

鉄鋼の高温プロセスメタラジー研究の新しい取り組み

大阪大学大学院工学研究科
マテリアル生産科学専攻 教授

竹 内 栄 一

1. はじめに

これまで我国の産業全般を牽引してきたのは「素材」であると言っても過言ではない。その中で鉄鋼は長きにわたって産業の競争力を支え続けている。自動車、造船をはじめ、多方面のユーザーからの厳しい品質の要求や新興国の追い上げに対応するため、鉄鋼材料の基礎から利用加工技術までを含む新商品の開発、製造プロセスの基盤から装置設計までの新技術開発による生産性向上と競争力強化を積み重ね、現在の世界最高水準の技術体系が確立されている。

ところがここに来て、世界的な鉱物資源や化石燃料消費の急速な伸びが資源枯渇や地球温暖化に拍車を掛けており、鉄鋼業にとって今までに無かった厳しい制約となっている。特に原料から鉄鋼素材を製造するプロセスに関しては、最大限の省エネルギー化や低環境エミッション化が要求されている。もっとも、この状況は世界全体の鉄鋼業に共通なものであることは言うまでもなく、その持続的発展が我国の鉄鋼製造技術変革の成否にかかっていると言っても良いかも知れない。

当研究室では、社会資本を維持・強化する上で不可欠とされるベースメタルの代表としての鉄鋼に、これからの新しい社会システム構築に欠かすことのできないレアメタルを加え、新しい製造循環プロセス設計のための基盤研究に取り組んでいる。

本稿では、最初に当研究室の研究領域である「高温プロセスメタラジー」について簡単に触れると共に、幾つかの新しい取り組みをご紹介しますと思う。

2. 高温プロセスメタラジーについて

プロセスメタラジーというターミノロジーは、Metals Hand Book (ASM) に“The science and technology of winning metals from their ores and purifying metals; sometimes referred to as chemical metallurgy. Its two chief branches are extractive metallurgy and refining.”とあるように、高温反応プロセス、特に精錬をはじめとする化学冶金領域の学術を指すもので、1960年代に当時熱力学で世界的に著

名であった Imperial College の Richardson 教授の下に集まった研究者達 (UBC の Brimacombe 教授、McGil の Guthrie 教授、MIT の Szeckely 教授、UMR の Robertson 教授ら) が中心となって熱力学の域にとどまらず、反応速度論、輸送現象論を駆使して高温反応プロセスの定量的な記述を目指した John Percy グループの活動に端を発すると言われている。

その後、彼らはこの領域を凝固プロセスにまで拡大し、熱・物質移動と運動量の移動に代表される輸送現象論と、反応、凝固、変態論とを組み合わせ、プロセスの中で進行する冶金現象のメカニズムを物理モデルや数学モデルを使って表現し、課題解決や最適化に繋げる研究活動を展開した。その手法は今では多くの研究者や技術者に継承され、特に鉄鋼の高温プロセス分野において多くの技術開発に貢献してきた。筆者は、前述の Brimacombe 教授にプロセスメタラジー研究の指導を受けた後、企業において電磁力をアクチュエーターとしてプロセスメタラジーをより能動的なものにしようと製鋼プロセスの反応や凝固の制御に関する研究開発を行ってきた¹⁾。

昨年春から大学にて教育・研究を行う機会を得、反応プロセス工学領域を担当することになった。熱力学を中心に活動している小野英樹准教授、還元や電気化学を専門とする小西宏和助教、プロセス研究が専門の川端弘俊技術専門員と一緒に、新しいプロセスメタラジーの可能性を追求していこうと考えている。これまで高品質・高生産性を目的としプロセス最適化のために行われてきたプロセスやメタラジーの研究について、未だ十分とは言い難いそれぞれの接点の強化を見据えつつ、これからの新しい課題である以下の領域について研究活動を進めたいと思う。

3. 当研究室の研究領域と取り組み例

(1) 劣質原料から CO₂ 排出無しに鉄を取り出す“クリーン”プロセス

2007 年までは約 7 億トンで推移していた世界の粗鋼生産量は、その後急増し 2011 年には 14 億トンに達

している。その大半を中国7億トンが占め、その他EU2億トン、日本・米国各1億トンと続いている。この鉄鋼生産量の異常ともいべき増加は、炭酸ガス排出量の急増、高品位鉄鉱石価格の急騰および枯渇化を引き起こし、資源劣質化への対応、すなわち低品位鉄鉱石の利用技術の開発ならびに炭酸ガス排出削減・エネルギー効率向上技術の開発が製鉄分野の喫緊の課題となっている。

当研究室は、現状の高炉プロセスの先鋭化（国家プロジェクト：革新的製鉄プロセス）や水素ガスの高度利用によるCO₂ガス大幅削減（国家プロジェクト：COURSE50）の研究活動に参加している。今後は、種々のガス種による塊成鉄の還元挙動を、粒子の同化・焼結挙動および気孔構造変化などの微視的解析等により解明し、CO₂排出の少ないクリーン還元プロセスの設計に繋げていきたい。

①被還元性向上因子ならびに水素高効率利用に関する基礎研究

水素による酸化鉄の還元プロセスは古くから模索されているが、安全性や還元に伴う温度低下、強度低下が大きな課題である。また鉄鉱石の水素による還元反応そのものについても未解明の部分が多く、当研究室においても基礎研究を行っている。図1はコークスを含有する酸化鉄ペレットの還元曲線に及ぼすガス中水素含有量の影響を示しているが、10%の水素含有で還元が大きく進み、低温域に限らず高温域においても還元反応が大幅に促進できることが明らかとなった。現在、この水素還元時の被還元体の微視的形態変化に着目しつつ反応の機構解明に向けた研究を行っているところである²⁾。

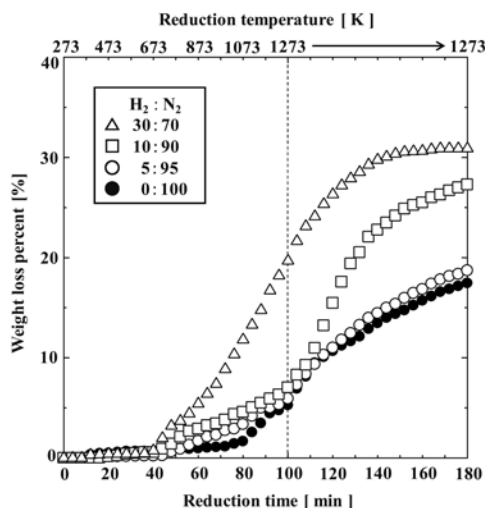


図1 水素添加雰囲気下におけるコークス内装ペレットの質量(還元率に相当)変化²⁾

②劣質鉄石利用における還元反応の研究

劣質鉄石は酸化鉄以外のスラグ成分が多く特にAl₂O₃含有量の増加が問題となる。劣質鉄石は粉碎後に選鉱され、バインダーを加えてペレットやブリケットなどの塊成鉄に成形される。その還元機構は、塊成鉄の組成、構造やガス組成によって異なっている。ここでは、劣質原料の塊成化およびその還元機構についての基礎的解明を行う。図2から鉄石中のAl₂O₃含有量の増加に伴って被還元性が悪化していることが分かる³⁾。その原因は高温域における融液生成が塊成鉄内の気孔を閉塞し還元ガスの拡散道を閉ざすことによるものと説明される。最終的にはこれら知見に基づいた塊成鉄の最適構造の提案を目指している。

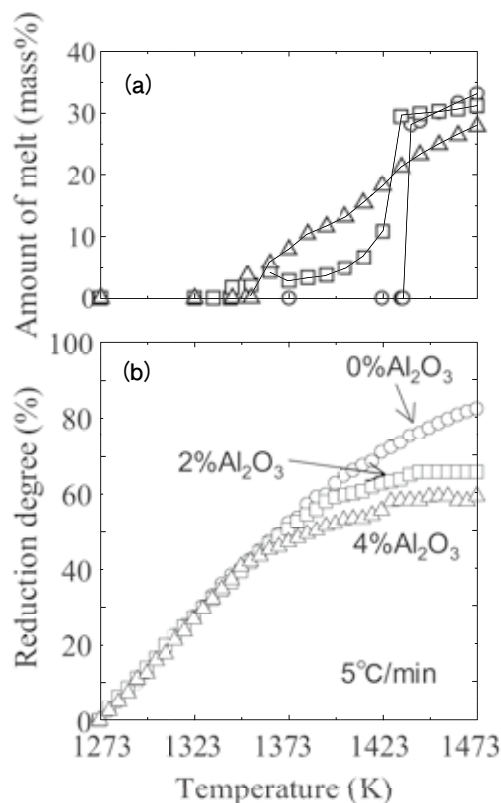


図2 (a)融液生成挙動と(b)被還元性に及ぼすAl₂O₃含有量と温度の影響³⁾

(2) 環境に負荷を与えず高純度の鋼を精錬する“クローズド”プロセス

高純度の鋼を製造することは高品質の鋼材を得る上で不可欠であることは言うまでもない。前述した原料の劣質化が進む中、より効率良く不純物を除去する技術の開発が必要とされている。一方、鋼の精錬には多量のスラグやフラックスが必要であり、現在では粗鋼生産量の約3分の1の量のスラグが使用されているが、すべてが再資源化、再利用されているわけではなく大きな環境負荷となりつつある。より少ないスラグ

ラメーターとはならない可能性も見えている。当研究室ではモールドフラックスフィルムの構造に着目した伝熱解析・撓動解析を通じてこの問題に取り組んでいる。これまで、フラックスフィルムは鋳型側から鋳片表面側に向かって、固相と液相から構成される整然とした層状構造が仮定されているが、鋳造速度や鋳型振動条件と共にフィルムは構造を変え、鋳型内の潤滑や伝熱にも影響を及ぼしているとの視点で、基礎的アプローチを行っている。

②鋳片の内部偏析の生成機構の研究

鋳造速度を増加する際に直面する課題の一つが、バルジングや溶鋼流動によって引き起こされる内部偏析である。V 偏析、逆 V 偏析、中心偏析などは従来、凝固組織形態やロール軽圧下による抑制が試みられているが、精緻な制御や効果の不安定性という課題を抱えている。本研究は低融点合金を用いたシミュレーション実験や計算によってこれらの現象解明のヒントを得ると共に、より安定な解決策に繋げることを目的としている。

(4) 使用済みの鋼材やレアメタル製品を更生する“リニューアル”プロセス

国内において発生する鉄スクラップの量は年々増大している。スクラップを再び鉄に戻し、再利用することで CO₂ 排出量を大幅に削減でき、環境負荷を減らすことが可能である。しかしながらスクラップの中にはトランプエレメントと称される精錬による除去が困難な元素、Cu、Ni、Cr、Sn、Pb、Zn などが存在し、鋼材の特性、製造工程に悪影響を及ぼすため、これら元素の含有量の高いスクラップのリサイクルは限定的なものになっている。当研究室では鋼からの Cu 除去に関する新シーズを見出すと共に、プロセスメタラジを用いた除去技術の構築を行っている。

一方希土類金属は、La、Ce、Nd のような軽希土類元素と Dy、Tb のような重希土類元素とに分けることができるが、後者の永久磁石や磁気記録材料における役割、重要性は年々高まっている。また前者は溶鋼の精錬元素としても注目されている。周知のようにこれらの埋蔵量は世界に偏在すると共に、その価格も急激に上昇しつつある。

当研究室では、希土類金属のリサイクルと共に鋼の製造における希土類金属の有効利用技術に関して研究を行っている。

①スクラップ溶鋼からの Cu 除去に関する研究

鋼中の Cu 濃度は熱間割れをはじめ加工性にも悪影響を与えるため、再使用するにはできる限り低減する必要がある。本研究では図 5 に示す溶融銀を介して溶鋼中の銅を連続的に酸化除去する方法、図 6 に示すようにフラックスを介して酸化、硫化除去するプロセスを提案すると共に、それらの可能性を基礎実験で検証している⁶⁾。更にプロセス化に向け Ag に代わる第 3 元素の探索も行っている。

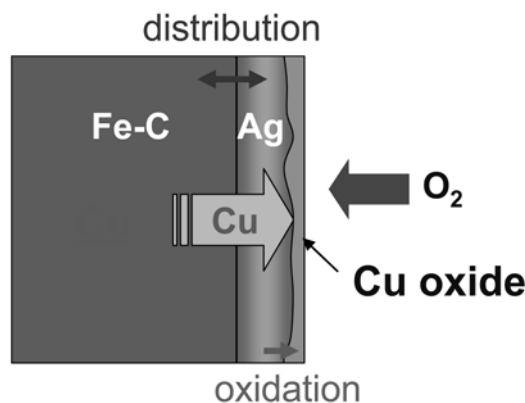


図 5 溶鋼中の Cu を Ag 層を介して連続的に酸化除去するプロセス原理⁶⁾

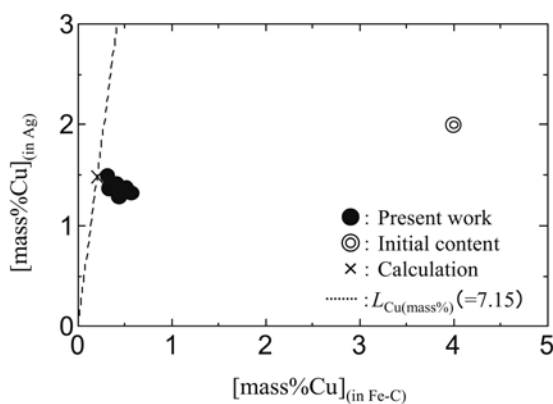


図 6 酸化処理前後の鉄浴中 Cu 濃度と Ag 層中 Cu 濃度の関係⁶⁾

②スクラップ磁石からの希土類金属抽出に関する研究

溶融塩電解および合金隔膜を用いた新プロセスの概念図を図 7 に示す⁷⁾。希土類金属を含有する廃棄物を陽極に使用し、希土類金属を陽極溶解させる。これらにより生成した希土類金属イオンを合金隔膜の陽極室側（陰極として作用する）で還元し、希土類合金を形成させるとともに隔膜中を拡散させる。最終的に、陰極室中の希土類金属イオンを陰極上で希土類金属単体または鉄等との合金として析出させる。このプロセスの特徴は、希土類合金をバイポーラー型電解隔膜に用い、希土類金属イオンを選択的に透過させることであ

る。研究の第一歩として Dy と La がいずれも合金を形成する条件、すなわち DyCl_3 と LaCl_3 をいずれも 0.50mol% 添加した系において、Ni 電極を用いて 0.48V で 2 時間の定電位電解を行ったところ DyNi_2 の合金相のみが観察され、La-Ni 合金に帰属されるピークは見られなかった。また断面 SEM 観察したところ、図

8 に示すように密着性の良い 100 μm 程度の薄膜が形成しており、EPMA による深さ方向のライン分析の結果からも薄膜が主に Ni と Dy から構成されていることが確認された⁷⁾。これらの結果から、少なくとも Dy と La に関しては合金を形成する段階で一定の分離が可能と判断している。

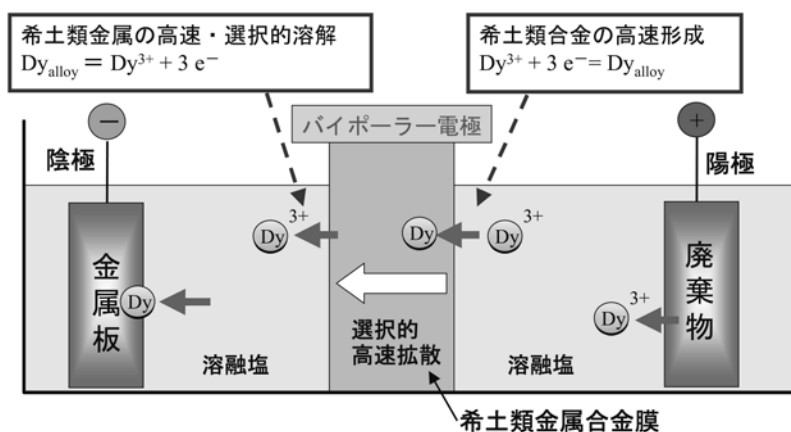


図7 溶融塩および合金隔膜を用いた希土類金属分離・回収プロセスの原理図⁷⁾

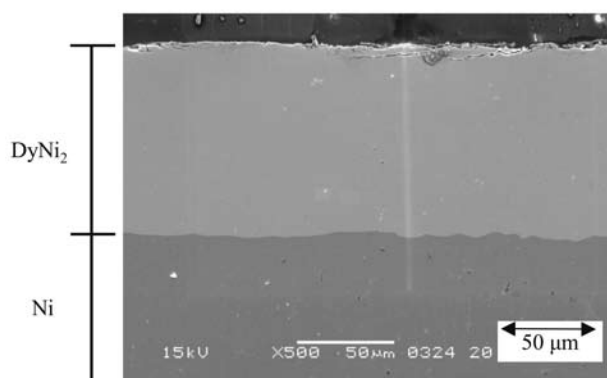


図8 溶融 $\text{LiCl-KCl-DyCl}_3\text{-LaCl}_3$ 中において Ni 電極上に析出した Dy 層 (0.48V、723K)⁷⁾

4. おわりに

世界的に進行する資源枯渇や地球温暖化の問題に鑑み、鉄鋼が社会資本を支える素材としてのポテンシャルを今後も維持、強化できるかどうかは、よりシンプルでクリーンなプロセスへの変容が鍵であると言える。現段階で完成度の高いレベルにある現在のプロセスを今後の環境に適合できるよう変革を進める上で、新しいプロセスメタラジー研究は大きな役割を果たすと考えている。本稿で紹介させていただいたように、将来の製造循環プロセス設計のための基盤研究に貢献していきたいと考えている。

<参考文献>

1. 竹内栄一；ふえらむ, 10 (2005), p.105.
2. 小西宏和, 市川和平, 碓井健夫, 小野英樹; Journal of JSEM, 10 (2010), p.273.
3. 松田航尚, 小西宏和, 小野英樹, 川端弘俊; 日本鉄鋼協会秋季講演大会ポスターセッション, (2011), 162PS-17.
4. 島中瑛一郎, 川端弘俊, 竹内栄一, 森貞好昭, 藤井英俊, 井口学; CAMP-ISIJ, 17 (2012), p.256.
5. H. Ono and T. Ibuta; ISIJ International, 51 (2011), p. 2012.
6. K. Yamaguchi and H. Ono; ISIJ International, 52 (2012), p.18.
7. 小西宏和, 小野英樹, 野平俊之, 大石哲雄; 溶融塩および高温化学, 54 (2011), p.21.