The University of Osaka
Institutional Knowledge Archive

Title	製鉄プロセスの脱炭素化のための要素技術に関する基礎研究
Author(s)	加藤, 謙吾
Citation	大阪大学, 2022, 博士論文
Version Type	
URL	https://hdl.handle.net/11094/88038
rights	
Note	やむを得ない事由があると学位審査研究科が承認したため、全文に代えてその内容の要約を公開しています。全文のご利用をご希望の場合は、大阪大学の博士論文についてをご参照ください。

The University of Osaka Institutional Knowledge Archive : OUKA

https://ir.library.osaka-u.ac.jp/

The University of Osaka

様式３

論　文　内　容　の　要　旨

氏　名　（　加　藤　謙　吾　）	
論文題名	製鉄プロセスの脱炭素化のための要素技術に関する基礎研究

論文内容の要旨

鉄鋼プロセスの脱炭素化はカーボンニュートラルの達成へ向けて喫緊な課題であり、従来から主原料として使用されている比較的高品位な鉄鉱石に加え、低品位鉄鉱石、鉄鋼スクラップを含めた将来的な資源動向を考慮して鉄鋼プロセスを再構築する必要がある。そのためには、次の3つの製鉄プロセスの実現に向けた種々の検討が必要である。

①　低品位鉱石を最少限のコークス量で還元する高炉の低コークス比操業

②　マグネタイト鉱石を水素で還元する水素還元製鉄

③　スクラップを利用した高品質溶銑の製造

本論文では①～③の各項目に関する要素技術について基礎的に検討した結果を論じた。

第1章では鉄鋼需要、鉄源動向および鉄鋼プロセスの脱炭素化の課題について述べ、本研究の目的について記述した。

第2章では高炉において低品位鉱石を最少限のコークス量で還元する場合に重要となる炉内通気性の向上を目指して研究を行った。焼結鉱の還元促進により軟化溶融温度が上昇することに着目し、軟化溶融温度におけるFe_2O_3-CaO-SiO_2-Al_2O_3焼成体の還元挙動におよぼすCaO/SiO_2の影響について検討した。CaO/SiO_2 = 1.5の場合には試料焼成時に生成したスラグが1473 Kにおける還元時にFeOと反応して液相が生成し、焼成体内の気孔が閉塞されるため還元が停滞した。一方でCaO/SiO_2 = 2.0, 2.5の場合は試料焼成時にSFCAが生成し、1473 Kにおける還元時も溶融しないため気孔が維持され還元が促進されることを示した。したがって焼結鉱へCaOを添加し、焼成時にSFCAを生成させることで還元が促進されるため軟化溶融温度が上昇し、炉内の通気性の向上が期待できる。

第3章では水素還元製鉄の実現のために含マグネタイト微粉鉱石の還元速度の把握が重要であることに着目し、超微粉である鉱石の還元過程を考慮可能な新たな還元速度評価手法を提案した。試料重量、ガス流量を変化させて還元実験を行い、ある還元率に達するまでの還元時間を試料質量/ガス流量の比に対してプロットすると直線関係が成り立ち、この直線の切片を求めることで還元速度を評価することができることを示した。含マグネタイト微粉鉱石にはFe_2O_3主体の粒子とFe_3O_4主体の粒子が混在しており、Fe_2O_3主体の粒子は粒子内全体に気孔が生成して速やかに還元が終了するが、Fe_3O_4主体の粒子は気孔が生成せず、表面に生成したFe層内の拡散が律速するため還元が停滞することを示した。

第4章では鉄鉱石、スクラップを同時に利用するプロセスに着目し、各鉄源から種々の不純物が持ち込まれる場合に溶銑中に共存する不純物元素間の相互作用を考慮し、溶銑およびスラグ組成を熱力学的に解析するモデルを作成した。作成したモデルを用いて溶銑組成へおよぼす温度、酸素分圧、鉄源中のスクラップ割合の影響を解析した。スクラップを鉄源として利用する利点として鉱石由来の不純物濃度の低減、スラグ原単位の低減、コークス原単位の低減などが期待できる。したがってSiO_2やP濃度が高い低品位鉱石を利用する場合にはスクラップの混合利用が効果的である。

第5章では酸化平衡が高炉炉下部の酸素分圧の指標として利用されるMnとトランプエレメントであるCu間の熱力学的相互作用を測定し、第4章で作成したモデルに組み込むことでMnのスラグメタル反応の平衡におよぼすCuの影響に関して検討した。Fe-Ag相間におけるMn、Cuの分配平衡を利用することで1873 Kにおける溶鉄中CuとMn間の相互作用係数として$\varepsilon_{\mathrm{Mn\,(in\,Fe)}}^{\mathrm{Cu}}$ = − 3.16(± 1.24), $e_{\mathrm{Mn\,(in\,Fe)}}^{\mathrm{Cu}}$ = − 0.012(± 0.005)の値を得た。相互作用係数の値が負であるため、Cuが混入するとMnの活量が低下し、溶銑中へ還元されやすくなることを示した。

第6章では市中から回収される鉄鋼スクラップ中に含まれるCuの新たな除去原理として、温度勾配を付与することで溶銑中のCuを、γFe(s)相、Ag相を介して酸化除去する多相スルー精錬を提案した。本原理の実現を目指し、Fe-Cu-C合金およびAgを温度勾配下に保持してCuの分配実験を行い、相関係、Cuの分配挙動について調査した。温度勾配を制御することでFe-C(l)相、γFe(s)相、Ag(l)相の3相の共存状態を実現できることを示した。このとき時間とともにFe-C(l)相中のCuがγFe(s)相を介してAg(l)相中に移動することがわかった。γFe(s)相中のCuの拡散が律速段階であり、Ag相中のCu濃度の上昇速度から適切なO_2の供給速度として$2.4 \pm 0.5 \times 10^{-5}$ (mol/(m^2·s))が得られた。

第7章は本研究により得られた成果を総括し、製鉄プロセスからの脱炭素化への将来展望について述べた。

様式 7

論文審査の結果の要旨及び担当者

氏　名　（加　藤　謙　吾）			
論文審査担当者		（職）	氏　名
	主 査	教授	藤本　愼司
	副 査	教授	吉矢　真人
	副 査	教授	小泉　雄一郎
	副 査	准教授	鈴木　賢紀
	副 査	教授	小野　英樹　（富山大学　学術研究部）

論文審査の結果の要旨

鉄鋼業の脱炭素化には主原料である高品位な鉄鉱石に加えて低品位鉄鉱石や鉄鋼スクラップ等の資源動向を考慮した鉄鋼プロセスの再構築が急務であり、本論文では、低品位鉱石の低コークス比高炉操業、マグネタイト鉱石を原料とする水素還元製鉄、スクラップを利用した高品質溶銑製造の３つの課題を基礎的に検討している。

第 1 章では鉄鋼需要、鉄源動向および鉄鋼プロセスの脱炭素化の課題を概説し、本研究の目的を述べている。

第 2 章では低品位鉱石の還元時の高炉内通気性を検討している。焼結鉱の還元にともなって軟化溶融温度が上昇することに着目し、軟化溶融温度での Fe_2O_3–CaO–SiO_2–Al_2O_3 焼成体の還元に及ぼす CaO/SiO_2 比の影響を検討している。$CaO/SiO_2 = 1.5$ ではスラグは還元時に FeO と反応して液相を生成し、焼成体の気孔が閉塞されて還元が停滞する。一方で $CaO/SiO_2 = 2.0, 2.5$ では還元時に溶融せず、気孔が維持されて還元が促進される。すなわち、焼結鉱に CaO を添加すると還元が促進されて軟化溶融温度が上昇するとともに、炉内の通気性が向上することを明らかにしている。

第 3 章では、含マグネタイト微粉鉱石の水素還元挙動を検討している。試料重量、ガス流量を変化させて還元実験を行い、所定の還元率達成までの時間と試料質量/ガス流量比の間には直線関係があり、この直線の切片から還元速度を評価できることを明らかにしている。含マグネタイト微粉鉱石には Fe_2O_3 と Fe_3O_4 が混在しており、Fe_2O_3 主体の粒子では気孔を生成して水素還元が継続するが、Fe_3O_4 主体の粒子では気孔は形成せず、還元が停滞することを示している。

第 4 章では鉄鉱石とスクラップとを原料とするプロセスに着目し、溶銑中に共存する、各鉄源に由来する不純物元素間の相互作用を考慮して、溶銑およびスラグ組成を熱力学的に解析するモデルを提案するとともに、溶銑組成におよぼす温度、酸素分圧、鉄源中のスクラップ割合の影響を解析している。スクラップを鉄源とすることにより、鉱石由来の不純物濃度の低減、スラグ原単位の低減、コークス原単位の低減等が期待できるので、SiO_2 や P 濃度が高い低品位鉱石の利用に際してはスクラップの混合が効果的であると述べている。

第 5 章では Mn と Cu 間の熱力学的相互作用を第 4 章で作成したモデルに組み込むことで、スラグ/メタル間反応での Mn の平衡におよぼす Cu の影響を検討している。Fe-Ag 相間での Mn と Cu の分配平衡から 1873 K の溶鉄中における Cu と Mn 間の相互作用係数を得ている。この相互作用係数の値は負であるため、Cu が混入すると Mn は活量が低下して溶銑中へ還元されやすくなることを示している。

第 6 章では鉄鋼スクラップに含まれる Cu の除去原理として、溶銑中の Cu を温度勾配の付与によって γ-Fe(s)相、Ag 相を介して酸化除去する多相スルー精錬を新たな提案している。本原理の実現を目指して Fe-Cu-C 合金および Ag を温度勾配下に保持して Cu の分配実験を行い、共存する相関係、Cu の分配挙動を調査している。温度勾配の制御によって Fe-C(l)相、γ-Fe(s)相、Ag(l)相の 3 相の共存状態を実現できることを示している。このとき、時間とともに Fe-C(l)相中の Cu が γ-Fe(s)相を介して Ag(l)相中に移動することを明らかにした。このとき、γ-Fe(s)相中の Cu の拡散が律速段階で、Ag 相中の Cu 濃度の上昇速度から適切な O_2 の供給速度を得ている。

第 7 章は本研究の成果を総括するとともに、製鉄プロセスからの脱炭素化への将来展望について述べている。

以上のように、本論文は鉄鋼業の脱炭素化を推進するために必要な要素技術を学術的な根拠とともに提案しており、材料学の発展に寄与している。よって本論文は博士論文として価値あるものと認める。