

氏名	やまもと てつや 山本 哲也
授与学位	博士(工学)
学位授与年月日	平成24年3月27日
学位授与の根拠法規	学位規則第4条第1項
研究科, 専攻の名称	東北大学大学院工学研究科(博士課程) 金属フロンティア工学専攻
学位論文題目	反応性と構造制御による鉄鋼プロセスでの炭素の高効率利用に関する研究
指導教員	東北大学教授 有山 達郎
論文審査委員	主査 東北大学教授 有山 達郎 東北大学教授 長坂 徹也 東北大学教授 北村 信也

## 論文内容要旨

地球環境問題を背景として、CO<sub>2</sub>排出量の削減が求められているが、鉄鋼プロセスは、石炭ベースのエネルギー多消費型のプロセスであるため、CO<sub>2</sub>排出量の削減のためには、使用する炭素の利用効率を高めることが必須となっている。また、鉄鋼製造プロセスの主要な原料である鉄鉱石と石炭は、そのいずれにおいても、良質な原料の資源量が限られているため、近年の鉄鋼生産量の増大を背景に、劣質原料、すなわち、多孔質な高結晶水鉄石や非微粘結炭の使用量増大が求められている。さらに、鉄鋼製造の基幹プロセスであるコークス炉では設備の老朽化が著しく進行しており、新設炉の建設が必要となっているが、莫大な設備投資および環境対策が必要であるため、製造時の負荷を軽減しつつ既設のコークス炉を使用していくことが重要となっている。

上述のような背景の下、一貫製鉄所内の約7割のCO<sub>2</sub>を排出している製鉄工程においては、劣質な原料の使用量を増大させ、既設コークス炉の負荷を低減しつつ、その根幹をなす高炉での炭素使用量(還元材比)を低減することが求められており、これらの困難な問題を同時に解決できる技術の開発が必要となっている。

従来の研究から、高炉内の熱保存帯温度を低温化することや還元鉄を使用することにより、高炉内での鉄酸化物(ウスタイト)の還元平衡点を制御することが、高炉での還元材比低減のために有効であることが示されてきた。しかしながら、熱保存帯温度を低温化するための具体的な手段については、様々な試みが行われているものの、まだ統一的な見解が見出されておらず、炭材削減効果まで踏み込んだ研究は少ない。

そこで、本研究の視点として、高炉内の熱保存帯温度の低下を達成するため、およびプロセスの生産性改善のために、製鉄工程で使用する炭材の高反応性化について検討した。特に、高炉で使用する炭材の反応性は、装入原料として使用するコークス等の塊原料それぞれの反応性およびその高炉内への装入方法、すなわち、高炉での層構造により影響され、マクロな塊原料の反応性は、その気孔構造と基質と呼ばれる炭素質の反応性に影響を受ける。さらに、基質は、その炭素構造と触媒の影響により反応性が決まる。したがって、製鉄工程で使用する炭材の反応性と炭素構造、気孔構造および高炉内での層構造といった構造制御により、最終的に高炉

での炭材の反応性を改善する技術について検討した。

さらに、資源対応力強化の観点から、室炉コークスの製造において、従来原料である粘結炭に比べて溶解性に劣る石炭に含まれる非溶解組織（セミフジニット）を活用し、非溶解組織と溶解組織との界面での整合性を維持しつつ微細気孔量を増大させることで高強度・高反応性コークスを製造する技術について検討した。還元鉄製造プロセスの開発では、高炉使用時のような強度制約にとらわれない炭材、すなわち一般炭などの広範囲の炭材についてその使用を検討し、鉄鉱石についても多孔質で結晶水を多量に含む劣質な鉄鉱石の使用について検討を行った。これらの検討に加えて、新しい高炉用原料の開発では、製造プロセスの適正化により非微粘結炭を多量に使用する技術について検討した。

すなわち、本研究では、高炉での炭材の反応性および構造制御により還元材比を低減するために、劣質な鉄鉱石や石炭を多量に使用し、既設コークス炉の負荷を低減しつつ、現在操業中の高炉にも適用可能な技術として、装入原料の品質改善技術およびこれらの課題解決に適した新しい高炉用原料の開発の観点から研究開発を行った。

本論文は、全7章から構成されている。

第1章は、序論であり、本論文の検討の背景および目的について整理し、関連する既往の研究について概括した。

第2章は、室炉コークスの高強度・高反応性化のために従来あまり検討されていない、コークスの表面破壊強度に及ぼす気孔構造の影響を、気孔のサイズにより表面破壊強度に及ぼす影響が異なるとしたモデルにより解析し、その粉化メカニズムを明らかにした。さらに、CO<sub>2</sub>反応前後での引張強度に及ぼす影響についても検討した。室炉コークスの表面破壊強度および反応前後での引張強度に及ぼす気孔構造の影響を定量化した結果、100 μm以上の粗大な気孔量が増加することで、これらの強度が低下することを見出した。さらに、非溶解組織であるセミフジニットを多く含む石炭を多量に配合することで、1 μm以下の微細気孔を多く含むコークスを製造でき、CO<sub>2</sub>反応後でも粗大な欠陥を発生しにくいことを明らかにした。

第3章は、老朽コークス炉において高強度・高反応性コークスを製造するための課題であるコークス押出時の炉壁破孔を防止するため、離散要素法による計算により、コークス炉の炉壁レンガの損傷メカニズムについて検討した。レンガの変形挙動の解析により、炉壁レンガの損傷状態（レンガ間を連結している接続部（ダボ）の健全性、炉壁レンガの損耗量、レンガの亀裂幅）とその耐荷重限界について定量的に影響を評価し、コークス炉を延命させるための炉壁レンガの補修方法について提案し、老朽コークス炉での炉壁の健全化に寄与した。

第4章は、高炉用原料として還元鉄を製造するための基礎検討として、回転炉床炉内で鉄鉱石炭材混合粉を加熱・還元するプロセスを想定し、鉄鉱石炭材混合粉の還元特性について検討した。鉄鉱石種およびその粒径、炭材の反応性および粒径により還元速度は大きく異なることを実験で確認し、混合粉の還元速度を定式化し、還元速度推定モデルを構築した。さらに、プロセスの生産性を改善できる原料条件を提示した。

第5章および第6章は、新しい高炉用原料であり、従来の炭材に比べて著しく反応性の高い塊原料である Carbon Iron Composite（以下、CICと記す）を提案、検討した。

第5章では、高炉を想定した場合のCICの反応挙動を室炉コークスと比較して系統的に調査した。CICの製造では、ブリケット化による圧密効果と自由度の高いヒートパターン制御により非微粘結炭および鉄鉱石を多量に使用でき、その反応性は室炉コークスに比べて顕著に高いことを実験により明らかにした。また、高炉内を想定したシミュレーションで、反応後の劣化挙動について推定し、室炉コークスを全量使用した場合に比べて、CIC100kg/tの使用では、室炉コークスの反応が抑制されるため、室炉コークスとCICの平均強度では、ほぼ同程度の強度低下になることを示し、高炉での新しいCICの使用方法について提案した。さらに、高炉でCICを使用した場合での製鉄工程におけるCO<sub>2</sub>排出低減の効果を推定した。

第6章では、CICの高反応性化について原料性状の観点から検討した。従来の焼結プロセスでは、多量に使用することができなかつた多孔質のリモナイト鉱石であり、0.1μm以下の微細な気孔を多く含む鉄鉱石を原料として使用することで、CICを高反応性化することができることを見出した。製造条件によっては、反応率一定で比較した場合、室炉コークスとほぼ同等の反応後強度を示すCICが製造できることを明らかにした。

最後に、第7章では、全体を総括した。

これらの検討の結果、石炭および鉄鉱石資源の観点からは、第2章で示した1μm以下の微細な気孔を多く含む高強度・高反応性コークスの製造において、従来使用されている粘結炭に比べて劣質な、セミフジニットを多く含む石炭を配合炭中の60~70%と多量に使用できることを示し、第4章で示した回転炉床炉での還元鉄の製造では、鉄鉱石として多孔質リモナイト鉱石が使用でき、炭材としてコークス製造プロセスでは使用できない一般炭や木炭などのバイオマスが使用できることを示した。さらに、第5章および第6章で示したCICの製造では、鉄鉱石として多孔質リモナイト鉱石が使用でき、石炭として劣質な非微粘結炭100%でもCICが製造できることを示した。したがって、これらの開発により、資源制約を一部緩和できる。

また、既設コークス炉の負荷低減の観点からは、第3章で示したように炉壁破孔を起こす炉壁の損傷を優先的に補修することで、コークス炉の健全化および延命を図ることができるとともに、第2章、第4章、第5章および第6章で示したように高炉での室炉コークス使用量を低減させることで既設コークス炉の生産量を低減でき、その負荷が軽減できる。

さらに、上記の検討を基に、高炉用原料として上記の高強度・高反応性コークス、還元鉄およびCIC等の原料を使用した場合での製鉄工程における炭材削減効果を算定、比較した。計算対象は、高炉、熱風炉、コークス炉、焼結機および還元鉄製造プロセスやフェロコークス製造プロセスといった新プロセスとし、フェロコークス使用時の鉄、炭素系のマテリアルフローの変化、関連設備の所要動力（例えば、送風機の動力など）の変化は、全て考慮して検討した。炭材を還元材とする還元鉄を高炉で使用した場合では、その製造時での炭材使用量が多いため、製鉄工程全体での炭材削減効果はあまり多くなく、数%に留まる。一方、室炉コークスとCICを高炉で併用

する条件では、熱保存帯温度の低下を介した炭材削減効果が得られ、より高反応性のCICを使用した条件では、炭材の削減量が約10%と大きく、鉄鋼プロセスで使用する炭素を高効率に利用できることが明らかとなった。この効果は、製鉄工程におけるCO<sub>2</sub>削減効果としても同等となる。

第2章で提案した高強度・高反応性コークスと第5章および第6章で示したCICを併用する方法は、現在の製鉄プロセスでの課題である、1) CO<sub>2</sub>排出量の削減、2) 多孔質な鉄鉱石と非微粘結炭の使用量増大、3) 既設の室炉コークスでの生産負荷低減、を解決するための非常に有効な手段であり、今後、我が国での製鉄プロセスに適用していくことが必要と考えられる。

また、第2章および第3章で示した室炉コークスの高強度・高反応性化およびコークス炉の損傷機構については、多くの知見を提示するとともに、JFEスチール(株)西日本製鉄所の倉敷地区、福山地区のコークス製造プロセスに有効に反映されている。

第4章で示した石炭ベースの還元鉄製造方法(HiQIP法)は、JFEスチール(株)東日本製鉄所の千葉地区で、10t/dのパイロットプラントによりそのプロセス原理を確認するとともに、劣質な鉄鉱石や一般炭が使用でき、資源対応力の強化が可能であることを確認している。

第5章および第6章で示したCIC製造プロセスの開発は、JFEスチール(株)東日本製鉄所の京浜地区で20t/dのパイロットプラントを建設中である。本研究によってCICの反応挙動やその高炉での使用効果に関する理解は一段と進んだものと判断されるが、特に、その製造プロセスの確立と高炉用原料として使用した場合での高炉操業に及ぼす影響については、未だ不明な点も多く、今後、一層の研究が必要と考えられる。

# 論文審査結果の要旨

鉄鋼プロセスから排出される二酸化炭素は我が国全体の約 14%に達し、その削減は鉄鋼業において最重要課題である。また、現状では主要原料であるコークス用石炭の多くを高価な粘結炭に依存しているために、原料の使用拡大も大きな課題である。本論文は鉄鋼からの二酸化炭素排出の 70%を占める製鉄プロセスにおいて、原料使用の拡充を念頭に置きつつ、炭素の高効率利用によって低炭素化を図ることを目的にした研究から構成されている。現状の製鉄プロセスはコークス炉で石炭を乾留し、製造されたコークスを高炉に投入し、鉄鉱石を還元する。二酸化炭素発生に直結する高炉の所要炭素量は酸化鉄の還元平衡によって主に支配される。その還元平衡温度を低温側に移動制御できれば、還元平衡ガス組成は酸化側に移り、炭素をより高い効率で利用できる。また、外部で炭材を高密度に酸化鉄と接触させることによって高速で金属鉄を製造でき、それを高炉に投入すれば高炉の還元負荷は減り、同じく所要炭素の削減が可能となる。本論文はこれらについて着眼している。

第一に、低炭素化に向け、炭素の多孔質体であるコークスの気孔径分布、基質の反応性を制御することによってコークスの反応性を大きく改善し、低温からコークスのガス化を励起させる新しい提案を行い、その立証に向けた研究を展開している。一般に反応性を上げることは物理的強度を低下させることになるが、本研究では、特に  $1\mu\text{m}$  以下の微細気孔の役割に着目し、低炭素化に向けた望ましい石炭配合、コークスの構造組織について提言を行っている。実際に、その結果を商用プロセスに適用し、一定の成果を創出している。一方、反応性の向上はコークス炉での乾留時に石炭膨張に伴う壁への接触負荷を増大させ、操業トラブルの頻発につながることが多いが、離散要素法を用いた解析によって影響メカニズムを明らかにし、その対応策を体系化している。さらに、コークスの反応性を飛躍的に向上させる方法として、鉄を触媒として用いる新しい概念のフェロコークスの製造、利用を提案し、その最適な使用方法についての新しい研究を実施している。鉄の Redox 反応を活用し、炭素のガス化を励起させるアイデアであるが、そのフェロコークスの高炉使用時の所要炭材比削減効果を高炉の数式モデル、高炉内を模擬したラボ実験にて確認し、従来、十分な知見がなかったフェロコークスの高炉内反応挙動、また炭材削減効果を明確にしている。これらの結果は鉄鋼において二酸化炭素削減策を検討する上で非常に重要な情報である。また、資源問題への対応力強化、二酸化炭素削減の両者を満足できる方法として、還元鉄を溶融させ、スラグの分離までを行う新しい回転炉床プロセスについて、固気還元、溶融還元の進行機構、炭材の消費課程について高温実験に基づく精緻な解析、提案を行っている。そして一般炭の消費メカニズムを明らかにし、鉱石種と炭材の最適な組み合わせなどを実験と理論から系統的にまとめている。最後に、以上の成果を鉄鋼プロセスに適用した際の二酸化炭素削減効果についてシミュレートモデルを駆使して定量的に推算している。フェロコークス使用時には約 10%の二酸化炭素削減につながることを明らかにしている。これら一連の研究は、多くの独創的なアイデアから構成され、鉄鋼の製鉄分野において低炭素化に向けて新しい知見をもたらし、また工業的にも非常に重要な結果ともなっている。

よって、本論文は博士(工学)の学位論文として合格と認める。