



躍動

若手研究者・技術者の取り組みと将来の夢

鉄鋼プロセス変革の途上にて

On the Way to Transform Ironmaking and Steelmaking Process

中瀬憲治 JFEスチール(株)
 スチール研究所 製鋼研究部
 Kenji Nakase 主任研究員

1 はじめに

筆者は2010年にJFEスチール(株)に入社し、以後一貫して製鋼研究部に所属し、予備処理脱P(トピード、転炉)の改善の他、スラグからの資源回収技術等の現時点で存在しないプロセスの開発など、精錬関係の研究開発に従事してきました。中でもスラグからの資源回収技術の開発は新入社員テーマとして先輩から引き継いだものであり、会社での仕事の進め方を学び、その成果で学会発表・論文投稿など様々な経験をさせて貰ったテーマです。曲がりなりにも研究者を自称するだけの自信を付けさせてくれたと考えています。

技術思想は非常にシンプルで、製鋼スラグに含まれる酸化鉄を還元して鉄源として利用出来れば「有価物を回収すると共にスラグ発生量も低減出来て一石二鳥」というものであり、80年代には合成スラグを用いた実験がなされている^{1,2)}。ただし、プロセス実用化のためにはコストを考慮する必要があり、なるべく低温・低還元材材での処理が望ましい。また、製鋼スラグに含まれる酸化リンがメタル中に取り込まれると、鉄源として利用する際に脱リンが必要となるので、「酸化鉄は還元されるが酸化リンは還元されない」あるいは「還元されたリンがメタルに取り込まれない」条件がより望ましい。更に、還元により得られたメタル分と残スラグを物理的に分ける手段も考慮に入れる必要がある。

このような考えの下で、新規プロセスについて「熱力学検討 ⇒ 100g規模のるつぼ実験 ⇒ 50kg規模のキルン模擬実験」と段階を踏んだ開発・検討を行ってきたので、その一部を紹介させていただきます。

2 スラグ還元についての熱力学検討³⁾

製鋼スラグ中のFeOおよびP₂O₅の還元されやすさの違いに着目し、Fig.1に示す様に計算条件を変えて熱力学検討を実施した。ここで、計算条件はTable1に示した通りである。図中の曲線は、以下の各反応における温度と酸素分圧の関係

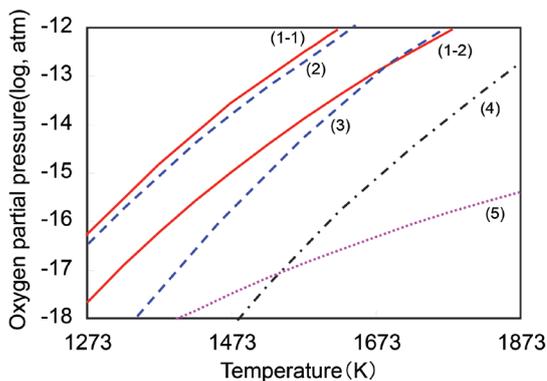


Fig.1 Equilibrium oxygen partial pressures for various chemical reactions. (Online version in color)

Table1 Chemical reactions and calculation assumptions. (Online version in color)

Line	Chemical equations	Calculation assumptions
(1-1) ———	$FeO(l) = Fe + 1/2O_2(g)$	FeO activity = 0.20 (high FeO content), Fe activity = 0.82
(1-2) ———	$FeO(l) = Fe + 1/2O_2(g)$	FeO activity = 0.04 (low FeO content), Fe activity = 0.82
(2) - - -	$P_2O_5(l) = 2P(1mass\% \text{ in Fe}) + 5/2O_2(g)$	P ₂ O ₅ activity = 0.01, [%P] = 1mass%, [%C] = 4mass%
(3) - - -	$P_2O_5(l) = P_2(g) + 5/2O_2(g)$	P ₂ O ₅ activity = 0.01, P _{P2} = 10 ⁻⁶ atm
(4) - · - ·	$3CaO(l) + P_2O_5(l) = Ca_3P_2(s) + 4O_2(g)$	Ca ₃ P ₂ activity = 1, CaO activity = 0.3, P ₂ O ₅ activity = 0.01
(5) ·····	$CO(g) = C(1mass\% \text{ in Fe}) + 1/2O_2(g)$	P _{CO} = 1 atm, [%P] = 1mass%, [%C] = 4mass%

を示している。

(1-1)、(1-2)：スラグ中FeO濃度が異なる場合のFe/FeO平衡反応

(2)：スラグ中P₂O₅が還元されてメタル中へ吸着される反応

(3)：スラグ中P₂O₅がP₂ガスとして直接除去される反応

Fig.1より、スラグ中のFeOはP₂O₅よりも還元されやすく、以下の順番で進行すると考えられる。

- ① FeOの還元によりFeが生成
- ② P₂O₅の還元により、リンがメタルへと吸着
- ③ ①、②の還元が進行し、FeOが低位となる
- ④ P₂O₅の還元により、リンがP₂として気相へ移行

3 100g規模るつぼ実験³⁾

100gのスラグ試料と還元用炭材をるつぼに入れ、インペラによる機械攪拌を付与した状態で所定の温度まで昇温後に30分保持した。室温まで降温後に試料を取り出し、スラグとメタルを磁選分離し、それぞれの重量測定、化学組成分析を行い、実験前後のFeおよびPのマスバランスを評価した。

なお、前述の熱力学検討の結果より、還元されたリンが吸着されるメタルが存在しなければ④のリン気相除去が促進されると考え、予めFeO濃度を低位としたスラグを高温還元する実験を行った。

実験後のFeのマスバランスをFig.2に、PのマスバランスをFig.3に示す。詳細は論文³⁾に記載しているので割愛する

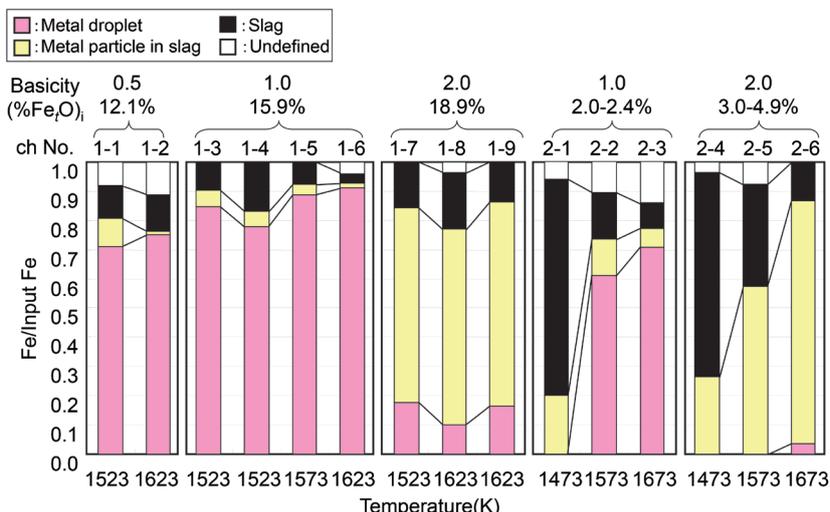


Fig.2 Mass balance of Fe in crucible experiments. (Online version in color)

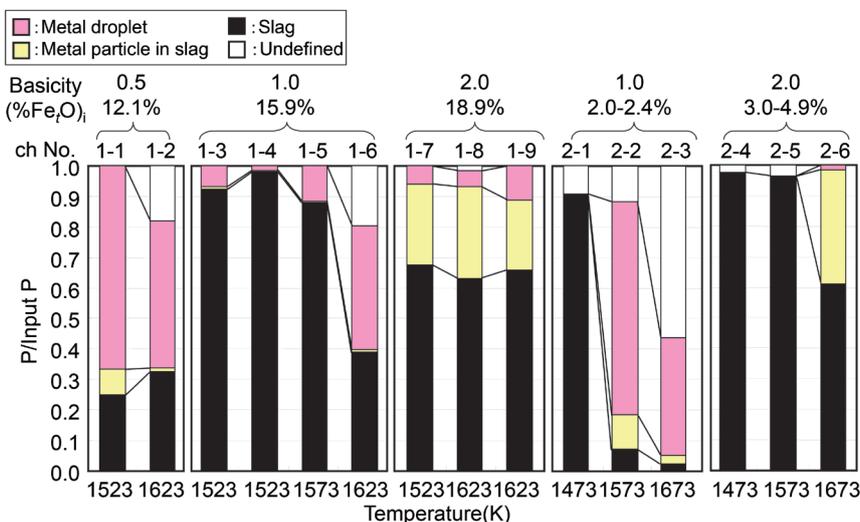


Fig.3 Mass balance of P in crucible experiments. (Online version in color)

が、Feは還元されるがPが還元されない条件が存在し、処理温度が高くなるとPの還元割合が大きくなると共に不明P（気化リンと推定）の割合が増加するなど、概ね熱力学検討による推定の通りとなった。また、低FeO濃度スラグを還元した実験2-1～2-3において多くの不明Pが生じており、予想通りFeO濃度低減によるメタル量低減がリン気相除去に有効であった。

4 50kg規模キルン模擬実験⁴⁾

1.に記載した還元により得られたメタル分と残スラグを物理的に分ける手段として、メタルとスラグの比重差を利用して還元処理中に分離することを考えた。既存の高温処理可能な設備での処理を想定し、加熱のためのエネルギー効率が高く、転動による比重分離促進が期待できるロータリーキルン方式での処理の開発に着手した。

住友重機械工業株式会社が所有するロータリーファーンスをを用いたキルン模擬実験を行った。φ1300×L500mmの反応炉を0.4rpmで回転しながらLPGバーナーで加熱し、所定の温度+50Kとなるまで予熱した後、スラグサンプル50kgと還元用炭材33kgを10回に分けて投入した。所定温度を保持する様にバーナー供給量を調整し、90～120分経過後にバーナーを消火した。メタルが生成した条件については、炉体下部の排出口より炉内サンプルを排出し、排出されない炉内残留物は冷却された後に回収した。回収サンプル中のスラグとメタルを磁選分離し、それぞれの重量測定、化学組成分析を行い、実験前後のFeおよびPのマスバランスを評価した。

1628K以上での実験においては、実験後に炉体下部より溶融メタルをタッピングすることが可能だった。一例の写真をFig.4に示す。これは、炉体の転動により炉内で溶融スラグと溶融メタルがそれぞれ凝集し、比重差による分離が進行した



Fig.4 Images of tapped meta. (Online version in color)

結果と考えられる。すなわち、キルンの様な転動可能な装置で製鋼スラグを高温還元することで、スラグと分離した状態でメタルを回収可能と考えられる。

実験後のリンのマスバランスをFig.5に示す。Fig.3に示したつぼ実験のリンのマスバランスと同様、条件によってリンの還元割合、不明リンの割合は変化する。Fig.6にスラグの塩基度とリンの還元割合の関係を示す。処理温度の低いRun-6を除き、スラグ塩基度が小さいほど (P_2O_5) の還元割合が高いことが分かる。

スラグからのリンの気化除去は、スラグの組成、還元温度、酸素ポテンシャルの影響を受け、個別の影響評価は困難である。そこで、これらの影響を表す指標として、計算で求めたスラグ-メタル間の平衡リン分配比 L_p を用いて整理した結果がFig.7である^{3,4)}。計算 $\log L_p$ と不明リンの割合は凡そ良い相関関係が見られる。この結果から、目標とする不明リン割合に対して必要な $\log L_p$ 、すなわちスラグ組成や温度などの

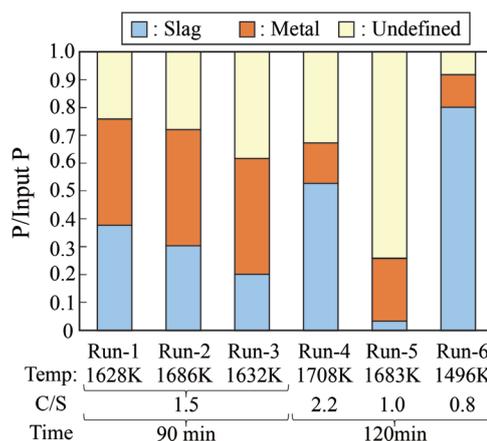


Fig.5 Mass balance of P in kiln experiments. (Online version in color)

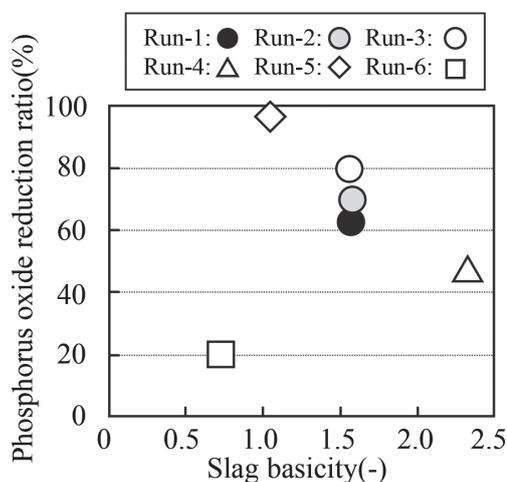


Fig.6 Relationship between slag basicity and (P_2O_5) reduction ratio.

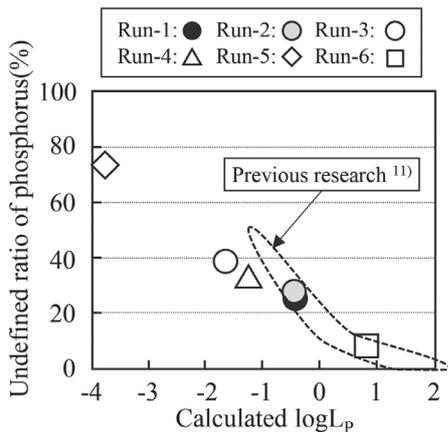


Fig.7 Relationship between calculated log LP and undefined ratio of phosphorus.

条件を導出することが可能となる。この整理の結果、従来知見の少ない新プロセスの検討に際して、スラグ組成を変えた時に必要な条件（すなわち処理に要するコスト）と回収物の量と質（すなわち処理で得られるメリット）の関係を試算することが可能となり、プロセス実用化の検討を加速出来た。

5 終わりに

鉄鋼業の歴史を勉強すると、数十年に一度は大きなプロセス変革が起り、現在も採用されているプロセスの開発が行われてきたことが分かります⁵⁻⁷⁾。製鋼関係に限っても、1950年代の純酸素転炉の導入、60～70年代の予備処理脱S法（KRなど）、取鍋精錬法（RHなど）および連続鑄造の導入・拡大、80～90年代の予備処理脱P法（トピードカー、鍋、転炉）な

どが挙げられ、導入後も種々の技術開発により更なる効率化や環境負荷の低減が行われてきました⁶⁾。

日本が掲げた「2023年度の温室効果ガス46%削減、2050年のカーボンニュートラル実現」という国際公約を踏まえ、高炉各社はカーボンニュートラルに向けた取り組みを加速させています。今が正に数十年に一度のプロセス変革の途上であり、既存技術の取捨選択・改善およびDX等の新技術の両方を連携させた開発が必要だと思えます。

2050年には筆者は65歳でちょうど定年のはず。その時に「〇〇のプロセス開発に寄与した」と胸を張れる様に、今回紹介した開発の経験も活かし、プロセス変革に繋がる技術開発に引き続き邁進する所存です。

参考文献

- 1) 塩見純雄, 佐野信雄, 松下幸雄: 鉄と鋼, 63 (1977), 1520.
- 2) 竹内秀次, 佐野信雄, 松下幸雄: 鉄と鋼, 66 (1980), 2050.
- 3) 中瀬憲治, 松井章敏, 菊池直樹, 三木祐司: 鉄と鋼, 102 (2016), 485.
- 4) 中瀬憲治, 松井章敏, 中井由枝, 菊池直樹, 岸本康夫, 鉄山一州: 鉄と鋼, 107 (2021), 693.
- 5) 内藤誠章, 武田幹治, 松井良行: 鉄と鋼, 100 (2014), 2.
- 6) 江見俊彦: 鉄と鋼, 100 (2014), 31.
- 7) 楢取英宏: 鉄と鋼, 100 (2014), 59.

(2023年12月7日受付)

先輩研究者・技術者からのエール

東京大学 大学院工学系研究科マテリアル工学専攻 准教授

松浦 宏行

2007年7月にポスドクを辞して米国から帰国し、月橋文孝先生の研究室で助教に着任した小職が、共に研究をさせていただいた最初の学生の一人が中瀬憲治さんでした。当時、中瀬さんは学部4年生で、研究室に配属して3か月ほど経過したところでしたが、第一印象は「真面目」で「何となく近寄りがたい雰囲気」の学生でした。卒業論文の研究テーマは溶銑脱りんプロセスにおける生石灰の滓化現象における P_2O_5 の影響を調査するもので、思い返せば当時から P_2O_5 に魅せられていたのかもしれませんが。第一印象の「何となく近寄りがたい雰囲気」は小職の誤解だったようですが、「真面目」は中瀬さんそのもので、誠実に研究に取り組まれていたのが印象に残っています。修士課程を含め、中瀬さんが研究室で過ごされた3年間は、日本でのアカデミックキャリアをスタートした小職にとって大変貴重で充実した期間でした。特に脱酸反応に関する修士課程の研究テーマは小職が米国から持ち帰った途上の研究を新たに始めたもので、研究手法の立ち上げから共に行いましたので、今に振り返ればかなり無茶な要求もあったものと思います。この場を借りて謝罪申し上げます。

中瀬さんが就職後に長年の一大プロジェクトである製

鋼スラグからの FeO 、 P_2O_5 回収プロセスの開発に尽力されている様子が「躍動」からひしひしと伝わってきました。学生時代と同じようにプロジェクトに正面から向き合って取り組まれている様子が目に浮かびます。今更改めて申し上げることでありませんが、製鋼スラグの高度リサイクル技術の開発は資源に限られる日本において極めて重要なプロジェクトであり、安定して発生する資源を地産地消するための重要なミッションと思います。最後に所信表明されているように、是非、実用化に向けて今後も取り組みを続けられるとともに、化石燃料に依存しないカーボンニュートラルなプロセス開発も視野に入れていただければ幸いです。

すでに活躍されている技術者・研究者である中瀬さんを「若手」と呼ぶことにはやや抵抗感がありますが、傍らで共に成長させていただいた一先輩としてエールを送らせていただきました。最後に一つだけ。今後の日本の製鉄業を支える技術者・研究者として、今後は更に守備範囲を拡げていただき、周囲よりやや五月蠅いと思われるくらいにいろいろなところに首を突っ込んで活躍されてください。更なる「躍動」を期待しております。

(株) 神戸製鋼所 鉄鋼アルミ事業部門 技術開発センター

製鋼開発部 精錬開発室 室長

中須賀 貴光

中瀬さんから躍動コメントの執筆依頼を受けたのは、鉄鋼協会の講演大会の会場でした。私も中瀬さんと同じ製鋼分野・精錬を専門とし、学会等では気軽に会話できる関係で、学協会活動でも日頃からお世話になっている方でしたので快諾させていただきました。

まずは中瀬さんとの出会いについて紹介します。彼のお名前を初めて知ったのは、2008年の学生鉄鋼セミナーでした。当時、私は企業委員を務めており、彼は受講生（修士1年）として参加していました。受講生による研究発表では研究背景や実験内容をよく理解しており、また、他の受講生の発表に対しても興味を持ち、積極的に質問していたと記憶しています。優秀な学生さんがいるものだと感心した一方で、鉄鋼業に進んで欲しいと思いました。その後、JFEスチールに就職し、同じ分野でご活躍されていることを知りました。なお、学生鉄鋼セミナーでは、私が長く企業委員を務めていたこともありますが、中瀬さんも企業委員としても参加するようになり、一緒に仕事をさせていただいておりました。宿泊を伴うセミナーであったため、懇親会では時間を気にせず、鉄鋼業に対する熱い思いを再確認させていただきました。

本記事で紹介されている製鋼スラグからの資源回収技術の開発では、研究部門に所属する研究者・技術者の王道とも言える理想的な進め方を行っています。まずは、机上検討で、中瀬さんが得意とする熱力学検討とアイデア抽出を行い、次に、小型ラボ実験を経てスケールアップ実験で効果を検証し、最後に実操業に反映させる流れです。現在は、スケールアップ実験の段階で、スラグと金属の分離性や回収率の向上についてご検討中と思います。プロセスの実用化のためには技術的なハードルが残されており、また、コスト的な課題もありますが、そこを乗り越えての進展を楽しみにしています。

最後に、2050年カーボンニュートラルの実現に向けて、各業界で温室効果ガスの排出削減の取り組みが進められており、鉄鋼業においても、特に CO_2 排出削減の寄与が大きい鉄鋼上工程はスラグ処理を含めて大きなプロセス変革の時期を迎えています。新しいプロセスの開発では、従来からの延長線上にない技術開発も必要ですが、鉄鋼業の技術開発の長い歴史の中には大きなヒントとなりえる知見が転がっている場合も多く、既存技術と新規技術、鉄鋼業以外の様々な技術を融合させ、今後も将来に繋がる技術開発を期待しています。