は 酸化性雰囲気であるが、微生物活動により5~10日程度で還 元性雰囲気に移行する。そのため、雨水や海水等の場合はス ラグからFeはほとんど溶解しないにもかかわらず、土壌水 溶液中にはFeが多く溶解した。さらに20~30日経過後はpH がアルカリ性に移行するため再度Fe濃度が低下することを 明らかにした。このFeイオン濃度の変動が土壌表面のイオ ンバランスに大きな影響を与え、Naの追い出しやCaへの置 換に有効であることを明らかにした。

第2節で述べた生石灰滓化の研究では生石灰の溶解速度を促進させることで生石灰の未溶解分(f-CaO)を減らすことに注力していたが、このプロジェクトで連携した農学関係者からは、スラグからのCa供給能を上げるためもっとf-CaOを増やせないかという要望が有り、どの部分に価値を見いだすかは利用先次第であると感じた瞬間であった。

4

製銑

製銑プロセスの高炉では鉄鉱石を還元し、溶銑を製造する。高炉内の装入物、ガス、粉体、液体の流れの解明は高炉の安定操業、省エネルギー化の鍵を握る。高炉内状況の直接観

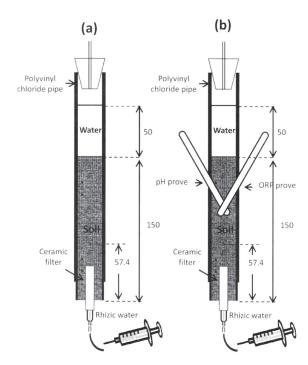


図5 水田土壌環境を模擬した製鋼スラグの溶解試験装置。時間とともに 湛水土壌中は還元雰囲気になるためFeがイオン化して水溶液中に 存在するなど、真水への溶解と全く異なる溶解挙動を示した³¹⁾

察は技術的に困難なため、数値計算による高炉内状況の解析 が重要で、そのための研究を始めたところである。

これまで述べてきたように、著者は、エネルギー→製鋼→ 製銑と種々の研究に携わってきた。現行の鉄鋼製造プロセス は、まず製銑プロセスで鉄鉱石を還元する。その還元力が強 すぎるためPなどの不純物も還元してしまい溶銑中に混入す る。次に、この不純物を製鋼工程で再酸化させて除去する。 つまり、過剰に還元させ、再度酸化させるのが現状の一貫製 鉄プロセスである。大量生産を実現させるためには効率の良 い手法で、製銑・製鋼分野それぞれで高効率化を達成してき たが、システム全体を俯瞰した場合、過剰還元の後、再酸化 させるシステムは疑問が残る。そこで、製銑-製鋼技術を融 合させることで、製鉄システム全体としての高効率化が図れ る11)と考えている。例えば、高炉装入前の焼結鉱やペレット の塩基度、還元度を高めることでC。S相を析出させれば、P はC。S相に濃化する。このC。S相は前述の通り溶解除去でき る¹²⁾ ため、還元工程前にPを除去できる可能性がある。同時 にSiも低減できるため、還元工程での塩基度を上げることが でき、結果として、脱S能も向上する。つまり、製鋼工程へ流 入するP,Sが減るため、溶銑予備処理プロセスが不要になる。 次の脱炭プロセスで発生する転炉スラグの中のP含有量も低 減するため、転炉スラグを原料として再利用できるので、結 果として二次精錬より上流の工程では高炉スラグしか副産 物を排出しない、省プロセス、省副産物排出、省エネルギー

製鉄が期待できる。原料の水処理、その後の還元方法など課題は多くあり、今後このような鉄鋼製造プロセスを、製銑一製鋼の枠組みにとらわれずに融合して、トータルとして改善するための研究に従事していく所存である。システム全体をとらえる目、各プロセスの現象を深く探求する目を養って下さった先生方、企業研究者などの多くの方々に深く感謝申し上げます。今後ともご指導ご鞭撻のほどよろしくお願い申し上げます。

参考文献

- 1) N.Maruoka, K.Sato, J.Yagi and T.Akiyama: ISIJ Int., 42 (2002), 215.
- 2) N.Maruoka, T.Mizuochi, H.Purwanto and T.Akiyama: ISIJ Int., 44 (2004), 257.
- 3) N.Maruoka and T.Akiyama: ISIJ Int., 42 (2002), 1189.
- 4) N.Maruoka and T.Akiyama: Energy, 31 (2006), 1632.
- 5) H.Purwanto, N.Maruoka and T.Akiyama: J.Chem.Eng. Jpn., 39 (2006), 531.
- 6) N.Maruoka and T.Akiyama: ISIJ Int., 50 (2010), 1305.
- 7) N.Maruoka, H.Purwanto and T.Akiyama: ISIJ Int., 50 (2010), 1311.
- A.Kaizawa, H.Kamano, A.Kawai, T.Jozuka, T.Senda,
 N.Maruoka and T.Akiyama: Energy Convers.Manage.,
 49 (2008), 698.
- 9) AKaizawa, H.Kamano, A.Kawai, T.Jozuka, T.Senda, N.Maruoka, N.Okinaka and T.Akiyama: ISIJ Int., 48 (2008), 540.
- 10) A.Kaizawa, N.Maruoka, A.Kawai, H.Kamano, T.Jozuka, T.Senda and T.Akiyama: Heat Mass Transfer., 44 (2008), 763.
- 11) 小川雄司, 丸岡伸洋: 鉄と鋼, 100 (2014), 434.
- 12) M.Numata, N.Maruoka, S.J.Kim and S.Kitamura: ISIJ Int., 54 (2014), 1983.
- 13) F.Pahlevani, S.Kitamura, H.Shibata and N.Maruoka: ISIJ Int., 50 (2010), 822.
- 14) N.Maruoka, S.Ono, H.Shibata and S.Kitamura: ISIJ Int., 53 (2013), 1709.
- 15) N.Maruoka, S.Narumi and S.Kitamura: ISIJ Int., 55

- (2015), 419.
- 16) N.Maruoka, A.Ishikawa, H.Shibata and S.Y.Kitamura: Proceedings UNITECR 2011 Congress: 12th Biennial Worldwide Conference on Refractories - Refractories-Technology to Sustain the Global Environment, 590.
- 17) 丸岡伸洋, 石川瑛, 柴田浩幸, 北村信也: 耐火物, 65 (2013), 161.
- 18) N.Maruoka, A.Ishikawa, H.Shibata and S.Kitamura: High Temp.Mater.Processes, 32 (2013), 15.
- N.Maruoka and H.Nogami: AISTech Iron and Steel Technology Conference Proceedings, Association for Iron and Steel Technology, AISTECH, (2015), 2117.
- 20) N.Maruoka and H.Nogami : CAMP-ISIJ, 28 (2015), 520.
- 21) N.Maruoka and H.Nogami: Metallurgical and Materials Transactions B-Process Metallurgy and Materials Processing Science, Accepted.
- 22) 丸岡伸洋, 埜上洋: CAMP-ISIJ, 29 (2016), 151.
- 23) F.Pahlevani, S.Kitamura, H.Shibata and N.Maruoka: Steel Research International, 81 (2010), 617.
- 24) A.Harada, N.Maruoka, H.Shibata and S.Kitamura: ISIJ Int., 53 (2013), 2110.
- 25) A.Harada, N.Maruoka, H.Shibata and S.Kitamura: ISIJ Int., 53 (2013), 2118.
- 26) A.Harada, N.Maruoka, H.Shibata, M.Zeze, N.Asahara, F.X.Huang and S.Kitamura: ISIJ Int., 54 (2014), 2569.
- 27) A.Harada, G.Miyano, N.Maruoka, H.Shibata and S.Kitamura: ISIJ Int., 54 (2014), 2230.
- 28) G.Konig, H.Rellerme and K.H.Obst: Stahl Eisen, 87 (1967), 1071.
- 29) M.Matsushima, S.Yadoomaru, K.Mori and Y.Kawai: Trans.ISIJ, 17 (1977), 442.
- 30) T.Teratoko, N.Maruoka, H.Shibata and S.Kitamura: High Temp.Mater.Processes, 31 (2012), 329.
- 31) 丸岡伸洋, 大久保道正, 柴田浩幸, 高旭, 伊藤豊彰, 北村 信也: 鉄と鋼, 101 (2015), 445.
- 32) 大久保道正, 丸岡伸洋, 柴田浩幸, 高旭, 伊藤豊彰, 北村 信也: 鉄と鋼, 101 (2015), 457.

(2016年4月11日受付)

400 48

先輩研究者・技術者からのエール

京都大学大学院 エネルギー科学研究科 准教授

柏谷 悦章

全人 鋼プロセスで観察される現象は、非常に複雑であ り、途中からこの分野の研究に参入することはか なり難しいものと言えます。最近は、鉄鋼プロセスの研究 者も減る一方で、若手の研究者は貴重な存在です。その ような状況の中で丸岡先生は、幸運にも鉄鋼研究者の王 道を歩んで来ているのではないでしょうか。つまり、鉄鋼 プロセスにおけるエネルギー分野→製鋼プロセス→製銑 プロセスと、はからずも上工程の重要な分野を進んで来 ていることは、長い目で見れば大きな力になり、大きな宝 であると思われます。もっとも重要なのは、師事する先生 方から貴重なノウハウを吸収しながら進んで来ているこ とだと思います。若い頃のこのような経験は、なにものに 代え難いものであり、その後の研究生活に大きな影響を 与えるものと思います。

しかしながら、新しい分野に踏み込むことは、大きなストレスを伴います。たぶん、丸岡先生も当初は大変だったものと思います。しかし、「躍動」の文章を読むと見事にそれらの経験を自分のものにしていると感じました。さらに、それらの貴重な経験を自分の中でかみ砕き新たなものを構築しつつあることに、大きな期待を抱くところです。

鉄鋼分野で、現在もそうですが、これから益々重要度

が増すものは環境とエネルギーだと思います。しかしこの"環境・エネルギー"というキーワードを研究に活かすには、製銑・製鋼プロセスに十分精通していなければなりません。当然のことながら、これまでにも多くの研究者が、研究して来た問題でありますので、残された研究課題は、難しいものしか残っていないといえます。したがって、今我々に必要なものは、新しい視点でものを観て、新しいアプローチで解決の糸口を探す事だと思います。これまで経験が大事だと言いましたが、その経験のために逆に壁を作り、可能を不可能にしてしまっていることが沢山あります。是非、そのような既成概念にとらわれずに、丸岡先生なりの新しいアプローチを探して頂きたいと思います。

また、私の失敗談から申し上げれば、10年前に行った研究を再度、10年後の成長した自分で検証し直すことをお勧めします。その当時は、精一杯の研究結果であったかも知れませんが、いま、社会的状況も変わり、分析装置なども発達し、そして自分自身も成長している。きっと同じテーマで研究しても全く違った結果を得ることが出来るものと思いますし、さらなる研究の新展開を発見することが出来るものと思います。

JFEスチール(株) 研究技監

藤林 晃夫

近、活躍著しい若手研究者の一人である丸岡先生 の躍動を読み、丸岡先生の色々な分野での研究の 経験と研究開発への意気込みをとても頼もしく感じた。

丸岡先生との出会いは先生が大阪府立大の学生であっ た頃にさかのぼる。当時、秋山友宏先生 (現北大教授) の もとで潜熱蓄熱の研究をされていた。工夫して実験を行 う研究スタイルをとられていて、丸岡先生は器用であり 頼もしいとの印象を持った。2004年に発表された論文1) は、未利用である高温の溶融スラグに着目して、ロータ リーカップアトマイザで溶融スラグを一旦微粒化凝固さ せ、そのスラグを熱源として化学反応で水素を製造する という斬新なものであり、是非、実用化してほしいアイ ディアであると感じた。オイルショックを経験した日本 鉄鋼業は、世界で最もエネルギー効率の高い製鉄システ ムを築きあげたが、いまだ利用されていない排熱が多数 存在することも事実である。エネルギー問題の解決手段 の一つとして丸岡先生が思い描かれているシステムは鉄 鋼を中心に分野を越えてエネルギーをカスケード利用し ようとするもので、今後、我々鉄鋼分野の研究者がリー ダーシップを発揮して、取り組むべき分野であろう。排 熱利用促進の研究は、トランスヒートシステムとして低 温度域で一部、実用化されているものの、製鉄所では、 高温化、安定化、小型化、放熱・蓄熱短時間化などまだ 多くの開発課題がある。これらを乗り越えて研究開発を 推し進めてほしいと期待している。

丸岡先生はその後、北大、東北大へ異動され、研究分野も、製鋼分野、さらに製銑分野と広い領域で研究をされている。躍動の本論の中で述べられているように、現行の高炉法は最適なプロセスではあるが、更なるエネルギー効率アップや鋼の高度化のニーズに対しては、理想を追究していかなければならない。革新プロセスの実現には、分野を横断して大所高所から全体プロセスを俯瞰するという広い分野の知識・経験が必要で、丸岡先生はその点で適任であろう。革新プロセスの萌芽をめざして、その先頭でリーダーシップを発揮されることを期待して丸岡先生へエールを送りたい。

参考文献

1) N.Maruoka, T.Mizuochi, H.Purwanto and T.Akiyama: "Feasibility Study for Recovering Waste Heat in the Steelmaking Industry Using a Chemical Recuperator": ISIJ Int., 44 (2004), 257.