

平成17年度科学研究費補助金（基盤研究（S））研究状況報告書

ふりがな（ローマ字）		NAGATA KAZUHIRO					
①研究代表者氏名		永田 和宏		②所属研究機関・部局・職 東京工業大学・大学院理工学研究科・教授			
③研究課題名	和文	炭酸ガス排出抑制型低温高酸素ポテンシャル高速新製鉄法の開発					
	英文	Rapid pig iron making for reducing CO ₂ emission under low temperature and high oxygen potential					
④研究経費		平成15年度	平成16年度	平成17年度	平成18年度	平成19年度	総合計
17年度以降は内約額 金額単位：千円		27,800	22,500	9,800	18,300	5,800	84,200
⑤研究組織（研究代表者及び研究分担者）							
氏名		所属研究機関・部局・職		現在の専門		役割分担（研究実施計画に対する分担事項）	
永田 和宏		東京工業大学・大学院理工学研究科・教授		鉄冶金学		新製鉄法の基礎的研究とプロセス開発研究総括	
⑥当初の研究目的（交付申請書に記載した研究目的を簡潔に記入してください。）							
<p>生産プロセスからの炭酸ガス排出量を減少させることは緊急の課題になっている。鉄鋼業では溶鋳炉による銑鉄製造プロセスが最も多量の炭酸ガスを放出している。銑鉄1トン当り消費するコークス量は500kgであるが、理論的には380kgである。この差120kgは溶鋳炉の操業を安定に保つために消費される装置特有の値である。この消費量を少なくする方法は、操業温度を下げることである。</p> <p>本研究では、現在の高炉の製銑温度より約200℃低い1350℃程度の温度で、かつ鉄鋳石が還元する1×10^{-12}気圧という高い酸素分圧下で15分以内に溶融銑鉄を製造する方法を明らかにし、そのプロセスを提案する。</p>							

⑦これまでの研究経過（研究の進捗状況について、必要に応じて図表等を用いながら、具体的に記入してください。）

1. 粉鉱石使用製鉄法“たたら製鉄と角炉”の研究

たたら製鉄法は、砂鉄という粉鉱石を用い、木炭を燃料及び還元剤とした銑鉄製造法である。この方法は、1000年の歴史を持つわが国独特の粉鉱石使用銑鉄製造法であり、世界に唯一商業生産に成功した製造法である。本研究では、特に「角炉」の反応機構を明らかにし、たたら製鉄の特徴を明らかにした。角炉は、明治期に開発され、たたら炉の炉高を1.2mから3mに高くし、耐火レンガを用いて炉の寿命を延ばした炉である。たたら炉は粉鉱石を使用するため、送風は弱くしてその飛散を防止している。角炉では炉高を高くしたため、送風圧が上がり砂鉄の飛散は20%に達している。弱送風のため、高温を得るために2本の羽口を互いに近付け対向配列させている。生産量増大のために対向させた羽口を並べ箱型にした。炉高が1.2mと低いため温度は1350℃程度に低くなり、酸素分圧も 1×10^{-12} 気圧に高くなる。この温度と酸素分圧は酸化鉄を還元するが、脈石となる他の酸化物は還元しない。そのため、Si、Al、Ti、Mnなどの不純物濃度はゼロになり、P、Sは溶鉱炉法の銑鉄より1桁低くなる。粉鉱石は体積に対し表面積が大きいので反応が速く終了する。実際、砂鉄投入後30～40分で銑鉄が生成した。溶鉱炉では鉄鉱石塊や焼結鉱を用いるため、炉高が高くなり、反応時間は6～8時間かかる。たたら製鉄は、いわば低温高酸素ポテンシャル高速製鉄法である。酸化鉄の炭素還元反応は吸熱反応であり、反応を速く進行すると熱供給律速になる。たたら製鉄は大量の木炭を燃焼させてこの熱供給を補っている。

たたら製鉄は、不純物の少ない優秀な鉄を製造する反面、このように燃料多消費型であり、また、粘土で炉体を構築するため、3日3晩で炉を解体しなければならない。したがって、明治期には安い輸入鉄に対抗できなかった。角炉は生産性上昇に成功し、昭和40年まで銑鉄製造を続けた。

2. マイクロ波加熱製鉄法の開発

上記のように粉鉱石を用いた製鉄法は高速であり高効率のプロセスが期待できるが、熱供給が問題となる。たたら製鉄では大量の木炭を燃焼させて（燃料比4～5）これを補っている。溶鉱炉は徐々に反応させている。申請者は、炭材内装ペレットを1350℃に急速加熱するとたたら製鉄と同様に高速高酸素ポテンシャル製鉄が可能であることを示した。現在、反射炉型回転炉によりパイロットプラント(Itm3)が構築されているが、この加熱方式ではペレットを1層に並べるのが限界である。たたら製鉄法の場合も溶鉱炉法の場合も共にガス還元であり、高温ガスにより原料を加熱する。そのため、通風が重要であり、粉体原料は飛散のため取扱が非常に困難になる。そこで、申請者は2.45GHzのマイクロ波により鉄鉱石粉と石炭粉の混合物の急速加熱法を開発した。マイクロ波の吸収は酸化鉄が最も高く原料自身が発熱するので炉壁を加熱する必要はない。また、金属はマイクロ波を反射するので、炉体を鉄板で密閉することによりエネルギーを炉内に閉じ込めることができる。特に、ガスを流す必要がないので通気性を考慮する必要がなく、多様な原料を使用することができる。

本研究では、3kWの加熱により7分半で1370℃に達し、混合粉末500gから330gの熔融銑鉄を得た(図参照)。石灰やバインダー(ベントナイト)は用いていない。炭素濃度はオーステナイトの液相線近傍である。不純物は、炭材内装ペレットを電気炉で急速加熱した場合より少なく、Si 0.0371mass%、Mn 0.0082%、P 0.0231%、S 0.0047%である。特に予備加熱した混合粉体をマイクロ波で加熱した場合は5分で熔融銑鉄が生成し、かつ不純物濃度はさらに低くなる。スラグの生成は少なく、スラグにならない脈石が辺りに散在していた。熔融銑鉄は1350から1370℃に達すると生成するが、その時間はマイクロ波出力と原料の量に依存する。このマイクロ波炉は岐阜県製品技術研究所の設備を借用した。

さらに、生産規模を増大させるため、100kWの搬送型連続マイクロ波炉(高砂工業所有、土岐市)を用いて試験を行った。2kgの混合粉体をセラミックスの箱に入れ蓋をして炉内を通したところ、窒素雰囲気中に酸素ガス5%混入していたにもかかわらず、銑鉄が生成していたが凝集し解け落ちるまでには至らなかった。これは炉の設定の都合で3時間という長時間炉内を通したためである。現在、短時間加熱での実験を準備している。新マイクロ波炉を考案し、現在、特許出願の準備をしている。



3. 鉄鉱石粉と炭材粉の混合体の反応機構解明

1.2kWのマイクロ波炉(平成15年度購入)に熱天秤を設置し、窒素雰囲気下で反応速度を測定している。高温X線回折装置(既設)により混合粉体を機械的にミリングした場合の効果の研究した結果、ミリング時間が長くなるほど酸化鉄の還元開始温度は低下し、反応の活性化エネルギーも低くなることが分った。走査型プローブ顕微鏡(STM)(既設)によるウスタイト(FeO)の表面観察では、表面に一辺3nm程度のメッシュ状の超格子が存在することが分った。

⑧特記事項 (これまでの研究において得られた、独創性・新規性を格段に発展させる結果あるいは可能性、新たな知見、学問的・学術的なインパクト等特記すべき事項があれば記入してください。)

1. 酸化鉄と炭材混合粉体のマイクロ波加熱の特徴

マイクロ波は酸化鉄などには数 10 μ m 程度侵入すると言われている。しかし、本実験では酸化鉄粉体を用いると 10cm も透過し発熱することが分った。マイクロ波は電波の一種なので金属メッシュで容易にシールドできることから考えても、この現象は未解明の問題である。また、酸化物がいかなる機構で発熱するのも未解明である。水分子では分極が発熱の原因であるが、この他に電場と磁気の作用が考えられる。これらの問題は、本プロジェクトで解明する予定である。

2. マイクロ波による酸化鉄と炭材混合粉体内の発熱状況

混合粉体の温度は表面を放射温度計で測定している。熱電対は誘導電流を拾うため使用することができない。粉体自身が発熱するため、内部の温度は表面より高くなっていると予想される。高温顕微鏡による観察では、内部で局所的に発熱が起こっており、局所の反応が終了すると次ぎの場所へ移動する現象が観察された。すなわち、局所で高温が発生するが試料全体の温度はそれ以下の温度になることを示している。試料内でブドワー反応 (CO₂+C→2CO) が起きているので、全体として低い温度で反応が進行することは、CO₂の発生量を増し、炭素の利用効率を上げることになる。さらに、鉄鉱石粉と炭材の接触を良くすることにより還元反応温度を下げることができる。これは混合粉体の密度を大きくすることであり、このことにより発生するCO₂ガスの拡散散逸を遅らせるので粉体内部の酸素分圧を上げることができる。

3. マイクロ波製鉄法のエネルギーバランス

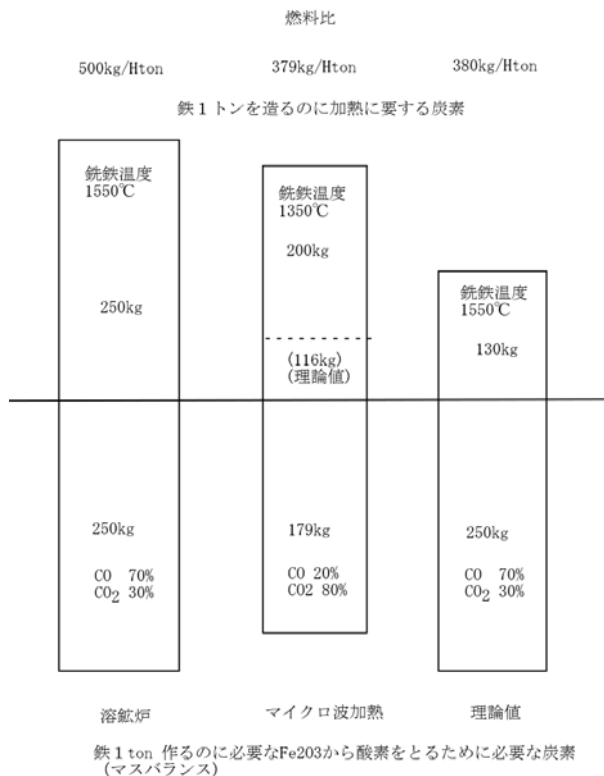
マイクロ波加熱を用いた鉄鉱石粉と炭材粉混合体による鉄製造法は、1350 $^{\circ}$ Cの低温で 10 分程度の短時間、かつ高炭素利用率で鉄を製造できるという可能性を示した。石炭から電気を発生する効率を 42%とし、電気からマイクロ波を発生させる効率を 90%、見かけの還元温度を 600 $^{\circ}$ Cとすると、コークス換算で鉄 1 トンを生成する炭素量は 379kg となり、熔鉄炉法の 500kg と比較すると 100kg 以上の炭素使用量の削減が可能である (図参照)。すなわち、炭酸ガス排出量の抑制が可能である。

4. マイクロ波製鉄法による製造コストの低減

マイクロ波は酸化鉄自身を発熱させるため、炉壁を加熱する必要がない。そのため、操業の開始と停止が随時にできる。したがって、低価格の夜間電力を利用すると鉄製造コストを低減できる。また、15 分という短時間で反応が終了するので、炉の体積を小さくでき、出鉄比を溶鉄炉法の 2.5 t/m³・day より格段に大きくできる。また、鉄中の不純物濃度が低いので、現行の溶鉄予備処理が不要となるばかりでなく、リン濃度が低いので脱炭は転炉でなく炉外製錬で行なえる可能性がある。したがって、鋼の製造コストの低減が図れる。

5. 特許関係

2004 年 9 月 2 日にファン・シャオディにより「マイクロ波による直接金属製造方法」として公表されている (特許公表 2004-526864)。しかし、1994 年に同和鉄粉工業(株)から特許「マイクロ波を利用する鉄粉の製造方法及び装置」が公開されている (特許公開平 6-116616) ので、現在、クレームを申し立てている。今後、製法特許として本研究成果を申請する予定である。



Note: マイクロ波による加熱の計算では、石炭から電気を発生する効率は42%であり、これはコークス換算では64%になる。電気からマイクロ波への転換効率は90%とした。したがって、マイクロ波の発生に要するコークスは58%となる。

⑨研究成果の発表状況 (この研究費による成果の発表に限り、学術誌等に発表した論文(掲載が確定しているものを含む。)の全著者名、論文名、学協会誌名、巻(号)、最初と最後のページ、発表年(西暦)、及び国際会議、学会等における発表状況について記入してください。なお、代表的な論文3件に○を、また研究代表者に下線を付してください。)

- ① 永田和宏、たたら製鉄の発展形態としての銑鉄製錬炉「角炉」の構造、鉄と鋼、90(4),220-227,2004.
2. 永田和宏、「角炉」の鉄滓あるいは砂鉄を用いた製銑反応機構、鉄と鋼、90(4),228-235,2004.
- ③ 永田和宏、非平衡状態を利用した革新的製鉄法と「たたら」、ふえらむ、9(8),549-553,2004.
- ④ T. Murakami and K. Nagata、New Ironmaking Process from the Viewpoint of Carburization and Iron Melting at Low Temperature、Mineral Processing & Extractive Metall. Rev., 24, 253-267, 2003.
5. K. Ishizaki, K. Nagata and T. Hayashi、Low temperature production of pig iron from carbon composite pellets heated by microwave, 5th Japan-Brazil Symp. on dust processing-energy-environment in metallurgical industries, 617-625, September, 2004, Espirito Santo, Brazil,
6. K. Nagata、Rapid Pig Iron Making at Low Temperature and High Oxygen Potential、Scrap Substitutes and Alternative Ironmaking IV、Oct.31-Nov.2, 2004, Baltimore, Md., USA.
7. K. Nagata、Rapid Pig-Iron Making from Iron Ore Powder at Low Temperature、Metal Separation Technologies III、Org. ECI, 87-92, June, 2004, Copper Mountain, Colorado, USA.
8. I. Seki and K. Nagata、In site observation of reduction of iron-oxide mixed with graphite using high temperature X-ray diffractometry、Proc. 3rd Intern. Conf. Sci. & Tech.Ironmaking, Deutshe, 16-20 June, 2003, Dusseldorf, Germany.
9. K. Nagata、Rapid Ironmaking at Lower Temperature and Higher Oxygen Potential、Proc. 3rd Intern. Conf. Sci. & Tech.Ironmaking, Deutshe, 556-562, June, 2003, Dusseldorf, Germany.
10. K. Nagata、T. Murakami and I. Seki、Carburizing and melting of reduced iron with solid carbon、Proc. Sci. & Tech. Innovative Ironmaking for aiming at Energy Half Consumption, 27-28, November, 2003, Tokyo, Japan
11. K. Nagata、Rapid Pig-iron making from carbon-composite pellets at low temperature、Current Advances an Materials and Processes、17(4), 688-691, 2004.
12. 永田和宏、還元鉄の浸炭溶融に及ぼすスラグの影響、材料とプロセス、18(1), 30-33, 2005/04/20
13. 永田和宏、たたら製鉄炉および操業における基本的指針、材料とプロセス、16(1), 234-237, 2003.
14. 関一郎、永田和宏、蒸着炭素による酸化鉄還元の世界論解析、材料とプロセス 17(4), 798, 2004.
15. 石崎幸太郎、永田和宏、林哲郎、マイクロ波加熱による低温・高速新製鉄法の開発、材料とプロセス、17(1), 75, 2004.
16. 石崎幸太郎、永田和宏、林哲郎、マイクロ波加熱による炭材混合酸化鉄粉末からの銑鉄の製造、18(1), 144, 2005.
17. 永田和宏、近世たたら製鉄の歴史、第5、5.1 明治期におけるたたら製鉄の衰退と改良の試み、雀部実、館充、寺島慶一編、分担、202-235、2003、丸善プラネット(株)