

# 「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた技術開発

## 事業原簿 【公開版】

担当部	国立研究開発法人 新エネルギー・産業技術総合開発機 構 環境部
-----	--

# 目次

概要	概要-1
プロジェクト用語集	用語集-1
I. 事業の位置付け・必要性について	
1. 事業の背景・目的・位置づけ	I -1
1. 1 事業の背景	I -1
1. 2 事業の目的・位置づけ	I -2
2. NEDO の関与の必要性・制度への適合性	I -5
2. 1 NEDO が関与することの意義	I -5
2. 2 実施の効果（費用対効果）	I -5
II. 研究開発マネジメントについて	
1. 事業の目標	II -1
2. 事業の計画内容	II -1
2. 1 研究開発の内容	II -1
2. 2 研究開発のスケジュールと費用	II -3
2. 3 研究開発の実施体制	II -5
2. 4 研究開発の運営管理	II -5
2. 4 研究開発の実用化に向けたマネジメントの妥当性	II -6
3. 情勢変化への対応	II -6
III. 研究開発成果について	
1. 事業全体の成果	III -1
2. 研究開発項目毎の成果	III -2
①. 水素還元に関わる技術調査および開発ロードマップの作成	III -2
②. 水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査 および開発ロードマップの作成	III -100
③. 高炉一貫製鉄所における CCU 技術（バイオマス含む）のポテンシャル調査と ロードマップ作成	III -113
④. 全体評価および全体ロードマップの作成	III -113
3. 全体ロードマップ	III -157
4. まとめ	III -159
IV. 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて	
IV. 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて	IV -1
V. 成果一覧	
V. 成果一覧	V -1

(添付資料)

・プロジェクト実施方針

## 概要

		作成日	2022年11月28日
プロジェクト名	「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた技術開発	プロジェクト番号	P 20014
担当推進部／ 担当者	環境部 担当者：春山 博司 主査（2020年6月～2021年3月） 下村 誠 主査（2021年4月～2021年9月） 今井 渉 専門調査員（2021年10月～2022年3月）		
0. 事業の概要	<p>本事業では、カーボンニュートラル製鉄の実現に資する有望な技術（過渡的技術、超革新的技術）について、それぞれの技術の開発課題と必要要素技術を整理するとともに、概念設計に必要となるシミュレーションモデル等の構築や基礎データの収集等の基礎検討を行い、開発課題、ボトルネック課題を基に、ロードマップを作成する。さらに、この結果に基づき2050年までの期間を置き、検討時期、課題、ベンチ規模／パイロット規模／実証開発を明示した全体ロードマップを作成、本事業後の研究開発の位置づけ・目的を明確化する。</p>		
1. 事業の位置付け・必要性について	<p>鉄鋼業のCO<sub>2</sub>排出量は世界全体の約9%、国内全体の約12%を占めており、「革新的環境イノベーション戦略」（2020年1月）においては、「ゼロカーボン・スチール」を実現する水素還元製鉄技術等の超革新技術の開発を進めることが謳われている。</p> <p>以上を踏まえて本事業では、鉄鋼業におけるCO<sub>2</sub>排出量を削減するための超革新的技術および過渡的技術として有望な技術を抽出し、調査や基礎実験・研究等の先導的研究も実施して開発課題やボトルネック課題を明確化し、技術開発ロードマップを作成することにより、本事業後の本格的な研究開発計画の明確化を目的とした。</p>		

2. 研究開発マネジメントについて				
事業の目標	<b>【最終目標】（2021 年度）</b> ・水素還元製鉄の技術開発や実用化における諸課題の抽出等 ・「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた研究開発ロードマップの作成			
事業の計画内容	主な実施事項	2020fy	2021fy	
	①水素還元に関わる技術調査および開発ロードマップの作成	→	→	
	②水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査および開発ロードマップの作成	→	→	
	③高炉一貫製鉄所における CCU 技術（バイオマス含む）のポテンシャル調査とロードマップ作成	→	→	
④全体評価および全体ロードマップの作成	→	→		
事業費推移 (単位：百万円)	会計・勘定	2020fy	2021fy	合計
	一般会計	－	－	－
	特別会計（需給）	89	102	191
	総 NEDO 負担額（委託）	89	102	191
開発体制	経産省担当原課	製造産業局 金属課 金属技術室		
	委託先	日本製鉄株式会社 J F E スチール株式会社 株式会社神戸製鋼所 一般財団法人金属系材料研究開発センター		
情報変化への対応	日本政府による「2050 年カーボンニュートラル宣言」、及び策定された「2050 年カーボンニュートラルに伴うグリーン成長戦略」等の下、「グリーンイノベーション基金事業」が NEDO に創設された。その事業の「製鉄プロセスにおける水素活用」プロジェクトの開発指針として、本事業の成果を活用した。			
評価に関する事項	事後評価	2022 年度 事後評価実施		

<p>3. 研究開発成果について</p>	<p><u>研究開発項目①：水素還元に関わる技術調査および開発ロードマップの作成</u> 還元プロセス（高炉、シャフト炉、流動層）における CO<sub>2</sub> 削減技術に関する技術調査および課題抽出・要素技術の洗い出し、ボトルネック課題にかかわる技術調査、水素還元プロセスの概念設計のための基礎検討を実施し、開発ロードマップを作成した。</p> <p><u>研究開発項目②：水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査および開発ロードマップの作成</u> 水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査および課題抽出・要素技術の洗い出しを実施し、水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関する開発ロードマップを作成した。</p> <p><u>研究開発項目③：高炉一貫製鉄所における CCU 技術（バイオマス含む）のポテンシャル調査とロードマップ作成</u> 高炉一貫製鉄所における CCU 技術のポテンシャル調査を実施し、ロードマップを作成するとともに、排ガスからのメタノール生成に関する調査および基礎検討、バイオマス利用技術動向調査とポテンシャル評価を実施した。</p> <p><u>研究開発項目④：全体評価および全体ロードマップの作成</u> エネルギー・物質収支を考慮したエネルギー簡易モデルを作成し、CO<sub>2</sub> 排出量および製鉄所内のエネルギーバランスの定量評価を実施するとともに、2050 年カーボンニュートラル実現を目標に、還元、溶解精錬、CCU（バイオマスを含む）プロセスを組み合わせた全体ロードマップを作成した。</p> <p>対外発表：「研究発表・講演」7 件、「雑誌・新聞等への掲載」2 件、「その他」1 件</p> <p>特許： 「出願済」1 件</p>
<p>4. 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて</p>	<p>本事業における実用化とは、「ゼロカーボン・スチールの実現に向けて抽出した有望な技術や作成した各技術の開発ロードマップにより、取り組むべき技術開発の位置づけ・目的が明確化されるとともに、その成果が本格的な研究開発事業につながること」であり、本事業の成果は、2021～2030 年の研究開発事業であるグリーンイノベーション基金事業「製鉄プロセスにおける水素活用」プロジェクトに既に活用され、研究開発事業が推進中である。</p>
<p>5. 基本計画に関する事項</p>	<p>策定期間：2020 年度実施方針：2020 年 2 月策定、2020 年 10 月改訂 2021 年度実施方針：2021 年 2 月策定、2021 年 5 月改訂</p>

## プロジェクト用語集

### 用語の定義

- ゼロカーボン・スチール : 製造時の CO<sub>2</sub> 排出量がゼロである鉄鋼。日本鉄鋼連盟が、2018 年の長期温暖化ビジョンにおいて示した最終的な目標概念。
- COURSE50 : 2008 年度より実施されている高炉における水素を活用した還元製鉄法で、CO<sub>2</sub> 排出の抑制と、CO<sub>2</sub> の分離・回収により、製鉄所からの CO<sub>2</sub> 排出量の約 30% 削減を目指す NEDO プロジェクトの略称。技術開発の STEP1 (2008~2012 年度) に引き続き、STEP2 (2013~2017 年度) に取り組んできたもの。このプロセスの実用化検証を進めてくために、「環境調和型プロセス技術の開発／水素還元等プロセス技術の開発 (フェーズ II-STEP1) (2018~2022 年度)」を継続して実施、2022 年 11 月に事業完了。(CO<sub>2</sub> Ultimate Reduction System for Cool Earth 50 Project の略)
- Super COURSE50 : 「COURSE50」を足掛かりとして、更なる水素吹込みにより、高炉からの一層の CO<sub>2</sub> 排出量削減を狙った高炉での水素還元技術。
- カーボンリサイクル高炉 : (CR 高炉) 高炉から排出される CO<sub>2</sub> を、水素を用いてメタンに変換 (メタネーション) し、再び高炉に吹き込むことで高炉の石炭由来還元材と置換し CO<sub>2</sub> 排出量削減を狙った技術。
- 水素還元製鉄法 : 鉄鉱石の還元工程で石炭、コークス、天然ガス等の化石燃料の代替として水素を用いて還元する方法。グリーン水素を使用して作られた鋼は CO<sub>2</sub> 排出量が実質ゼロと見なされるため、「グリーンスチール」や「グリーン鋼材」とも呼ばれる。
- シャフト炉 : 粉鉄鉱石 (酸化鉄) を団子状に加工したペレットを使用し、固体のままシャフト炉中を向流する還元ガスと反応しながら徐々に降下し還元される。現在は還元ガスとして天然ガスを使用した技術が実用化されており、高炉法に比べて CO<sub>2</sub> 排出量を抑制できることが特長。但し、天然ガスを使用した際には、副産物として水と共に一定量の CO<sub>2</sub> が生成される。天然ガスの代わりに水素のみを使用すれば、CO<sub>2</sub> を生成しない、副産物として水だけが発生するプロセスとなる。生成した還元鉄は、鉄鉱石に含まれるけい石や酸化アルミニウム等の脈石分を含んだままの為、電気炉等で溶解し分離して鋼にする。
- 流動層 : 粉鉄鉱石がそのまま流動状態で還元ガスと反応し、固体のまま、連続的に還元鉄に変換される。還元鉄は鉄鉱石中の酸化鉄から酸素が抜けた状態で粉状であることから非常に活性化ため、不活性ガス中で十分冷却したのちに炉から取出す。生成した還元鉄はシャフト炉と同じく、鉄鉱石に含まれるけい石や酸化アルミニウム等を含んだままの為、電気炉等で溶解し分離した上で鋼にする。
- 還元鉄 (DRI) : 鉄鉱石を還元した鉄鋼原料。鉄鉱石の品位 (不純物量) によりその品位も左右される。現在は、スクラップや銑鉄の代替品として、主に電気炉で鉄源として使用される。近年では欧州を中心に CO<sub>2</sub> 削減の観点からの利用拡大が進められている。

スラグ

： 鉱石から金属を溶融して還元・精錬する際などに、特定の成分が溶融・分離して溶融金属浴上に主に酸化物として生成したもの。高炉、転炉、電気炉等で、鉄鉱石から銑鉄、鋼を作り出す還元・精錬段階で生まれるシリカなどの鉄以外の成分が、石灰と溶融・結合した副産物である。

## I. 事業の位置付け・必要性について

### 1. 事業の背景・目的・位置づけ

#### 1. 1 事業の背景

世界全体の CO<sub>2</sub> 排出量における鉄鋼業の割合は約 9%であり、我が国においても国内全体の約 12%を占め、産業部門の中で最大であり、鉄鋼製造プロセスのエネルギー効率を改善することは、CO<sub>2</sub> 起因の地球温暖化を防止していく上で極めて重要である。他方、我が国鉄鋼業は、1970 年代以降、省エネルギー化に徹底的に取り組んだ結果、現在では鉄鋼生産におけるエネルギー効率は世界一である。我が国鉄鋼業は省エネによる CO<sub>2</sub> 排出削減ポテンシャルが小さいことに加え、高炉プロセスにおける炭素による還元では CO<sub>2</sub> 排出が不可避であることから、CO<sub>2</sub> 排出削減のための革新的技術開発が必要である。

これまでも、高炉の最大の特徴である高い生産性とエネルギー効率を維持しながら CO<sub>2</sub> 排出を削減することを目的として、2008 年度より、NEDO の委託事業である「環境調和型プロセス技術の開発」の「水素還元等プロセス技術の開発」(COURSE50)において、高炉からの CO<sub>2</sub> 排出の 30%削減を目標とする革新的な技術開発に取り組んでいるほか、「フェロコックス活用プロセス技術開発」では、フェロコックス利用により CO<sub>2</sub> 排出量の削減を目指す技術開発も行っており、いずれも 2030 年頃の実用化を目指している。

しかし、これらの取り組みだけではパリ協定の長期目標や、その後宣言された 2050 年のカーボンニュートラル実現と整合する CO<sub>2</sub> 排出削減を実現することはできず、それらを超えた超革新的な鉄鋼製造技術が必要である。すなわち、最終的には製鉄プロセスのカーボンニュートラル化を可能とする完全に水素により鉄鉱石還元を行う製鉄技術や製鉄プロセスで発生する CO<sub>2</sub> を分離回収しその CO<sub>2</sub> を原料として有価物を生成するカーボンリサイクル技術 (CCU: Carbon Capture and Utilization)、などの技術開発が必要とされている。

一方、鉄鋼業が将来、製鉄プロセスのカーボンニュートラルを可能とする新プロセスに移行するとしても、社会が必要とする鉄鋼需要量を供給していくためには、それまでの過渡的技術として、現在の高炉法をベースとした鉄鋼製造は不可欠であり、そこでの CO<sub>2</sub> 削減に資する技術開発も並行して複線的に取り組む必要がある。具体的には、COURSE50 の知見を足掛かりとした高炉における更なる水素による還元を増やす技術の開発や、バイオマス利用による化石燃料由来の炭素の代替技術の開発、等の検討も必要である。

超革新的技術、過渡的技術のいずれにおいても、我が国の鉄鋼業に合致した技術開発が必要である。現在、我が国の鉄鋼生産の原料となる鉄鉱石は 100%輸入に依存しており、内 60%はコストや調達リスクの観点から、世界一位の鉄鉱石生産国である豪州から輸入している。しかし、豪州産鉄鉱石は、2030 年以降、鋼材の特性を劣化させるりんの濃度の急激な上昇が予測されている。一方、我が国の鉄鋼業の競争力は、高強度鋼材を始めとした高級鋼の製造によって維持されており、将来にわたりこの豪州産鉄鉱石を主原料として、高級鋼材を製造することを前提としたプロセス開発を目指す必要がある。

この様な認識に基づき本事業を開始したところであるが、その後カーボンニュートラルに向けた各国の取り組みは急激に加速し、我が国でも 2050 年カーボンニュートラルを目指すことを宣言し、これを踏まえ、経済産業省が中心となり、「2050 年カーボンニュートラルに伴うグリーン成

長戦略」が策定され、主な今後の取り組みに水素還元製鉄やグリーンスチールが明記された。さらには NEDO に「グリーンイノベーション基金事業」が創設され、「製鉄プロセスにおける水素活用」プロジェクトの開始が決定した。

## 1. 2 事業の目的・位置づけ

以上の認識を踏まえ、本事業では豪州産鉄鉱石を主原料として、高級鋼材を製造することを前提として、カーボンニュートラル製鉄の実現に向けた超革新的技術および過渡的技術として有望な技術を抽出、「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた 2050 年までの各技術の開発ロードマップを作成し、本事業後の研究開発の方針を明確化することを意図した。これらの成果については上記「製鉄プロセスにおける水素活用」にも知見を活かせるよう作成するとともに、技術開発ロードマップの作成に必要となる調査や基礎実験・研究等の先導的研究も実施して開発課題やボトルネック課題を明確化することを目的した。

具体的には、以下の各技術を対象に検討を行った。

- (1) 先進高炉 1(Super COURSE50)：製鉄所外部水素利用によるさらなる水素還元比率向上
- (2) 先進高炉 2(カーボンリサイクル高炉)：高炉副生ガス中 CO<sub>2</sub> の炭素化合物への変換と高炉への再使用
- (3) シャフト炉：シャフト炉に 100%水素を使用する水素直接還元製鉄法
- (4) 流動層：流動層に 100%水素を使用する水素直接還元製鉄法
- (5) 水素還元鉄の溶解・精錬法
- (6) 高炉一貫製鉄所や水素直接還元法に適用可能な CCU 技術およびバイオマス技術

<政策的位置づけ>

2020年1月に策定された「革新的環境イノベーション戦略」に記載の「水素還元製鉄技術等による「ゼロカーボン・スチール」の実現」を踏まえ、本格的な研究開発事業の開始を見据えて、超革新的技術及び過渡的技術として有望な技術を抽出し、それらの技術開発ロードマップ作成する「「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた技術開発」(本事業)を2020年6月に開始した。

革新的環境イノベーション戦略(2020年1月)

**Ⅲ. 産業**
水素
CC

### 化石資源依存からの脱却（再生可能エネルギー由来の電力や水素の活用）

#### ⑯ 水素還元製鉄技術等による「ゼロカーボン・スチール」の実現

**【目標】**

- 2050年以降のできるだけ早い時期までに、現在の高炉法による鉄鋼製造と同等のコストで「ゼロカーボン・スチール」を実現する水素還元製鉄技術等の超革新技術の開発を行う。実用化には、2050年の水素コスト（プラント引渡しコスト）20円/Nm<sup>3</sup>という目標をさらに下回る水準でCO<sub>2</sub>フリー水素が安定的かつ大量に供給されることが必要。世界のCO<sub>2</sub>削減量は約38億トン。<sup>1)</sup>

**【技術開発】**

- 「ゼロカーボン・スチール」の実現には長期的な研究開発が必要となるため、現行の高炉法における低炭素化、省エネルギー対策も重要となる。そのため、COURSE50やフェロコクス技術の開発を引き続き行い、2030年頃の実用化を目指す。
- COURSE50及びフェロコクスの開発で得られる知見を足掛かりとして、「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた更なる革新技術を検討する。このため更なる革新技術に関するFS事業を実施し、高炉法による水素還元技術の拡大技術（COURSE50技術の拡大）、直接還元法による水素還元製鉄技術、CCUS等の技術開発や実用化における諸課題の抽出等を行う。当該結果を踏まえ、ナショナルプロジェクトによる支援の下に「ゼロカーボン・スチール」を実現する革新技術開発を進める。

**【実施体制】**

- 国際的な競争領域であるため、国内鉄鋼メーカーを中心とした連携により技術開発を進める。

← 要素技術開発フェーズ
← 実用化・実証開発フェーズ →

COURSE50：高炉法による水素還元（所内水素）
← 実証試験
→ 実機化

Super COURSE50：高炉法による水素還元（外部水素）
→ 実機化

← 調査技術開発フェーズ
← 要素技術開発フェーズ
← 実用化・実証開発フェーズ →

水素還元製鉄：高炉を用いない水素還元等
→ ステージゲート（有望な技術の絞り込み）
→ 実機化

CCS：高炉ガス等からのCO<sub>2</sub>回収
→ 実機化

CCU：製鉄所起源CO<sub>2</sub>の有価化

1) NEDO TSCで試算。（CCUSによる削減を含む）

38

出典：「革新的環境イノベーション戦略」(2020年1月)

<国内外の研究開発の動向と比較>

- ヨーロッパは水素直接還元技術の実証・商業化を進め、2030年までに操業開始
- 国内では、先進高炉（COURSE50プロジェクト、フェロコックス）開発を継続してきたが、2020～2021年度に「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた技術開発を実施、2022年1月からグリーンイノベーション基金事業「製鉄プロセスにおける水素活用」が開始
- 2022年度に入り日本高炉3社もカーボンニュートラルにつき以下を発表
  - ・日本製鉄はCO<sub>2</sub>排出実質ゼロの鋼材を新ブランド「NSカーボレックス・ニュートラル」として2023年度上期に発売
  - ・JFEスチールは高炉1基を電気炉に切り替えるなど排出削減を進め、グリーン鋼材としての販売を目指す
  - ・神戸製鋼所はいち早く低CO<sub>2</sub>高炉鋼材「コベナブル・スチール」を販売し、第1号の採用を得た

年代	ヨーロッパ	日本
2009年 ～2020年頃 (リーマンショック後)	<ul style="list-style-type: none"> <li>・資金不足でULCOSプロジェクト中断</li> <li>・CO<sub>2</sub>排出抑制ニーズを受け新プロセスの開発を再開</li> <li>・水素還元：Hybrit、Midrex-H</li> <li>・高炉・電炉+CCU&amp;CCS：Smart Carbonに関連するプロジェクト</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・COURSE50プロジェクトを継続、試験高炉での実験を実施</li> <li>・フェロコックス研究開発を開始</li> <li>・「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた技術開発に係る調査研究開始</li> </ul>
2021年～現在	<ul style="list-style-type: none"> <li>・複数企業がCO<sub>2</sub>削減鋼を2030年までに商業規模での供給開始表明</li> <li>SSAB：水素DRIの2026年投入</li> <li>ティッシン・グループ：2030年に300万ton/年</li> <li>アルセロール・ミタル：2025年に10万ton/年</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・フェロコックス実証フェーズ継続</li> <li>・「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた技術開発をロードマップ化</li> <li>・先進高炉、水素直接還元、電炉を連携させたGI基金事業開始</li> </ul>

ULCOS：The Ultra-Low Carbon Dioxide Steelmaking

## 2. NEDO の関与の必要性・制度への適合性

### 2. 1 NEDO が関与することの意義

鉄鋼業としての抜本的な CO<sub>2</sub> 削減技術の開発は、(1)地球温暖化対策のための中長期的視野、(2)国の CO<sub>2</sub> 削減のための政策として必要性が強く認識されている。一方で合わせて開発及び活用が必要となる CO<sub>2</sub> 分離回収技術も含めて、エネルギー増加を招くため新たな技術との組み合わせが必要となるなど、コスト増の要因となり、民間の開発インセンティブが働きにくい。

加えて、(1)研究開発の難易度が非常に高く、(2)投資規模も非常に大きいことから、(3)開発リスクが非常に大きな分野と位置付けられる。

そこで、民間の能力を活用しつつも NEDO がこれまでに蓄積してきた知識、実績を生かし、資金負担を行うことにより研究開発を推進すべき課題である。

### 2. 2 実施の効果（費用対効果）

プロジェクトの費用総額は 1.91 億円であり、これに対するアウトカムは、水素還元製鉄等による「ゼロカーボン・スチール」の実現による、グリーンスチール市場（※）の獲得への貢献である。

※世界のグリーンスチール市場規模（2050 年時点見込み）：約 5 億トン/年（約 40 兆円/年）

（出典：2050 年カーボンニュートラルに伴うグリーン成長戦略（IEA 推計値を基に平均鉄鋼価格：8 万円/トンとして推算したもの））

## II. 研究開発マネジメントについて

### 1. 事業の目標

最終目標【2021年度】:

- 1) 水素還元製鉄の技術開発や実用化における諸課題の抽出等
- 2) 「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた研究開発ロードマップの作成

目標設定の根拠:

ゼロカーボン・スチール製鉄の実現に向けた本格的な研究開発事業につなぐためには、複線的に有望な技術を抽出し、それらの技術開発ロードマップを作成することにより、本事業後の研究開発の位置づけ・目的を明確化する必要がある

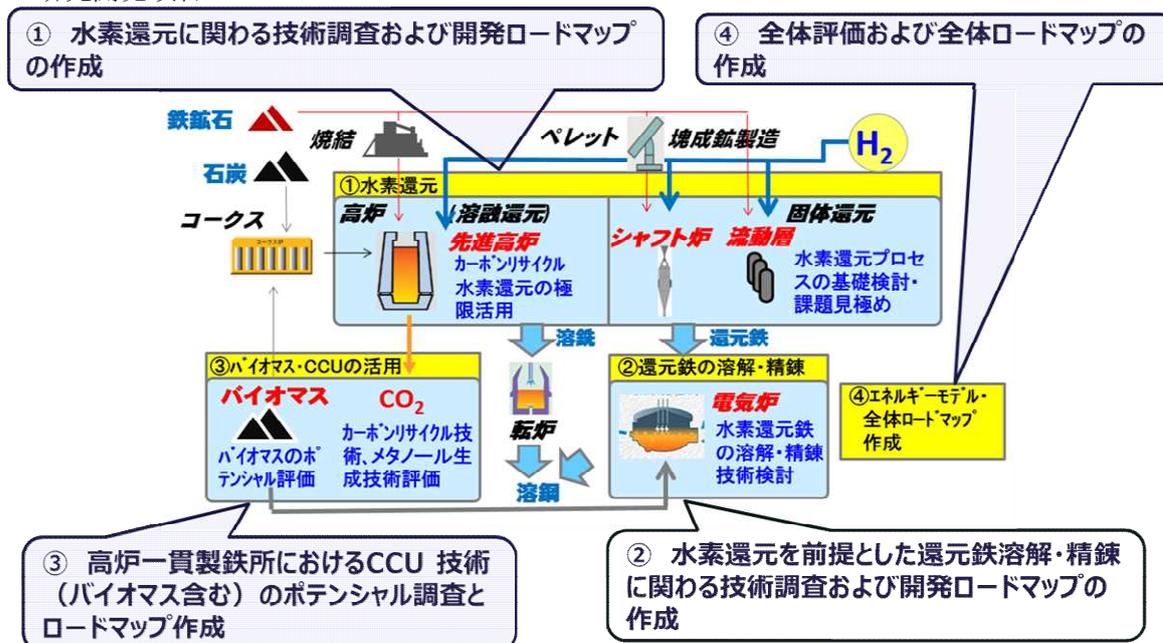
### 2. 事業の計画内容

#### 2. 1 研究開発の内容

上記目標達成のため、以下の研究開発項目①～④を実施した。

- 【研究開発項目①】 水素還元に関わる技術調査および開発ロードマップの作成
- 【研究開発項目②】 水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査および開発ロードマップの作成
- 【研究開発項目③】 高炉一貫製鉄所におけるCCU技術（バイオマス含む）のポテンシャル調査とロードマップ作成
- 【研究開発項目④】 全体評価および全体ロードマップの作成

<研究開発項目>



研究開発項目毎の研究開発テーマについては、以下に示すとおり設定し実施した。

<研究開発テーマ>

① 水素還元に関わる技術調査および開発ロードマップの作成	
①-1.	還元プロセスにおける省CO <sub>2</sub> 技術に関する技術調査と課題抽出・要素技術洗い出し
①-2.	先進高炉に関わる技術調査と開発ロードマップの作成
①-2-1.	先進高炉1(Super Course 50)の概念設計のための基礎検討とロードマップ作成
①-2-2.	先進高炉2(カーボンリサイクル高炉)の概念設計のための基礎検討とロードマップ作成
①-3.	シャフト炉に関わる技術調査と開発ロードマップの作成
①-3-1.	シャフト炉に関するボトルネック課題調査-1 ー鉄鉱石の塊成化技術に関する技術調査
①-3-2.	シャフト炉に関するボトルネック課題調査-2 ーシャフト炉に関する熱流動ボトルネックの解析的調査
①-3-3.	シャフト炉方式の概念設計のための基礎検討とロードマップ作成
①-4.	水素還元流動層プロセスの概念設計のための基礎検討と開発ロードマップの作成
①-4-1.	流動層に関するボトルネック課題調査-1 ー文献調査をベースとするボトルネック課題の抽出
①-4-2.	流動層に関するボトルネック課題調査-2 ー水素還元過程で生成する金属鉄形態と還元諸条件の関係定量化
①-4-3.	流動層に関するボトルネック課題調査-3 ー鉱石種がスティッキング現象に与える影響評価
①-4-4.	流動層方式の概念設計のための基礎検討とロードマップ作成
②. 水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査と開発ロードマップの作成	
②-1.	水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬・品質に関わる技術調査と課題抽出・要素技術洗い出し
②-2.	水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関する 開発ロードマップの作成
③. 高炉一貫製鉄所におけるCCU技術(バイオマス含む)のポテンシャル調査とロードマップ作成	
③-1.	高炉一貫製鉄所におけるCCU技術のポテンシャル調査とロードマップ作成
③-2.	主要要素技術に関わる技術調査: 排ガスからのメタノール生成に関する調査と基礎検討
③-3.	バイオマス利用技術動向調査とポテンシャル評価
④. 全体評価および全体ロードマップの作成	
④-1.	エネルギー・物質収支を考慮したエネルギー簡易モデルの作成と全体評価
④-2.	全体ロードマップの作成

2. 2 研究開発のスケジュールと費用

各研究開発テーマのスケジュールを以下に示す。

<研究開発スケジュール>

事業項目	2020年度				2021年度			
	1Q	2Q	3Q	4Q	1Q	2Q	3Q	4Q
<b>研究開発項目①：水素還元に関わる技術調査および開発ロードマップの作成</b>								
①-1 還元プロセスにおける省CO <sub>2</sub> 技術に関する技術調査および課題抽出・要素技術洗い出し	← 技術調査・課題抽出				→ 深掘り調査とまとめ			
①-2-1 先進高炉1（Super Course 50）の概念設計のための基礎検討とロードマップ作成	← CO <sub>2</sub> 発生量低減効果検討				→ H <sub>2</sub> 還元限界律速因子検討			
①-2-2 先進高炉2（カーボンリサイクル高炉）の概念設計のための基礎検討とロードマップ作成	← 技術調査				→ 開発ロードマップ作成			
①-3-1 シャフト炉に関するボトルネック課題調査-1 -鉄鉱石の塊成化技術に関する技術調査	← 技術調査・課題抽出				→ 深掘り調査とまとめ			
①-3-2 シャフト炉に関するボトルネック課題調査-2 -シャフト炉に関する熱流動ボトルネックの解析的調査	← 数学モデルによる還元・伝熱挙動評価				→ 粒子内還元反応解析			
①-3-3 シャフト炉方式の概念設計のための基礎検討とロードマップ作成	← 熱供給技術検討、還元挙動評価				→ 開発ロードマップ作成 <sub>1</sub>			

事業項目	2020年度				2021年度			
	1Q	2Q	3Q	4Q	1Q	2Q	3Q	4Q
①-4-1 流動層に関するボトルネック課題調査-1 -文献調査をベースとするボトルネック課題の抽出	← 技術調査				→ 適用可能条件の抽出			
①-4-2 流動層に関するボトルネック課題調査-2 -水素還元過程で生成する金属鉄形態と還元諸条件の関係定量化	← 実験的検討				→			
①-4-3 流動層に関するボトルネック課題調査-3 -鉱石種がスティッキング現象に与える影響評価	← 実験的検討				→			
①-4-4 流動層方式の概念設計のための基礎検討とロードマップ作成	← 流動/還元挙動評価				→ 流動/還元挙動評価			
	← ロードマップ予備検討				→ 開発ロードマップ作成			
<b>研究開発項目②：水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査および開発ロードマップの作成</b>								
②-1 水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬・品質に関わる技術調査および課題抽出・要素技術洗い出し	← 技術調査・課題抽出				→ 深掘り調査とまとめ			
②-2 水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関する開発ロードマップの作成	← ロードマップ予備検討				→ ロードマップの作成			

事業項目	2020年度				2021年度			
	1Q	2Q	3Q	4Q	1Q	2Q	3Q	4Q
<b>研究開発項目③</b> ：高炉一貫製鉄所におけるCCU技術（バイオマス含む）のポテンシャル調査とロードマップ作成								
③-1 高炉一貫製鉄所におけるCCU技術のポテンシャル調査およびロードマップ作成	← ポテンシャル調査 →				← ロードマップの作成 →			
③-2 主要要素技術に関わる技術調査：排ガスからのメタノール生成に関する調査および基礎検討	← 技術調査 →				← 実機化への課題抽出 →			
			← 実験・シミュレーション →					
③-3 バイオマス利用技術動向調査とポテンシャル評価	← 技術調査 →				← ポテンシャル評価 →			
<b>研究開発項目④</b> ：全体評価および全体ロードマップの作成								
④-1 エネルギー・物質収支を考慮したエネルギー簡易モデルの作成および全体評価	← 簡易モデル作成→全体評価 →							
④-2 全体ロードマップの作成	← 全体ロードマップの作成 →							

研究開発項目毎の費用推移を以下に示す。

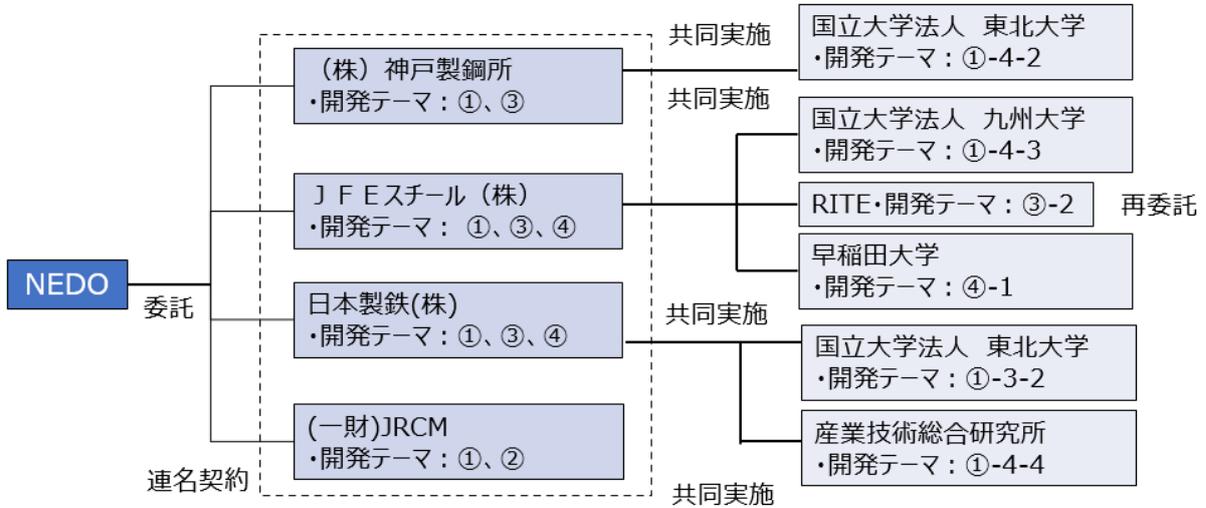
< 研究開発費用 >

開発テーマ	2020年度	2021年度	計
「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた技術開発			
① 水素還元に関わる技術調査および開発ロードマップの作成	56	45	101
② 水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査および開発ロードマップの作成	7	6	13
③ 高炉一貫製鉄所における CCU 技術（バイオマス含む）のポテンシャル調査とロードマップ作成	11	36	47
④ 全体評価および全体ロードマップの作成	15	15	30
計	(89)	(102)	191

(単位：百万円)

## 2. 3 研究開発の実施体制

実施体制は以下に示すとおり、我が国の全高炉メーカーが参画している。



開発テーマ	
①	水素還元に関わる技術調査および開発ロードマップの作成
②	水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査および開発ロードマップの作成
③	高炉一貫製鉄所におけるCCU技術（バイオマス含む）のポテンシャル調査とロードマップ作成
④	全体評価および全体ロードマップの作成

## 2. 4 研究開発の運営管理

事業者毎に、四半期毎の検査時に研究開発の進捗、予算使用の妥当性、正当性を確認することにより運営管理した。

また、下記各種会議にて4事業者による研究開発の進捗を確認・調整・管理した。

### <実施会議>

- ・全体会議（研究開発推進委員会）：開催回数 3（NEDO 参加）
- ・①-3 シャフト炉関連進捗報告会：開催回数 3（2021年1、6月、2022年1月）
- ・①-4 流動層関連進捗報告会：開催回数 3（同上）
- ・②溶解精錬関係進捗関係者議論：開催回数 3（同上）
- ・CCUS 関連デロイト技術調査報告会：開催回数 2
- ・調査外注報告会
- ・技術調査報告会
- ・シャフト炉関連調査報告会

## 2. 5 研究開発成果の実用化に向けたマネジメントの妥当性

### (1) 知的財産権等に関する戦略の妥当性

#### <知的財産権等に関する戦略>

①NEDO 知財方針を踏襲し、知財及びデータの取り扱いについての合意書を締結、知財運営委員会を設置

②先導研究であり、ノウハウの流出や早期公知化の弊害を懸念し対外公表や出願に対しては慎重に判断

#### <知的財産管理>

知財及びデータの取り扱いについての合意書を締結

- ・ 出願手続き等について規定
- ・ 知財権は発明者主義を採用
- ・ プロジェクト実施者間では  
第三者より有利な条件での許諾を明記

## 3. 情勢変化への対応

2020年10月に日本政府による「2050年カーボンニュートラル宣言」がなされたとともに、2021年6月に「2050年カーボンニュートラルに伴うグリーン成長戦略」が策定され、これらを踏まえて「グリーンイノベーション基金事業」がNEDOに創設された。これを受けて、グリーンイノベーション基金事業「製鉄プロセスにおける水素活用」プロジェクトの開発指針として、本事業の成果が活用された。

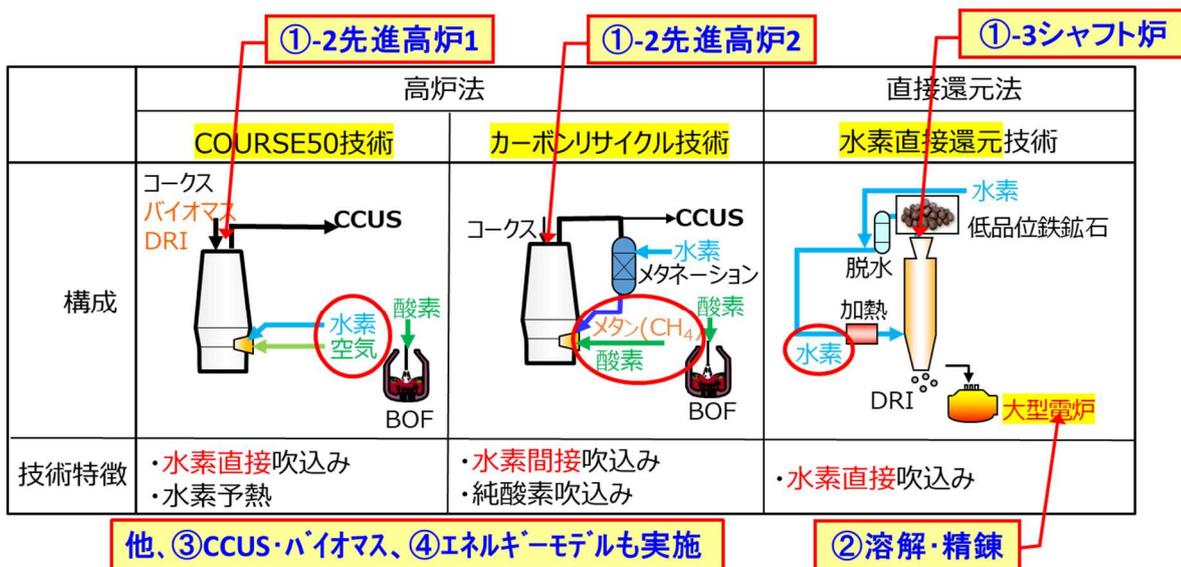
### III. 研究開発成果について

#### 1. 事業全体の成果

本事業では豪州産鉄鉱石を主原料として高級鋼材を製造することを前提として、カーボンニュートラル製鉄の実現に向けた超革新的技術および過渡的技術として有望な以下の技術を抽出、「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた2050年までの各技術の開発ロードマップを作成した。

- (1) 先進高炉1(Super COURSE50)：製鉄所外部水素利用によるさらなる水素還元比率向上
- (2) 先進高炉2(カーボンリサイクル高炉)：高炉副生ガス中CO<sub>2</sub>の炭素化合物への変換と高炉への再使用
- (3) シャフト炉：シャフト炉に100%水素を使用する水素直接還元製鉄法
- (4) 流動層：流動層に100%水素を使用する水素直接還元製鉄法
- (5) 水素還元鉄の溶解・精錬法
- (6) 高炉一貫製鉄所や水素直接還元法に適用可能なCCU技術およびバイオマス技術

各技術の開発ロードマップ作成に必要な調査や基礎実験・研究等の先導的研究も実施して開発課題やボトルネック課題を明確化するとともに、本事業後の研究開発の方針を提示した。これらの成果については下図に示すように2021~2030年の研究開発事業である、グリーンイノベーション基金事業「製鉄プロセスにおける水素活用」プロジェクトにも反映し、活用されている。



図は METI「製鉄プロセスにおける水素活用」プロジェクトに関する研究開発・社会実装計画より転用

図III-1 GI基金「製鉄プロセスにおける水素活用」PJ実施概要と本先導研究検討課題のつながり

## 2. 研究開発項目毎の成果

### ①. 水素還元に関わる技術調査および開発ロードマップの作成

#### ① - 1. 還元プロセスにおける省 CO<sub>2</sub> 技術に関する技術調査および課題抽出・要素技術洗い出し

鉄鉱石の水素還元プロセスの候補としては、高炉法、シャフト炉、流動層が挙げられる。現行の高炉法は石炭をベースとしているが、我が国では水素還元反応比率を上げることで CO<sub>2</sub> 発生量を低減することを目的とした COURSE50 の開発が進められており、得られた知見を足掛かりとした更なる水素還元の拡大技術も期待されるほか、高炉での還元材使用量削減技術は以前から種々の技術が検討されてきた。他方、直接還元鉄の製造については年々生産量が拡大し、2018年に1億t/年を超えるに至った<sup>1)</sup>。その内訳としては天然ガスをベースとしたシャフト炉法の MIDREX 法と HYL/Energiron 法があわせて 80%近くを占め、残る約 20%がロータリーキルン法となっている。シャフト炉の還元ガスを天然ガスから水素へ転換することにより水素還元技術として有望と考えられ、海外での取り組みも始まっている。さらに、流動層については、生産規模は小さいが石炭をベースとした FINEX 法(予備還元)や天然ガスをベースとした Circord 法や Iron Carbide 法などがあり、シャフト炉と同様に天然ガスから水素へ転換する水素還元技術としても有望と考えられる。

一方で、最近の地球環境問題への関心の高まりと、世界各国の CO<sub>2</sub> 排出削減目標、カーボンニュートラル宣言の動きなども反映し、欧州を中心に多様かつ多数の水素還元プロジェクトが推進されている。これらのプロジェクトでは高炉法、シャフト炉、流動層の取り組みが並立しているものの、シャフト炉による直接水素還元プロセスが大きな柱となりつつある。しかしながら、シャフト炉による直接水素還元プロセスでは高鉄分品位、低脈石、低りん濃度の高品位鉄鉱石から製造した高品位のペレットを原料とする前提なのに対して、本プロジェクトでは劣質鉄鉱石の活用を前提としており、最適プロセスの選択や設備仕様の決定などに反映すべき技術課題が顕在化する可能性がある。

そこで水素還元に関わる技術調査として、まず EU 等の製鉄会社の水素還元製鉄取り組み状況についてまとめ、その後高炉法、シャフト炉、流動層について、水素還元に限らず省 CO<sub>2</sub> を目的とした鉄鉱石の還元技術研究開発動向を網羅的に調査分析し、水素還元に適用した際の課題の抽出を行った。

1. EU等の製鉄会社の水素還元製鉄取り組み状況

1. 1 EUにおける水素還元製鉄関連の政策、制度

EUでは各国で温暖化対策が積極的に推進されており、EU全体及び国のカーボンニュートラル（Carbon Neutral、以下CN）に向けた目標が発表されている。これを受け、世界の主要製鉄会社では中期（2030年）、長期（2050年）に向けた温暖化対策が表①-1.1のように公表されている<sup>2)</sup>。

表①-1. 1 主要製鉄会社における温暖化対策目標値<sup>2)</sup>

製鉄会社	世界粗鋼生産における比率（2020年）	中期目標	長期目標
宝鋼集団 China Baowu Group	6.14%	2025年までに排出量絶対値で30%削減 (2023年ピーク比)	2050年までにCN
ArcelorMittal	4.18%	世界:2030年までに排出量絶対値で25%削減 欧州:2030年までに排出量絶対値で35%削減 (2018年基準)	全世界:2050年までにCN
河北鋼鉄集団 HBIS Group	2.33%	2030年までに排出量絶対値で30%削減 (2022年ピーク比)	2050年までにCN
日本製鉄	2.21%	2030年までに排出量絶対値で30%削減	2050年までにCN
POSCO	2.16%	2030年までに排出量絶対値で15% 排出量原単位で30%削減	2050年までにCN
U.S. Steel Corporation	0.62%	2030年までに排出原単位で20%削減 (2018年基準)	2050年までにCN
Thyssenkrupp Steel Europe	0.57%	2030年までに排出量絶対値で30%削減 (2018年基準)	2050年までにCN
Tata Steel Europe	0.54%	2030年までに排出量絶対値で30%~40%削減 (2018年比)	2050年までにCN
Voestalpine	0.38%	発表なし	2050年までに排出量 80%~95%削減
Liberty Steel Group	0.37%	発表なし	2030年までにCN
SSAB	0.23%	スウェーデン: 2025年までに排出量絶対値で25%削減	全世界: 2045年までに 非化石燃料化
Salzgitter	0.21%	発表なし	2050年までにオフセットなしで95%排出量 絶対値95%削減
BlueScope	0.15%	2030年までにGHG排出原単位で12%削減 (2018年基準)	2050年までにNet-zero GHG排出
世界鉄鋼協会 WSA	基本方針のみ（目標値の記載なし） STEEL'S CONTRIBUTION TO A LOW CARBON FUTURE AND CLIMATE RESILIENT SOCIETIES（2019年）		
欧州鉄鋼協会 EUROFER	2050年までにネットゼロ排出経済を目指す EU Industrial StrategyにEUROFERとして署名（2018年11月）		

製鉄プロセスの CO<sub>2</sub> 削減に関する技術開発では、革新的プログラム「CO<sub>2</sub> Breakthrough Program」として各国で実施されており、代表的な技術開発は EU : ULCOS、日本 : COURSE50 となっている。しかし、製鉄プロセスで CN を実現するためには、従来の低炭素化から CO<sub>2</sub> 分離回収・固定化・再利用 (CCU) を経て、脱炭素 (Carbon Direct Avoidance : CDA) へと CO<sub>2</sub> の排出をゼロにする技術に発展、展開することが前提となる。また、CCU、CDA には再生エネルギー電力を利用した Green 水素の使用が基本となっている。CDA を実現するための製鉄プロセスの技術体系が整理されており、水素製鉄が中心の技術と位置付けられ、特に、EU では ULCOS の後継プロジェクトとして、欧州鉄鋼協会 (EUROFER) が炭素使用量を削減する上記の CDA に加えて、他産業との連携も含めた炭素の有効活用 (Smart Carbon Usage : SCU) として各種技術を整理し、各種プロジェクトが計画、実施されている<sup>3)</sup>。

世界全体の粗鋼生産長期見通しに関する IEA の分析では、水素製鉄・CCUS 等を活用する製造工程の CO<sub>2</sub> 排出量が実質ゼロとなる Green Steel の市場が 2050 年時点では約 5 億トンになり、2070 年には生産される鉄鋼のほとんどが Green Steel も置換されることが予想されている<sup>4)</sup>。

EUROFER による EU の鉄鋼生産見通しでは、EU 域内で 2050 年に向けて 1990 年比で 5%、2010 年比で 20% 増加すると予測する成長シナリオで、従来の高炉・電炉製法から New breakthrough technologies と称する、水素直接還元 (H<sub>2</sub>-DR)、高炉-CCU/CCS という新技術により切り替わることが推察されている。

EUROFER は「Green Deal on Steel」という政策提言を 2020 年 10 月に発表し、EU の鉄鋼産業が 2030 年までに 30%、2050 年までに 80~95% という排出削減目標を実現することに向けて行動する中で、国際的な競争力を維持した Green Steel 製品の持続可能な市場を確立することを目指す方針を表明している。本政策提言を元に、EU の他の主要政策と組み合わせて、低 CO<sub>2</sub> 製鉄としての Green Steel の市場導入の本格化を計画しており、EU 域内の他の産業で広く使用できるように、産業全体で水平的、横断的に統合したサプライチェーンを実現することを目指している。また、Green Steel を元に世界の鉄鋼業界を CN に転換するために、EU のリーダーシップを期待している。

以上のように、製鉄プロセスにおける CDA では水素-DR が中心に位置付けられるが、その実現には水素の調達が必要な位置付けとなっている。EU 域内の水素の長期計画については、2020 年 7 月に発表された欧州水素戦略 (A hydrogen strategy for a climate neutral Europe) が基本であり、2050 年までの CO<sub>2</sub> 排出実質ゼロを目指す EU グリーン・ディールの一環として欧州水素戦略を発表し、「水素はカーボンニュートラル実現に不可欠」として利用拡大、投資誘致を強力に進める方針を打ち出している。消費時に CO<sub>2</sub> を排出せず、鉄鋼や化学など CO<sub>2</sub> 排出量の多い産業でも利用可能な水素の導入に向けて、再生可能エネルギーを用いた水の電気分解により生成される「グリーン水素」を中核に据えつつ、2030 年までは移行措置として、CCS による化石燃料由来水素の低炭素化「ブルー水素」も後押しして、水素生産・流通のスケール拡大及びコスト低減を図る狙いとなっている。

EUROFER は低炭素製鉄技術を実現するために、New Breakthrough Program の一環として、「Green Steel for Europe (総称 : GREENSTEEL)」という製鉄プロセスの CN について、2030 年の中期及び 2050 年の長期目標の達成を支援するクリーンな製鉄技術開発プロジェクトを 2020 年より実施中している<sup>5)</sup>。プロジェクト期間は 2020 年 1 月~2021 年 6 月、プロジェクト総額予算 1,247 千€ (約 16.2 億円) であり、プロジェクトコンソーシアムは 10 のパートナー、5 つの作業パッケージで構成され、鉄鋼業界の脱炭素化のための中長期的な計画を策定し、Roadmap を 2021 年 3 月に

発表している。本PJにおける水素-DRの技術開発事例としては、SSAB-HYBRIT（スウェーデン）、ArcelorMittal Hamburg-H2H、Salzgitter-SALCOS、ThyssenKrupp-tkH2Steel（ドイツ）、HYFOR-流動層（オーストリア）が挙げられているが、EU域内の新規なDR製鉄プロジェクト、事業は表①-1.2のように整理されている<sup>6)</sup>。

表①-1.2 EU域内で計画されている新規DRプロジェクト<sup>6)</sup>

製鉄会社	実施場所	最新状況	プロセス/還元材
ArcelorMittal	Hamburg, Germany	実証プラント [DP] (2023)	Midrex/Grey H <sub>2</sub>
	Dunkirk, France	経済性検討 (F/S)	天然ガス
	Taranto, Italy	計画段階	不明
	Eisenhuttenstadt, Germany	パイロットプラント操業開始 (2026)	H <sub>2</sub> (水電気分解 + 天然ガス改質)
	Bremen, Germany	大規模実証プラント操業開始 (2026)	天然ガス⇒ H <sub>2</sub> (水電気分解)
Voestalpine	Leoben (Donawitz), Austria	試運転 (2021-Q2)	HYFOR/H <sub>2</sub>
Salzgitter AG	Salzgitter, Germany	実証プラント 発 (12/2020)	Energiron/天然ガス + H <sub>2</sub>
	Wilhelmshaven, Germany	経済性検討 (F/S)	天然ガス⇒ H <sub>2</sub> (水電気分解)
SSAB	Gällivare-Oxelösund, Sweden	パイロットプラント段階, 生産開始 (2026)	H <sub>2</sub> (水電気分解)
LKAB	Kiruna-Malmberget-Svappavaara, Sweden	第1 DRI プラント Malmberget (2029)	H <sub>2</sub> (水電気分解使用予定)
ThyssenKrupp	Duisburg, Germany	DRI 商業生産開始 (2025)	天然ガス⇒ H <sub>2</sub> (水電気分解)
Liberty Steel	Galati, Romania	DRI Plant 導入予定 (2023-2025)	天然ガス
	Dunkirk, France	経済性検討 (F/S)	H <sub>2</sub> (天然ガス改質 ⇒水電気分解)
H2 Green Steel	Boden-Luleå, Sweden	Large scale production by 2024	H <sub>2</sub> (水電気分解)

## 1. 2 主要製鉄会社における水素還元製鉄の導入状況

### 1.2.1 Thyssenkrupp<sup>7)</sup>

Thyssenkrupp は 2045 年までの CN を目指した気候変動対策を発表しており、2030 年までに自社の生産プロセス、購入エネルギーからの排出量を基準年である 2018 年から 30%削減することを目指している。そのための取り組みとして、2019 年 11 月には高炉で利用する還元材の微粉炭を水素に置き換える高炉への水素吹き込みの部分テスト試験を Hamborn 9B 高炉で実施している。Thyssenkrupp のデュイスブルク (Duisburg) 製鉄所では、高炉から DR プラントへの転換として、DR プロセスで DRI を製造して EAF と組み合わせる計画を、2020 年 8 月に発表した。DR プロセスの規模は 120 万トン/年で、2025 年までにプラントの主要部分を完成させる計画となっている。DR プラント用の水素としては、再生可能エネルギー由来の Green 水素は直ぐには十分な量が得られないため、当初は天然ガスで運転する計画としているが、将来的にはグリーン水素と再生可能エネルギーにより 40 万 t の「Green Steel」を生産することを目指している。

### 1.2.2 Arcelormittal<sup>8)</sup>

ArcelorMittal は 2030 年までに 30%の CO<sub>2</sub> 削減、2050 年までにゼロエミッションを目指しており、2020 年 10 月に、3 万トンの Green Steel の生産を開始し、2021 年は 12 万トン、2022 年は 60 万トンに供給を拡大する将来計画を発表している。この計画では、DRI-EAF および高炉での水素使用を主要な事業としており、DR では Midrex プロセスをベースに還元材を 100%水素とした DRI 大規模製造プラントを Hamburg に建設することを発表している。水素 DR 実証プラントでは、年間約 10 万トンの DRI を生産し、最初の段階では、製鉄所排ガス中の希薄な水素を PSA により回収、使用することや、天然ガスを原料とする水素の使用から始め、最終的にはドイツ北部沿岸の風力発電所などの再生可能エネルギーから製造された水素が適切な価格で入手できるようになれば、Green 水素に切り替えることを想定している。Hamburg H<sub>2</sub>-DR プラントは 2025 年末までに操業を開始する予定であるが、本プロジェクトの総額 1 億 1,000 万€の半分に当たる 5,500 万€をドイツ政府から資金援助を得ている。

### 1.2.3 SSAB<sup>9)</sup>

スウェーデン国内では、製鉄会社 SSAB、鉱石会社 LKAB、電力会社 Vattenfall の 3 社が共同による、水素還元製鉄パイロットプラント事業「HYBRIT (Hydrogen Breakthrough Ironmaking Technology)」の開始を、2020 年 8 月に発表している。この事業では 2018 年 6 月にスウェーデン レオの SSAB 製鉄所内でパイロットプラントの建設を開始し、2020 年から 2024 年に操業試験を実施する計画で、DR の還元用には天然ガスで開始し、その後、再生可能エネルギーを利用した水の電気分解による Green 水素を利用する予定としている (図 9、10)。HYBRIT プロセスの将来構想として、SSAB は Green 水素を使用して各種鉄鉱石を還元し、固体純金属鉄である Sponge Iron を製造する計画であり、Pilot Plant (~2024 年) の後に、実証プラント (100 万トン/年、2023 年建設開始、2025 年操業開始)、商業機に展開することを計画している。HYBRIT と高炉を比較した場合、HYBRIT ではペレットの製造から粗鋼生産までの全体で化石資源フリーのエネルギー源が使用され、CO<sub>2</sub> の排出は黒鉛電極の消費と EAF の熔融工程のみとなるため、CO<sub>2</sub> 排出量は粗鋼 1 トンあたりで高炉の 1,600kg から 25 kg に減少する、と分析されている。

#### **1.2.4 Voestalpine<sup>10)</sup>**

Voestalpine は Siemens、VERBUND（オーストリア大手電力会社）と組んで、「H2FUTURE プロジェクト」を推進している。この水素を利用した製鉄プロセスのパイロットプラントは、オーストリアのドナヴィッツにある voestalpine 製鉄所内に建設されている。プロセス全体のエネルギー効率を高めるために、熱回収システムも含まれている。このプロジェクトでは 2021 年に操業を開始する予定で年間 25,000 トンの鉄鋼生産能力を見込んでいる。H2HUTURE プロセス用には、Linz 製鉄所に設置した PEM 電解プラント（6MW）により、最大 1,200m<sup>3</sup>/時間の Green 水素を製造、供給している。

#### **1.2.5 Salzgitter<sup>11)</sup>**

Salzgitter は製鉄プロセスで使用している化石燃料を再生可能エネルギー由来の水素に置き換えるコンセプトを元に、「SALCOS (Salzgitter Low CO<sub>2</sub> steelmaking) プロジェクト」を実施している（図 12）。EU からの資金援助（第 1 段階で約 13 億€）を得て、VTT、Sunfire（水素製造）と連携し、水素利用 DRI の製造を計画している。Salzgitter における SALCOS の将来計画としては、SALCOS プロジェクトの実施により、現在の製鉄所における CO<sub>2</sub> 排出量を約 30%削減し、2050 年までに全ての高炉を置き換えることで、CO<sub>2</sub> 排出量の 95%以上を削減することを想定している。また、SALCOS プロセスに使用する水素は、再生可能エネルギー由来の Green 水素を前提に、生産、輸送、貯蔵、産業利用までの一貫した水素供給システムを構築し、7 社のコンソーシアムにより 2024 年からの供給開始が予定されている。SALCOS では TENOVA「ENERGIRON」プロセスを DR 実証プラント(μDRAL)として採用し、建設を計画している。μDRAL の公称生産能力は 100 kg/時間であり、水素と天然ガスの併用が可能で、100%水素を含む還元材が変動する可能性を検討できる技術の柔軟性を有している。

#### **1.2.6 H2 Green Steel**

H2 Green Steel はスウェーデン国内に 2020 年設立に設立された新規鉄鋼会社であり、化石燃料を使用しない製造プロセスコンセプトに基づき、スウェーデン北部のボーデン-ルレオ（Boden-Luleå）地域に製鉄所の建設を計画している。この事業所内にはギガ規模の Green 水素製造プラントが含まれており、2024 年に鉄鋼生産を開始し、2030 年までに年間 500 万トンの高品質鋼を生産する予定が報告されている。

#### **1.2.7 LIBERTY Steel**

LIBERTY Steel（英国）は、Paul Wurth、SHS と提携し、フランス ダンケルクの GFG-ALVANCE アルミ製鋼工場の隣に、1GW 容量の水素電解生産ユニットを備えた年産 200 万トンの直接還元鉄（DRI）プラントを建設するプロジェクト計画を 2021 年 2 月に発表した。DRI プラントでは最初は還元材として水素と天然ガスの混合物を使用して DRI と HBI を製造し、水電解製造ユニットが完成後は 100%水素の使用に移行する計画となっている。生産された DRI/HBI は主にフランスの LIBERTY Ascoval の電気アーク炉で使用され、余剰分は LIBERTY の Ostrava と Galati の統合製鉄所、ドイツの SHS グループの Dillinger と Saarstahl の工場で使用される予定である。

#### **1.2.8 中国 河北鋼鉄集団**

中国の製鉄会社である河北鋼鉄集団（HBIS）は、約 4,500 万トンの鉄鋼生産能力を持ち、中国では第 2 位、世界では第 4 位の鉄鋼メーカーである。HBIS は中国初の DRI プラントとして、河北省の自社工場に ENERGIIRON base DRI plant を建設し、2021 年末から年間 60 万トンの高品質な DRI を生産することを 2020 年 11 月に発表した（図 3）。操業に際して、当面は既存コークス炉ガスが 30%、外部からの水素が約 70%の混合ガスを供給し、将来的には水素 100%に切り替えることも想定している。CO<sub>2</sub>排出量は DRI1 トンあたり 250kg と少なく、HBIS の DR プラントは世界で最も環境に優しい DRI プロセスである、と報告されている。

### **1.2.9 中国 建龍集団**

中国鉄鋼大手の建龍重工集団は、グループ会社の蒙古賽思普科技（内モンゴル自治区）の水素還元方式還元鉄工場で、2021 年 4 月 13 日に 156 トン出銑に成功したと発表している。蒙古賽思普の設備は中国製で総投資額は 10 億 9000 万元（約 185 億円）であり、建龍集団の張志祥総裁は「グループが成し遂げた大きな進歩であり、クリーンな生産のためにソリューションを提供する」と抱負を述べたとのことである<sup>12)</sup>。

### **1.2.10 韓国 POSCO**

POSCO は 2020 年 11 月に水素還元製鉄で CO<sub>2</sub> 排出量を画期的に削減し、2050 年までに CN を達成することを宣言している。CN として鉄鉱石より銑鉄を製造する方法は、石炭ではなく再エネ由来の水素を利用する（HrREX）を提唱している。また、水素製鉄に必要な水素サプライチェーンの構築のため、豪州鉄鉱石会社フォーテスキュー・メタルズ・グループ（FMG）と提携して、Green 水素の生産プロジェクトに参加することも計画している。POSCO の水素 DR 設備（HyREX）は、流動還元炉として POSCO 独自の FINEX（微細鉄鉱石還元）プロセスをベースとしており、FINEX では微粉鉄鉱石と石炭は流動還元炉とメルターガス化炉を通過して、溶銑へと転換され、プロセス中に生成された 25%の水素と 75%の CO を還元材として使用されるが、水素 DR（HyREX）では 100%の水素を使用する計画となっている。

## 2. 先進高炉法に関する技術調査

### 2. 1 これまでの高炉関連技術開発

1950 年から 2010 年頃に至る我が国の高炉関連プロセス技術開発の流れと還元材比率の変化を見ると、1972 年頃までの高度成長期には多数の臨海製鉄所が建設されると同時に多数の新技術導入、送風技術の高度化などが進められ、生産性の向上や還元材比の低減につながった<sup>13)</sup>。その結果、還元材比は 500kg 程度に到達したが、その後操業技術の改善などは進められるとともに、還元材の内訳は変化したものの、合計量は大きく変わることなく推移している。還元材の内訳については、1970 年代には国内の稼働高炉全機で重油吹き込みを実施していたが、その後 1973 年、1978 年の石油危機と 1985 年のプラザ合意に伴う円高に伴い合理化や安価原料の使用が強力に進められ、微粉炭などコークス以外の炭材の比率が増加している。1980 年代半ばからは、還元材比の低下は停滞しているものの、コークス比は低下し続けて現在に至るが、このコークス比低下は微粉 (PC) 炭吹き込みによるものである。微粉炭吹き込みは 1982 年に日本製鉄大分で始まり、1995 年頃までは低還元材比操業が主たる技術であったと考えられる。

二酸化炭素排出量削減に関しては、2000 年代に入り国内外で抜本的に削減できるブレークスルー技術の創出を目指して、国内では COURSE50 やフェロコークス、欧州では産官学が一体となった取り組みが行われてきたが、代表的な国内プロジェクトとしては COURSE50、フェロコークス、欧州では ULCOS I,II が挙げられる<sup>13)</sup>。

COURSE50 (CO<sub>2</sub> Ultimate Reduction in Steelmaking Process by Innovative Technology for Cool Earth 50) は 2008 年から開始された我が国の NEDO 支援プロジェクトである。このプロジェクトでは、コークス炉ガスの水蒸気改質により水素を増量させ高炉に吹き込む「高炉水素還元技術」と、高炉炉頂ガスから CO<sub>2</sub> を分離隔離する「CO<sub>2</sub> を分離回収技術」で構成されている。高炉への装入炭素の減少分として 10%、CO<sub>2</sub> 分離隔離によって 20% の総計 30% の CO<sub>2</sub> 削減を目標としている。本プロジェクトでは内容積 12 m<sup>3</sup> の試験高炉が日本製鉄の東日本製鉄所君津内に建設され、2016 年度から試験操業が実施されており、2030 年にはこれらの技術を適用した実機高炉を稼働させる計画となっている。

ULCOS (Ultra low CO<sub>2</sub> Steelmaking) プロジェクトは欧州の 48 の企業や研究所が参加し、RFCS (Research Fund for Coal and Steel) から €59M の資金援助を受け、2050 年を目標に 50% 以上の CO<sub>2</sub> 排出量を削減するという挑戦的な目標を掲げて 2004 年から実施された。検討内容は高炉に係る ULCOS-NBF (ULCOS-New Blast Furnace) の他、HIsarna (石炭ベース溶融還元法)、ULCORED (天然ガスベース直接還元)、ULCOWIN/ULCOLYSIS (電解製鉄) と多岐にわたる。ULCOS-NBF は酸素高炉をベースに炉頂ガスからの PSA による CO<sub>2</sub> 分離と加熱、シャフト下部あるいは羽口部から吹き込む技術であり、スウェーデンの LKAB 試験高炉 (炉内容積 8.2m<sup>3</sup>) で 3 回の試験を実施した結果、最大約 26% の CO<sub>2</sub> 削減効果、下工程の所要エネルギーを考慮したホットコイル基準では約 15% 削減を確認したことが報告されている<sup>14)</sup>。その後、Eisenhüttenstadt 高炉 (ドイツ) で CCS なしの試験、Florange 高炉 (フランス) で CCS と連結した試験が計画されていたが、製鉄所休止などの理由により中断された。

フェロコークスプロセスは低品位の石炭と低品位の鉄鉱石を混合しブリケットに成型後、連続式縦型乾留炉で製造した金属鉄を内装する高反応性コークスとする技術であり、NEDO 支援共同プロジェクト「環境調和型プロセス技術の開発/フェロコークス技術の開発」として開発が進められている。こ

の技術では内装された金属鉄が触媒効果を果たすことによりコークスのガス化反応を加速し、その吸熱効果で炉内温度を下げる。その結果、酸化鉄還元のガス利用率が向上し、低炭素化に繋がるとされる。この事業では西日本製鉄所(福山地区)日産 300 トンの中規模フェロコークス製造設備を建設し、実証試験を実施しており、2023 年頃までに製鉄プロセスにおけるエネルギー消費量と CO<sub>2</sub> 排出量を約 10%削減する技術の確立を目指している<sup>15)</sup>。

## 2. 2 酸素高炉

酸素高炉は 1980 年代から各国で検討されてきた技術であるが、炉頂ガス循環と炉頂ガスからの CO<sub>2</sub> 分離は前述の ULCOS プロジェクトの基幹技術となっており、ここに掲出する。高炉炉頂ガスを循環させる技術、シャフト上部への予熱ガス吹込みなど種々の関連技術、派生技術があるが、ベースとなるのは通常の熱風の代わりに室温の酸素を吹き込む技術であり、窒素フリーのため窒素ガスの加熱に消費していた燃焼熱を排除できることから微粉炭の多量吹込みが可能となり、ガス還元が促進され、生産性の増加が期待できる。さらに、炉頂ガスから CO<sub>2</sub> を除去し、還元能力を高めた上でシャフトあるいは羽口から吹き込むことも提示されている。

現行高炉と酸素高炉の還元機構を比較すると、高炉内還元は CO ガス還元、水素還元、固体炭素による直接還元に分けられ、通常高炉では概ね、各々約 60%、10%、30%の比率であるのに対して、炉頂ガスに CO<sub>2</sub> 分離を施し、未利用の CO を循環利用すれば、ガス還元機能強化によって大きな吸熱反応である直接還元比率が約 10%まで減少し、還元材比を低減できる<sup>16)</sup>。

この技術については、2013-2015 にかけて NEDO「戦略的省エネルギー技術革新プログラム」の一環で基礎研究が行われたが、前述の ULCOS や本プロジェクトで検討したカーボンリサイクル高炉など、発展した形で検討が継続している。

## 2. 3 最近の CO<sub>2</sub> 排出削減取り組み

欧州では前述の ULCOS の中止後、鉄鋼業界の団体である欧州鉄鋼協会 (EUROFER) が長期目標に対する鉄鋼業界側からの見解としてのロードマップ、“Steel Roadmap for a Low Carbon Europe 2050”を 2013 年に公表し、2050 年の長期目標達成への様々な具体的な技術の検討を行っている。さらに、これらの検討を経て 2019 年には LOW CARBON ROADMAP にまとめられたが、この中では脱炭素に向けた技術的な道筋とカテゴリー、具体的なプロジェクト例をまとめ、炭素の高度活用プロセス(SCU : Smart Carbon Usage)と抜本的な脱炭素プロセス (CDA : Carbon Direct Avoidance) とに分類している<sup>3)</sup>。

ここでは、SCU とは炭素を徹底利用技術、炭素循環技術、CCU(+CCS)などを指しており、具体的な技術としては高炉関連では炉頂ガス循環技術(TGR-BF : Top Gas Recycle – Blast Furnace)が示されているほか、Hisarna と呼ぶ熔融還元技術が含まれている。加えて、ArcelorMittal が Ghent に建設中の製鉄所ガスから発酵技術でアルコール類を製造するプロジェクト(Steelanol)や ThyssenKrupp が Duisburg 製鉄所内の研究設備で研究中の鉄鋼と化学工業との産業間連携(Carbon2Chem)など、製鉄業界以外との連携 PJ も示されていることが特徴である。

他方、CDA とは CO<sub>2</sub> フリー水素による水素製鉄法としてのシャフト炉や流動層の他、電解製鉄法などの炭素の使用を回避できる製鉄法を指す。技術内容についてはそれぞれの項に記載する。

高炉関係への水素吹込みに関する情報としては ThyssenKrupp は 2019.11 に Hamburg 製鉄所の

実高炉で 9/28 の羽口で水素吹き込み試験を開始したと発表した<sup>17)</sup>。水素吹き込み量は 11.7kg/t(131Nm<sup>3</sup>)であり、CO<sub>2</sub> 削減 19 %までを試算との情報がある。また、SMS 社の子会社で世界有数の製鉄エンジニアリング企業である Paul Wurth は“Step by Step”と呼ぶ構想を示している。この構想は高炉への COG 吹き込みから開始し、天然ガスによる COG 改質、水素吹き込みに進め、再生可能エネルギー利用もあわせ CO<sub>2</sub> 排出量を 50%以上削減しようという内容である<sup>18)</sup>。このように高炉への水素吹き込み試験の動きはあるものの、SALCOS、HYBRIT、H2FUTURE など欧州の主要プロジェクトでは EU 等の製鉄会社の水素還元製鉄取り組み状況の項で示したように、いずれも既存の高炉・転炉プロセスを順次シャフト炉・電気炉の置き換えるという構想を描いている。

### 3. シャフト炉に関する技術調査

#### 3.1 シャフト炉による直接還元製鉄プロセス、操業諸元及び導入状況

直接還元法（DR：Direct Reduction）は鉄鉱石、鉄鉱石ペレットを還元性ガスで直接還元し、金属鉄を多く含む DRI を製造する還元炉を用いた製鉄法には、シャフト炉、流動層、回転炉床炉（RHF）、Rotary Kiln 等がある。製造した DRI は主に電気炉製鋼用の製鉄原料として使用されているが、高炉一貫製鉄所の省エネルギー（コークス削減）または溶銑の増産を目的に高炉原料としても使用される。還元性ガスは、一般的に使用されている天然ガス以外に、高炉一貫製鉄所で発生する副生ガス、石炭ガス化炉で精製する石炭ガス等の幅広い種類のガスの利用が可能である。DRI のプロセス別還元鉄生産量で、最も割合が多くなっているのが MIDREX：63.5%、Rotary Kiln：20.2%、HYL/ENERGIRON：15.5%（2018 年実績）、その他 0.7%となっている。本項では MIDREX と HYL/ENERGIRON、さらには溶融ガス化炉との組み合わせで開発が行われた COREX について調査結果をまとめる。

#### 3.1.1 MIDREX

Midrex の導入実績を表①-1.3 に示す。Midrex 直接還元プロセスでは、原料鉄源としての鉄鉱石及びペレットをシャフト炉に挿入し、還元ガス中の H<sub>2</sub> と CO によって金属鉄に還元される工程となっている。Midrex プロセス内のリフォーマー（改質器）では、天然ガスとシャフト炉よりリサイクルされる CO<sub>2</sub>・H<sub>2</sub>O からなる排ガスを元に反応・改質させることで、シャフト炉に供給される還元ガスの組成は H<sub>2</sub>:55%、CO:36%（H<sub>2</sub>/CO 比≒1.5）となっている。石炭ガス化等の他の合成ガスを使用した Midrex のプラントでは、H<sub>2</sub>/CO として 0.4～3.5 の範囲で供給されている。

表①-1.3 MIDREX 導入実績<sup>19)</sup>

国・地域	稼働中	休眠中	契約/ 建設中	計
欧州	1			1
米国	1		1	2
カナダ	2			2
中南米	8	3		11
ロシア	3			3
アセアン	1	2		3
インド	7			7
その他	38	2	7	47
中東	31		6	37
アフリカ	7	2	1	10
総計	61	7	8	76

Midrex プロセスで使用している原料鉄源の物理的性状、化学的性状及び還元性状は表①-1.4 のように整理される。Midrex プロセスには、塊状鉄石（Lump Ore）と酸化ペレット（Oxide Pellet）が原料として使用されており、その化学的性質と機械的性質の両方がプロセスと製品に影響を与えている。直接還元プロセスでは鉄鉱石の化学変化は酸素の除去のみであり、原料に含まれる不純物や脈石のほとんどが DRI 製品に含まれるため、化学的性状としては、鉄分はできるだけ高く、脈石の含有量（特にシリカやアルミナなどの酸性脈石成分）はできるだけ低くすることが望ましい。物理的特性は化学的特性より直接還元プロセスに重要であり、安定供給を可能にする一定の形状を保ち、良好な還元性特性を維持するためにハンドリング、輸送、溶融時の劣化や粉塵の発生を防ぐ十分な機械的強度

を持つことが望まれ、篩分析、回転強度（タンブル）・圧縮強度の測定などで評価されている。還元特性としては、特定温度の還元ゾーンにおいて金属化率（%）を達成するために必要な滞留時間により評価され、Lider 反応試験、Hot Lord 試験の装置が使用されている。

表①-1.4 MIDREX プロセス用原料要求特性<sup>20)</sup>

① 化学性状

化学成分	許容範囲(%)	望まれる性状(%)
Fe	66.0 min.	67.0 min.
SiO <sub>2</sub> & Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	3.5 max.	2.0 max.
CaO	2.5 max.	-
MgO	1.0 max.	-
P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	0.03 max.	0.015 max.
S	0.025 max.	0.015 max.
Cu	0.03 max.	0.01 max.
TiO <sub>2</sub>	0.35 max.	0.15 max.

② 物理的性状

物理的性状	塊状鉱石		酸化ペレット	
	許容範囲	要求性状	許容範囲	要求性状
サイズ Nominal 9x16 mm - 5 mm	5x35 mm N/A 8% max.	10x25 mm N/A 5% max.	5x18 mm 85% min. 5% max.	6x16 mm 95% min. 3% max.
回転強度（ドラム強度） + 5 mm - 28 mesh	85% min. 10% max.	90% min. 7% max.	92 min. 6% max.	95% min. 4% max.
圧縮強度 平均値 < 50 kg	N/A N/A	N/A N/A	150kg min. 5% max.	250kg min. 2% max.

③ 還元的性状

還元特性	塊状鉱石		酸化ペレット	
	許容範囲	要求性状	許容範囲	要求性状
Midrex Linder Test (760℃) 金属化率 劣化率 (-3mm)	90% min. 10% max.	92% min. 5% max.	91% min.	
熱負荷試験 (815℃) 回転強度(+3mm) 平均圧縮強度 Clustering	85% min. N/A 0	90% min. N/A 0	5% max.	93% min.

Midrex プロセスの代表的な操業条件を Energyiron プロセスと比較した結果を表①-1.5 に示す。

表①-1.5 Midrex プロセスの代表的な操業条件<sup>21)</sup>

項目	Midrex Process	Energiron Process
反応器	Shaft furnace with	Shaft furnace
原料	Lump ore and/or pellets	Lump ore and/or pellets
還元温度 (°C)	750 - 1000	930 - 1050
還元時間(min)	>360	
天然ガス消費量 (GJ/t-DRI)	9.6	9.4-10
製品	DRI/HBI	DRI/HBI
製品組成 (%)	Fe <sub>tot</sub> 90 - 94 Fe <sub>met</sub> 83 - 90 C 1.0 - 2.5 S 0.001 - 0.003 P 0.005 - 0.09 Gangue 2.8 - 6.0	Fe <sub>tot</sub> 87 - 93 Fe <sub>met</sub> 80 - 88 C 1.5 - 5.5
エネルギー消費量 (GJ/t-	10.4	9.4 - 11.2

### 3.1.2 ENERGIRON

Tenova HYL と Danieli&C が共同で開発した天然ガスベースの DRI 技術で高温 (~1080°C)、高圧 (6~8 気圧) で運転される還元製鉄プロセスが ENERGIRON であり、浸炭が促進され、DRI の炭素含有量は CDRI、HDRI、HBI で約 1.5% から最大 4.5% の範囲で制御することができる。また、他の DRI プロセスと比べて炉内ガス流速が低い (~2.0m/s) ために微鉄粉として集塵機に流出する量が少なく、歩留りが高いといった特徴を有している。このほか、低品位微粉鉄鉱石を鉄源として利用可能である、エネルギー消費量が 60~75kWh/DRI<sub>t</sub> といった点も特徴として挙げられる ENERGIRON 法では、主な燃料として天然ガス改質および、コークス炉ガス、石炭ガス化による合成ガス、炭化水素または再生可能エネルギー源からの水素が利用される。納入実績を表①-1.6、代表的な操業諸元を表①-1.7 に示す。

表①-1.6 ENERGIRON 導入実績<sup>22)</sup>

国・地域	稼働中	休眠中	契約/ 建設中	計
米国	1			1
中南米	5	2	1	8
ロシア	1			1
アセアン		2		2
インド	1			1
その他	6			6
中東	4			4
アフリカ	2			2
総計	14	4	1	19

表①-1.7 ENERGIRON 操業諸元<sup>23)</sup>

Item	Energiron	Other DR technology
原料鉄鉱石(screened)	1.39 t/t (>3.2mm)	>1.4 t/t (>6.3mm)
原料鉄鉱石 (before screening)	1.42 t/t (>3.2mm)	1.45 t/t (>6.3mm)
天然ガス(Gcal/t)	2.25 – 2.38	2.35 – 2.50
Electricity core plant(kWh/t)	60 – 75	95 – 125
消耗品費/メンテナンス費	< \$3.50/t	\$5.00/t
Item	Energiron	Other DR technology
Parameter related to H <sub>2</sub>		
H <sub>2</sub> O/C ratio in NG Reformer	2.0 – 2.5	1.5
H <sub>2</sub> /CO ratio in reducing gas	4 – 5	1.7
%H <sub>2</sub> to reactor (% vol.)	~70%	~55%

### 3.1.3 COREX

COREX プロセスは 1979 年に VoestAlpine と Korf Engineering GmbH が共同で開発した技術であり、直接還元法と還元鉄の溶解機能を組合せた手法で、原理的にはガス還元比率が約 90%と高炉法より高い特徴がある、炉内が 5 気圧程度の溶解ガス化炉に、シャフト型の予備還元炉を組合せた構成で、溶解ガス化炉から発生した還元力の強い一酸化炭素や水素などのガスを予備還元炉に導入し、塊鉄鉱石または鉄鉱石を固体状態でガス還元し、90%以上還元してから溶解ガス化炉で溶解され、鉄鉱石は石灰石とドロマイトの添加剤とともに還元シャフトに直接投入され、これらの原料は還元シャフト内を下降する。COREX プロセスの製品としては溶銑、転炉の原料として使用される。

COREX を元に、Primetals Technologies と POSCO (韓国) によって開発されたプロセスが FINEX プロセスであり、基本的には流動層に該当するが、COREX 法の予備還元炉を流動層に置き換えた構成となっている。3 段の流動層予備還元炉を採用することで、COREX 法では利用できない粉状の鉄鉱石を使用でき、粉鉄と非粘結炭の直接使用による溶銑生産を可能となっている。本プロセスでは、はじめに粉鉄をフラックスとともに流動床炉に装入され、粉鉄は 4 つの反応炉を通過して下方方向に移動し、この時に粉鉄は反応炉で加熱されるとともに、粉鉄に対し逆の炉頂方向に向かって流れている石炭のガス化により生成された還元ガスによって DRI へと還元される。COREX および FINEX の納入実績を表①-1.8 に示す。

表①-1.8 COREX・FINEX 納入実績

国・地域	稼働中	休命中	契約/ 建設中	計
インド	1			1
中国	1	1		2
韓国	3			3
その他	1			1
アフリカ	1			1
総計	6	1		7

表①-1.9に MIDREX、ENERGIRON、COREX および FINEX の形式、原料ガス種、還元温度、代表的な操業条件を示した。現在発表されている直接還元製鉄を元にした EU 域内の新規な DR 製鉄プロジェクト、事業は表①-1.10 のように整理されるが、その大半は欧州鉄鋼協会が推進する GREENSTEEL プロジェクトを含む水素直接還元 (H<sub>2</sub>-DR) であり、多くの企業が 2023 年から 2030 年に掛けて商業生産を開始する計画となっている。

表①-1.9 MIDREX、ENERGIRON、COREX、FINEX のタイプ分類、ガス種、還元温度等操業条件

type		Natural gas		Coal / Cokes	Reduction temperature (°C)	Supply	Raw material	Reaction	Products
		H <sub>2</sub> O reforming	CO <sub>2</sub> reforming						
Shaft furnace	Moving bed	Energiron (HYL-III)	-	-	< 1080	- Natural gas - Coalbed methane - Coke oven gas - Coal gas - Syngas	- Pellet - Lump ore - Low grade ore	Gas reduction	DRI
		-	MIDREX		900	- Natural gas - Coalbed methane - Coke oven gas - Coal gas	- Pellet - Lump ore		
	Fixed bed	HYL-I	-	-	900 - 1000	-	-		
		-	-	Blast furnace	700 - 1550	- Metallurgical coal	-	Gas reduction +C reduction +Smelting reduction	Pig iron
Shaft furnace +Smelting furnace		-	-	COREX	800 - 2000	- Thermal Coal (Used in gasified state that is burned and decomposed.) - Corex - Iron ore (Lump ore) - Pellet			

表①-1.10 各国における省CO<sub>2</sub>・水素還元開発状況

プロジェクト名	国	会社名	プロセス	年間生産量	竣工
Boden	スウェーデン	H2Green Steel	H <sub>2</sub> DR-EAF	5 百万トン(2030まで)	2024 年まで
Dunkerque	フランス	Liberty Steel	H <sub>2</sub> DR-EAF	2百万トン	—
Gent	ベルギー	ArcelorMittal	H <sub>2</sub> DR-EAF	2.5 百万トン	2030 年まで
Gijón	スペイン	ArcelorMittal	H <sub>2</sub> DR-EAF	2.3 百万トン	2025 年まで
H2Hamburg	ドイツ	ArcelorMittal	H <sub>2</sub> DR-EAF	1 百万トン超(2030まで) 当初は0.1 百万トン	2025 年まで
HYBRIT	スウェーデン	SSAB	H <sub>2</sub> DR-EAF	商用規模 (2026まで) 当初は0.01 百万トン(2020開始)	2026 年まで 商用規模
tkH2Steel	ドイツ	ThyssenKrupp	H <sub>2</sub> DR-EAF	3 百万トン(2030 まで) 当初は 0.4 百万トン	2025 年まで

Midrex 及び Energiron では、水素直接還元 (H<sub>2</sub>-DR) への将来構想を検討し公開されている。再生可能エネルギーを利用した水の電気分解から製造される Green H<sub>2</sub> が重要となるため、Midrex 社は水素製造技術を有する Sunfire-Hylink 社に投資しており、この水素製造プロセスを取り込んだ MIDREX H<sub>2</sub> プラントを提示としている。一方、Hydrogen Energiron Process (Energiron H<sub>2</sub>) では、H<sub>2</sub>を還元ガスとすることで、CO の場合に比べて約 5 倍も速い還元反応を確認しており、CO<sub>2</sub>の排出量を最小限に抑えることが可能になる、と報告されている。

### 3. 2 劣質鉄鉱石の水素還元処理

#### 3.2.1 低鉄品位、高脈石濃度鉄鉱石

世界の鉄鉱石市場における輸出量では、約 37%が「高品位 (Fe 含有量 : 63.5%以上)」であり、「中品位 (Fe : 59-63.5%)」が約 44%、残りの 19%が「低品位 (Fe : 59%未満)」となっている。製品鉄鉱石の形態としては、微粉末の比率が高く、次いで塊状 (Lump)、ペレットの順であるが、近年はペレタイジング能力の増強に伴いペレット品の割合が増加傾向にあり、高炉用と DR 用の二種類のペレットが生産されている。鉄鉱石の国際市場取引品のうち 4%は還元製鉄用の DR Grade Pellet であり、市場取引量は 2021 年で 43 百万トンであり、2030 年に向けて 72 百万トンに増加していくことが予想されている。この市場取引品以外に、自社の鉄区内で生産され、DR プラントで処理されている鉄鉱石が存在する。国際市場における DR プラント向け鉄鉱石の生産会社は Vale、LKAB、Canada (IOC、AM) で、形態としては Pellet として提供されている。

Midrex 法では、原料である鉄鉱石 Pellet の鉄含有量の品位に基づき、DR プロセスで生産される

DRI の品質は直線関係（DR における金属化率 90%）となると予測されている<sup>24)</sup>。従って、高品位の DRI 製品を製造するためには、DR Process 向け鉱石 Pellet 原料としては高品位が求められ、製鋼/EAF に供給できる DRI 製品の目標品質として鉄含有量 92%を得るには、原料として約 67%Fe 以上の鉄鉱石 Pellet が必要となる。また、塊鉱石（Lump）や鉱石 Pellet を原料として使用する DRI プラントでは、脈石成分の多い原料を使用する際は、ペレット中の鉄分をさらに高くすることが求められる。

世界市場における標準的な DR Process 用鉱石 Pellet の品質は、表①-1.11 のように整理される<sup>25)</sup>。世界市場で取引される高炉グレードのペレットは鉄含有量が通常 65%以下であるのに対し、DR グレードのペレットは標準仕様として 67%以上の鉄含有量となっており、鉄分が高いほど SiO<sub>2</sub> や Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> などの酸性成分を中心とした脈石が減少している。また、DRI/HBI は O<sub>2</sub> 吹き込みの製鋼炉で直接溶解されるため、酸性の脈石成分が多いと、製鋼炉内のスラグ量が多くなり、スラグへの鉄分の損失が大きくなることが知られている。

表①-1.11 直接還元プロセス用標準原料鉱石性状<sup>25)</sup>

DR-Grade Pellets	Blast Furnace Grade Pellets (参考)	Lump Iron Ore
鉄成分		
Fe total iron > 67%.	Fe total iron 63 - 65%.	Fe total iron > 67%.
酸性成分		
Silica SiO <sub>2</sub> 1.0 - 3.0 Alumina Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 0.2 - 3.0	Silica SiO <sub>2</sub> 2.5 - 5.3 Alumina Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 0.4	Silica SiO <sub>2</sub> 1.0 - 3.0 Alumina Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 0.2 - 3.0
塩基性成分 (CaO+MgO) (SiO <sub>2</sub> +Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )		
Magnesia MgO 0.2 - 0.9 Lime CaO 0.4 - 1.2	Magnesia MgO 0.3 - 1.5 Lime CaO 0.6 - 3.6	Magnesia MgO 0.2 - 0.9 Lime CaO 0.4 - 1.2
粒度分布		
+16 6.8% +12.7 56.7% +9.53 94.3% +9x16 87.5% Large to small size ratio 1.33 +6.73 97.7% +6.73 1.7% -3.36	+16 7.3% +12.7 56.9% +9.53 92.9% +9x16 85.6% Large to small size ratio 1.37 +6.73 96.6% +6.73 2.3% -3.36	+53 0% +37.5 2.4% +31.5 13.2% +25 35.5% +22.5 43.7% +19 58.5% +12.7 85.2% +6.73 96.9% +3.36 98.8% -3.36 1.2%
粉塵発生率は低い	DR-grade Pellet より粉塵発生率が高い	粉塵発生率が高い
Linder Reduction 反応性		
Metallization (%) 96.8 Carbon (%) 1.5	Metallization (%) 95.4 Carbon (%) 1.7	Metallization (%) 96.7 Carbon (%) 1.0

また、DR Grade Pellet における脈石成分の受け入れ基準は、表①-1.12 のように整理されている<sup>26)</sup>。脈石成分を含んだ鉱石の H<sub>2</sub> 高温還元における影響評価として、組成の異なる鉄鉱石を 1,000℃から 1,200℃下で H<sub>2</sub> 還元実験を行ない、還元速度の差を検討する基礎的な研究事例が報告されている。その結果、脈石をほとんど含まない MBR、脈石が単独で存在する Rio Doce は還元速度が速く、脈石がヘマタイト粒子内に存在する Robe River や、脈石が主にヘマタイト粒子の周りに存在している Mt.Newman の還元は遅くなる結果が得られており、この温度域の還元速度の差異は脈石の量や分布状態に関係していると結論付けられている。

表①-1.12 DR Grade 中の脈石成分に関する基準値<sup>26)</sup>

成分	許容範囲
①酸性成分 (SiO <sub>2</sub> +Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	許容範囲<3%、望ましくは<2%
②塩基性成分 (CaO+MgO)	鉄鋼生産用フラックス成分の代替として、<3.0%までが許容

#### 4. 流動層に関する技術調査

省 CO<sub>2</sub> 技術として開発が進められているカーボンニュートラルスチール製造法の代表例として、欧米で開発中のプロセスを表①-1.13 及び表①-1.13 に示す。表①-1.13 に示す水素ガスによる還元鉄製造方法には、粉鉱石を流動層で還元した還元鉄を電気炉で溶解精錬して溶鋼を製造する方法、及び鉄鉱石から製造したペレットをシャフト炉で還元した還元鉄を電気炉で溶解精錬して溶鋼を製造する方法がある。

表①-1.14 には、電気分解製錬による溶鋼製造方法、水素プラズマ溶解による溶鋼製造方法、及びフラッシュアイアンスメルティングによる溶鋼製造方法を示す。

水素ガスによる流動層還元鉄製造方法には Circored と HYFOR がある。Circored は Lurgi が開発したプロセスで CAL が Point Lisas, Trinidad & Tobago で操業した。HYFOR は Primetals がパイロットプラントを Donawitz, Austria に設置して開発中である。

Circored は水素ガスのみを還元ガス成分とする還元鉄製造方法としては唯一実機化されているプロセスである。その生産能力は 50 万 t-HBI/a (65 t-HBI/h) である。ただし、現在は経済的な理由により休止中である。還元反応温度は 630–650 °C で、吸熱反応である水素還元反応において流動層還元炉内の反応温度を維持するために、原料鉄鉱石は 850 °C に予熱される。Circored では鉱石予熱炉及び還元ガス予熱炉の燃料の一部に天然ガスが使用されている。ここで使用されている天然ガスは、プロセスガス（カーボンニュートラル水素）または make-up ガス（カーボンニュートラル水素）に代替可能と考えられるので、流動層によるカーボンニュートラル還元鉄製造方法は実証済みと考えられる。

HYFOR のパイロットプラントは、2021 年 6 月にバッチ操業で 800kg の鉄鉱石を処理して還元鉄を製造した。原料鉄鉱石は 950 °C に予熱されてから流動層還元反応炉に装入されて 750 °C で還元される。原料鉄鉱石の予熱によって、水素還元反応における吸熱反応の熱補償を行い、流動層還元炉内の反応温度を維持している。

表①-1.13 Carbon neutral iron/steelmaking processes in Europe and U.S.A. (1)

	H <sub>2</sub> -based direct reduced iron				
	Fluidized bed		Shaft furnace		
Process name	Circored (idle)	HYFOR	HYBRIT	SALCOS	Arcelor Mittal
Stage	commercial	pilot plant	pilot plant (Demo Plant)	pilot plant	pilot plant
Location	Point Lisas, Trinidad	Donawitz, Austria	Lulea, Sweden	Salzgitter, Germany	Hamburg, Germany
Ore	fine	fine	pellet	pellet	pellet
Product	sponge iron	sponge iron	sponge iron	sponge iron	sponge iron
Productivity	65 t-HBI/h	800 kg-ore (batch operation)	1–2 t-DRI/h (0.5 mil.t- DRI/a)	100 kg-DRI/h	0.1 mil.t- DRI/y
Temp.	630–650 °C	750 °C	≈800 °C	≈800 °C	≈800 °C

表①-1.14 Carbon neutral iron/steelmaking processes in Europe and U.S.A. (2)

	Electrolytic processes			H <sub>2</sub> -based steelmaking	
	Electrolysis		Electrowinning	Plasma direct steel production	Suspension ironmaking
Process name	ULCOLYSIS	MOE	SIDERWIN (ULCOWIN)	SUSTEEL	Flash Ironmaking
Stage	experimental	experimental	small pilot reactor	small pilot reactor	experimental
Location	Metz, France	MIT, Boston, USA	Metz, France	Donawitz, Austria	Univ. Utah, USA
Ore	iron ore (hematite reagent)	iron ore (hematite reagent)	Ultrafine concentrate	raw fine, pellet	Ultrafine concentrate < 100 μ
Product	liquid steel	liquid steel	iron plate	steel	steel
Productivity	n/a	n/a	100 kg-iron plate (batch operation)	50–70 kg-ore (batch operation)	n/a
Temp.	≈1550 °C	≈1550 °C	≈110 °C	≈1500– 1600 °C	unk.

実機化された 1 系列当り 30 万 t/a 以上の流動層還元プロセスの概略を表①-1.15 及び表①-1.16 に示す。天然ガスから製造した還元ガスを使用する天然ガスベースの還元鉄製造プロセスである FINMET、FIOR、Circored、Iron Carbide、HIB の還元ガス中の還元性成分は主に水素ガスであるが、Iron Carbide は還元鉄中に炭化鉄を生成させるプロセスであり還元ガス中にメタンガスを多く含んでいる。実機化された天然ガスベースの流動層還元プロセスの生産能力は 32–66 万 t/a であって、現行シャフト炉の最大生産能力である 250 万 t/a に比較して小型である。FINEX は流動層還元プロセスと熔融還元プロセスとから構成されており、流動層還元プロセスは、石炭から製造した還元ガスを使用する石炭ベースの流動層還元プロセスであって、還元ガス中の CO 濃度が高い。FINEX #3 は 200 万 t-pig/a の生産能力を有しており、流動層での還元鉄生産能力は約 240 万 t-DRI/a であるから現行シャフト炉の最大生産能力に匹敵する。

表①-1.15 流動層還元プロセスの概略（実機 30 万 t/年/系列以上）その 1

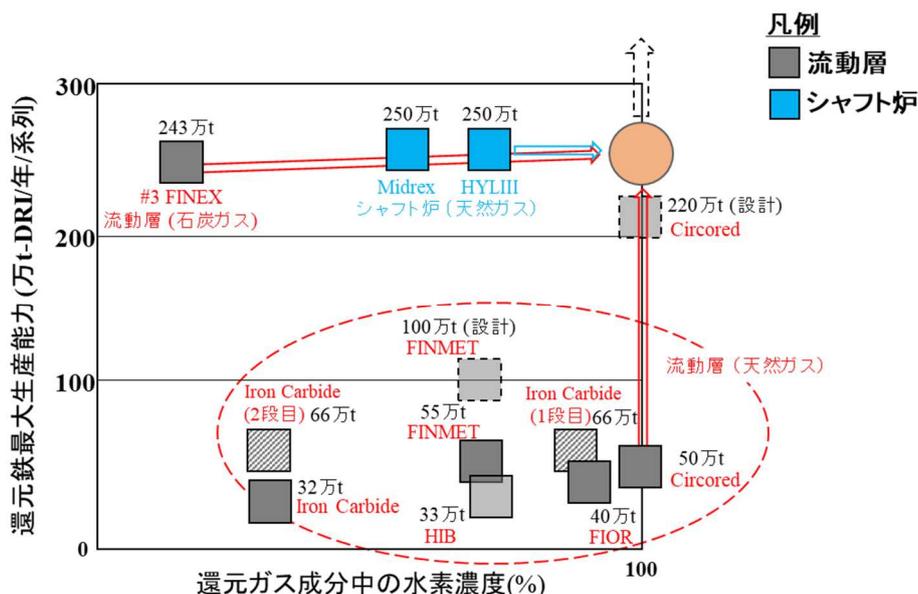
一次エネルギー	天然ガスベース			
プロセス	FINMET		FIOR	Circored
操業会社	Boodarie Iron	Orinoco Iron	FIOR Venezuela	de CAL / AM
生産能力	2.2 mil.t/a (0.55 mil.t/a*4)	2.2 mil.t/a (0.55 mil.t/a*4)	0.4 mil.t/a	0.5 mil.t/a
還元ガス (主要成分)	H <sub>2</sub> 80.6 H <sub>2</sub> O 1.9 CO 12.8 CO <sub>2</sub> 4.7 (w/o N <sub>2</sub> , C <sub>m</sub> H <sub>n</sub> )	H <sub>2</sub> 80.6 H <sub>2</sub> O 1.9 CO 12.8 CO <sub>2</sub> 4.7 (w/o N <sub>2</sub> , C <sub>m</sub> H <sub>n</sub> )	H <sub>2</sub> ≈90 %	H <sub>2</sub> ≈90% N <sub>2</sub> balance

表①-1.16 流動層還元プロセスの概略（実機 30 万 t/年/系列以上）その 2

一次エネルギー	天然ガスベース			石炭ベース
プロセス	Iron Carbide		HIB	FINEX
操業会社	Nucor	Qualitec	Orinoco Mining Co.	POSCO
生産能力	0.32 mil.t/a	0.66 mil.t/a	1.0 mil.t/a (1,000 t/d*3)	•#2: 1.7 mil.t/a (1.5 mil.t-pig/a) •#3: 2.4 mil.t/a (2.0 mil.t-pig/a)
還元ガス (主要成分)	CH <sub>4</sub> 60 % H <sub>2</sub> 34 %	還元炉 H <sub>2</sub> >CH <sub>4</sub> 加炭炉 CH <sub>4</sub> >H <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> 72.5 % CO 12.5% CO <sub>2</sub> 10 %	CO 65.3 % CO <sub>2</sub> 10.2 % H <sub>2</sub> 22.2 % H <sub>2</sub> O 2.3 % (w/o N <sub>2</sub> , C <sub>m</sub> H <sub>n</sub> )

商用機として 1 系列当り 30 万 t/a 以上の運転実績がある流動層還元プロセスである FINMET、FIOR、Circored、Iron Carbide、HIB、FINEX について還元ガス成分中の水素濃度と生産規模の関

係を図①-1.1 に概念的に示す。現行シャフト炉(Midrex、Energiron)の最大生産能力 250 万 t-DRI/a を水素還元プロセスの生産規模の暫定目標とすると、流動層還元プロセスは、還元性ガス成分として水素 100%を使用する生産規模 50 万 t-HBI/a の Circored の商用運転実績があるので、スケールアップのみが課題となる。ただし、生産規模 220 万 t-DRI/年/系列の概念設計は実施済みである。また石炭ガスを使用する FINEX の流動層還元プロセスは生産規模 250 万 t-DRI/a に近い商用運転実績 (FINEX #3) がある。一方、シャフト炉還元プロセスは、生産規模 250 万 t-DRI/a の商用運転実績 (Midrex、Energiron)はあるが、天然ガスから水素への還元ガスの転換にともなう課題解決が必要となる。



図①-1.1 商用運転実績のある流動層還元プロセスの水素還元への展開

カーボンニュートラルな還元鉄を製造するためには、CCUSを考慮しない場合は水素による還元反応で鉄鉱石から還元鉄を製造しなければならない。水素による鉄鉱石の還元反応は吸熱反応なので、反応炉で還元反応に適切な温度を維持するためには、鉱石を予熱して反応炉に装入したり、還元ガスの温度を高くしたり還元ガス量を大きくしたりする必要がある。しかしながら、還元ガスの温度を高くすることは、鉱石の還元率上昇に伴うスティッキングを助長し、操業不調を招く恐れがある。また、還元ガス量を大きくすることはガス処理系の負荷が大きくなり、設備費が増大したり運転費の上昇を招いたりして、経済性を低下させる恐れがある。流動層還元プロセスでは、流動層還元反応炉とは別に鉱石予熱流動層を設置することにより、鉱石を予熱して流動層反応炉に装入することが可能であり、鉱石顕熱を大きくして水素還元反応による吸熱を補償し、流動層反応炉における反応温度を適切にかつ経済的に制御することができる。実機化された1系列当り30万t/a以上の実機流動層還元プロセスの構成と操業温度を表①-1.17及び表①-1.18に示す。FIOR、Circored、Iron Carbide、HIBにおける反応温度は、それぞれ700–790℃、630–650℃、600℃、700℃であるが、鉱石予熱温度は、それぞれ750℃、850℃、700℃、870℃である。FIORでは反応温度と同等程度に鉱石を予熱し、Circored、Iron Carbide、HIBでは反応温度より鉱石予熱温度は100–200℃高くなっている。FINMETとFINEXには鉱石予熱炉は設置されていないが、多段還元流動層なので1段目の流動層は鉱石予熱

が主な機能と考えられる。

表①-1.17 流動層還元プロセスの構成と操業温度（実機 30 万 t/年/系列以上）その 1

一次エネルギー	天然ガスベース			
プロセス	FINMET		FIOR	Circored
鉱石予熱炉	なし	なし	気泡流動層 1 段	循環流動層 1 段
還元炉	気泡流動層 4 段	気泡流動層 4 段	気泡流動層 3 段	循環流動層 1 段 気泡流動層 1 段
鉱石予熱温度	(乾燥 100 °C)	(乾燥 100 °C)	750 °C	850 °C
還元温度	550-800 °C	550-800 °C	700-790 °C	630-650 °C

表①-1.18 流動層還元プロセスの構成と操業温度（実機 30 万 t/年/系列以上）その 2

一次エネルギー	天然ガスベース		石炭ベース	
プロセス	Iron Carbide		HIB	FINEX
鉱石予熱炉	cyclone preheater	unk.	気泡流動層 2 段	unk.
還元炉	気泡流動層 1 段	気泡流動層 2 段	気泡流動層 2 段 (内部 2 段)	•#2FINEX 気泡流動層 4 段 •#3FINEX 気泡流動層 3 段
鉱石予熱温度	700 °C	unk.	870 °C	乾燥
還元温度	600 °C	unk.	700 °C	•#2: unk. •#3: 300-700 °C

流動層プロセスの特徴として資源対応力が大きいことが挙げられる。すなわち、粉鉱石の直接使用が可能であること、そして現行の還元鉄製造用原料として使用される高品位鉄鉱石に加えて品位の低い高炉用焼結原料となる粉鉄鉱石の使用が可能である。

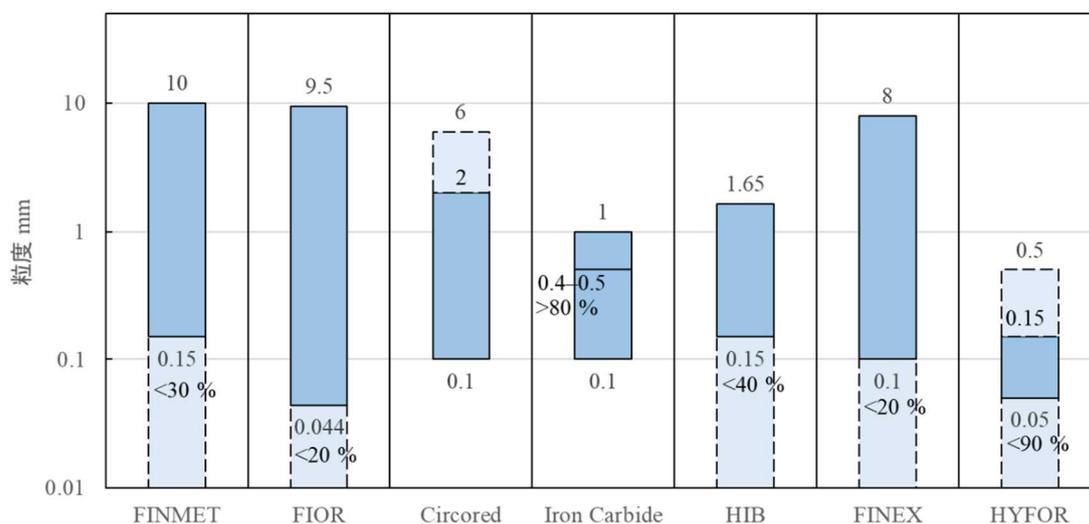
1 系列当り 30 万 t/a 以上の実機流動層還元プロセスで使用する使用鉱石の銘柄を表①-1.19 に示す。FINMET、FIOR、Circored、Iron Carbide、HIB では製品が電気炉用還元鉄であるため高品位の鉄鉱石を使用している。FINEX では熔融ガス化炉で還元鉄が熔融還元されるので、高炉用焼結鉄の原料品位と同等の比較的品位の低い粉鉄鉱石を使用する。

今後の鉄鉱石の動向から予想される鉄鉱石品位の低下の影響、特に水素還元条件下で懸念される還元炉内での粉化による影響を検討する必要がある。流動層還元プロセスでは、歩留り低下が問題となりそうだが、微粉発生による流動層反応炉の操業への影響は限定的であると考えられる。一方、シャフト炉還元プロセスでは、発生粉のシャフト反応炉内への滞留と偏析に起因する通気抵抗の上昇や炉内ガス流れの不調などによる操業異常に直結しやすいと考えられる。

表①-1.19 流動層還元プロセスにおける使用鉱石の銘柄

プロセス	FINMET	FIOR	Circored	Iron Carbide	HIB	FINEX
鉱石銘柄	Mt.Newman San Isidro	Cerro Bolivar El Pao	Carajas	Samitri	Cerro Bolivar	SF [BF grade]

流動層還元プロセスにおける使用鉱石の粒度を図①-1.2 に示す。FINMET、FIOR、FINEX で使用する鉱石の粒度範囲は大きく高炉用焼結鉱の原料粒度範囲程度である。Circored, Iron Carbide, HIB, HYFOR で使用する鉱石の粒度範囲は比較的小さい。原料鉄鉱石粒度の違いは、それぞれのプロセスにおける流動層反応炉における粒子の流動状態に起因して選択されていると考えられる。Circored は鉱石予熱流動層 1 段と還元流動層 2 段で構成され、鉱石予熱流動層と 1 段目の還元流動層の流動状態は Fast Fluidized Bed であって外部サイクロンによる粒子の捕集・循環機能のある循環流動層である。2 段目の還元流動層の流動状態は Bubbling Fluidized Bed と考えられる。使用鉱石の主な粒度は 0.1–2 mm で粒度分布の比較的小さい鉱石の使用を前提としている。鉱石予熱流動層と 1 段目の還元流動層は循環流動層であるから、より大きな粒度分布を持つ鉱石の使用が可能であると思われるが、流動状態が Bubbling Fluidized Bed と考えられる 2 段目の還元流動層の制約から 0.1–2 mm と比較的小さい粒度分布の鉱石が選択されていると考えられる。また鉱石の粉化性状によっては 6 mm までの粗粒鉱石が使用可能であるされているのは、粗粒鉱石が鉱石予熱流動層と 1 段目の還元流動層で処理される過程で粉化して、Bubbling Fluidized Bed の流動状態にある 2 段目の還元流動層で処理される際には適当な粒度分布になると期待されているためと考えられる。



図①-1.2 流動層還元プロセスにおける使用鉱石の粒度

流動層で還元反応処理をする際に生じる粉化現象に伴って微粉が発生することを抑止するのは困難であると思われる。流動層プロセスにおいては、粉化により発生した微粉が流動層内から飛散するので、ダストロスはあるものの還元炉の操業にとって重大なトラブルを引き起こすことは無いが、微粉鉱石の使用や飛散ダストの低減や再使用における歩留まり向上対策として、粒子循環系の高温集塵機の効率向上や微粉鉱石や飛散ダストのマイクロペレタイゼーションプロセスの確立に向けた開発が行

われている。

集塵装置の代表例を表①-1.20 に示す。流動層還元反応容器から飛散する粒子は、大きいもので粒径が数百  $\mu$  から小さいもので数  $\mu$  程度である。これらの飛散粒子を流動層還元反応容器と同等の温度で捕集可能な集塵装置として採用可能なのは、慣性集塵と分類される中の遠心力集塵（サイクロン、マルチサイクロン）、フィルター集塵と分類される中の移動層フィルターまたは充填層フィルターならびにセラミックフィルターまたは金属フィルターと考えられる。ただし、捕集した微粉粒子を高温のまま流動層還元反応容器に装入してさらに還元することを考慮すると、移動層フィルターまたは充填層フィルターで捕集した微粒子を流動層還元反応容器に循環することは困難である。したがって、微粉鉱石や微粉ダストを捕集する集塵装置としては、サイクロン、マルチサイクロン、セラミックフィルターまたは金属フィルターを使用することになると考えられる。

表①-1.20 集塵装置の代表例

	重力集塵	慣性集塵			フィルター集塵			電気集塵	洗浄集塵		
		衝突式 反転式	遠心力集塵		バグ フィルター	移動層 充填層	セラミック 金属		乾式 湿式	充填洗浄塔	ベンチュリー スクラパー
			サイクロン	マルチ サイクロン							
分離限界 粒径 $\mu$	50	10-30	3-10	1	0.1-0.3	移動層 0.2-0.5 充填層 0.03-10		乾式 0.2-0.4 湿式 0.1-0.2	0.7-3	0.2-0.4	
圧力損失 mmAq	20	50-300	100-300		150-250	移動層 100-300 充填層 20-100		乾式 20-50 湿式 30-50	100-300	700-2000	
使用温度 $^{\circ}\text{C}$			<1000		<250		<1000- <500	乾式 <400-500 湿式 常温	常温	常温	

高効率高温集塵機の採用によって流動層反応容器に循環できる微粉よりもさらに粒径が小さくて捕集できない超微粉やもともと流動層反応容器での使用が困難な超微粉鉱石は流動層で使用できる大きさに塊成化する必要がある。

塊成化装置の代表例を表①-1.21 に示す。鉄鋼業で使用されるダスト塊成化装置は転動造粒装置の中の回転皿（ディスク式）、攪拌造粒装置の中のアイリッヒ、圧縮成形装置の中の打錠、押出成形装置の中のスクリー等である。高炉または還元鉄シャフト炉で使用するペレットを微粉鉱石から製造するための造粒装置には、転動造粒装置の中の回転皿（ディスク式）と回転円筒（ドラム式）がある。微粉鉱石や微粉ダストから流動層での処理が可能な数 mm 程度までの粒子を工業的に造粒する装置は攪拌造粒装置の中のアイリッヒミキサーである可能性が高い。

Lurgi、Thyssen 及び Metallgesellschaft により開発された、循環流動層による亜鉛や鉛を含む製鉄所ダスト・スラジの脱亜鉛・脱鉛処理プロセスである Circodustd プロセスは、サブミクロンのダストやスラジをあらかじめ高速攪拌混合機（アイリッヒミキサー）で 0.1-3 mm に造粒したマイクロペレットを循環流動層に装入して還元脱亜鉛・脱鉛処理を行うもので、Thyssen の Duisburg Hamborn でパイロットプラントが操業された。循環流動層で還元処理されてサイクロンで捕集される亜鉛や鉛が除去された製品は焼結原料として製鉄工程で使用される。サイクロンで捕集されずに飛散する超微

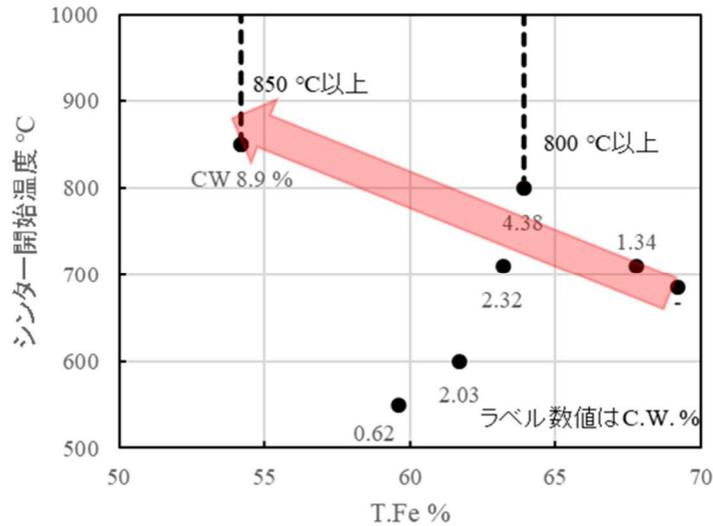
粉や亜鉛蒸気・鉛蒸気は排ガスクーラーを経てフィルターで回収される。この回収物は亜鉛や鉛が濃縮しており亜鉛原料や鉛原料として非鉄精錬メーカーに外販される。

表①-1.21 塊成化装置の代表例

造粒装置		鉄鋼業への利用
転動造粒	回転皿	焼結鉱及びペレット製造に利用
	回転円筒	焼結鉱及びペレット製造に利用
	回転頭切円錐	—
流動層造粒	流動層	—
	変形流動層	—
	噴流層	—
攪拌造粒	パグミル	—
	ヘンシェル	—
	アイリッヒ	(ダスト塊成化に使用)
解砕造粒	回転ナイフ(垂直)	—
	回転ナイフ(水平)	—
	回転バー	—
圧縮成形	圧縮ロール	—
	ブリケットングロール	(還元鉄塊成化に使用)
	打錠	—
押し出し成形	スクリュー	(ダスト塊成化に使用)
	回転多孔ダイス	—
	回転ブレード	—
溶融造粒	スプレー塔	—
	噴流層	—
	板状滴下	—

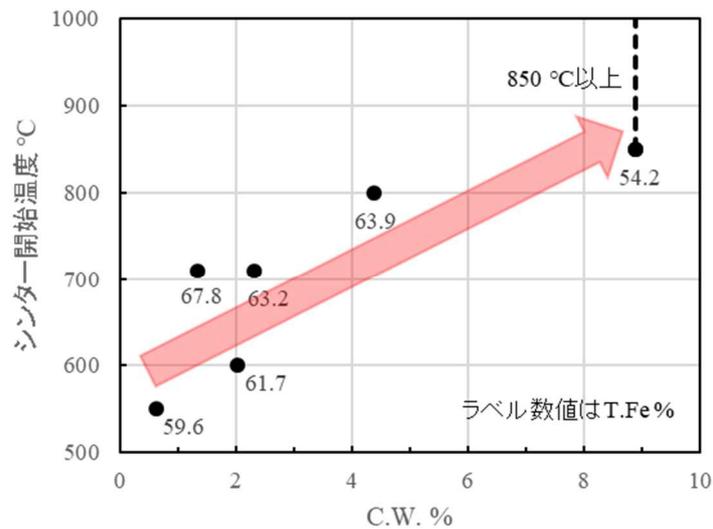
流動層プロセスにおける操業トラブルとして、従来はスティッキングによる流動層の流動不良が大きな課題の一つであったが、ゼロカーボンスティール製造において水素ガスの使用が必須であること、すなわち水素ガスによる還元においては、低温でも還元速度が大きいこと、高圧下でも一酸化炭素ガス使用時に懸念される炭素析出トラブルが生じないこと、かつ流動層原料粒子径が小さいので高圧化による還元速度上昇の恩恵が得られることなどから、スティッキングが起こりにくい低温高圧の還元条件を選択できる。さらに、日本鉄鋼業で使用する主要鉄鉱石原料が高炉用の低品位鉄鉱石であり、今後の鉄鉱石中の鉄分 (T.Fe) 低下や結合水 (C.W.) 含有量上昇などの鉄鉱石品位の低下傾向が予想される中、低品位鉄鉱石原料を使用する条件下ではスティッキングに起因する問題は緩和されると考えられる。

シンター開始温度 (スティッキング温度) と鉄分品位の関係を図①-1.3 に示す。シンター開始温度は鉄鉱石中の鉄分 (T.Fe) の低下に伴って上昇する傾向にある。ただし、結合水 (C.W.) の含有量が小さい鉄鉱石はシンター開始温度が低くなっている。



図①-1.3 鉱石 T.Fe とシンター開始温度

シンター開始温度と鉄鉱石中の結合水 (C.W.) の含有量の関係を図①-1.4 に示す。結合水 (C.W.) 含有量の増加に伴ってシンター開始温度が上昇する。シンター開始温度は鉄分品位の影響とともに結合水 (C.W.) 含有量にも影響される。鉱石表面が緻密または多孔かなどの表面性状に加えて、鉱石内部の気孔量の多寡、気孔径分布などが影響因子であることを示唆している。



図①-1.4 鉱石 C.W.とシンター開始温度

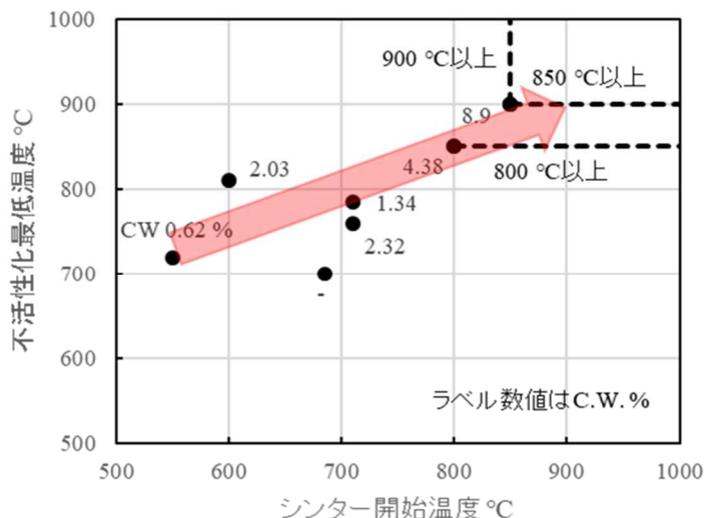
還元温度の低下はスティッキング抑制には有効だが、低温度域で還元された還元鉄は大気中で再酸化しやすいので、電気炉等の溶解工程に達するまでに大気に触れる場合には、再酸化対策が必要である。再酸化防止対策としては、ブリケット化、高温処理、セメントタイト化、微酸化処理、薬剤被膜など様々な対応技術がある。

再酸化対策として採用されている主な方法はホットブリケットィングである。還元直後の還元鉄には気孔が多く金属鉄の表面積が大きいので大気中の酸素との反応が進みやすい状態になっている。熱

間で加圧して成型し気孔を減少させて金属鉄を圧密化することにより大気中の酸素との接触を妨げることで再酸化の進行を抑制することができる。

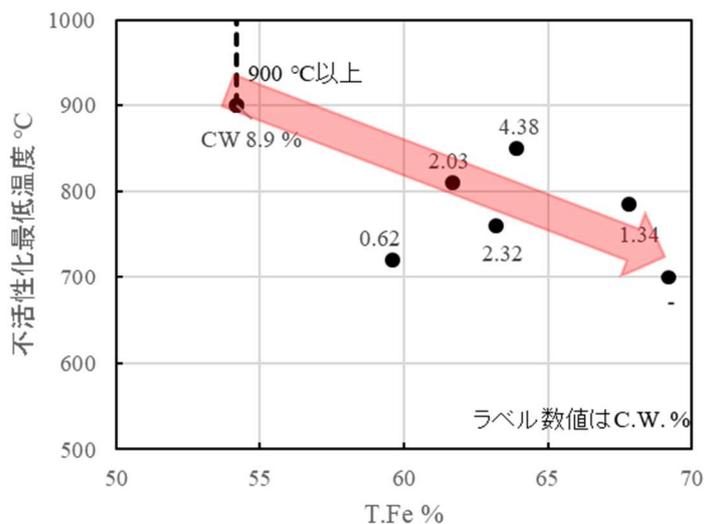
また、金属鉄に浸炭させて金属鉄を炭化鉄にすることによって再酸化の進行を抑制することができるので、例えば Iron Carbide プロセスで製造される製品は炭化鉄であることから再酸化しにくいとされている。

高温処理によっても再酸化が抑制される。高温処理によって再酸化を抑制するときの温度は鉱石によって異なる。一般的には図①-1.5 に示すようにシンター開始温度が高い鉱石、すなわちスティッキングし難い鉱石は再酸化を抑制するのに必要な処理温度は高くなる。



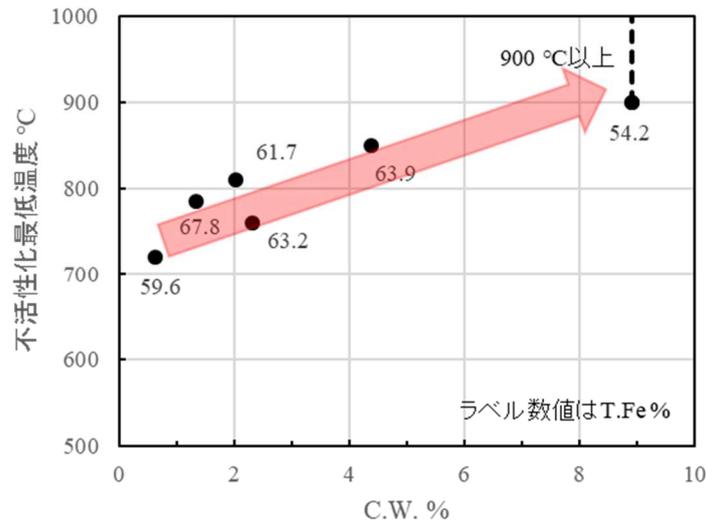
図①-1.5 シンター開始温度と不活性化最低温度

鉄鉱石原料の鉄分品位が高くなると図①-1.6 に示すように製品還元鉄の再酸化を抑制するのに必要な処理温度は低下する傾向にある。



図①-1.6 鉱石 T.Fe と不活性化最低温度

還元前の鉄鉱石の結合水含有量が高くなると図①-1.7 に示すように再酸化を抑制するのに必要な処理温度は高くなる。鉄鉱石原料の動向から将来的には鉄品位が低下し結合水が上昇する傾向にあることから不活性化に必要な温度は 800 °C 程度よりも高くなると考えられる。800 °C 程度よりも高い処理温度は加熱に必要なエネルギーも大きくなるので、加熱に要するエネルギーの有効活用を可能とするプロセスの工夫が必要になると考えられる。



図①-1.7 鉱石 C.W.と不活性化最低温度

近年は前記の再酸化防止処理とは別に高温状態の還元鉄を不活性ガス雰囲気または還元性ガス雰囲気で搬送して電気炉に装入する技術が普及している。Tenova HYLが開発したHYTEMPプロセスは、気流搬送方式の熱間搬送で、搬送ガスには不活性ガスまたはプロセスガスを使用する。

MidrexはHOTLINKと呼ぶ重力落下方式の熱間搬送を行っている。HOTLINKプロセスでは、シャフト炉と電気炉の間の距離は40 m程度までに制約される。

還元炉から電気炉までの距離が40 mを超え100 m程度までの場合は、耐熱性のバケットからなる断熱式のHot conveyorによって熱間搬送する方式がある。コンベアは密閉フード内にあり、不活性ガス雰囲気であり還元鉄の再酸化を防止している。

還元炉と電気炉の間の距離が100 mを超える場合や、1基の還元炉から複数の電気炉に運搬する場合には、通常60–90 tに相当する容量の断熱型の密閉容器に高温還元鉄を入れてトラックまたは列車で運搬する。

高温還元鉄の熱間搬送、電炉への熱間供給が同一の製鉄所内で不活性ガス雰囲気または還元ガス雰囲気を実施される場合は、還元鉄の 대기雰囲気かつ冷間状態での保管・運搬における再酸化を考慮しなくても良い。ただし、操業トラブル等により突発的に還元鉄をヤード等の大気に触れる条件で排出する場合には対策を考える必要がある。なお水素ガスにより、流動層還元した炭素を含有しない粉状還元鉄の電気炉での使用についてはCircored還元粉の使用実績があり、問題なく使用できたとの報告がある。

設備トラブルによる稼働停止による経済的損失が大きいため大規模商用機の操業でトラブルが発生

しないように、数十万 t/a/系列規模のデモンストレーションプラントでの操業経験が必要と考えられる。Circored は商用機ではあるものの 50 万 t-HBI/a/系列であり、設計能力に到達するまでは多くの設備改造を実施した。FINEX は、15 t/d の Model Plant、150 t/d の Pilot Plant での試験に続き、60 万 t-pig/a の COREX を改造した 1 系列 4 段の流動層プロセスからなる熔融還元プラントをデモンストレーションプラントと位置付けて、操業トラブルに対する設備改良を施したうえで、商用機として生産能力 150 万 t-pig/a の#2 FINEX の操業が開始され、稼働連続稼働日数 300 日の実績が得られた。

#### 参考文献

- 1) V. CHEVRIER, L. LORRAINE and H. MICHISHITA: KOBELCO Tech. Rev., 39(2021),p.33
- 2) MPP Steel Transition Strategy, (2021), 他より JRCM 作成  
<https://www.energy-transitions.org/wp-content/uploads/2021/12/MPP-Steel-Transition-Strategy.pdf>
- 3) EUROFER LOW CARBON ROADMAP(2019)  
<https://www.eurofer.eu/assets/Uploads/EUROFER-Low-Carbon-Roadmap-Pathways-to-a-CO2-neutral-European-Steel-Industry.pdf>
- 4) IEA Energy Technology Perspectives (2020)  
[https://iea.blob.core.windows.net/assets/7f8aed40-89af-4348-be19-c8a67df0b9ea/Energy\\_Technology\\_Perspectives\\_2020\\_PDF.pdf](https://iea.blob.core.windows.net/assets/7f8aed40-89af-4348-be19-c8a67df0b9ea/Energy_Technology_Perspectives_2020_PDF.pdf)
- 5) EUROFER: Green Steel for Europe(GREENSTEEL)  
<https://www.estep.eu/green-steel-for-europe/>  
<https://www.estep.eu/assets/Uploads/D1.2-Technology-Assessment-and-Roadmapping.pdf>
- 6) BELLONA Hydrogen in steel production: what is happening in Europe (2021) 他  
<https://bellona.org/news/industrial-pollution/2021-05-hydrogen-in-steel-production-what-is-happening-in-europe-part-two>
- 7) Climate strategy Steel, thyssenkrupp Steel-HP など  
<https://www.thyssenkrupp-steel.com/en/company/sustainability/climate-strategy/>
- 8) Arcelor Mittal Hamburg H2- Working towards the production of zero-carbon emissions steel with hydrogen (2021) など  
<https://corporate.arcelormittal.com/climate-action/decarbonisation-technologies/hamburg-h2-working-towards-the-production-of-zero-carbon-emissions-steel-with-hydrogen>
- 9) SSAB Timeline for HYBRIT and fossil-free steel (2021)  
SSAB [ssab.com/company/sustainability/sustainable-operations/hybrit-phases](https://www.ssab.com/company/sustainability/sustainable-operations/hybrit-phases)
- 10) H2FUTURE PROJECT – Startseite, Voestalpine,(2020) <https://www.h2future-project.eu/>
- 11) SALCOS Climate Initiative for Low CO<sub>2</sub> Steel Production,  
[https://salcos.salzgitter-ag.com/en/index.html?no\\_cache=1](https://salcos.salzgitter-ag.com/en/index.html?no_cache=1)
- 12) 日韓産業新聞掲載記事 (2021 年 4 月 15 日)
- 13) 内藤 誠章, 武田 幹治, 松井 良行: 鉄と鋼, 100(2014),p2
- 14) 有山達郎: 鉄と鋼,105(2019),p.567
- 15) JFE スチール株式会社 HP, <https://www.jfe-steel.co.jp/release/2020/10/201012.html>

- 16) 有山達郎：ふえらむ,14(2009),p.781,
- 17) <https://www.thyssenkrupp.com/en/newsroom/press-releases/world-first-in-duisburg-as-nrw-economics-minister-pinkwart-launches-tests-at-thyssenkrupp-into-blast-furnace-use-of-hydrogen-17280.html>
- 18) PaulWurth : Stepwise CO<sub>2</sub> reduction  
<https://www.paulwurth.com/en/shaping-the-future/stepwise-co2-reduction/>
- 19) Midrex 社-HP (<https://www.midrex.com/>)、他
- 20) Direct from Midrex 2019 4Q
- 21) Carbon Impact Mitigation of the Iron Ore Direct Reduction, Université de Lorraine, 2020
- 22) ENERGIRON HP- DRI TECHNOLOGY BY TENOVA AND DANIELI  
(<https://www.energiron.com/>) 他
- 23) COREX, PRIMETALS TECHNOLOGIES, 他
- 24) Metal Bulletin : Iron Ore Price Trends & Assessing DR-Grade Pellet Premium, (2016)
- 25) Operating MIDREX Plants With Lower Grade Pellets & Lump Ores, Midrex,(2021)  
<https://www.midrex.com/tech-article/adapting-to-raw-materials-challenges-part-1-operating-midrex-plants-with-lower-grade-pellets-lump-ores/>
- 26) Iron Ore Supply North America Supply and Quality Corem, Ironmaking Global Consulting, (2013)

① - 2. 先進高炉に関わる技術調査および開発ロードマップの作成

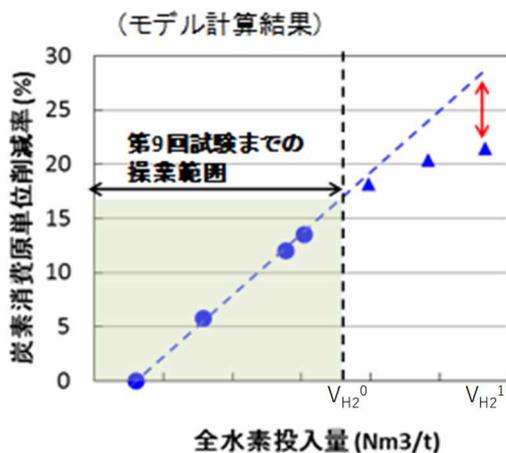
①-2-1. 先進高炉1 (Super COURSE 50)の概念設計のための基礎検討と開発ロードマップの作成

1. 緒言

COURSE50 においては、高炉に水素系ガスを吹込むことで水素還元を促進し、10%以上の CO<sub>2</sub> 発生量削減が試験高炉で実証され、実機実装化に向けて開発が進められている。本先導研究、先進高炉1 (以下、Super COURSE50 と記す) では、COURSE50 で得られた知見を足掛かりとして、水素還元の限界を追求する水素還元拡大利用技術により、更なる CO<sub>2</sub> 発生量削減を目的として、プロセスの概念設計を行うとともに、そのための開発課題を明らかにする。また、実機化に向けたロードマップ作成を行う。

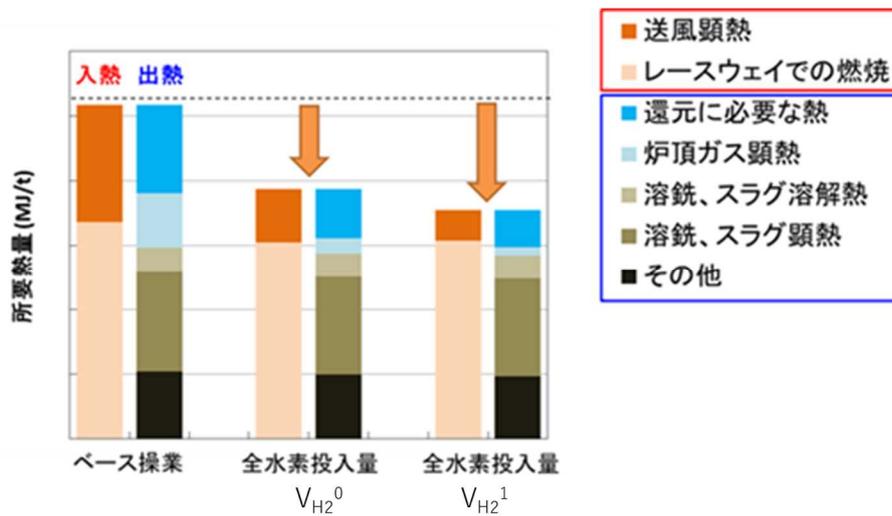
2. COURSE50 高炉における CO<sub>2</sub> 削減の律速因子

まず、COURSE50 開発で得られた知見を整理する。図①-2-1.1 に試験高炉において、H<sub>2</sub> ガスの羽口吹込量を増加させたときの高炉炭素原単位の削減率を高炉数学モデルを用いて解析した結果を示す。



図①-2-1.1 高炉数学モデルによる常温純水素吹込み量増加時の炭素消費原単位の予測結果

全水素投入量がある量まではほぼ直線的な炭素削減傾向を示すが、ある一定の量を超えると炭素削減効果は飽和傾向を示す。この飽和傾向を示す前後での高炉の総括熱収支を図①-2-1.2 に示す。全水素投入量が増加するに伴い、還元に必要な熱量が減少するものの還元以外に必要な溶銑滓の溶解・顕熱等を賄うことが必要であり、出熱全体の所要熱量の低減には限界があることがわかる。他方、全水素投入量増加に伴い、入熱である送風顕熱量が低下するため、レースウェイでの燃焼熱は全水素投入量が増加しても低減できないことがわかる。



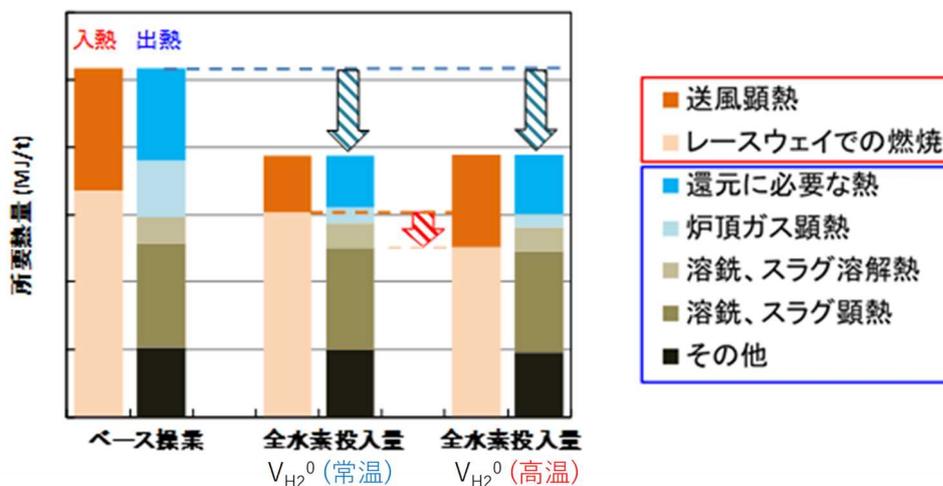
図①-2-1.2 常温純水素吹き込み量増加時の熱収支変化

このことから、常温の水素（水素系ガス）を多量に吹き込む時の炭素削減の律速因子は熱供給であると考えられる。逆に、十分な熱供給によって更に水素（水素系ガス）を吹き込み、還元に必要な熱量を低減し、出熱全体の所要熱量を低減することに加えて、レースウェイでの燃焼炭素量を低減できると考えられる。

### 3. Super COURSE 50 プロセス概念設計

上述のように、常温の水素（水素系ガス）多量吹き込み時の炭素削減の律速因子が熱供給であれば、水素（水素系ガス）を加熱して吹き込むことにより、更なる炭素削減が可能になると考えられる。

図①-2-1.3 に常温と高温  $H_2$  ガスを吹き込む場合の高炉数学モデルの解析結果を総括収支で表示した。ここで、前提条件は、試験高炉操業に準じた。高温  $H_2$  ガスを吹き込むことによって、送風顕熱が増加し、レースウェイでの燃焼熱が低減することで、常温  $H_2$  ガスを吹き込む場合よりも更に炭素削減が可能と推定された。



図①-2-1.3 COURSE50 高炉への熱供給による  $CO_2$  削減の増幅効果

Super COURSE 50 では上述の原理を利用して、高温の  $H_2$  系ガスを多量に吹き込むことによ

り、水素還元量を増加、直接還元量を減少させるとともに入熱としての送風顕熱を増加させることで、更なる還元所要熱量の低減とレースウェイ燃焼熱の低減により、COURSE50 に対して更なる炭素削減が可能になると考えられる。

#### 4. Super COURSE 50 プロセス開発課題

次に、前節で述べた Super COURSE50 プロセスを実現するための課題を以下に整理する。Super COURSE50 プロセス開発には、大きく3つの課題があると考えられる。以下に、その3つの課題を記す。

##### -1) Super COURSE50 基本原理の検証

今回の Super COURSE50 プロセス概念設計は COURSE50 事業で開発してきた高炉数学モデルの解析結果に基づく。これまでの COURSE50 試験高炉条件においては高炉数学モデルの精度検証がなされてきているものの、全水素投入量が大きく上回る Super COURSE50 プロセスを対象とした高炉数学モデルの解析には予測精度が不明である。したがって、試験高炉等を用いた操業試験を実施し、高炉数学モデルの解析精度を検証するとともに、Super COURSE50 プロセスの基本原理の検証、すなわち、多量の水素と熱の複合供給により水素還元の限界を追求する水素還元拡大利用技術を実証することが課題である。

##### -2) Super COURSE50 基本設備の要素技術開発

Super COURSE50 の実現には、多量の水素と熱の複合供給が必要条件である。そのためには、水素系ガスを大規模に昇温する技術の確立、すなわち、未だ実用化されていない加熱方式を含めた多量で高温に水素系ガスを生成する水素等昇温設備技術の開発が必要不可欠である。

さらに、高炉の還元性ガス（以下、ボッシュガスという）生成の役割を担うレースウェイにおいて、多量の水素と熱が複合的に供給された場合に安定にボッシュガスが生成されるかよくわかっていない。Super COURSE50 操業で想定されるレースウェイ内の条件変化から課題を考察する。COURSE50 の常温 H<sub>2</sub> ガス吹込みにおいて、羽口から吹き込まれた H<sub>2</sub> ガスは(1)式により、優先的に O<sub>2</sub> を消費する。



H<sub>2</sub> ガス吹込み量を増加すれば、炭材が消費可能な O<sub>2</sub> 量は減少する。また、高温の水素吹込みにより、炭素原単位が減少すると、高炉に投入される熱風 O<sub>2</sub> 量は減少する。炭材が消費可能な O<sub>2</sub> 量が減少する状況においては、炭材の主要消費機構は(2)式に示すガス化反応（吸熱反応）になると考えられる。



すなわち、羽口部から多量の H<sub>2</sub> ガスを吹き込むと(1)式によって優先的に O<sub>2</sub> を消費し、多量の H<sub>2</sub>O と燃焼熱を生成するが、その後、(2)式によってレースウェイ内の炭材を消費するものの生成した H<sub>2</sub>O がレースウェイ内でどのように炭材と反応消費するのかはよくわかっていない。炭材の視点から見れば、微粉炭／コークスの燃焼性低下、ガス側の視点から見れば、生成した H<sub>2</sub>O が完全に炭材をガス化させてボッシュガスを生成するのか、ボッシュガス生成不安定化が懸念される。このような Super COURSE50 条件において、ボッシュガス安定生成のための水素系ガス吹込みランス／羽口構造の

概念設計と実証が課題である。

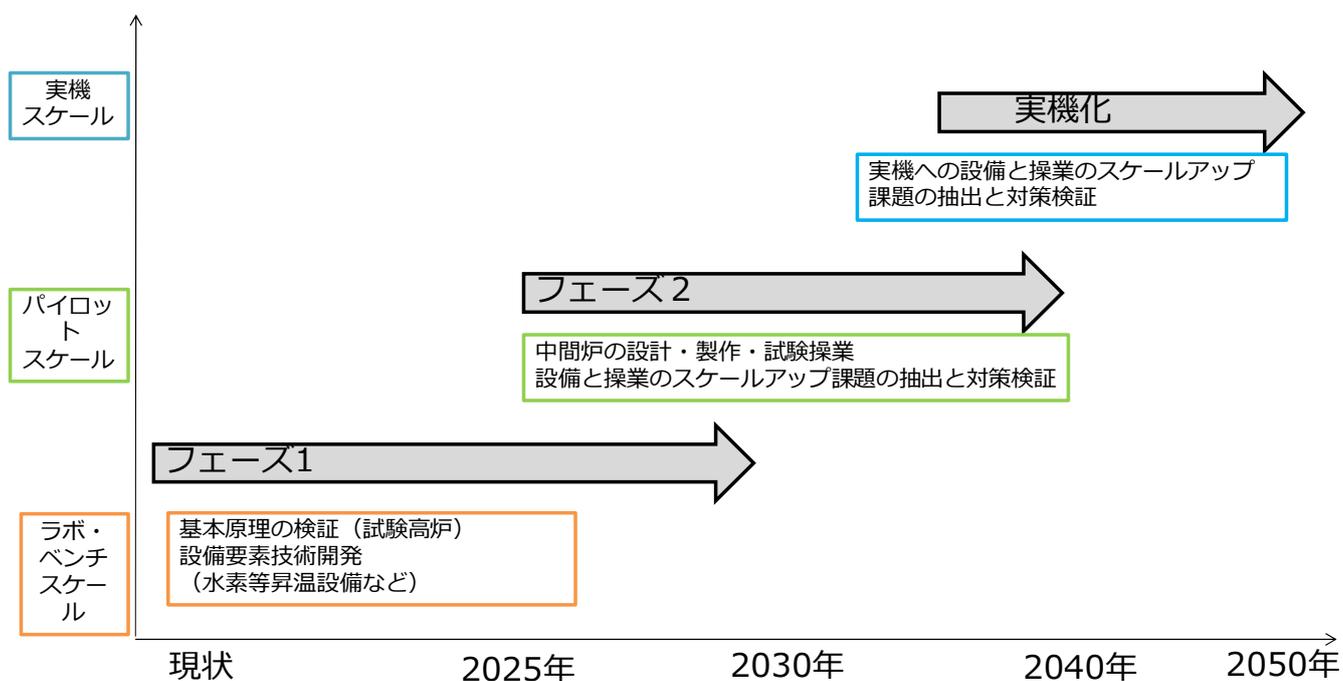
### -3) S-COURSE50 プロセスのスケールアップ

-1)で述べた Super COURSE50 基本原理の検証には、小型の試験高炉（12 m<sup>3</sup>）を用いることが適切であるが、炉径が10倍以上、炉高が4倍以上となる実機への展開には、Super COURSE50 プロセスの設備に関するスケールアップ課題と操業方法に関するスケールアップ課題がある。設備に関するスケールアップ課題として、高炉本体の炉体・炉底のスケールアップ、-2)で述べた Super COURSE50 基本設備、すなわち、水素等昇温設備や水素系ガス吹き込みランス／羽口のスケールアップ課題がある。操業方法に関するスケールアップ課題には、スケールアップに伴う羽口先レースウェイ形成適正化制御技術、原料の炉径方向分布制御技術、炉内荷重の増加と炉内反応形態変化に伴う原燃料品質の適正化技術に関する課題がある。

上記課題解決のため、試験高炉を用いた Super COURSE50 基本原理の検証後に実機との間を繋ぐ中規模試験炉（以下、中間炉）での実証が必要と考える。中間炉で Super COURSE50 条件での操業試験をおこない、安定した Super COURSE50 プロセスを実現させ得る設備と操業方法に関するスケールアップ課題の抽出、および、それらの課題に対応する技術開発が必要になると考える。

## 5. Super COURSE 50 開発ロードマップ

前節での課題検討を受け、図①-2-1.4 に Super COURSE 50 技術開発課題ロードマップを示す。今後、Super COURSE50 の基本原理の検証と設備要素技術開発に関して、試験高炉（12 m<sup>3</sup>）を用いた技術開発を進め、2030 年度頃までに各要素技術を完成させる計画とした。その後、Super COURSE50 プロセスの設備と操業のスケールアップに関する課題抽出とその対策検証を目標に、中間炉を用いて技術開発を進める。このうち、設備のスケールアップに関しては、2030 年代半ば頃までに中間炉規模での検証を終え、その後、Super COURSE50 実機設計に移る。操業のスケールアップに関しては、2040 年頃までに中間炉規模での検証を終え、2040 年代半ば頃に向けて実機へのスケールアップ技術を実証（Super COURSE50 実機 1 号機）し、その後 2050 年までに各製鉄所へ Super COURSE50 高炉を普及させる計画とした。



図①-2-1.4 Super COURSE 50 技術開発課題ロードマップ

## 6. まとめ

COURSE50 で得られた知見を足掛かりとして、水素還元の限界を追求する水素還元拡大利用技術により、更なる CO<sub>2</sub> 発生量削減を目的として、Super COURSE50 プロセスの概念設計を行うとともに、そのための開発課題を明らかにし、実機化に向けたロードマップ作成を行った。

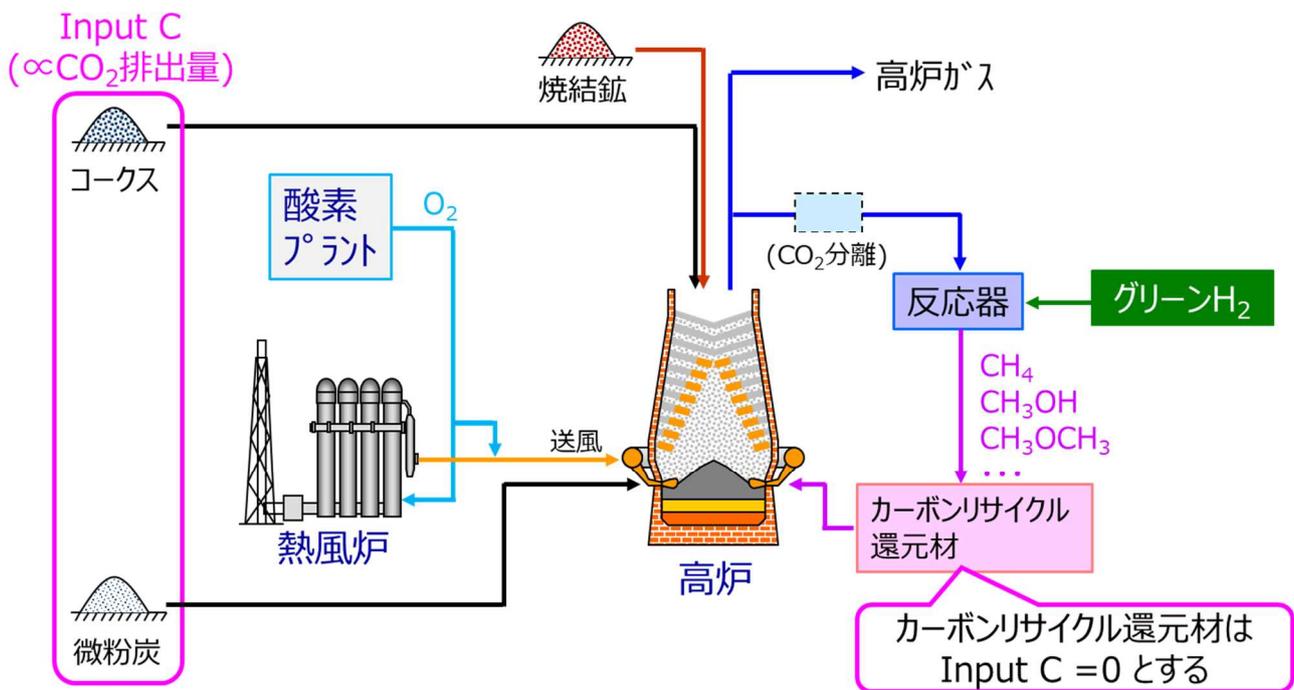
①-2-2. 先進高炉 2（カーボンリサイクル高炉）の概念設計のための基礎検討とロードマップ作成

(1) 研究概要

本研究では、高炉法とカーボンリサイクルによりゼロカーボンを目指すカーボンリサイクル高炉の高炉システムの概念設計に必要な基礎検討を行うこと、及びそれを踏まえたロードマップを提示することを目的とした。図①-2-2.1 に、カーボンリサイクル高炉の概念図を示す。カーボンリサイクル高炉の特徴は、高炉から排出される高炉ガス中の  $\text{CO}_2$  を回収し、水素（グリーン水素）と反応させて炭化水素系の還元材（カーボンリサイクル還元材）に変換し、それを高炉の炭素源として再利用する点である。高炉からの  $\text{CO}_2$  排出量は、高炉に投入された炭素量（input C）に比例するが、カーボンリサイクル還元材中の C は、回収した  $\text{CO}_2$  をリサイクルして用いるため、 $\text{input C} = 0$  とみなすことができるため、input C が大きく減り、 $\text{CO}_2$  排出量の大幅な削減が可能になると考えられる。

カーボンリサイクル高炉の概念設計に向けて、本研究では初めにカーボンリサイクル還元材の調査を行い、候補となるカーボンリサイクル還元材をリストアップした。そして数値モデルを用いてこれらカーボンリサイクル還元材の高炉利用による  $\text{CO}_2$  発生量低減効果の評価と送風酸素濃度の影響について評価を行った。また、カーボンリサイクル還元材の合成技術及び設備技術について調査を行い、本プロジェクト③-1～③-3の調査結果も踏まえた上で高炉利用に適したカーボンリサイクル還元材を選定し、カーボンリサイクル高炉の  $\text{CO}_2$  発生量削減が最大となる操業諸元を設計した。その上で、これらの調査結果を踏まえてロードマップの作成を行った。

実施内容カーボンリサイクル還元材の高炉利用時の  $\text{CO}_2$  発生量低減効果と送風酸素濃度影響の評価



図①-2-2.1 カーボンリサイクル高炉の概念図

(2) 実施内容

i) カーボンリサイクル還元材の高炉利用時の CO<sub>2</sub> 発生量低減効果と送風酸素濃度影響の評価

初めに、カーボンリサイクル還元材調査を行い、候補となるカーボンリサイクル還元材として、メタンなどの化合物を抽出した。カーボンリサイクル還元材の物性値は、文献 1)等のデータを用いて計算した。また、カーボンリサイクル還元材ではないものの、同じく input C を 0 とみなすことができるバイオマスについても、比較として解析を行った。バイオマスの物性値は表①-2-2.1 に示す通りであり、文献 2)のデータを用いた。ここで、低位発熱量とは、カーボンリサイクル還元材 1kg が燃焼し、CO<sub>2</sub> と H<sub>2</sub>O(g)に変化する際の発熱量(kcal)である。

表①-2-2.1 バイオマスの物性値

還元材	組成					低位発熱量 (kcal/kg)
	C	H	O	N	Ash	
	wt% (daf)				wt%(db)	
バイオマス	53.2	5.7	40.7	0.4	0.3	4749

続いて、カーボンリサイクル還元材調査によりリストアップした各種カーボンリサイクル還元材を高炉に吹き込んだ場合の CO<sub>2</sub> 発生量低減効果、並びにカーボンリサイクル高炉の操業に及ぼす酸素濃度の影響について、高炉数値モデルを用いて評価を行った。カーボンリサイクル還元材は、高炉から排出される CO<sub>2</sub> を使って合成されるため、カーボンリサイクル還元材中の C 由来の CO<sub>2</sub> は排出量ゼロとみなし、石炭由来の C (コークス及び微粉炭中の C) の投入量から CO<sub>2</sub> 排出量を計算した。また、カーボンリサイクル還元材に加え、カーボンリサイクル還元材と同じく CO<sub>2</sub> 排出量がゼロとみなせるバイオマスについても解析を実施した。さらに、酸素濃度の影響についても解析を行い、酸素濃度が高くなるにつれてカーボンリサイクル還元材を吹込める量が増え CO<sub>2</sub> 削減効果が高まる傾向にあることを明らかにした。ただし、必ずしも酸素濃度 100%での CO<sub>2</sub> 削減効果が最も高いわけではなく、操業条件やカーボンリサイクル還元材の種類によっては酸素濃度 100%以外の酸素濃度が最適な場合もあることも明らかとなった。

ii) カーボンリサイクル還元材の合成及び設備技術調査

カーボンリサイクル還元材の合成技術及び設備技術についての調査を行い、合成技術レベルと、前述の CO<sub>2</sub> 削減効果のバランスから、現状最も有望なカーボンリサイクル還元材はメタンであることが分かった。そこで、メタンを合成するメタネーション設備についての調査及び設備仕様検討を行い、実機高炉用のメタネーション設備を構築する際にそれを担える企業及び必要になると推定される設備仕様を提示した。

iii) CO<sub>2</sub> 発生量削減が最大となる操業諸元の設計

最も有望な還元材に選定されたメタンを実機サイズの高炉に吹き込んだ場合の解析を行い、カーボンリサイクル高炉の CO<sub>2</sub> 発生量削減が最大となる操業諸元を設計した。その結果、メタン吹込みカー

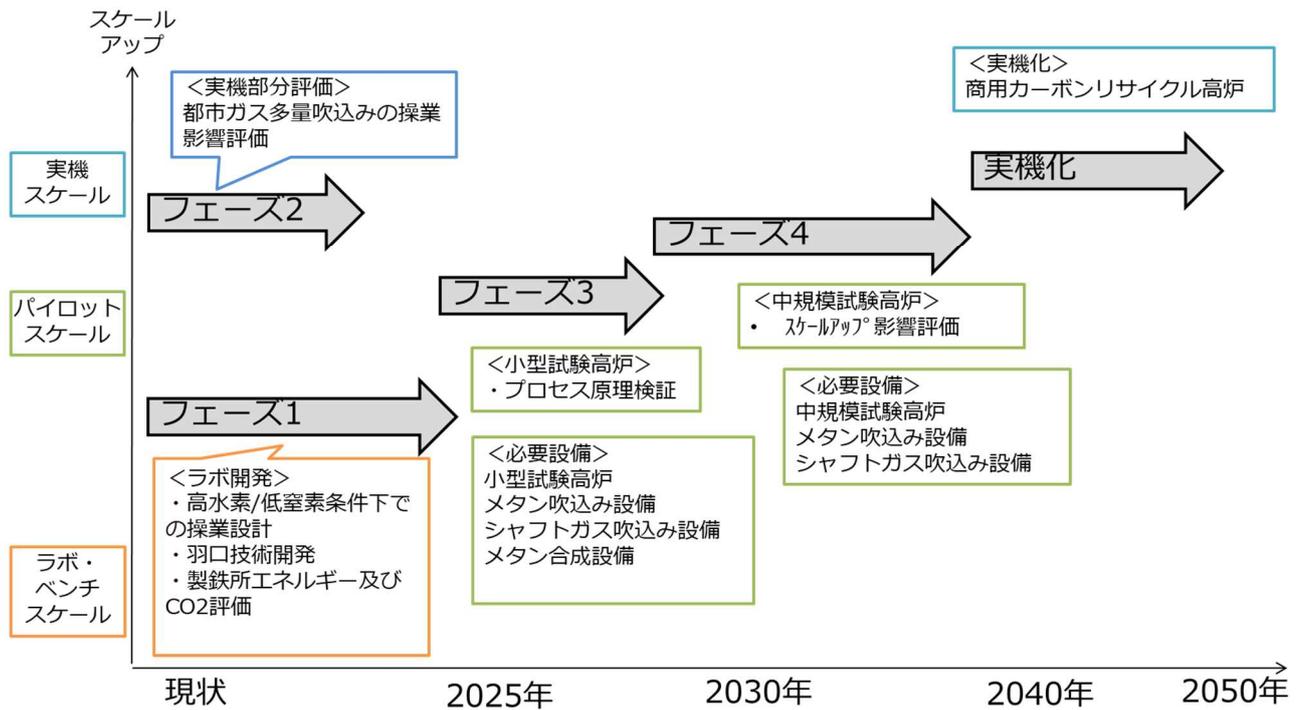
ボンリサイクル高炉の CO<sub>2</sub> 発生量削減が最大となるのは、メタン吹込み量を増やせるよう送風酸素濃度を 100%まで上げた場合であることが分かった。表①-2-2.2 に、ベースとなる従来高炉の操業諸元と、CO<sub>2</sub> 発生量削減が最大となるカーボンリサイクル高炉の操業諸元を示す。なお、コークス比などの単位にある“t”は、溶銑 1 トンを意味している。従来高炉では、コークス 335kg/t に加え微粉炭 200kg/t を吹き込むため、CO<sub>2</sub> 排出量は 1632kg/t となっている。カーボンリサイクル高炉では、送風酸素濃度を 100%とし、カーボンリサイクルメタンを 150kg/t 吹き込んでいる。従来高炉と比べて、コークス比は少し高くなっているものの、メタン中の C 由来の CO<sub>2</sub> 排出量はゼロとみなせることから、CO<sub>2</sub> 排出量は 1145kg/t まで低下した。以上より、カーボンリサイクル高炉では、従来高炉に対し CO<sub>2</sub> 排出量を最大 30%削減できることが明らかとなった。

表①-2-2.2 従来高炉及びカーボンリサイクル高炉の操業諸元

項目	単位	従来高炉	カーボンリサイクル高炉
コークス比	kg/t	335	363
微粉炭比	kg/t	200	0
カーボンリサイクルメタン比	kg/t	-	150
送風原単位	Nm <sup>3</sup> /t	998	333
送風温度	℃	1180	25
送風酸素濃度	%	26	100
Input C	kg/t	445	312
CO <sub>2</sub> 排出量	kg/t	1632	1145
CO <sub>2</sub> 削減率	%	-	<b>30</b>

#### iv) ロードマップの作成

以上の調査・解析結果を踏まえて作成したカーボンリサイクル高炉開発のロードマップは、図①-2-2.2 に示すとおりである。カーボンリサイクル高炉の開発フェーズは、フェーズ 1～フェーズ 4 で構成される。フェーズ 1 はラボスケールでの技術開発段階であり、高水素/低窒素条件下での操業設計、羽口技術開発、製鉄所エネルギー/CO<sub>2</sub> 評価を行う。フェーズ 2 は、既存の実機高炉の一部を用いた部分実証試験であり、既存高炉への都市ガス多量吹込み試験により、高炉へのカーボンリサイクル還元材吹込みの影響を評価する。フェーズ 3 及びフェーズ 4 は、パイロットスケールでの開発段階であり、フェーズ 3 では小型試験高炉及び必要な周辺設備を建設しカーボンリサイクル高炉のプロセス原理検証を、フェーズ 4 では、中規模試験高炉及び必要な周辺設備を建設しスケールアップ影響を評価する。これらの開発フェーズを経て、2040 年以降のカーボンリサイクル高炉の実機化を目指す。



図①-2-2.2 カーボンリサイクル高炉開発のロードマップ

### (3) まとめ

先進高炉 2 (カーボンリサイクル高炉) の概念設計を目的として、高炉利用に適したカーボンリサイクル還元材の調査、CCU を含めた周辺技術や設備技術の調査、カーボンリサイクル還元材の高炉利用時の CO<sub>2</sub> 発生量低減効果の検証、並びにカーボンリサイクル高炉操業における酸素濃度の影響の評価を行った。これらを踏まえた上で、カーボンリサイクル高炉の CO<sub>2</sub> 発生量削減を最大化する操業諸元の設計と、ロードマップ作成を行った。

### 参考文献

- 1) 日本化学会編, 化学便覧基礎編 改訂 6 版, 丸善出版, (2021).
- 2) R. Garcia *et al.*, *Fuel*, Vol. 215, p.290, (2018).

## ①-3. シャフト炉に関わる技術調査および開発ロードマップの作成

### ①-3-1. シャフト炉に関するボトルネック課題調査-1

#### －鉄鉱石の塊成化技術に関する技術調査

シャフト炉のボトルネック課題となる鉄鉱石の塊成化技術に関して、技術調査を行った。世界の各種塊成鉄製造技術（転動造粒、ブリケット成型、押出成型、焼結法、塊鉄等）について、技術調査を実施するとともに、水素還元シャフト炉への適用時の挙動や課題、課題対応技術に係る情報を収集・整理した。以下に得られた結果をまとめる。

#### 1. 直接還元プロセス（シャフト炉）に関する最近の動向

直接還元シャフト炉の最近の設備動向を Midrex と Energiron (Hyl) の設備について、整理した<sup>1,2)</sup>。

Midrex と Energiron (Hyl) のいずれにおいても、原則、鉄鉱石の生産地あるいは天然ガス生産地域に立地されている。

また、両社の直接還元シャフト炉の建設推移から、次のことがわかる。直接還元シャフト炉は 1957 年に HYL I の 0.10Mt/y のプラントから出発したが、現在では 2.5Mt/y レベルとなっている。その間、Midrex は順調にプラント数、規模等も伸ばしてきた。一方 HYL は、一時期（2000 年代前半）新規プラントの建設が減少したが、最近では建造中を含め、新規プラントの建設が増えている。特に、試験炉ではあるが、水素 100% の HYBRIT、および水素 70%（30% COG）を予定している HBIS のプラントが注目される。また、欧州を主として、中国、インドなどで、水素に還元を意識したと推定されるシャフト還元炉の建設が検討されている。

1970 年からの DRI の生産量推移を整理した結果、2013 年当時シャフト炉による DRI の推定生産能力は 134Mt に対し、生産量は約 59Mt であった。2020 年でも約 79Mt であり、もしペレット供給能力が同じで推移していれば、まだ余力があることになる。

#### 2. 鉄鉱石の世界動向

USGS (U.S. Geological Survey ; 米国地質調査所) の National Minerals Information Center (国立鉱物情報センター) 発行の Mineral Commodity Summaries2021 年度版のデータ<sup>3)</sup>、および各年度の Minerals Yearbook<sup>4)</sup> から、世界の鉄鉱石の埋蔵量や成分推移を整理した。

##### <鉄鉱石の世界動向>

USGS の報告書によると世界の可採埋蔵量は、粗鉄石で 1,800 億トン、鉄分換算で 840 億トンで、豪州、ブラジルで約半分を占めている。また世界の鉄鉱石の推定埋蔵量は 8,000 億トン以上、鉄分換算で 2,300 億トン以上とされている。

各国の鉄鉱石生産量推移は、オーストラリア、ブラジルは、中国は増加で、鉄鉱石の鉄分推移については、かなり変動もあるが、いずれの国でも全体に低下傾向である。

また、各国の鉄鉱石生産量と鉄分の関係から埋蔵量、生産量の規模、鉄分の含有量等から、豪州系鉄石が今後も重要であることが確認できる。

#### 3. 豪州のペレット生産・輸入の経緯概要

田部氏の“鉄鋼原料論Ⅱ 第1章 鉄鉱石類”<sup>5)</sup> および“日本鉄鋼原料史（上巻）鉄鉱石編”<sup>6)</sup> から、豪州の鉄鉱石輸入にかかわる記述、及びペレットにかかわる記述を日鉄総研が抜粋・編集した。

ペレットは、スウェーデン(1911年)やアメリカ(1940年代)で開発が始まった。アメリカでは、1960年代にそれまで主原料であった塊鉄石に比べ、塊成鉄であるペレットの優位性が確認され、北米でのペレット使用量は増加していった。

日本における、海外からの輸入ペレットは、1964年に南米ペルーのマルコナペレットが最初の購入ペレットである。その後アメリカ・カイザー、インド・ゴアのチョーグル、オーストラリアのハマスレー、ワイヤラおよびサベージリバーと1969年時点では6銘柄を数えるようになり、100万トン/年に満たなかった1965年度に比べ、1967年度の入荷量は約470万トン、さらに1968年度の契約数量は800万トンを超えている。

豪州では1961年まで鉄鉄石の輸出を禁止しており、それまではペレットの輸出はほぼなかったが、1961年に方針が変更され、鉄鉄石の輸出が解禁された。その際、鉄鉄石そのままではなく、一定量はペレットとして付加価値を高めて輸出することを各シッパーに義務付け、1973年には豪州から約900万tのペレットが入荷した。

しかし、日本での自溶性焼結鉄の開発に伴い、焼結粉の需要が増大し、更にオイルショックにより焼成にオイルを使用するペレットは価格競争力を失った。その結果、ペレットプラントは休止し、ペレットから焼結用粉のスイッチを行った。

1970年代の輸入量は年間約1千万tである。したがって、日本の輸入ペレットは約1千万t超規模と輸入量の大半を豪州系ペレットが占めていた。

1968年当時のペレットの契約内容を見ると、豪州系のペレットは、鉄分が少なく、アルミナ、シリカが高いものの、保証品質(強度、還元率等)は、ペルー、アメリカ、インドとほぼ横並びである。

1973年頃と推定される輸入ペレットの品質(エラー! 参照元が見つかりません。参照)は、豪州系のペレット、特にハマスレー、ローブリバーは鉄分低く、シリカ、アルミナが高い。

なお、従来のペレットは、造粒添加剤として主にベントナイトが使用され、ペレット中のCaO/SiO<sub>2</sub>も0.3%以下であった。ハマスレーとローブリバーでは、乾式磨鉄を採用したため、安価な石灰石をバインダーとすることが可能であったが、これも添加量が1%でSiO<sub>2</sub>が5-6%と高いため、CaO/SiO<sub>2</sub>は0.3%以下であった。

#### 4. ペレットの品質評価文献

ペレットの品質、特にヘマタイト、結晶水等のキーワードにかかわる文献を調査し、表①-3-1.1に関連する文献の概要をまとめた。

文献1、2は、最近のDRI用ペレットの動向をまとめた文献、文献3~8はヘマタイトペレット、結晶水をキーワードとして抽出した文献で、日本の1970年代の文献および、インド、イラン、中国の最近の文献である。

調査結果の概要は以下の通りである。

今回の調査範囲では、ほとんどが高炉用ペレット、あるいはマグネタイト系鉄鉄石を用いたDR用ペレットの文献であり、“ヘマタイト系鉄鉄石”+“自溶性”+“DR用ペレット”に関する検討文献は見当たらなかった。

ヘマタイト系ペレットの評価としては、以下の通りである。ヘマタイト系、特に西豪州系の酸性ペレットは、圧壊強度が相対的に低く還元率も低い。また膨れ指数は良いものの、軟化開始温度は低い傾向がある。圧壊強度を上げるためには、焼成温度を上げる、添加剤として糖蜜を用いる、フラックスとして石灰石やドロマイトを添加する、などの対策が提案されている。ただ、フラックスを添加することによって、圧壊強度、還元率等は改善するものの、膨れや金属化によるペレット同士の付着などへの影響は未知数である。

文献調査から、以下のことが、今後の検討課題として考えられる。

- ・ヘマタイト系鉄鉄石”+“自溶性”ペレットは、冷間強度だけを見ると、DR用ペレットの基準を満たすことはできそうだが、今後、膨れや付着性など、DR用ペレットとしてのその他の性状の評価が必要である。

- ・ また水素還元下では、マグネタイト系も同様であるが、CO 還元以上にヘマタイトからマグネタイトに還元が進む段階での、還元粉化が問題になる可能性がある。
- ・ 今後、ヘマタイト系鉄鉱石を含め劣質鉄鉱石を正しく評価するためには、以下のようなステップで課題を解決する必要があると考えられる。ヘマタイト系ペレットとマグネタイト系ペレットを同様の試験条件で比較すること。少量の粒子による実験室規模の装置にて、強度、還元、還元粉化、ペレットの付着性を調査すること。移動充填層（試験シャフト炉）で、通気、ペレットの付着性などのプロセス的な評価をすること。

表①-3-1.1 詳細調査した文献一覧と概要

No.	国	文献名	表題	概要
1	米国	2015 AISTech Conference Proceedings	DR Grade Pellet Quality and Supply DR 用のペレットの品質と供給	世界のシャフト炉での DRI の製造と、の DR 用ペレットの品質要件を概説
2	米国	IIMA(INTERNATIONAL IRON METALLICS ASSOCIATION) レポート 2021	Global Iron Ore Outlook for DR grade iron ore: issues and challenges for the industry DR 用ペレット用鉄鉱石の見通し	DR 用ペレット用の鉄鉱石の見通しを概説
3	日本	鉄と鋼 第 63 年(1977)第 14 号 P2269	シャフト炉装入原料の還元性状について	直接還元シャフト炉の条件下で、実ペレットと塊鉄石の還元特性を調査
4	日本	鉄と鋼 第 65 年(1979)第 3 号 P349	各種実用ペレットの常温および高温性状	世界 44 種類の市販ペレットの高温還元特性を、荷重軟化試験で測定。
5	インド	MINERAL PROCESSING AND EXTRACTIVE METALLURGY 2020, VOL. 129, NOS. 3-4, 299-307	Effect of limestone and dolomite flux on the quality of pellets using high LOI iron ore 高 LOI 鉄鉱石を使用したペレットの品質に及ぼす石灰石とドロマイトのフラックスの影響	高 LOI のインドのゲーサイト質ヘマタイト鉄鉱石のペレット化におけるフラックス材料としての石灰石とドロマイトの効果を検討
6	インド	Trans Indian Inst. Met (2020) 73(10):2561-2575	Studies on the Mechanical and Physical Properties of Hematite Iron Ore Pellets Prepared Under Different Conditions 異なる条件下で調製されたヘマタイト鉄鉱石ペレットの機械的および物理的性質に関する研究	インド東部から得られた高アルミナヘマタイト鉄鉱石から製造されたペレットの圧縮強度、気孔率、および XRD 分析に及ぼす焼成温度と時間、およびバインダー添加の影響を調査。
7	イラン	Int. J. Min. & Geo-Eng. (IJMGE), 54-1 (2020) 27-32	The effect of chemical composition and burning temperature on pellet quality ペレットの品質に及ぼす化学組成と焼成温度の影響	Gol-e-Gohar ヘマタイトによるペレットの特性に及ぼすペレットの化学組成と焼成温度の影響を調査
8	中国	J. Iron Steel Res. Int. (2021) 28:651-660	Prediction of compressive strength based on visualization of pellet microstructure data ペレット微細構造データの可視化に基づく圧縮強度の予測	ペレットの微細構造と圧縮強度の相互作用をデータの可視化とニューラルネットワーク等により検討

#### 4.1 DR 用ペレットの品質と供給に関するレビュー (2015)

DR Grade Pellet Quality and Supply <sup>7)</sup>。

Dr. Joseph J Poveromo (Raw Materials & Ironmaking Global Consulting) による、DR 用のペレットの品質と供給に関するレビューである。

<DR 用ペレットに要求される品質について>

DR 用ペレットに要求される品質は高炉用ペレットとは異なり、次ステップで EAF でスラグを多額の費用をかけて除去する必要があるため、酸性脈石の含有量を最小限に抑えて Fe 含有量を増やす必要がある。酸化鉄の還元も、EAF では費用がかかり困難であるため、DR 用ペレットの還元性を高くする必要がある。

また、必要な物理的特性、微粉レベル、タンブラーと圧縮強度、および冶金学的特性である LTB(低温破壊)は、DR 用と高炉用の両方で同等であるが、DR 用ペレットは、通気性を最大化し、付着を最小化するために、より大きなペレットが必要となる。

<商用 DR 用ペレットの供給について>

カナダ、ブラジル、スウェーデン、および MENA(中東、北アフリカ)地域に集中している。一方、メキシコ、ベネズエラ、イラン、インド、ロシアにはかなりの自家用 DR 用ペレットがある。また、イラン、インド、ロシアで自家用の能力が増加している。

ブラジルとカナダでは、中・短期的には、かなりの高炉用ペレット能力を DR 用ペレット能力に切り替えることができるが、長期的な DRI 容量の大幅な増加にたいしては、新しい DR 用ペレットの設備の建設が必要になる。

DR 用ペレットの生産能力 194Mt に対し、高炉用ペレットの生産能力は 441Mt と多いので、高炉用ペレットプラントを DR 用切り替えるための余裕はかなりある。2013 年の DR 用のペレット消費量は 100MT をはるかに下回っていたため、そもそも DR 用ペレットプラントが需要に対し設備過剰であったといえる。

#### 4.2 DR 用ペレット用の鉄鉱石の見通し(2021)

Global Iron Ore Outlook for DR grade iron ore: issues and challenges for the industry 2021<sup>8)</sup>

<DR 用ペレット必要供給量予想>

商用 DRI の生産量は、直近約 30 百万 t であるが、2030 年には、50.6 百万 t になる見通しである。したがって、DRI 1t 生産するのに 1.45t の DR 用のペレットが必要とすると、2030 年には、73.4 百万 t 必要になり、2019 年に比べて、30.8 百万tの増産が必要である。

これに見合う DR 用ペレットのための鉄鉱石が供給できるか、が課題であるが、高炉用ペレットの DR 用ペレットへの転換の可能性があり、新規鉱山の開発も検討されている。

<鉄鉱石の品質の動向と低下の影響>

鉄鉱石の品質(Fe 分、アルミナ、シリカ等)は徐々に低下しているが、同じ期間、海上鉄鉱石ペレットのフィードと精鉱の品質はほぼ一定に保たれており、海上 DR 用のペレットの品質も同様である。

今後、場合によっては、グレードを維持するために、原鉱石をさらに選鉱・濃縮する必要があり、見合う DR ペレット用の鉄鉱石が供給できるか、が課題である。

鉄鉱石の品質低下の影響として、以下のことが考えられる。

- ・ DR/EAF; DR と EAF の両方で歩留まりと生産性が低下、EAF でのスラグ量の増加、Fe の歩留まりロスの増加、EAF の電力消費量の増加。
- ・ BF/BOF; 焼結工場から同じ量の Fe を供給するために必要な焼結生産量の増加、高炉スラグ量の増加とそれに伴う還元材比の増加、P の除去を維持するための BOF フラックス消費量の増加。

#### 4.3 シャフト炉装入原料の還元性状について(1977)

Reduction Properties of Raw Materials for Direct Reduction Shaft Furnace<sup>9)</sup>

測定試料は、実際のペレット工場で製造された 8 種類のペレットと 4 種類の塊鉄石を使用している。還元試験は、直接還元シャフト炉(Midrex)の操業を想定した条件下で、700~960℃の温度範囲で、還元ガス組成 H<sub>2</sub> 55%、CO

36%、CO<sub>2</sub> 5%および CH<sub>4</sub> 4%で実施し、還元特性として、還元性、還元中の微粉の生成、およびサンプルの軟化挙動について調査している。

実験結果から、次の結果が得られている。

- ・ ペレットの還元性は、スラグまたは石灰の添加量とよく関連している。
- ・ 材料の鉄含有量が高いほど、還元度が高くなる。
- ・ スラグ量または石灰の添加の増加に伴う還元性の低下は、一定量の酸化鉄が含まれるペレット焼成プロセス中の液相の形成に依存する。
- ・ 荷重下での還元試験では、鉄含有量の高いペレットはより高い収縮を示し、クラスター化の兆候が還元されたサンプルで観察される。
- ・ シャフト炉用と高炉用の装入物の還元特性の違いについても考察した。

#### 4.4 各種実用ペレットの常温および高温性状(1979)

Laboratory Evaluation of Physical and High Temperature Properties of Commercial Pellets<sup>10)</sup>

主に世界 44 種類の市販ペレットの高温低減特性を、荷重下での単一粒子軟化試験で測定し、評価した。測定条件は、低温還元率は還元ガス CO/N<sub>2</sub>=30/70 で水素なし、還元温度は 900℃。高温還元率は還元ガス CO/N<sub>2</sub>=30/70 で水素なし。還元温度は 1250℃である。

実験結果は以下のとおりである。

一般的なシャフト炉還元鉄の品質基準の例では、鉄分が 67%以上、(SiO<sub>2</sub> + Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>)が 3%以下であり、実験試料のうち還元鉄用ペレットの成分条件を満たすのはマグネタイト系原料によるもののみである。

また、還元鉄用ペレット圧壊強度の基準は 250kg 以上であり、豪州系、北米系は、いずれも 200kg 程度であるが、高炉用として製造されたためと考えられ、どの原料ペレットも焼成条件すなわち商戦温度を上げることにより、250kg 以上を満たす可能性があると考えられる。

還元後強度は、西豪州系は(還元率が低いため)、良好である。また、膨れ指数についてはほぼ TFe に依存しており、これも西豪州系は良好である。

一方、軟化開始温度は TFe が低いほど低下する傾向がうかがえるが、西豪州系は、TFe のわりに概して高い傾向がある。

以上は、酸性ペレットについての評価であるが、以下は酸性ペレットと、自溶性ペレットについて比較した。

圧壊強度は、酸性、自溶性で、顕著な差は見られず、主として原料特性や製造方法に依存すると考えられる。

還元率については圧倒的に自溶性ペレットの方が優位である。

膨れ指数については、顕著な差は見られなかったが、軟化開始温度については、酸性ペレットの方が低く、還元後のペレット同士の付着が懸念される。

<参考;還元粉化に関する文献のレビュー>

水素還元においては、還元粉化に関する評価も重要と考え、高橋ら<sup>11)</sup>による、水素還元によるペレットの還元実験の結果を紹介する。

実験は小型シャフト炉(反応管の内径 0.13m、有効高さ 2.0m、移動層、水素還元)を用い、試料は豪州系で TFe が約 65%程度である。文献中には、圧壊強度が 200kg 程度であっても、還元が進むと強度が低下するとの報告がある。また、圧壊強度と還元率の関係を整理したところ、ヘマタイトからマグネタイトに還元される約 10%前後の還元率の時に圧壊強度は大幅に低下しており、いわゆる“還元粉化”と同様の現象が生じていることが伺える。

#### 4.5 高 LOI 鉄鉱石を使用したペレットの品質に及ぼす石灰石とドロマイトのフラックスの影響 (2021)

Effect of limestone and dolomite flux on the quality of pellets using high LOI iron ore <sup>12)</sup>

強熱減量 (LOI) の高い低品位の鉄鉱石資源 (59~62%Fe) を、高炉用ペレットとして、効果的に利用するには、鉱物学的特性がプロセス効率を向上させるために重要な役割を果たす。このため、59.75%Fe、4.52%SiO<sub>2</sub>、3.84%Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、および 4.85%LOI を含むインドのゲーサイト質ヘマタイト鉄鉱石のペレット化におけるフラックス材料としての石灰石とドロマイトの効果を物理的、鉱物学的、熱的、化学的、および冶金学的特性を通じて評価した。

鉱石には 30.11%の針鉄鉱と 9.71%のカオリナイト (Al<sub>4</sub>Si<sub>4</sub>O<sub>10</sub>(OH)<sub>8</sub>)、が含まれており、LOI に寄与している。鉱石中に効果的なバインダーであるカオリナイト (9.71%) があるため、ベントナイトは必要がない。一方、鉱石の LOI は、割れによって硬化ペレットの品質に影響を及ぼし、ペレット品質の低下の原因である可能性がある。

適切なフラックスを追加すると、同じ LOI でもペレットの品質が向上した。石灰石、ドロマイト、およびそれらの組み合わせが流動剤として使用された。

高 LOI 鉄鉱石から製造された酸性ペレットは、CCS が比較的低いため、高炉原料としては好ましくないが、適切なフラックスを使用して向上させることができる。

ペレット原料にドロマイトと石灰石を添加した場合、CCS (冷間圧縮強度 / kg ペレット<sup>-1</sup>)、RI (還元性指数 / %)、RDI (還元劣化指数 / %)、SI (膨潤指数 / %) 気孔率を改善することができる。

推奨される条件下で、最適な比率は、無煙炭 (1.0%)、石灰石とドロマイトの比率が 1:1 (4.3%) (LD) で、CCS 478/kg.pellet<sup>-1</sup>、気孔率 30%、SI 8.2%、RDI 3.04%、および RI 83.4% が得られた。

#### 4.6 異なる条件下で調製されたヘマタイト鉄鉱石ペレットの機械的および物理的性質に関する研究 (2020)

Studies on the Mechanical and Physical Properties of Hematite Iron Ore Pellets Prepared Under Different Conditions <sup>13)</sup>

世界の鉄生産産業は、高品位鉄鉱石の緊急性と経済的理由から、高アルミナ含有量の鉄鉱石を使用しようとしており、この目的のために、ペレット化実験におけるインド東部から得られた高アルミナヘマタイト鉄鉱石の利用に焦点を合わせている。

得られたペレットの圧縮強度、気孔率、および XRD 分析に及ぼす焼成温度と時間、およびバインダー添加の影響を調査した。

高脈石 (主にアルミナ) 含有量の焼成ヘマタイト鉄鉱石ペレットは、圧縮強度が低く、1200°C を超える焼成温度でより顕著である。

さらに、糖蜜添加のほうが、ベントナイトを添加より、ペレットの圧縮強度は若干高い。糖蜜の添加量を増やした (6.0%) 場合、焼成ヘマタイト鉄鉱石ペレットで工業的に必要な圧縮強度 (2500N /ペレット) は、やや低い焼成温度 (1200°C) で得られた。また、糖蜜の添加量を 4.0% 少なくして調製した焼成ヘマタイト鉄鉱石ペレットに工業的に必要な強度を与えるには、わずかに高い焼成温度 (≥1250°C) が必要である。

高脈石ペレットである Essel ペレットは Fe 分の高い Bachel ぺレットより、同じ温度、同じ焼成時間で強度が低い。また、糖蜜とベントナイトの 2500N ペレット到達の焼成温度が異なる。

#### 4.7 ペレットの品質に及ぼす化学組成と焼成温度の影響 (2020)

The effect of chemical composition and burning temperature on pellet quality <sup>14)</sup>

イランの Gol-e-Gohar ヘマタイト回収プラントのペレットの特性に及ぼす、ペレットの化学組成と焼成温度の影響を

調査した。

グリーンペレットの湿潤圧縮強度は、ペレットあたり 1.4～1.5kg であった。

焼成温度を上げると(650℃⇒1280℃)、冷間圧縮強度は増加するが、気孔率は減少(焼成ペレットの気孔率は、16%から 38%の範囲であった)。

Design Expert ソフトウェアを使用して、最適化された条件を調査し、ペレット化プロセスの有効なパラメーターをモデル化した。解析結果では、品質(FeO%、S%、気孔率、CCS(圧縮強度))に及ぼすパラメーター(温度、石灰、水酸化ナトリウム)の中で、温度が最も影響が大きいと判明した。

グリーンペレットの焼成プロセスは、個々のペレットの外層と中央部分で異なり、温度が約 1300° C に上昇すると、表面の不均一性が減少し、連続性が向上した。ただし、温度を 1350° C にさらに上げても、表面の不均一性と連続性は改善されなかった。

焼成後ペレットの冷間圧縮強度は、温度を 650° C から 1280° C に上げることで改善された。焼成温度が高いと、酸化により、鉄鉱石粒子間の結合が増加し、ヘマタイトの収率が高くなり、ペレットの冷間圧縮強度が向上した。

焼成温度が 1280℃で、冷間圧縮強度が最大となり、さらに 1280℃から 1350℃まで温度を上げると、ヘマタイトが分解して二次マグネタイトになり、焼成ペレットの冷間圧縮強度が低下した。この条件下でヘマタイトが二次マグネタイトに分解し、二相の微細構造を作り出し、冷間圧縮強度を低下させる。

#### 4.8 ペレット微細構造データの可視化に基づく圧縮強度の予測(2021)

Prediction of compressive strength based on visualization of pellet microstructure data<sup>15)</sup>

ペレットの微細構造と圧縮強度の相互作用を画像データ視覚抽出技術で調査した。調査方法は次の通りである。ペレットの微細構造を顕微鏡で取得し、微細構造中のヘマタイト、カルシウムフェライト、マグネタイト、ケイ酸カルシウム、ペレット相の細孔の面積比率、フラクタル次元、平均周囲長を、画像処理技術によって抽出した。

さらに、これらの鉱物成分の面積比率と圧縮強度の関係を定量化した。

定量化は、バックプロパゲーションニューラルネットワーク(BPNN)、一般化回帰ニューラルネットワーク(GRNN)、およびカブトムシアンテナ検索一般化回帰ニューラルネットワーク(BAS-GRNN)アルゴリズムによって検討。面積比率を入力、圧縮強度を出力とした予測モデルを確立した。

実験結果は、BPNN の平均予測誤差が 5.13%、BAS-GRNN の平均予測誤差が 3.37%であり、どちらも 5.5%未満であった。したがって、ペレットの微細構造は、圧縮強度の予測基準として使用できる。

## 5. まとめ

<直接還元プロセス(シャフト炉)に関する最近の動向>

Midrex と Energiron(Hyl)のいずれにおいても、原則、鉄鉱石の生産地あるいは天然ガス生産地域に立地されている。

1957年に HYL I の 0.10Mt/y のプラントから出発したが、現在では 2.5Mt/y レベルとなっている。その間、Midrex は順調にプラント数、規模等も伸ばしてきた。一方 HYL は、一時期(2000年代前半)新規プラントの建設が減少したが、最近では建造中を含め、新規プラントの建設が増えている。特に、試験炉ではあるが、水素 100%の HYBRIT、および水素 70%(30% COG)を予定している HBIS のプラントが注目される。また、欧州を主として、中国、インドなどで、水素に還元を意識したと推定されるシャフト還元炉の建設が検討されている。

2013年当時、シャフト炉による DRI の推定生産能力は 134Mt に対し、生産量は約 59Mt であった。2020年でも約 79Mt であり、もしペレット供給能力が同じで推移していれば、まだ余力があることになる。

### <鉄鉱石の世界動向>

USSG の報告書によると世界の可採埋蔵量は、粗鉄石で 1,800 億トン、鉄分換算で 840 億トンで、豪州、ブラジルで約半分を占めている。また世界の鉄鉱石の推定埋蔵量は 8,000 億トン以上、鉄分換算で 2,300 億トン以上とされている。

各国の鉄鉱石生産量推移は、オーストラリア、ブラジルは、中国は増加で、鉄鉱石の鉄分推移については、かなり変動もあるが、いずれの国でも全体に低下傾向である。

各国の鉄鉱石生産量と鉄分の関係から埋蔵量、生産量の規模、鉄分の含有量等から、豪州系鉄鉱石が今後重要であることが確認できる。

### <戦後の豪州の鉄鉱石およびペレット輸入の状況>

豪州では 1961 年まで鉄鉱石の輸出を禁止しており、それまではペレットの輸出はほぼなかったが、1961 年に方針が変更され、鉄鉱石の輸出が解禁された。その際、鉄鉱石そのままではなく、一定量はペレットとして付加価値を高めて輸出することを各シッパーに義務付け、1973 年には豪州から約 900 万 t のペレットが入荷した。

しかし、日本での自溶性焼結鉄の開発に伴い、焼結粉の需要が増大し、更にオイルショックにより焼成にオイルを使用するペレットは価格競争力を失った。その結果、ペレットプラントは休止し、ペレット→焼結用粉のスイッチを行なった。

1968 年当時のペレットの契約内容を見ると、豪州系のペレットは、鉄分が少なく、アルミナ、シリカが高いものの、保証品質（強度、還元率等）は、ペルー、アメリカ、インドとほぼ横並びである。

1970 年代の輸入量は年間約 1 千万 t である。したがって、日本の輸入ペレットは約 1 千万 t 超規模と輸入量の大半を豪州系ペレットが占めていた。

### <文献調査>

調査結果の概要は以下の通りである。

今回の調査範囲では、ほとんどが高炉用ペレット、あるいはマグネタイト系鉄鉱石を用いた DR 用ペレットの文献であり、“ヘマタイト系鉄鉱石”+“自溶性”+“DR 用ペレット”に関する検討文献は見当たらなかった。

ヘマタイト系ペレットの評価としては、以下の通りである。ヘマタイト系、特に西豪州系の酸性ペレットは、圧壊強度が相対的に低く還元率も低い。また膨れ指数は良いものの、軟化開始温度は低い傾向がある。圧壊強度を上げるためには、焼成温度を上げる、添加剤として糖蜜を用いる、フラックスとして石灰石やドロマイトを添加する、などの対策が提案されている。ただ、フラックスを添加することによって、圧壊強度、還元率等は改善するものの、膨れや金属化によるペレット同士の付着などへの影響は未知数である。

文献調査から、以下のことが、今後の検討課題として、考えられる。

- ・ヘマタイト系鉄鉱石”+“自溶性”ペレットは、冷間強度だけを見ると、DR 用ペレットの基準を満たすことはできそうだが、今後、膨れや付着性など、DR 用ペレットとしてのその他の性状の評価が必要である。
- ・また水素還元下では、マグネタイト系も同様であるが、CO 還元以上にヘマタイトからマグネタイトに還元が進む段階での、還元粉化が問題になる可能性がある。
- ・今後、ヘマタイト系鉄鉱石を含め劣質鉄鉱石を正しく評価するためには、以下のようなステップで課題を解決する必要があると考えられる。ヘマタイト系ペレットとマグネタイト系ペレットを同様の試験条件で比較すること。少量の粒子による実験室規模の装置にて、強度、還元、還元粉化、ペレットの付着性を調査すること。移動充填層（試験シャフト炉）で、通気、ペレットの付着性などのプロセス的な評価をすること。

### 参考文献

- 1) Midrex-Plants-Sheet2021

- 2) ENERGIRO-REFERENCE-LIST-1
- 3) MINERAL COMMODITY SUMMARIES 2020 USGS (U.S. Geological Survey)
- 4) USGS, Minerals Yearbook
- 5) 田部三郎, 鉄鋼原料論Ⅱ、ダイヤモンド社、東京(1969)
- 6) 田部三郎, 日本鉄鋼原料史(上巻)鉄鉱石編、産業新聞社、東京(1982)
- 7) Joseph J. Poveromo, DR Grade Pellet Quality and Supply, 2015 AISTech Conference Proceedings
- 8) Chris Barrington, Global Iron Ore Outlook for DR grade iron ore: issues and challenges for the industry, [https://www.metallics.org/assets/files/Public-Area/Presentations/FM-IO\\_210318.pdf](https://www.metallics.org/assets/files/Public-Area/Presentations/FM-IO_210318.pdf)
- 9) 金子伝太郎, 木村吉雄, 小野田守, 藤田勇雄, シャフト炉装入原料の還元性状について; 鉄と鋼, 63(1977), P2269
- 10) 土屋 脩, 小野田守, 藤田勇雄, 各種実用ペレットの常温および高温性状; 鉄と鋼, 65(1979), P349
- 11) 高橋礼二郎, 古藪幸夫, 石井正夫, 石垣政裕, 高橋愛和, 小型高圧移動層による酸化鉄ペレットの水素還元; 鉄と鋼, 66(1980), P1985
- 12) Pallishree Prusti, Kashinath Barik, Nilima Dash, S.K. Biswal and B.C. Meikap, Effect of limestone and dolomite flux on the quality of pellets using high LOI iron ore, Powder Technology 379 (2021) 154-164
- 13) Anand Babu Kotta, D. Narsimhachary, Swapan Kumar Karak and Mithilesh Kumar, Studies on the Mechanical and Physical Properties of Hematite Iron Ore Pellets Prepared Under Different Conditions ; Trans Indian Inst Met (2020) 73(10):2561-2575
- 14) A. Sardari et al., Int. J. Min. & Geo-Eng. (IJMGE), 54-1 (2020) 27-32 The effect of chemical composition and burning temperature on pellet quality
- 15) Ai-min Yang and Yun-xi Zhuansun, Prediction of compressive strength based on visualization of pellet microstructure data, J. Iron Steel Res. Int. (2021) 28:651-660

## ①-3-2. シャフト炉に関するボトルネック課題調査-2

### シャフト炉に関する熱流動ボトルネックの解析的調査

#### (1) 課題の整理

水素を多量使用する還元シャフト炉においては、水素還元による反応の吸熱が顕著になる一方で、プロセスの熱駆動力は還元ガスの顕熱のみにより供給される。多量の還元ガスを使用すれば熱的には安定するが、プロセスの材料効率低下する。一方、還元ガス量を低下させれば、熱的には不安定性が発現する。特に、大型シャフト炉内のガス流動は多次元的に発生するため、単なる熱収支のみならず、多次元熱流動の観点からその特性を把握して、操業設計を行う必要がある。

本研究では、シャフト炉内の多次元流動を考慮して還元や物流の挙動を検討するためのシャフト炉モデルの開発とこれを用いた基礎的な操業解析を試みた。

#### (2) 実施内容

##### i) シャフト炉の多次元熱流動・反応モデル開発

本研究で対象とするシャフト炉は塊状の鉱石を高温還元ガスで還元し、固体の還元鉄を製造する装置である。シャフト炉プロセスの解析を実施するため、シミュレータは多流体理論、移動現象論および反応速度論に基づいたものであり、気体および装入物をそれぞれ独立相として取り扱い、これらの相は必要に応じて複数の構成物および複数の化学物質から構成されるものとして構成した。モデルの基礎式は、各相に関する連続の式、運動方程式（分速度方向の運動量保存式）、熱収支式および化学成分の収支式である。ここではすべての基礎式は非定常、円筒三次元座標系で定式化されており、各方程式で解くべき変数を記号  $\phi$  で表せば、すべての方程式は次の形式にまとめることができる。

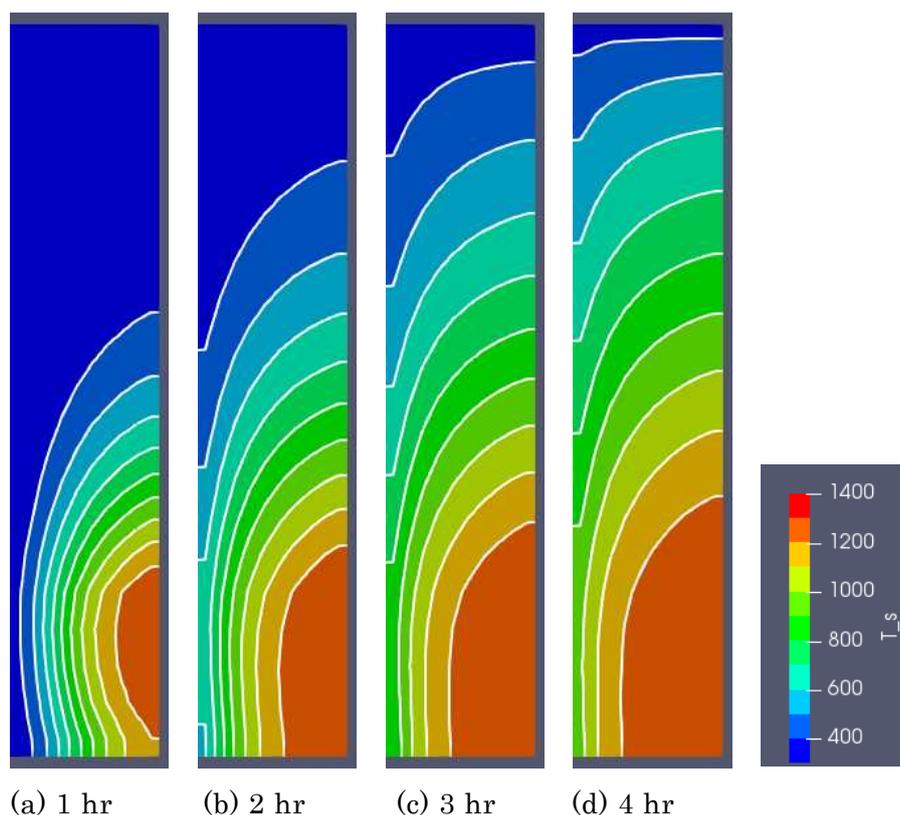
$$\begin{aligned} \frac{\partial}{\partial t}(\rho_i \phi_i) + \frac{\partial}{\partial x}(\varepsilon_i \rho_i u_i \phi_i) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r \varepsilon_i \rho_i v_i \phi_i) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial \theta}(\varepsilon_i \rho_i w_i \phi_i) \\ = \frac{\partial}{\partial x}(\Gamma_{\phi_i} \frac{\partial \phi_i}{\partial x}) + \frac{1}{r} \frac{\partial}{\partial r}(r \Gamma_{\phi_i} \frac{\partial \phi_i}{\partial r}) + \frac{1}{r^2} \frac{\partial}{\partial \theta}(\Gamma_{\phi_i} \frac{\partial \phi_i}{\partial \theta}) + S_{\phi_i} \end{aligned} \quad (1)$$

ここで、 $x, r, \theta$  はそれぞれシャフト炉中心軸方向、半径方向および円周方向座標、 $u, v, w$  は  $x, r, \theta$  方向の速度成分、 $\varepsilon$  および  $\rho$  は対象相の体積分率および密度を表す。また、 $\Gamma$  および  $S$  は変数  $\phi$  に対する有効拡散係数および生成項を表す。生成項では運動量保存に対する圧力勾配、摩擦や重力等、化学成分の物質収支に対する反応・相変化による湧き出しと消失等、熱収支式に対する熱交換や反応熱等が考慮されており、異相間の相互作用もここで評価される。また各相の物性値は温度および組成の関数として表されるため、対象とする方程式は全て連立して解くことになる。

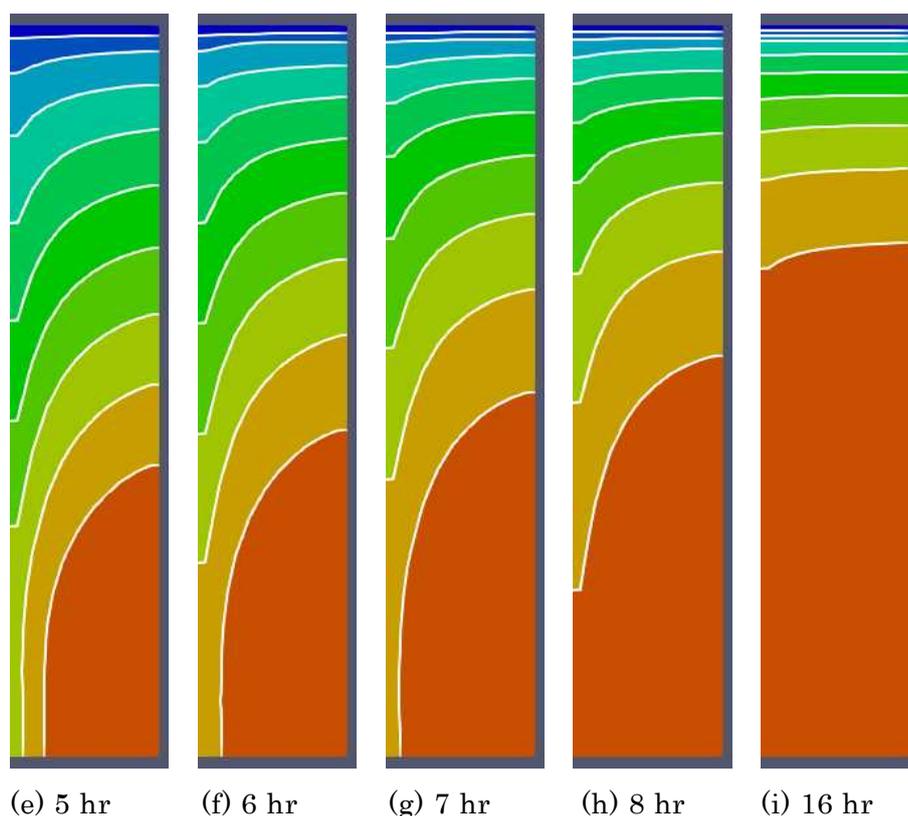
本モデルを内径 4 m × 高さ 10 m の円筒状のシャフト炉に適用した。羽口高さはシャフト底部から 2.75 の高さにスリット状に設定し、ガス流量は 16.4 m<sup>3</sup>/s、装入物の降下速度は 0.7 mm/s とした。炉内のガス空塔速度は 1.3 m/s、装入物の炉内滞在時間は約 4 時間である。

初期温度 298 K の充填層に 1300 K の N<sub>2</sub> ガスを吹き込み、反応の生じない条件下で気固間の熱交換挙動を解析した。吹き込み開始から 1 時間ごとの 8 時間までの温度分布変化および 16 時間後の

温度分布を図①-3-2.1に示す。各図はシャフト炉の中心軸を通る縦断面の片側であり、左が中心軸、右が炉壁となっている。吹き込み初期には図面右側の炉壁面に設置された羽口前の領域から加熱が始まり、高温領域が徐々に拡大している。本条件では、装入物が下方に移動するため、羽口前で加熱された装入物が下方に移動するため、高温域の拡大は下方方向が大きくなっている。半径方向の分布に着目すると、同じ高さにおいて、中心軸付近の温度は低くなっており、装入物降下に伴う昇温が遅れていることが分かる。この昇温遅れは加熱初期には非常に大きく、徐々に小さくなっていくものの、加熱開始8時間後でも明確な遅れが確認でき16時間後でも僅かな遅れが生じている。



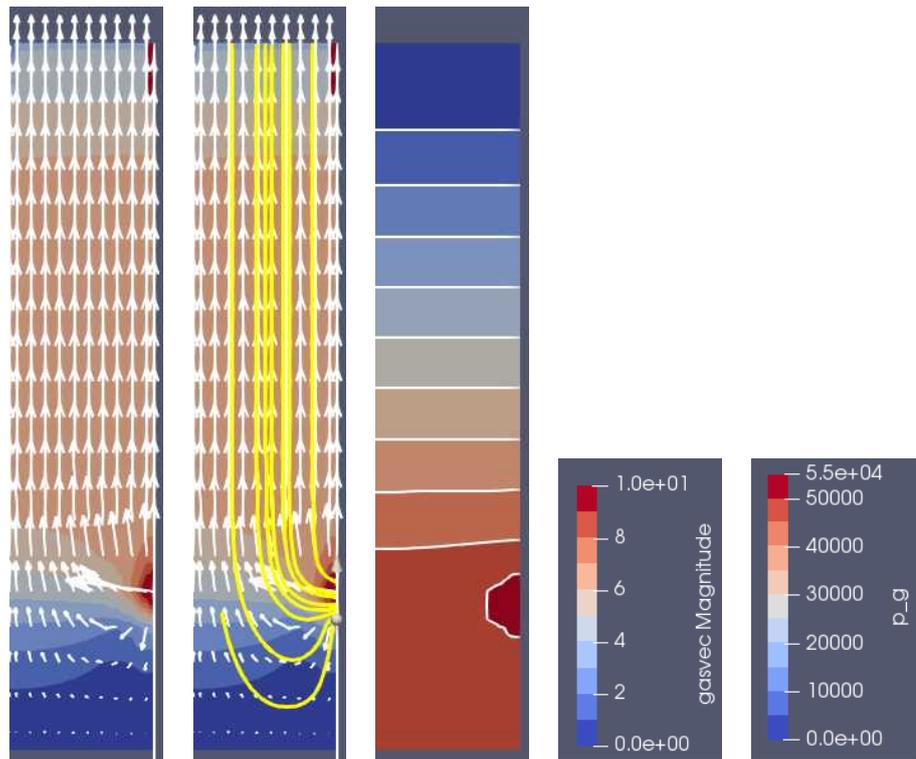
図①-3-2.1 窒素による移動層加熱挙動



図①-3-2.1 窒素による移動層加熱挙動 (つづき)

移動層内のガス流れの挙動を図①-3-2.2に示す。図①-3-2.2 (a) は速度ベクトル、(b) は流線、(c) は圧力分布であり、(a) および (b) の背景色はガス流速である。羽口から吹き込まれたガスは羽口の直前では高速を保つが、急激に速度を低下させながら上下・左右 (図では奥行方向) に分散する。炉底部へ向かうガスは炉底部で流動方向を中心軸方向に向け、更に中心軸付近で上方へと転換して炉上部へと向かう。シャフト上部では水辺断面内では均一な速度分布となる上方に向けた一方向流れを形成している。圧力分布は羽口前で局所的に高圧となっており、羽口よりも上部の領域ではほぼ水平で等間隔な等圧面が形成されている。

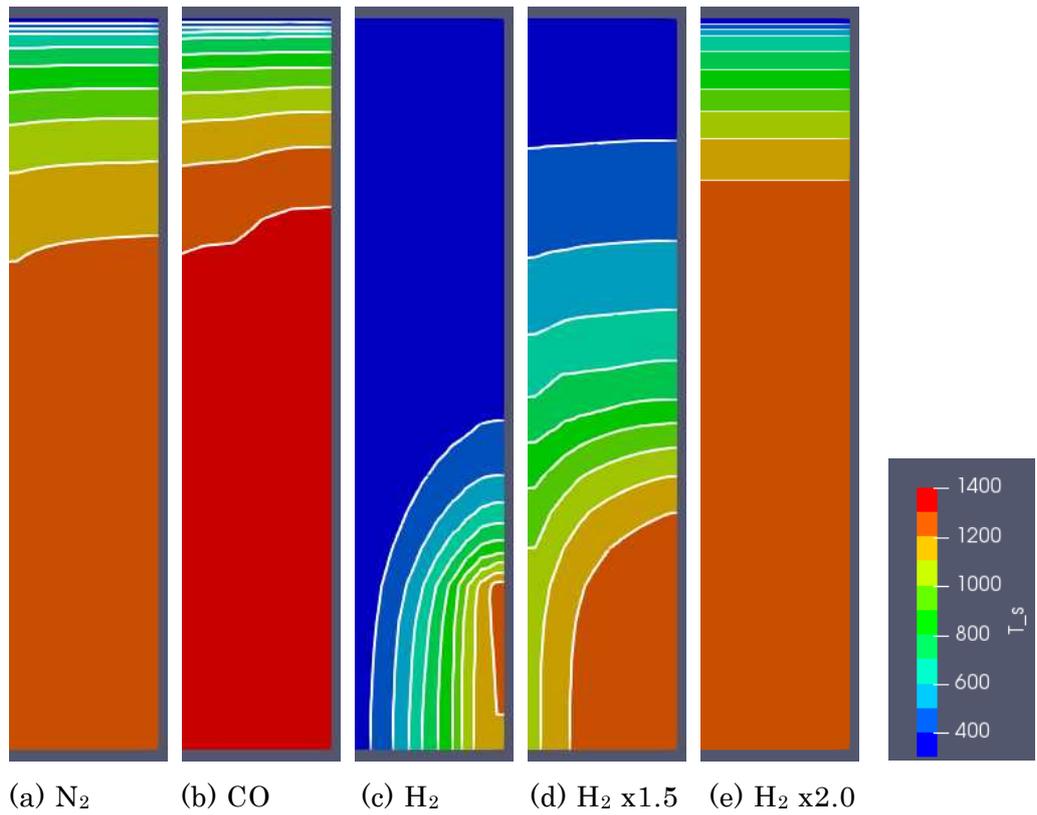
充填層内では不規則形状の空隙を通過する際にガスの分散が生じるものの、巨視的には流線をまたぐ物質の移動は生じない。従って、シャフト中心軸付近を流通するガスは、スリット状羽口から炉底部を巡回して中心軸付近に到達したガスのみで構成される。従ってこの経路に吸熱源があれば中心軸付近の昇温遅れにつながる。吸熱反応である水素還元炉の炉底部における進行は温度およびガス組成に加えて、未還元酸化鉄料にも影響を受けるため、シャフト炉全体を対象とした多次元解析による検討が重要になる。



(a) 速度ベクトル (b) 流線 (c) 圧力

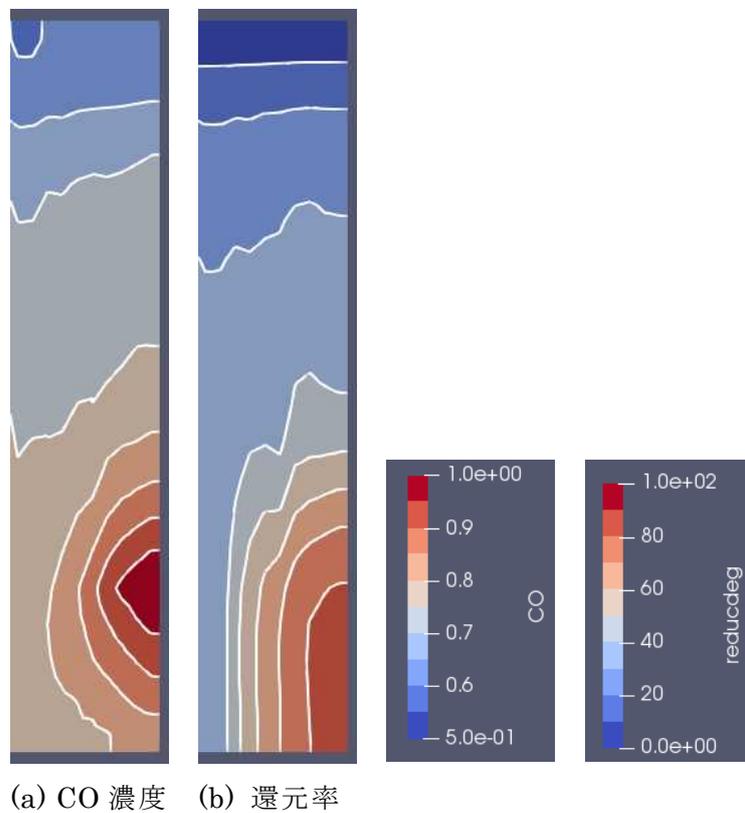
図①-3-2.2 シャフト炉内ガス流動特性

吹き込みガス種を CO および  $H_2$  とした場合の吹き込み開始 16 時間後の炉内温度分布を比較して図 ①-3-2.3 に示す。(a) は窒素吹き込みの場合であり、図 ①-3-2.1 (i) と同じものである。(b) および (c) は吹き込みガス量を (a) と同じに保ったままガス種を、それぞれ CO および  $H_2$  に変更した条件である。CO 吹き込みを行った場合には生じる還元反応は発熱であり、炉内での還元進行により炉内温度は  $N_2$  吹き込みの条件と比較して上昇している。(c) の水素吹き込み条件では、羽口前で生じる還元反応により気流温度が低下するため、シャフト炉上部への熱供給が停滞し、大きな昇温遅れが生じている。一方、濾過部では、羽口前では吹き込み水素の顕熱により装入物が加熱され、この加熱された装入物が露呈部方向に移動するため、炉壁付近のみで局所的な温度上昇が見られる。一方、この高音部分では還元反応が生じて流通するガス温度が低下するため、炉底部を中心軸方向に流通するガス温度は大きく低下し、炉底部であっても中心軸付近は低温のままとなっている。すなわち本条件は、水素還元による吸熱を保證するだけの吹き込みガスの顕熱供給が不足していることを示している。そこで、ガス供給量を 1.5 および 2.0 倍に増加させた条件での温度分布を、それぞれ (d) および (e) に示す。ガス量を 1.5 倍とした (d) の条件では、シャフト上部の温度分布は、半径方向に均一となっているが、シャフト下部に向かうにつれて半径方向の温度差は拡大し、羽口よりも下の部分では中心軸付近に大きな昇温遅れが生じている。ガス流量を 2.0 倍とした (e) では、装入物の昇温はシャフト上部で完了し、また半径方向の温度分布もほぼ均一となっており、還元による吸熱に対して十分な顕熱が供給されたことが分かる。



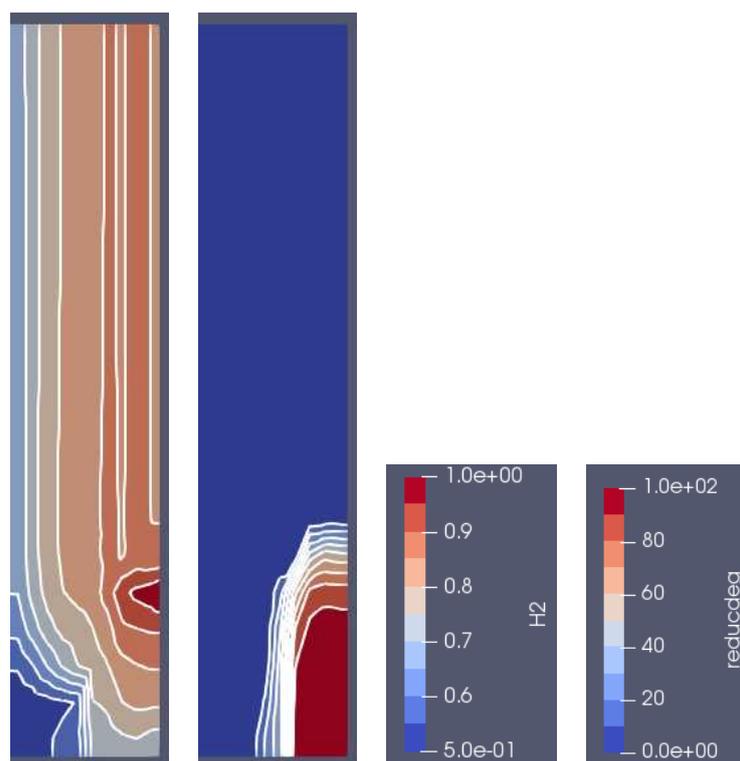
図①-3-2.3 吹き込みガス種によるシャフト炉内温度分布の比較

CO 吹き込み条件におけるシャフト炉内の CO 濃度および還元率の分布を図①-3-2.4 に示す。羽口から吹き込まれた CO は羽口近傍での還元の進行に伴い、急速に濃度が低下している。このため、シャフト上部では昇温が進んでいるにもかかわらず鉱石の還元は緩慢であった。



図①-3-2.4 CO 還元時のガス濃度分布および還元率

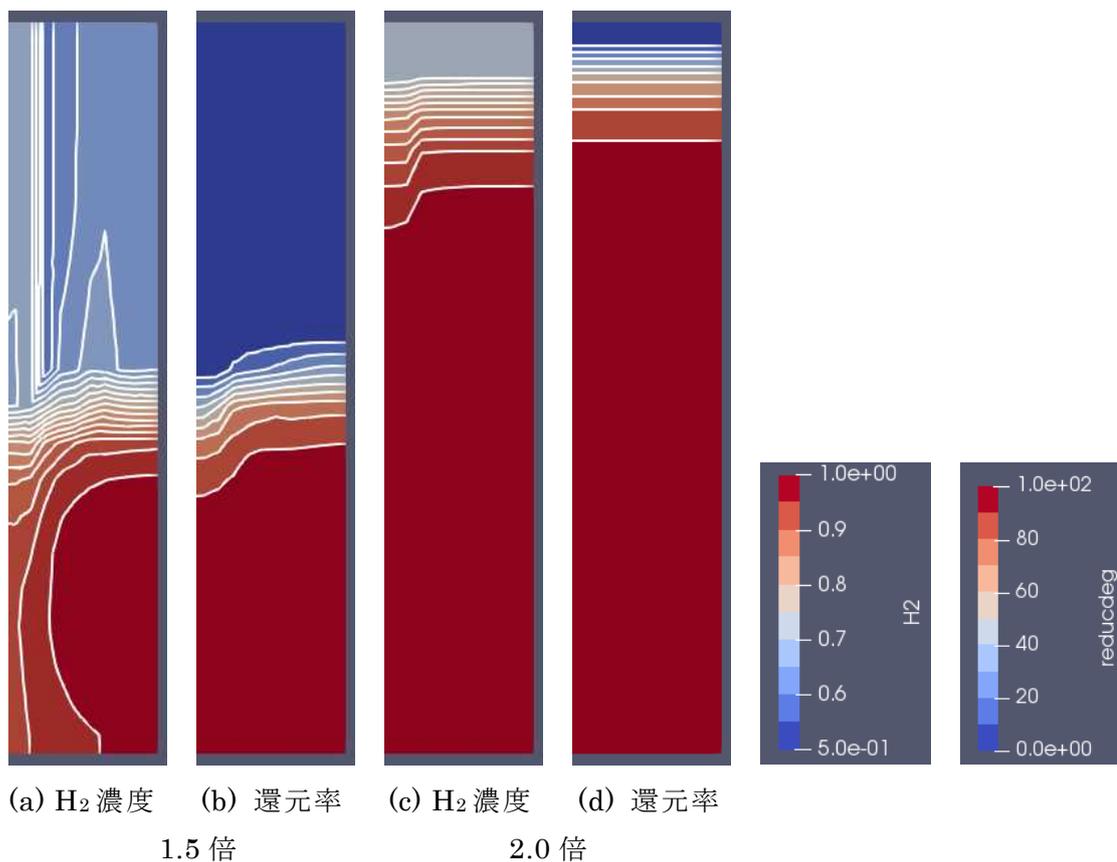
ガス流量を調整していない  $H_2$  吹き込み条件でのシャフト炉内  $H_2$  濃度および鉍石の還元率分布を図①-3-2.5 に示す。羽口近傍および炉底部では、 $H_2$  の分布は図①-3-2.4 に示した  $CO$  の分布と類似の傾向を示している。一方、大きく昇温の遅れたシャフト上部では、(b) に示した還元率分布が変化していないことから分かるように還元反応が生じていない。このため、シャフト上部ではガス濃度に変化せず、当濃度線は垂直となって、炉下部で形成された水平方向のガス濃度分布がシャフト頂部まで維持されている。一方、羽口近傍の形成された高温部では、高速な水素還元により還元率は高位に達している。



(a)  $H_2$  濃度 (b) 還元率

図①-3-2.5 水素吹き込み時のガス濃度および還元率分布

吹き込みガス量を 1.5 および 2.0 倍に増加させた条件におけるシャフト炉内の  $H_2$  濃度および還元率の分布を図①-3-2.6 に示す。これらの条件において、等還元率線は水平に、また短い間隔で描かれており、還元反応は半径方向にはおおよそ均一に、一方高さ方向にごく狭い領域で進行していることが分かる。1.5 倍の条件では、炉底部では半径方向に僅かなガス濃度分布が形成されているが、2.0 倍の条件ではシャフト上部で還元が進行してしまうこともあり、炉下部では反応は生じず、均一かつ高位な  $H_2$  濃度分布が形成されている。また、図①-3-2.3 に示したように、いずれの  $H_2$  吹き込み量の条件でも還元率変化の大きな部分で、急峻な温度分布が形成されており、炉内温度分布の形成に対する水素還元の影響が大きいことが分かる。

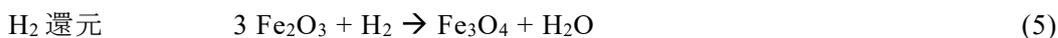
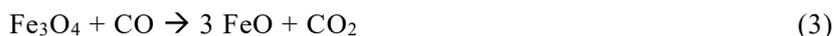
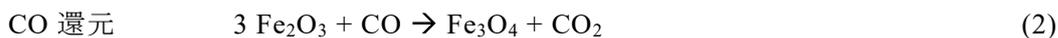


図①-3-2.6 ガス量を増加させた条件におけるシャフト炉内 H<sub>2</sub> 濃度および還元率分布

ii) 単一鉱石粒子内部の還元反応解析モデル開発

前項で示したように H<sub>2</sub> による酸化鉄の還元は CO による還元と比較して高速に進展する。前項で示したシミュレーションモデルも含めて、多くの還元プロセスのモデルでは反応モデルとして未反応核モデルの適用例が多いが、未反応核モデルでは未反応各表面での反応界面の形成が仮定されている。しかし H<sub>2</sub> による還元では、粒子内の固相組成分布が不明瞭になることの報告例があり、モデルの前提となる反応界面の形成と相容れない可能性がある。このため、鉱石粒子内の還元反応の進行を詳細に検討するための三次元非定常拡散反応モデルを構成した。

鉄鉱石は向流移動層型反応器であるシャフト炉内で還元ガスにより間接還元される。鉱石粒子内では還元ガスである CO および H<sub>2</sub> が粒子表面から拡散して酸化鉄と反応する。



これら拡散と反応の速度に応じて鉱石粒子内に固体および気体の濃度分布が形成され、この分布

に応じて反応速度分布が形成される。鉱石粒子内のガス拡散現象と反応を考慮可能な還元反応モデルの基礎式は三次元拡散方程式であり、式中に上記の反応速度を考慮している。

$$\frac{\partial C_j}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial x} \left( D_j \frac{\partial C_j}{\partial x} \right) + \frac{\partial}{\partial y} \left( D_j \frac{\partial C_j}{\partial y} \right) + \frac{\partial}{\partial z} \left( D_j \frac{\partial C_j}{\partial z} \right) - \sum_i R_{ij} \quad (8)$$

式中、 $j$  は気相中の目的成分、 $D_j$  はガス成分  $j$  の粒内有効拡散係数 [ $\text{m}^2 \text{s}^{-1}$ ]、 $R_{ij}$  は反応  $i$  によるガス成分  $j$  の反応速度 [ $\text{mol m}^{-3} \text{s}^{-1}$ ]、 $k_i$  および  $C_{jie}$  は反応  $i$  の粒内局所の反応速度定数 [ $\text{s}^{-1}$ ] および還元ガス平衡濃度 [ $\text{mol m}^{-3}$ ]、 $x_{ij}$  は反応  $i$  の局所固体反応物モル分率 [-]、 $k_i^o$  は反応  $i$  の反応速度定数 [ $\text{s}^{-1}$ ] である。反応速度および反応速度定数はそれぞれ次式で与えた。

$$R_{ij} = k_i (C_j - C_{jie}) \quad (9)$$

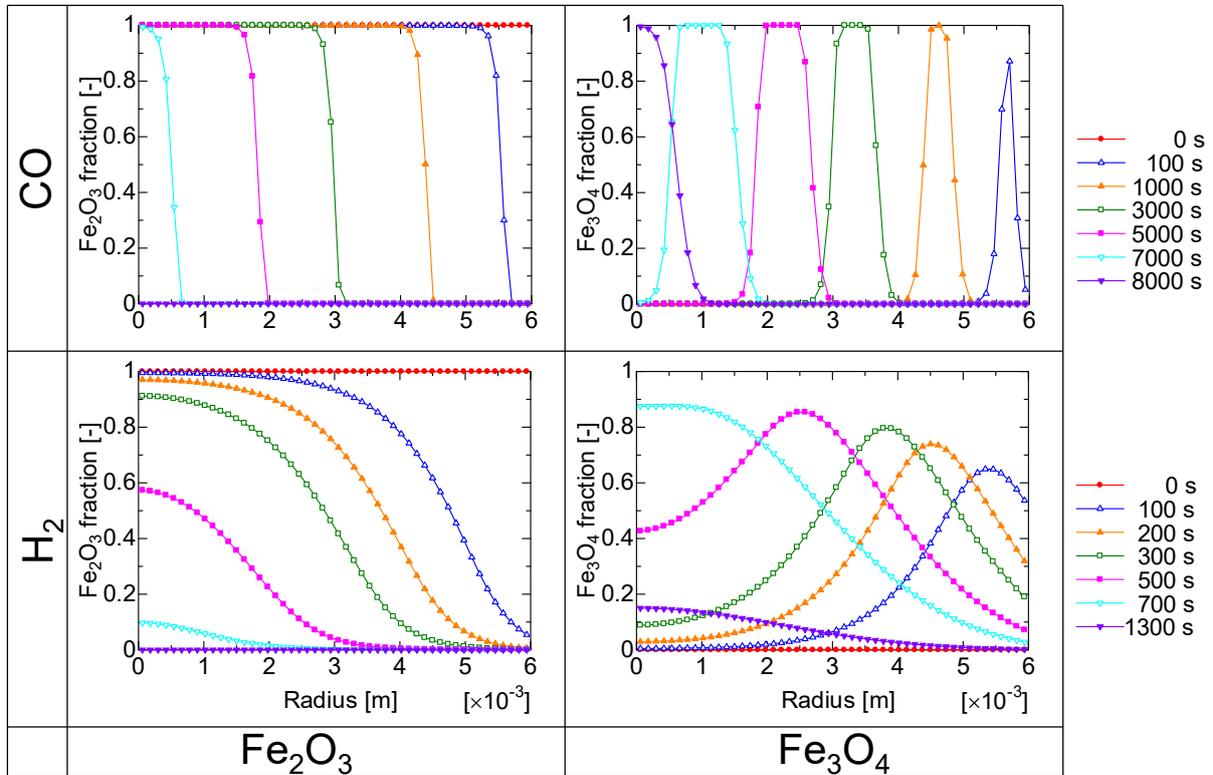
$$k_i = x_{ij} k_i^o \quad (10)$$

球形単一鉄鉱石粒子還元反応挙動の還元ガス種による違いを明らかにするため、CO ガス還元と  $\text{H}_2$  ガス還元のそれぞれの条件で還元反応解析を行った。CO ガス還元は  $\text{CO-CO}_2$  の 2 成分系、 $\text{H}_2$  ガス還元は  $\text{H}_2\text{-H}_2\text{O}$  の 2 成分系としている。温度は  $900^\circ\text{C}$  で一定とし、ガス濃度は高炉内気圧 2 atm、還元ガスモル分率 0.3 とし、モル濃度として  $6.23 \text{ mol m}^{-3}$  を設定した。尚、初期状態において、鉄鉱石粒子組成はすべて  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  であり、還元開始とともに鉄鉱石粒子の表面における還元ガス濃度を 0 から  $6.23 \text{ mol m}^{-3}$  にステップ状に変化させた尚、鉱石粒子の粒径は 12 mm とした。

図①-3-2.7 に上述の条件で還元を行った際の鉄鉱石粒内の  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  および  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  の含有率 (モル分率) 分布変化を示す。縦軸は各組成のモル分率、横軸は半径方向の粒子中心からの距離を示している。まず、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  分布変化より、0 s 時点では鉱石全体で  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  モル分率が 1.0 [-] であるが、100 s では鉱石表面付近で 0.0 [-] になっていることがわかる。また、鉱石表面から徐々に中心へ  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  モル分率が 0.0 [-] の範囲が広がっていることから、鉱石表面から中心へ還元が進行していることがわかる。 $\text{Fe}_3\text{O}_4$  分布変化では 0 s 時点で鉱石全体が  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  モル分率が 0.0 [-] であるが、100 s 時点で鉱石表面付近で  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  モル分率が増加している。しかし、100 s 時点で鉱石中心から 5.70 mm までの範囲では鉱石表面に近いほど  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  モル分率が大きい値であるのに対し、5.70 mm より鉱石表面側では表面に近いほど  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  モル分率が小さい。これは  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  から  $\text{FeO}$  への反応が生じているためである。また、1000 s 以降では  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  モル分率が 1.0 [-] に到達した後  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  モル分率の減少が開始しているが、100 s 時点で  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  モル分率が 1.0 [-] に到達する前に減少が開始している。これは  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  から  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  への還元反応と  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  から  $\text{FeO}$  への還元反応が同時に進行しているためである。

$\text{H}_2$  雰囲気中での還元を行った際の  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  の鉱石粒内モル分率分布の経時変化から、CO ガスによる還元と同様にどの時刻においても鉱石表面に近いほど  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  モル分率は低くなっていることが確認でき、鉱石表面から徐々に還元反応が進行していることがわかる。 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  のモル分率が 1.0 [-]

から 0.0 [-] の間で大きく分布が変化している範囲、つまり  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  から  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  への還元反応が生じている範囲の幅は 200 s 時点で 5.76 mm であり、900°C、CO ガス還元時に比べ非常に広く、鉄鉱石粒子内全域に近い領域にわたる。鉄鉱石粒子の 900°C における  $\text{H}_2$  ガス還元は粒内で均一に反応が進行する非トポケミカルな反応進行様式であることが示唆される。



図①-3-2.7 単一球形酸化鉄粒子内の半径方向組成分布

### ① - 3 - 3. シャフト炉方式の概念設計のための基礎検討とロードマップ作成

#### (1) 研究開発の目的

日本における水素還元製鉄プロセスの開発に向けて、シャフト炉方式の実用化可能性を評価することを目的として、シャフト炉方式の技術の特徴と流動層方式など他の方式と比較した優位性について明らかにし、開発課題を明らかにする。また、実用化に向けたプロセスの概念設計に必要な基礎検討を行い、ロードマップ作成を行う。

#### (2) 研究開発の概要

シャフト炉方式の鉄鉱石還元に関する技術開発課題を整理した。まず基礎検討として、水素還元シャフト炉のボトルネックの一つと考えられる、水素還元の吸熱反応に対する熱補償技術を検討した。一次元非定常の数学モデルにより、還元ガス組成が炉内の温度・還元率分布に及ぼす影響を解析し、水素還元シャフト炉の課題を抽出した。

また、鉄鉱石塊成鉱の水素還元挙動の基礎実験を実施し、還元粉化やクラスタリング挙動を評価した。還元ガス組成や鉄鉱石塊成鉱の成分、粉率の影響を調査し、還元粉化とクラスタリングの基礎知見を習得した。

最後に、技術調査、数値計算及び実験による基礎検討の結果を合わせて、シャフト炉方式の技術開発に必要な開発項目と開発ステップをロードマップに整理した。

#### (3) 実験基礎検討及び技術調査の成果

技術調査及び数値計算と実験による基礎検討の成果を下記に示す。まず、シャフト炉方式の技術の特徴と開発課題を述べたのち、基礎検討の結果をまとめ、開発ロードマップを示す。

##### i) シャフト炉方式の技術の特徴と開発課題

シャフト炉方式の直接還元製鉄法は MIDREX®<sup>1)2)</sup>と ENERGIIRON®<sup>2)</sup>の 2 つが知られている。どちらも還元材として主に天然ガスが使用されており、最近では天然ガスから水素へ置換する水素還元プロセスの技術開発が推進されている、図①-3-3.1 に還元ガスとして水素を使用した場合の水素還元シャフト炉のイメージ図を示す。原料は 15mm 程度の酸化鉄ペレットや塊鉄石であり、シャフト炉の上部から装入される。還元材となる水素は加熱炉で昇温され、シャフト炉の下部から吹込まれる。原料と還元材はシャフト炉内で反対方向の流れで接触し、伝熱と還元反応が進行する。水素還元シャフト炉の技術課題は以下の A～C に整理される。

#### A 水素直接還元技術用原料の事前処理技術

現在、天然ガスベースのシャフト炉で実績のある鉄鉱石(DR ペレット)は世界鉄鉱石供給量の 5%以下である。一方、欧州で開発中の水素還元プロジェクトでは使用される鉄分が 67%以上の鉄鉱石は埋蔵量と生産量が限定的である。水素直接還元技術において低品位原料の利用技術を確立することで、資源自由度拡大と我が国の競争力確保が重要となる。長期的なターゲットとして、現在選鉱技術が確立されておらず、シャフト炉で使用実績が無いゲーサイト鉄石を対象に、単体分離や選鉱等の原料の前処理に関する基礎検証を実施し、将来的なシャフト炉への使用に向けた鉄分品位の改善手法の構築

が課題となる。

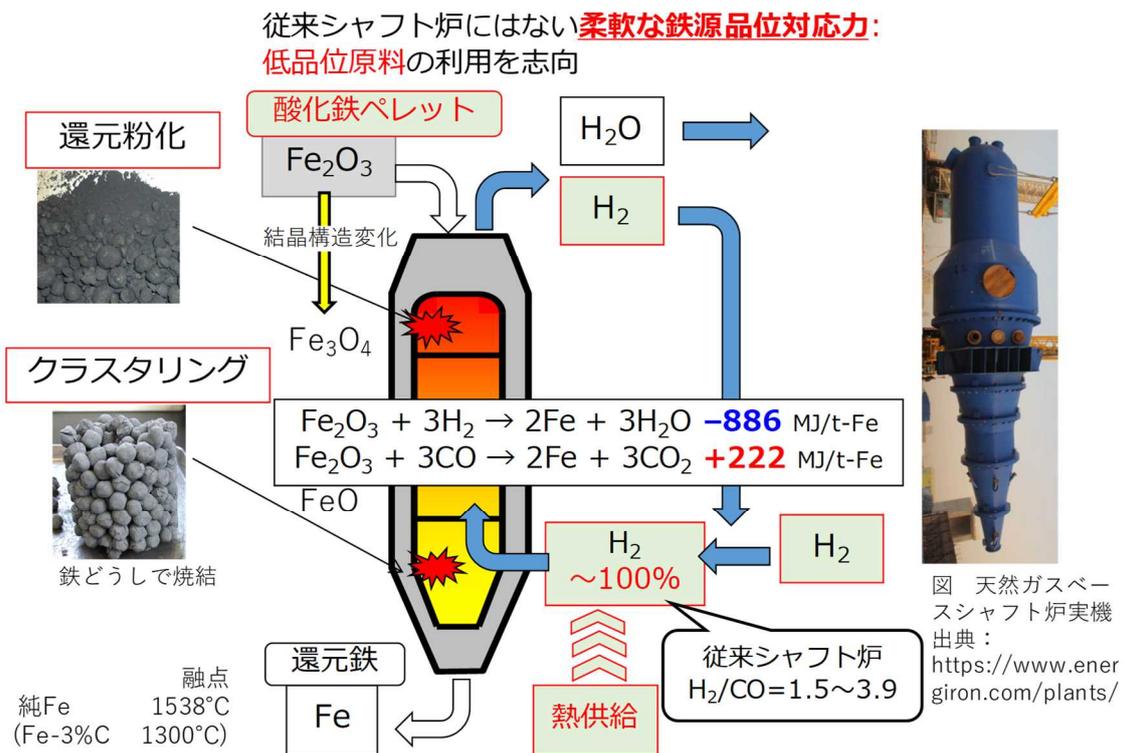
## B 水素還元シャフト炉技術の確立

水素還元シャフト炉を実証するためには、「水素の吸熱反応を補償する熱供給技術」、「還元粉化とクラスタリングの抑制技術」が課題である。ガス（熱媒体含む）・固体双方からの熱供給により、水素還元に伴う吸熱を補償し、炉熱を上昇させることで、還元反応を促進させる必要がある。また、同時に低温領域の改善による還元粉化の抑制とクラスタリングの回避条件の明確化が必要となる。

さらに、水素還元シャフト炉のスケールアップ時には、壁側から吹込んだ還元ガスが中心部まで到達せず、炉内の昇温および還元反応が遅れることが懸念される。中心部へも効率的に還元ガスと熱を供給できないと、安定した還元鉄の生産が阻害される。また、シャフト炉の容積が大きくなると炉内の充填物に加わる荷重が増加するため、還元粉化やクラスタリングが助長される懸念がある。

## C 還元鉄の品質改善

100%水素直接還元では、還元鉄のC濃度が低下するため、原料のSiO<sub>2</sub>濃度が上昇するとさらに還元鉄の融点が増加し、電炉での溶解・精錬負荷が増加する。シャフト炉下部のガス冷却領域における加炭反応の進行や、原料の成分調整により、溶解・精錬負荷の低減が重要な開発課題となる。



図①-3-3.1 水素還元シャフト炉のイメージ図

### ii) 水素の吸熱反応を補償する熱供給技術

100%H<sub>2</sub> シャフト炉還元プロセスについて、既存のシャフト炉操業との特徴的差異と想定される課題を明らかにすべく、1次元数学モデルを用いて、還元ガス組成および送風温度がシャフト炉操業に及ぼす影響を整理した。数学モデルで考慮している炉内反応を表①-3-3.1 に示す。炉体は表①-3-3.2 に

示す通り、円筒形で断熱を仮定した。検討は、還元ガス組成（ $H_2/CO$  比）および送風温度を変えながら、成品還元率が 100%を確保できる最小のガス原単位を求める形で進めた。原料および送風条件は表①-3-3.3、表①-3-3.4 にそれぞれ示す。

表①-3-3.1 シャフト炉内反応

	反応式	反応熱 (J/反応式)
1	$3Fe_2O_3 + H_2 \rightarrow 2Fe_3O_4 + H_2O$	11591
2	$Fe_3O_4 + H_2 \rightarrow 3FeO + H_2O$	-77571
3	$FeO + H_2 \rightarrow Fe + H_2O$	-23990
4	$3Fe_2O_3 + CO \rightarrow 2Fe_3O_4 + CO_2$	52287
5	$Fe_3O_4 + CO \rightarrow 3FeO + CO_2$	-36456
6	$FeO + CO \rightarrow Fe + CO_2$	17125
7	$H_2 + CO_2 \rightleftharpoons H_2O + CO$	-41115

表①-3-3.2 炉体条件

炉高（還元炉）	5.0 m	炉体熱損失なし
炉内径	6.0 m	

表①-3-3.3 原料条件

$Fe_2O_3$ (wt%)	$Fe_3O_4$	$FeO$	M・Fe	T・Fe (wt%)	粒径 (mm)
92.3	2.1	0	0	65.9	10.5

表①-3-3.4 操業条件

送風温度	800℃ 900℃ 1000℃	還元ガス 原単位	成品還元率 100%を 確保できる下限値
$H_2/CO$ 比	100/0 80/20 66/33	炉頂圧	常圧

解析結果より①ガス組成によらず、送風温度が高いほど還元ガス原単位は減少し、②送風温度によらず、還元ガスの  $H_2/CO$  比が低いほど、少ない還元ガス原単位で還元率 100%の還元鉄を製造できることが分かる。このような傾向が現れる原因は、CO による還元が発熱を伴う反応であるのに対し、 $H_2$  による還元が著しい吸熱を伴う反応である点にある。

還元ガス組成およびガス温度のシャフト炉操業に及ぼす影響を投入顕熱の消費内訳で整理した。 $H_2$  比率の高い還元ガスを使用するほど還元鉄製造に必要な熱量は増加しているが、その内訳を確認すると、①還元反応熱を賄う分と ②炉頂ガスの持ち出し熱量の増加がその要因である。すなわち、①は還元反応が  $H_2$  還元主体に移行するためであり、②は①で必要となる熱量が還元ガスの持ち込み顕熱で賄われるため、送風温度一定の条件ではガス原単位を増やさざるを得ず、結果として、ガス量原単位の増加に伴って炉頂ガス持ち出し顕熱も増加するのである。

一方、成品 DRI の温度は還元ガスの送風温度に概ね一致するため、③成品 DRI の持ち出し顕熱は送風温度にのみに依存し高温送風ほど大きくなる。ここで注目すべきは、④100% $H_2$  送風の場合、送風温度を高めるほど投入顕熱量はむしろ減少する点である。このような特徴は  $H_2/CO$  比が 80/20、66/33 である商用シャフトの代表的操業範囲に相当には現れておらず、100% $H_2$  の還元鉄製造の熱効率がいかに悪いかが理解できる。

還元ガス送風条件と炉頂ガス利用率の関係を解析した。送風温度が高いほど、また②還元ガスの  $H_2/CO$  比が低いほど、炉頂ガス利用率は向上している。還元鉄 1 トン（還元率 100%）を製造するのに必要還元反応量（換言すれば、脱酸素量）は同じであるから、この傾向はガス原単位の変化と裏腹の関係にあると理解される。

100% $H_2$  還元ガスで操業した場合の炉内状態を解析した。羽口から上方に向かって還元は急速に進

行する一方でガス温度も急速に降下して  $\text{FeO}/\text{Fe}_3\text{O}_4$  還元平衡温度に達したところで反応は一旦停滞している。還元平衡図上での炉内ガスの状態変化から、還元の進行とともに急速な温度降下が生ずる理由は、表①-3-3.1 に示す通り  $\text{H}_2$  による  $\text{FeO} \rightarrow \text{Fe}_3\text{O}_4$  元が著しい吸熱反応である点にある。一方、 $\text{H}_2/\text{CO} = 66/33$  還元ガスで操業した場合（商用シャフトの代表的操業範囲に相当）の炉内状態分布では、 $\text{CO}$  ガス還元が併行する状況下においては、上述の現象が多少緩和されるものの同様の挙動が現れていることは見て取れる。このように  $\text{H}_2$  ガス主体で酸化鉄還元を行う場合、 $\text{H}_2$  の  $\text{FeO}/\text{Fe}_3\text{O}_4$  還元平衡に起因する温度（化学）保存帯が炉内  $600^\circ\text{C}$  付近に現れる点が特徴と言え  $\text{CO}$  ガス還元主体の高炉操業における高温熱保存帯の存在と対照的である。

商用シャフトの代表的操業範囲に相当する  $\text{H}_2/\text{CO}$  比 =  $80/20 \sim 66/33$  の場合に比較して、 $\text{H}_2$  ガス 100%還元の場合は、操業効率が熱供給で律速されるため、単純に考えれば、過剰な還元  $\text{H}_2$  ガス原単位、または苛烈な送風温度で操業せざるを得なくなるが、特に後者においては、高温送風に伴うステイキング現象の発生が懸念されるほか、高温  $\text{H}_2$  を扱うことに伴う設備・安全上のリスクも懸念される。要するに、 $\text{H}_2$  ガス 100%還元プロセスにおける最大の技術的課題は、還元に必要な熱を効果的に賄う点にある。

#### iii) 高水素雰囲気下における還元粉化挙動

シャフト炉方式の課題の一つである高水素雰囲気下における還元粉化挙動の基礎検証を実施した。還元粉化とはシャフト炉内で酸化鉄原料が  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  から  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  へ還元される過程で粒子内に亀裂が形成し、炉内を原料が降下する衝撃で粉化する現象である。主にシャフト炉の上部の低温領域で発生し、シャフト炉内の原料の安定した荷下りを阻害する要因となる。

酸化鉄ペレットおよび焼結鉱の還元粉化挙動は  $\text{CO}$  ガス還元に比べて、 $\text{H}_2$  還元時、 $\text{H}_2\text{-CO}$  混合還元時に還元粉化量（RDI）が上昇することが知られている<sup>3)</sup>。 $\text{H}_2$  還元よりは  $\text{CO}$  還元よりも亀裂生成量が多く、ガス組成によっては還元粉化しにくいペレットもシャフト炉内で還元粉化することが懸念される。さらに、前項の基礎検討結果より、水素還元シャフト炉は還元粉化が発生しやすい  $550^\circ\text{C}$  前後の低温領域が発生しやすく、還元粉化の抑制は重要な課題と考えられる。一方、酸化鉄ペレットの還元粉化挙動に及ぼす還元温度の影響に関する知見はあまり知られていない。

そこで、 $450 \sim 650^\circ\text{C}$  の範囲で  $30\% \text{H}_2\text{-}70\% \text{N}_2$  における酸化鉄ペレットの還元粉化挙動を評価した。試料は塩基度 ( $\text{CaO}/\text{SiO}_2$ ) が約 0.1 および 1.0 の市販ペレット A、B をそれぞれ使用した。図 9,10 にペレット A、B の両者とも還元反応が進行するにつれて RDI は上昇する。一方、同一還元率においては、還元温度が高いほど RDI が低い。これは、シャフト炉の低温熱保存帯の温度制御が重要であることを示唆している。

#### iv) 高水素雰囲気下におけるクラスタリング挙動

シャフト炉方式の課題の一つである高水素雰囲気下におけるクラスタリング挙動の基礎検証を実施した。クラスタリングとはシャフト炉内で還元されたペレット同士が固着し、塊状のクラスタを形成する現象である。主にシャフト炉の下部の高温領域で発生し、シャフト炉内の原料の安定した荷下りを阻害する要因となる。

本試験では還元試験中のペレットに荷重をかけ、クラスタリングを再現した。試料は塩基度約 1.0

の高炉用ペレットを 10~15mm に篩分けして使用した。固体還元プロセスを模擬した温度・ガス組成条件でペレットに荷重をかけ、クラスタリングを再現した。試験は ISO11256 のクラスタリング試験方法(以下、ISO 試験)<sup>3)</sup>に準じ、試料層厚及び還元ガスの空塔流速が同一になる様に試料重量及び還元ガス流量を修正した。試料 300g (※ISO 試験は 2000g)をまず、N<sub>2</sub> ガス 3NL/min を送風しながら 10°C/min で 850°Cまで昇温し、温度が安定した段階で還元ガス 6NL/min に切り替え、無荷重で 0~180min 還元した。その後、N<sub>2</sub> ガス 3NL/min に切り替えると同時にロードセルにより 147kPa で 60min 圧下した。また、還元ガス組成とクラスタリングの関係を評価するため、H<sub>2</sub>、CO、CO<sub>2</sub> の混合ガスによる 9 水準の還元ガス組成にて評価を行った。尚、水準 1 は ISO11256 : クラスタリング試験のガス組成である。還元後の試料はペレット同士が固着してクラスタ化している。クラスタ強度を測定するため、ISO 試験に準じて、円筒状のタンブラー容器にて 30rpm で 5~35 回転の回転試験を実施した。試験前後の重量変化から脱酸素量を測定し、試料の還元率還元率 を算出した。また、式(1)より時間 t 後の収縮率 SR(t)を、式(2)により n 回転後のクラスタリング指数 CI<sub>n</sub> を算出した。

$$SR(t)(\%) = \frac{h_{ini} - h(t)}{h_{ini}} \times 100 \dots (1)$$

$$CI_n(\%) = \frac{m_n}{m_r} \times 100 \dots (2)$$

回転数 n が低位な CI<sub>5</sub> は比較的初期にできる低強度なクラスタを、n が高位な CI<sub>35</sub> は炉下部又は送風羽口付近の高強度なクラスタを模擬していると考えられる。CI<sub>5</sub> 及び CI<sub>35</sub> は還元時間の増大により高位に推移したが、還元ガス組成によりその挙動は異なった。

試験中の還元率還元率 及び収縮率 SR(t)の推移を確認すると、還元時間=0min において、SR(t)=-2%と負の値となったのは、昇温による熱膨張と推定される。また、還元率と収縮率とも還元時間の増大により上昇するが、水準 2 及び水準 3 は還元時間が増大してもあまり収縮率に変化がなかった。これは、両者の還元ガス組成が CO<sub>2</sub>=30%と高 CO<sub>2</sub> 濃度であるため、還元反応の平衡制約により金属鉄の生成反応が進行しなかった、或いは進行しても微量であったことが原因と推定される。

還元率 と SR(t)の関係を整理した。還元率=0~30%では SR(t)=-2%で一定であり、還元率>30%前後より SR が増大した。理論的には還元率=33%より金属鉄の生成が開始することから、金属鉄の生成により SR(t)が増大したと想定される。また、還元率 と CI<sub>5</sub> の両者は良い相関関係を示した。一方、還元率=40~60%の金属鉄が生成し始める段階において、高 H<sub>2</sub> 濃度に比べて、高 CO 濃度の水準の方が同還元率 において CI<sub>5</sub> が高位となった。

金属化鉄の生成が開始し始める還元率=40%の断面組織観察を実施した。(a)は高 H<sub>2</sub> 濃度[水準 4(○)、還元時間 60min]、(b)は高 CO 濃度[水準 5(●)、還元時間 120min]の断面組織である。高 H<sub>2</sub> 濃度の(a)中の試料表面から中心にかけて金属鉄とウスタイトの混合組織であり、非トポケミカル反応にて還元が進行していた。一方、高 CO 濃度の(b)は試料表面から同心円状に反応が進行するトポケミカル反応にて還元が進行し、試料表面に金属鉄の緻密層が確認できた。試料表面に金属鉄が緻密に析出した方がクラスタ強度は増大した。これは粒子内へのガス拡散速度よりも還元反応速度が高位であり、表

面に緻密な金属鉄が生成することで、圧下による金属鉄の収縮の際に、焼結の起点となる試料同士の接触面積が増大しやすかったことが原因だと推定される。また、還元率=80%以上ではガス組成によらず  $Cl_2$  は同程度になった。これは、高還元率 では反応様式によらず、試料表面においては金属鉄までの還元が完了していることが原因だと推定される。例えば、CO 濃度や炉内温度が高位、またはガス酸化度が低位な炉内状況では、ガス拡散係数が還元力に比して低位になり、還元反応の反応様式が変化し、表面に Fe の緻密層が生成しやすくなる。結果として、還元率=40%の低還元率時においてもクラスタリングが生成し、炉内の物流停滞を引き起こす可能性があることを示唆している。

固体還元プロセスの重要な課題の一つであるペレットのクラスタリング挙動の調査とその抑制技術の開発を目指し、その基礎検討として還元率及び還元ガス組成の関係を評価した。その結果、ペレットの収縮は金属鉄の生成により助長されること、成品ペレットの還元率はペレットの収縮率やクラスター強度と線形の関係があることが明らかとなった。また、ペレットの還元率が約 40~60%においては、高  $H_2$  濃度における還元比べて、高 CO 濃度における還元はクラスター強度が増大した。これは高 CO 濃度による還元は反応様式がトポケミカルになることで、試料が収縮する際に、接触面積が増大したためだと推定される。今後はペレット品質やクラスタリングの抑制が期待されるコーティング技術の評価を行っていく。

#### (4) 結論

以上、本研究開発項目において実施した技術調査、実験および数値計算による基礎検討及び得られた結論より、シャフト炉方式の水素還元プロセスの技術課題を以下のように整理した。

##### <低品位原料の利用技術>

- ・強度/還元粉化性悪化による炉内粉発生対策
- ・スラグ量増大による溶解/製錬工程の負荷増大

##### <水素還元シャフト炉技術>

- ・水素の吸熱反応を補償する熱供給（低温化による所用ガス量（=熱供給量）上昇）
- ・還元粉化とクラスタリングの抑制技術（低温領域拡大による還元粉化の助長、炉内粉に起因するクラスタリングの発生）
- ・スケールアップ課題（中心部の昇温/還元遅れの発生）

##### <還元鉄の品質(溶解性)改善技術>

- ・C 濃度低下による溶解/製錬工程の負荷増大
- ・低品位原料使用時は還元鉄の成型性の悪化も懸念

#### (5) シャフト炉方式の開発ロードマップ

以上に整理した技術開発課題と数値シミュレーション及び実験による基礎検討の結果から、シャフト炉方式の鉄鉱石塊成鉄の還元プロセス開発の開発項目、開発ステップおよび開発スケジュールを図



## モデル、水素還元その場観察装置、HBI成型機

### ・フェーズ2（パイロット試験）：

フェーズ2として、パイロットプラント試験機にて基本操業条件の探索、フェーズ1で得られた知見の反映と検証を行う。ベンチ試験の検討結果をもとに、実証プラントの設計を行うとともに、基本操業条件を決定し、以降のスケールアップにおける課題を抽出する。

[必要な技術／設備] パイロットプラント試験機、シミュレーション技術

### ・フェーズ3（実証試験）：

フェーズ3として、実証プラントにて操業条件最適化を行う。さらなるスケールアップに向けた操業制御課題を抽出し、構造改良やモニタリング技術検討、スケールアップ課題抽出を行う。

[必要な技術／設備] 実証プラント、シミュレーション技術

### ・フェーズ4（商用化、大量生産）：

フェーズ4として、シャフト炉方式の水素還元プロセスの普及に向けた更なる鉄分品位の緩和や操業緒言の改善、量産、低コスト化技術の開発を推進する。

[必要な技術／設備] 実機スケール設備

## 参考文献

- 1) Dr. Vincent CHEVRIER・Lauren LORRAINE・Haruyasu MICHISHITA: 神戸製鋼技報, 70(2020), 81.
- 2) 有山達郎: 鉄と鋼, 105(2019), 567.
- 3) Moritoshi Mizutani, Tsunehisa Nishimura, Takashi Orimoto, Kenichi Higuchi, Seiji Nomura, Koji Saito, Eiki Kasai: ISIJ International, 57(2017), 1499
- 4) ISO 11256:2015, Iron ore pellets for shaft direct-reduction feedstocks — Determination of the clustering index
- 5) MIDREX: 2020 WORLD DIRECT REDUCTION STATISTICS

## ①-4 流動層に関わる技術調査および開発ロードマップの作成

### ①-4-1 流動層に関するボトルネック課題調査-1

文献調査をベースとするボトルネック課題の抽出

#### (1) 研究開発の目的と目標

現状の製鉄原料は粉状鉄鉱石が主流であり、鉄鉱石の還元は気固系反応が主であり、反応器としては移動層や流動層が適用される。シャフト炉に代表される移動層反応器では、還元ガスと鉄鉱石の円滑な接触を得るために鉄鉱石の塊成化処理が必要である。一方、流動層反応器は、塊成化処理を省略可能であり、粉状鉄鉱石を直接利用できる点でエネルギー的には優位である。しかし、反応器内での流動・混合現象により移動層に比べて滞留時間分布が大きく、必要な平均滞留時間が大きくなり易く、多段化・多塔化といった複雑な設備構成が求められ、商業規模の還元鉄製造が汎用される状況には至っていない。従来の主としてCO還元での還元鉄製造プロセスにおいては、スティッキングやシンタリングと呼ばれる『流動化不能現象』が流動層還元のボトルネック課題とされてきた。本研究では、H<sub>2</sub>還元時においても本課題現象が依然としてボトルネックとなるのか、他にボトルネック課題があるのかを明らかにすることが目的である。更にボトルネック課題に対する流動層操作に関する要素技術の有無を広く調査し、開発すべき技術対象を明確にすることが目標である。

#### (2) 研究開発の内容

公表技術論文、特許、web情報等を主な情報ソースとする技術文献調査によって、鉄鉱石の流動層水素還元のスティック等々のボトルネック課題を整理するとともに、それに対応する流動層操作の要素技術の有無を確認し、現状での操作技術の適用可能な操業条件の抽出を図る。

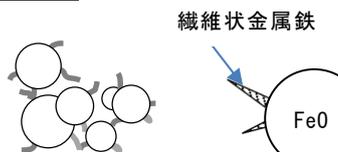
第一ステップとして、流動層還元プロセスの開発の過去から現在までの歴史から課題を整理し、水素還元におけるボトルネック課題について整理する。第二ステップとしては、既往要素技術からボトルネック課題への対策を抽出し、次いで抽出課題・要素技術についてのプロセス設計課題明確化に資する操業対応可能条件を抽出する。

#### (3) 研究成果と考察

##### i) 従来の流動層還元プロセスにおけるボトルネック課題

『流動化不能現象』としてのスティッキングおよびシンタリングは、還元過程で生成する金属鉄の形態に起因する流動層内での鉄鉱石粒子群の結合発展が原因であり、金属鉄形態が繊維状の場合をスティッキング、膜状の場合をシンタリングと定義(図①-4-1.1)し、流動化不能現象の発生機構についての検討結果が報告されている<sup>1)</sup>。

##### ①低還元率で発生



(繊維状突起の機械的作用による)スティッキング

##### ②高還元率で発生



(粒子表面の固相拡散接合による)シンタリング

図①-4-1.1 流動層還元過程における流動化不能現象の原因としての生成金属鉄形態<sup>1)</sup>

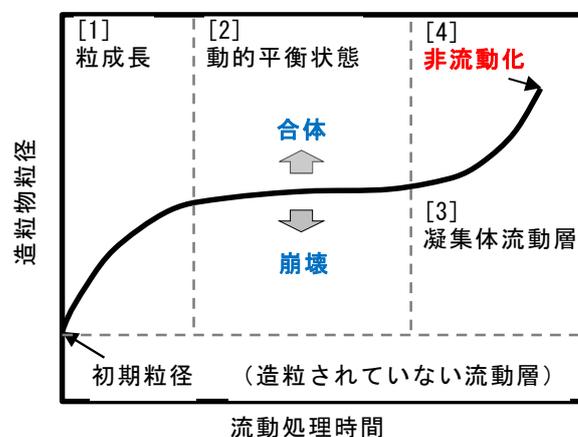
繊維状または膜状の金属鉄形態を呈するかは、Nicolleらの $Fe^{2+}$ 過飽和の理論<sup>2)</sup>で説明される。 $FeO$ からの還元時の還元速度と $FeO$ 相での $Fe^{2+}$ （鉄の2価イオン）の拡散速度、金属鉄が析出する臨界 $Fe^{2+}$ 濃度によって定まる $Fe^{2+}$ 過飽和領域が大きいと繊維状、小さいと膜状となることが示されている。

回分式流動層還元実験において、繊維状金属鉄が生じた粒子同士は、その機械的絡み合いによって低還元率から結合し粒子群（クラスター）を形成、粒子群の成長により急激に流動不能に至っている<sup>1)</sup>。膜状金属鉄の場合は、繊維状金属鉄の様な機械的結合作用を持たないので、粒子間結合が起こりにくく、粒子間接点で固相拡散接合が生成するまで粒子群の成長は起こらない。したがって、流動不能は比較的高い還元率で生じる。また、含有脈石（ $SiO_2$ 、 $Al_2O_3$  等）の存在は、粒子表面の粒子間接点での拡散接合を阻害し、流動化不能を抑制し得る<sup>1)</sup>。

これらの実験結果から、繊維状金属鉄が生成しない鉄鉱石では低還元率での流動化不能「スティッキング」を生じない。更に脈石の接合阻害により高還元率での流動化不能「シンタリング」も起こし難いことが示されている<sup>1)</sup>。

スティッキング発生と鉄鉱石成分関係において、接点接合阻害作用に加えて還元速度を介した繊維状金属鉄の生成抑制作用が考えられる。繊維状金属鉄の生成に関して林ら<sup>3)</sup>がガス状Sの影響を報告しているが、流動層還元の条件下では明瞭な作用は認められていない。 $Al_2O_3$ は明瞭な作用が認められるが、 $Al_2O_3$ によって $FeO$ 中に生成するHersiniteが $FeO$ の還元を促進する<sup>4)</sup>ことにより過飽和領域を低減したため、スティッキングが回避されたものと推察される<sup>1)</sup>。

結合粒子群と部分流動化の進展とシンタリングに対する操作流速の関係について、脈石の接合阻害作用を除外したアトマイズ鉄粉を用いた実験が実施されている。回分式流動層に鉄粉を投入後、流動層差圧は時間に比例して低下し、最終的には急激な低下を示し流動化不能に陥る状況が示されている<sup>1)</sup>。この初期差圧との差異が部分流動化によるものであり、その差圧変化速度は結合粒子の成長、即ちシンタリングの進展を表しているが、シンタリング速度は操作温度が高い程大きく、操作流速が大きい程小さいことが示されている<sup>1)</sup>。関口らの凝集モデル<sup>5)</sup>によれば、流動層内部において粒子の凝集作用と崩壊作用が平衡して、凝集体の流動層の形成できると考えられる（図①-4-1.2）。操作温度低下や不活性粒子添加による凝集作用低減ならびに操作流速アップによる崩壊作用増大によつての平衡点を高く維持することでスティッキングおよびシンタリングは抑制し得る可能性が示されている。



図①-4-1.2 流動層内での結合粒子群の成長モデルによる非流動化の説明<sup>1)</sup>

ii) 流動層還元プロセスの特徴

文献調査より、流動層による還元鉄製造プロセスと熔融還元製鉄法の予備還元で流動層に関わるプロセスを各々24と8の合計32件を抽出した。プロセスの一覧を表①-4-1.1 および表①-4-1.2 に示す。

表①-4-1.1 流動層による還元鉄製造プロセス

No	プロセス名	No	プロセス名
1	H-Iron	13	富国石油式(天然ガス低温還元製鉄)
2	Nu-Iron(Shipley)	14	Oxley(塩化揮発還元)
3	HIB	15	プリバロフ・ボコビイコフ
4	Esso-Little	16	日産化学法
5	FIOR	17	金材研法
6	Stelling	18	Co-C-Eisen
7	Onia-Novalfer	19	KKI(神戸製鋼所・興亜石油・出光興産)
8	八幡東研法(日本製鉄)	20	FINMET
9	Battelle	21	Iron Carbide
10	Flash Steel	22	Circored
11	Golleisen	23	FINEX
12	NF式(中島式)	24	Primetal法

表①-4-1.2 熔融還元製鉄の流動層予備還元プロセス

No	プロセス名
1	Elred
2	XR(JFE:旧川崎製鉄)
3	KR
4	Plasmasmelt
5	CIG
6	KFR(神戸製鋼所)
7	DIOS
8	新日鉄 CFB(日本製鉄)

表①-4-1.1、表①-4-1.2 のプロセスについて、開発時期、還元ガス、流動層温度、操作圧力等の特徴で以下に分類した。

ii-1) 開発時期

各プロセスの開発時期を表①-4-1.3 に示す。1960年代以前は米国、日本、オーストリア、旧西ドイツ、フランス、旧ソ連等において様々な直接還元製鉄法が開発された。1970年代以降、熔融還元製鉄法の予備還元プロセスとしての流動層還元の適用多く研究された。直接還元製鉄法の H-Iron、HIB、

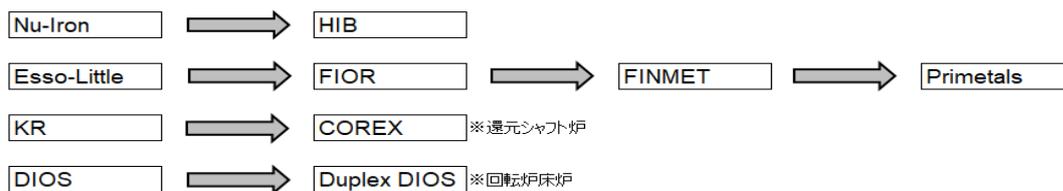
FIOR、FINMET、Iron Carbide、Circored、FINEX の商業化が認められたが、現在稼働しているのはベネズエラの FINMET と韓国の FINEX の 2 例のみである。

表①-4-1.3 抽出プロセスの開発時期

	1960 年代以前	1970～1980 年代	1990 年代以降
直接還元 製鉄	H-Iron Nu-Iron Esso-Little Stelling Onia-Novalfer 八幡東研 Battelle Flash Steel Golleisen NF 式 富国石油式天然ガス低温還元 Oxley(塩化揮発還元) プリパロフ・ポコビイコフ法 日産化学法 金材研 Co-C-Eisen	HIB FIOR KKI	<u>FINMET</u> Iron Carbide Circored FINEX Primetal
熔融還元の 予備還元		Elred XR KR Plasmasmelt CIG KFR	DIOS 新日鉄 CFB

※◎：商業化されたプロセス

一部のプロセスは時期を経て改良され、図①-4-1.3 に示すように名称を変えて発展した。



図①-4-1.3 プロセス発展系統図

ii-2) 還元ガス

各プロセスの還元ガスを分類し、表①-4-1.4 に示す

表①-4-1.4 還元ガス

H <sub>2</sub>	H <sub>2</sub> +CO	CO	その他(不明含む)
H-Iron	HIB	Co-C-Eisen	Golleisen(CH <sub>4</sub> )
Nu-Iron	Esso-Little	FINEX	富国石油式(石油性ガス)
Onia-Novalfer	FIOR		金材研(不明)
八幡東研	Stelling (H <sub>2</sub> ≦30%)		Elred(石炭部分燃焼ガス)
Battelle	Flash Steel		
NF 式[中島式]	プリバロフ・ボコビイコフ法		
Oxley[塩化揮発還元]	日産化学法(CO+H <sub>2</sub> +Cl <sub>2</sub> )		
KKI	FINMET		
Circored	Iron Carbide(H <sub>2</sub> +CH <sub>4</sub> )		
Primal	XR(CO 主体ガス)		
	KR		
	Plasmasmelt		
	CIG		
	KFR		
	DIOS		
	新日鉄 CFB		

ii-3) 流動層温度

今回入手した文献において、対象プロセスの流動層温度は 480℃～1000℃であった。そこで、中央値の 750℃を境に、プロセスを分類し表①-4-1.5 に示した。多段流動層の場合は、低温流動層と高温流動層を組み合わせしており、分類できない場合もあった。

表①-4-1.5 流動層温度

750℃以下	750℃以上	非分類(温度域が広い等)
H-Iron	Esso-Little	Oxley 法
Nu-Iron	FIOR	FINMET
HIB	Battelle	Co-C-Eisen
Stelling	富国石油式	Circored
Onia-Novalfer	金材研	Plasmasmelt
八幡東研	KKI	DIOS
Iron Carbide	Elred	
Primal	KFR	
	新日鉄 CFB	

直接還元製鉄法の Flash Steel、Golleisen、NF 式、プリバロフ・ボコビイコフ法、日産化学法、FINEX、溶融還元製鉄法の XR、KR、CIG についての温度情報は得られなかった。

ii-4) 流動層圧力

各プロセスの流動層の操作圧力を 900 kPa と常圧を境に 4 つに分類し、表①-4-1.6 に示す。

表①-4-1.6 流動層操作圧力

900 kPa 以上		常圧～900 kPa		常圧程度	
H-Iron	～3432 kPa	Nu-Iron	412～441 kPa	Esso-Little	
Oxley	～2026 kPa	HIB	343 kPa	Stelling	
FINMET	1100～1300 kPa	FIOR	98～392 kPa	Onia-Novalfer	
		八幡東研	196k～294 kPa	Battelle	
		金材研	686 kPa	Co-C-Eisen	
		KKI	490 kPa	新日鉄 CFB	
		Iron Carbide	300～456 kPa	DIOS	49～59 kPa
		Circored	400 kPa		
		Elred	490 kPa		
		KR	>500 kPa		

直接還元製鉄法の Flash Steel、Gollesisen、NF 式、富国石油式天然ガス低温還元製鉄法、プリバロフ・ボコビコブ法、日産化学法、FINEX、Primetal 法、熔融還元製鉄法の XR、Plasmasmelt、CIG、KFR については、操作圧力の情報が得られなかった。

#### ii-5) 循環流動層

今回抽出したプロセスのうち、Circored、XR、DIOS は循環流動層を採用している。一般に流動層内での粒子の流動状態は、粒子密度および径とガス流速によって決まり、ガス流速の増加に従って変化する。循環流動層（Circulating Fluidized Bed）は飛び出し粒子の回収循環機能を備え、バブリング流動層（Bubbling Fluidized Bed）よりも大きなガス流速で操作される。そのため、循環流動層はバブリング流動層よりも生産性が高く、スティッキング防止に有利と期待されている。

また、バブリング流動層は、粒子径を揃えて、ガス流速を粒子の流動化開始速度以上終末速度以下で運転する必要があるが、循環流動層ではサイクロンの捕集限界の微粒子からある程度までは運転ガス流速よりも大きな終末速度を持つ粗粒子までが使用可能であり、原理的に大きな粒度分布幅を持つ粉鉱石も使用可能である。

DIOS の研究開発は 1988 年から 8 年間行われ、DIOS プロジェクトに参加した川崎製鉄（現 JFE スチール）と新日本製鐵（日本製鉄）は、2000 年以降も循環流動層の研究を継続した。新日本製鐵は 2001 年に CFB パイロットプラントの実験を行い、JFE スチールは 2003 年にスケールアップのための還元反応モデルを報告している。

#### ii-6) 各流動層還元プロセスの技術課題と対策

入手した文献から抽出した各プロセスにおける技術課題と対策・解決策を整理した。前述の様に、商業規模での稼働が現在認められるのは FINMET と FINEX の 2 例、高還元率製品の製造に関しては FINMET のみであり、スティッキングやシンタリングといった非流動化現象の完全な回避技術は確立できているとは言えない。

なお、日本の DIOS プロジェクトでは、熔融還元炉と持続可能なベンチスケール規模の循環流動層予備還元炉を開発し、循環流動層予備還元の適正操業範囲およびパイロットプラント設計に必要なスケールアップ条件を把握することを目的としていた。この目的のために表①-4-1.7 に示す流動層予備還元炉の特性評価項目の把握が必要と考えられた。

表①-4-1.7 流動層特性評価項目と技術課題

評価項目	技術課題	要因
操業可能性、安定性 (流動化安定制御)	スティッキングおよびシタリングの防止	鉱石の銘柄(組成)・粒度(分布) 還元率・還元速度 操作流速(空塔速度)
	ガス導入部詰まり防止	ガス導入部構造 ガス温度 ダスト濃度・性状
	ガス導入部からの落鉱防止	ガス導入部のガス流速と構造 鉱石粒度(分布)
	安定流動化条件	鉱石粒度(分布) 操作流速(空塔速度)
原料対応性	紛鉱石使用範囲の拡大	鉱石種類・粒度分布
変動対応性	急激な操業条件変動に対する対応方法の把握	ガス圧・ガス量変動 操業停止・立ち上げ 鉱石粉化
還元特性	還元効率の把握	還元率とガス原単位の関係に対する諸要因の影響(ガス酸化度 OD・温度・滞留時間・循環量)
スケールアップ特性	スケールアップ則	

変動対応性：溶融還元炉操業変動時の流動層操業維持  
還元率とガス原単位の関係に対する諸要因の影響(ガス酸化度・温度・滞留時間・循環量)

iii) ゼロカーボンスチール実現における流動層水素還元の課題

同等の温度・圧力の還元条件においては、 $H_2$ 還元速度は  $CO$ 還元速度に比べて大きいことが知られている。金属鉄形態の形成メカニズムからは還元速度の大きい  $H_2$ 還元はスティッキング抑制に有利と推察される。これは、本プロジェクトにおける「金属鉄形態の形成に関する実験的研究(東北大学)」の成果の「 $H_2$ 還元下では周囲組織の収縮後退に伴う残留型突起としての小さな繊維状金属鉄の形成は認められたものの、 $CO$ 還元下の様な粒子外に向かって大きく成長した繊維状金属鉄の形成はなく、基本的に多孔質の膜状金属鉄が形成される」から検証された。

しかし、流動化不能の回避においては、操作流速の大きな高速操作の適用が必要であろうと推測される。適正操作流速に対しては鉄鉱石の粒度分布の影響が大きく、プロセス設計上の重要な因子である。また、高速操作では流動層を飛び出す鉄鉱石粒子の循環処理も必要となり、循環機構およびガスシール機構に対しても鉄鉱石粒度分布の設定はキーポイントと考えられる。

高い還元率を目標とすれば、還元時間の延長が必要となり、積分型反応器である流動層においてシャープな滞留時間分布にすることが望まれ、還元工程の多段化や多塔化が必要になる。多段化や多塔化に必要な粒子移送機構は循環機構およびガスシール機構と同様に大きな技術課題と考えられる。また、粒子移送・循環の機構においては、粒子密度が濃厚かつ粒子運動が緩慢な状態を必要とし、シタリング発生が懸念されるため、温度上限制約および温度制御が必要となる。

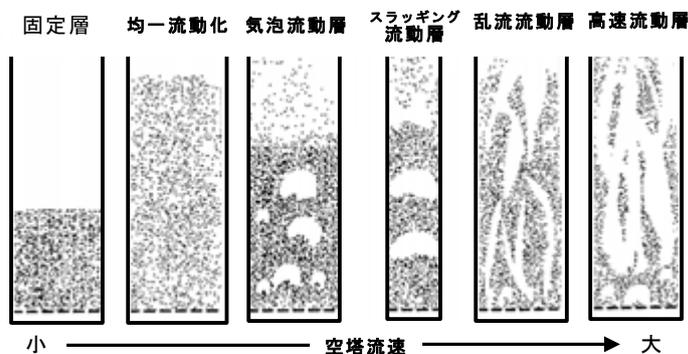
iv) 流動層水素還元のパトルネック課題に対応する要素技術

iv-1) 高速操作における流動粒子の外部循環

流動層の高速操作においては、流速の増大に伴って層膨張が増大し、粒子飛び出しが起こる様に流動様式が遷移する(図①-4-1.4)のため、サイクロン等による粒子の捕集が必須である。抽出された高

速流動層プロセスは、全て外部循環を伴う循環流動層である。循環流動層では高速流動層下部から吹き込まれるガスにより流動粒子が上昇し、サイクロン分離器により排ガスから分離され、再度高速流動層に至るプロセスになっている<sup>7)</sup>。

多段・多塔ではない循環流動層は、主に焼却炉やボイラーに使用されており、既に商用化段階にある。燃焼反応を促進するために流動粒子と特性の異なる粒子をデンスベッド材として流動層内に供給し、粒子濃度の高い濃厚相を形成させる工夫もなされている。高圧における循環流動層の挙動については研究段階にある。



図①-4-1.4 流動層の種類（流動様式の遷移）

#### iv-2) 多段化・多塔化時の流動粒子の移送

高速流動層を複数組み合わせた多塔の循環システム、あるいは気泡流動層と高速流動層を組み合わせた多塔の循環システムも検討されている。多塔循環流動層は化学ループシステム、CO<sub>2</sub>捕集システム、褐炭等のガス化システムへの適用が検討されている。ガス化システムについては商用化の段階にあるものもあるが、化学ループシステム、CO<sub>2</sub>捕集システムは研究・実証の段階にある。多塔にする場合には、各流動層において異なる反応が生じているため、熱バランスにも留意する必要がある。

#### iv-3) 流動層の温度制御

高速循環流動層では循環する流動粒子を熱媒体にしており、基本的には粒子の循環量を制御することにより温度を制御する。これ以外の温度制御方法としては、内部伝熱管、冷却ジャケット、ヒーターにより直接温度を制御する方法がある。高速流動層を燃焼器として使用する場合には、助燃料の吹き込みにより燃焼を制御して温度を制御する方法もある<sup>8)</sup>。ボイラーの場合は、外部熱交換器を設けて粒子の熱交換を行い、粒子循環量とは独立した温度制御も行われている。複数の流動層を熱的に接続することにより、温度制御および省エネルギー化を図る研究も行われている。

#### iv-4) 流動層内の粒子への作用力の制御（結合粒子群の崩壊促進）

流動層内の粒子の運動挙動についての研究事例は多いが、粒子に作用する力に関する研究例は少ない。粒子への作用力を測定する方法としては、強度が既知であるトレーサー粒子を使用する方法、圧力変動から推定する方法、圧電素子を用いた測定が提案されている。しかし、これらの適用範囲はガラスビーズを使用した常温・常圧の試験に限られ、流動層還元の条件に適用可能かの検証が必要である。

流動層挙動を予測するためのモデルでは、流体の抗力、粒子間衝突力等の流動粒子に作用する力が組み込まれ、Eulerian-Lagrangian手法で個々の粒子運動を記述するものがある。高速流動層におけるクラスター生成を予測した研究もあるが、粒子に作用する力そのものを評価している研究例は少なく、流動粒子に作用する力の予測式も適用条件は限られている。

表①-4-1.8 粒子に作用する力に関する研究

文献.	著者名	研究機関	流動層タイプ	研究内容
1	Kono et al.	West Virginia University	流動層、噴流層	粒子に作用する力の測定
2	Kono et al.	West Virginia University	スラッキング流動層	粒子に作用する力の測定
3	Kono et al.	West Virginia University	流動層	粒子に作用する力の測定と予測式
4	Kono et al.	West Virginia University	固定層 ～スラッキング流動層	粒子に作用する力の測定
5	Compo et al.	The City University of New York	流動層	流動層内の凝集体に作用する力と曲げ応力の測定
6	Qassim et al.	UFRJ	流動層	流動層内応力の測定
7	Tong et al.	北京化工大学	循環流動層	衝突による凝集体破壊評価
8	Carlos Varas et al.	Eindhoven University of Technology	循環流動層	高速流動層のクラスターモデル化
9	Helland et al.	University of Province	高速流動層	高速流動層のクラスターモデル化

#### (4) まとめ

スティッキングやシンタリング現象を抑制する還元諸条件（温度、ガス組成、圧力等）の提示を目的とする実験的検討の東北大学との共同実施から、 $H_2$ 還元はスティッキング回避に有利と考えられる結果を得た。しかし、完全には流動化不能を回避できるとは言えず、外部循環操作を含む高速操作が必要と推察される。また、高い還元率の製品を得るためには、多段化・多塔化が必要となり、鉄鉱石粒子の移送機構およびガスシール機構も重要な技術課題である。

粒子密度が濃厚かつ粒子運動が緩慢となる移送・循環機構においては、シンタリング回避のために温度上限制約が課せられ、温度制御の技術課題として大きな意味を持つ。

プロセス全体に影響する因子として鉄鉱石粒度分布がある。スティッキング・シンタリング回避を含む層内流動状態および移送・循環機構でのガスシール性に大きく影響し、プロセス設計のキーポイントである。

#### 引用文献

- 1)宮川一也,上条綱雄,出口幹郎：鉄と鋼, 78(1992), p.1258
- 2)R. Nicolle and A. Rist：Metall. Trans. B, 10(1979), p.429
- 3)林昭二,北川幹根,井口義章：材料とプロセス, 2(1989), p.119
- 4)重松信一,岩井彦哉：鉄と鋼, 73(1987), p.2243
- 5)関口勲：混相流, 11(1997), No.4, p.362
- 6)千葉忠俊,吉田邦夫：流動層概論, 朝倉書店, 1997
- 7)高塚汎,藤間幸久：粉体と工業, 24(1992), No.3, p.64
- 8)須田俊之,高藤誠,成川正広,松澤克明,許光文,藤森俊郎：粉体工学会誌, 46(2009), p.436

## ①-4-2 流動層におけるボトルネック課題調査-2

### 水素還元過程で生成する金属鉄形態と還元諸条件の関係定量化

#### (1) 研究開発の目的と目標

流動層還元過程において生成する金属鉄の形態は、スティッキングやシンタリング現象に大きな影響を及ぼす。特に、繊維状金属鉄の生成はこのような現象を助長すると考えられ、高水素条件下における還元鉄の形態制御法の検討は重要である。従来、繊維状金属鉄の生成は、FeO 相表面での還元反応とその近傍における Fe イオンの表面拡散の相対速度に依存すると考えられており、CO 還元条件下での研究例はいくつかある。しかし、高水素条件（水素還元等）下での挙動は不明である。本研究は、水素還元過程で生成する金属鉄の形態と還元諸条件の関係を定量化し、スティッキングやシンタリング現象を抑制する条件を提示することを目的とする。

#### (2) 研究開発の内容

高温顕微鏡による試薬を用いて合成した FeO から金属鉄への還元過程の直接観察および還元装置を用いたガス組成、温度、圧力を変えた FeO 試料の還元実験により、生成する金属鉄の形態と還元諸条件の関係定量化を行った。

#### (3) 研究成果と考察

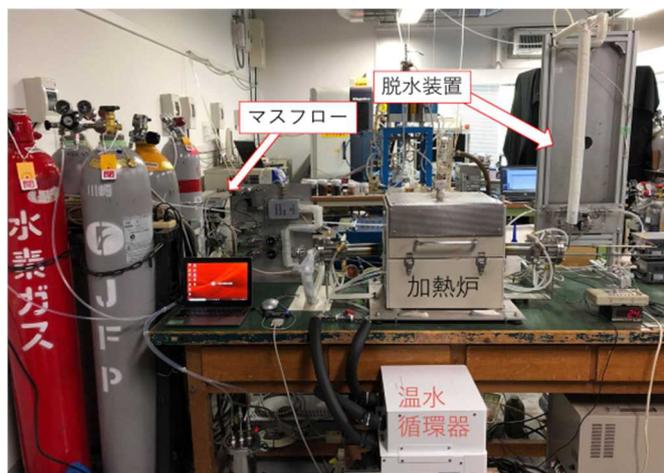
##### i) 実験方法

##### i-1) 試料調製

Hematite (>99.9%, 粒径 ca. 1 $\mu$ m) および純鉄 (> 99.9%, 粒径 5-6 $\mu$ m) を遊星ボールミル（回転速度: 700 rpm、混合時間: 15 min）で混合し、円柱形タブレット状（直径: 約 18 mm、高さ: 約 2.5 mm）に加圧成形し、N<sub>2</sub> 雰囲気中で 1200 $^{\circ}$ C、24 h の焼成を行うことで Wustite 試料を調製した。Wustite 試料の Fe と O の比を XRD による格子定数測定結果に基づいて決定し、Fe<sub>1-x</sub>O の x=0.072 $\pm$ 0.004 とした。

##### i-2) タブレット状 FeO の還元実験

調製した試料を図①-4-2.1 に示す還元装置に設置し、10 $^{\circ}$ C/min で所定温度（600~1000 $^{\circ}$ C）まで昇温した。なお、昇温過程において試料還元や酸化が起こらないように、Wustite 安定域である 50%CO-50%CO<sub>2</sub>、50%H<sub>2</sub>-50%H<sub>2</sub>O とした。なお、700 $^{\circ}$ C で H<sub>2</sub> 還元する場合、50%H<sub>2</sub>-50%H<sub>2</sub>O 雰囲気中で昇温すると Wustite 単相とならなかったため、単相が得られた N<sub>2</sub> 雰囲気を採用した。昇温後、本プロジェクトで導入したガス供給装置（マスフローと脱水装置、圧力制御装置で構成）を用いて表①-4-2.1 に示すガス組成に切り替え、所定時間（3~30 min）保持して試料の還元を行った。なお H<sub>2</sub>O を添加した際に、その濃度が高いと水蒸気として炉外に排出されずに液化する可能性があるため、還元ガスを N<sub>2</sub> で希釈し、水蒸気分圧を下げた条件



図①-4-2.1 導入したガス供給システムを含む還元装置

で実施した。また、100% $H_2$ の実験は本ガス供給装置導入前に実施したため、昇温は $N_2$ 雰囲気とし、還元中の $N_2$ による希釈は実施していない。その後、 $N_2$ 雰囲気に切り替え、炉内水冷部に試料を移動させることにより空冷した。なお、常圧および3 atm ではガス総流量を2 NL/min とし、5 atm では3 NL/min とした。これらの流量条件において、試料の還元反応がガス供給律速にならないことを確認している。還元率算出のため、試料の還元前後の重量変化を測定した。

表①-4-2.2 還元実験を実施したガス組成と温度

		700°C	800°C	900°C	950°C	1000°C
CO-CO <sub>2</sub>	100:0	—	CO	CO	CO	CO
	90:10	—	CO-CO <sub>2</sub>	CO-CO <sub>2</sub>	CO-CO <sub>2</sub>	CO-CO <sub>2</sub>
	80:20	—	CO-CO <sub>2</sub>	CO-CO <sub>2</sub>	CO-CO <sub>2</sub>	CO-CO <sub>2</sub>
	70:30	—	CO-CO <sub>2</sub>	CO-CO <sub>2</sub>	—	—
H <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O	100:0	H <sub>2</sub>				
	90:10	H <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O				
	80:20	H <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O				
	70:30	—	H <sub>2</sub> -H <sub>2</sub> O			

### i-3) 直接観察実験方法

i-1)で作製した試料を粉碎し、4 mm 程度の小片を用意した。これを1500倍での観察が可能な高温顕微鏡内に設置し、Ar 雰囲気中で950°Cまで昇温した。その後、Ar-4.7% $H_2$ ガスに切り替え試料の還元試験を実施し、その様子を撮影した。

### i-4) 評価方法

走査型電子顕微鏡 (SEM) を用いて還元後試料表面の組織観察を行った。いずれの試料も所定の9箇所 (等間隔に3×3で選定) を観察した。一部の試料に関しては、SEMによる断面観察、SEM-EDXを用いた定性分析、XRDを用いた定性分析を行った。

## ii) 結果と考察

### ii-1) CO還元による繊維状鉄生成

900°Cにおける各還元雰囲気での還元率の時間変化を調査した。CO分圧が高い場合、還元率は還元時間とともに増加し、CO分圧が低い場合は、還元時間3 min から5 minの間で還元率の増加は認められるが、その後は変化が認められなかった。なお、800°Cでは100%CO以外の還元率は30%程度 (酸化鉄中の全鉄イオンが3価である還元率を0%とする。還元前試料の還元率は28.2%)にとどまり、ほとんど還元が進行しなかった。950°C以上では、還元時間の経過とともに還元率は増加し、Wustiteから鉄への還元が進行した。

還元後試料のSEM観察において、100%CO、900°Cで還元した試料では、Wustite表面から直径1 μm前後の非常にアスペクト比の高い繊維状鉄の生成が認められた。繊維状鉄の数は還元時間とともに増加した。CO/CO<sub>2</sub>=8/2、950°Cで還元した試料では、前述条件で確認された繊維状鉄と比較して、根本が太く、アスペクト比の小さい繊維状鉄が認められた。また、CO/CO<sub>2</sub>=8/2、1000°Cで還元した試料では、繊維状鉄の他にも低アスペクト比の金属鉄が粒界付近に生成した。1000°Cまでの範囲では温度が高くなると繊維状鉄が生成し易い傾向が認められた。さらに、CO分圧の高い方が繊維状鉄の生成範囲が広い。

## ii-2) H<sub>2</sub>還元による繊維状鉄生成

Wustite 試料を 100%H<sub>2</sub> で還元すると、還元率は還元時間の経過とともに増加し、還元温度の上昇とともに還元速度が大きくなった。また、CO 還元と比較して、H<sub>2</sub> 還元の還元速度は大きくなった。600°Cから 1000°Cで還元した試料表面において、700°C以外で表面は多孔質化しており、気孔径は還元温度の上昇とともに大きくなっていった。900°C還元においては、1 μm 以下の極めて微細な気孔が存在すると共に、アスペクト比の小さい微細な繊維状鉄の生成が認められた。このような繊維状鉄は 950°Cでも生成しており、900°Cで生成しているものと比較して、アスペクト比が大きくなった。

5 min 間還元した試料の断面において、800°Cでは緻密な領域と多孔質領域が観察された。輝度の違いから、緻密領域は Wustite であり、多孔質領域は還元鉄であると推測される。900°Cでもこれら 2 相が観察されたが、多孔質な還元鉄の細孔の数が 800°Cのときと比較して少なく、Wustite 相付近には部分的に緻密な鉄も認められた。1000°Cにおいては、表面から数十 μm の深さまで金属鉄となっていた。このことから、800°Cでは表面が還元鉄で覆われても内部に微細な気孔をもつため、ガスの拡散が比較的容易であることが想像でき、化学反応律速と推測される。一方で 900°Cおよび 1000°Cでは、気孔をもつものの緻密な鉄が生成しているため、生成物層内ガス拡散律速と考えられる。

900°Cにおける各 H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O 混合ガスでの還元曲線はほぼ直線を示し、H<sub>2</sub> 分圧の低下に従って還元速度が小さくなった。一方、700°Cおよび 800°Cでは、H<sub>2</sub>O 添加条件では還元がほとんど進行しなかった。同温度における還元後試料表面の XRD から Wustite が主要相として認められた。H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O = 8/2 の還元後試料表面は、Wustite 単相を示すにもかかわらず、輝度の異なる 2 種類の相が観察され、輝度の低い部分は緻密、高い部分は方向性のある凹凸をもった表面を呈していた。Wustite (Fe<sub>1-x</sub>O)は広い酸素濃度許容組成を有するため<sup>1)</sup>、還元開始直後はまず Wustite 中の酸素が除去され、Wustite 組成の範囲内で酸素濃度が減少する方向に反応が進行することから、緻密な表面はまだ還元されていない Wustite であり、その表面が Wustite 組成の範囲内で還元される際に凹凸を示す可能性を指摘できる。

H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O=9/1 の還元後試料表面の Fe の元素マッピングから、緻密な表面と多孔質な表面が認められ、多孔質部分で鉄の濃度が高いことが得られた。このことから緻密な表面は Wustite であり、多孔質な部分は緻密な Wustite が還元されたものと推察される。これは、緻密な Wustite は還元される際に多孔質になることを示唆している。

900°Cにおいて H<sub>2</sub>/H<sub>2</sub>O=9/1、8/2、7/3 で還元した試料表面では、100%H<sub>2</sub> で観察されたような微細な繊維状鉄組織は生成しておらず、緻密な相と多孔質な相が認められた。還元率から試料表面は全て金属鉄であると推測された。還元時間が増加すると突起状の部分が太く、短く変化しており、高温長時間保持による金属鉄表面の形状変化が示唆される。高温では、表面エネルギーの低下を駆動力とする物質拡散が進行易く、細く小さい部分が消滅して平滑な組織への変化が進行した結果と考えられる。H<sub>2</sub> 分圧の低下に伴って還元速度が小さくなると、還元されて結晶構造の再配列が起こる際にかけられる時間が長くなるために、表面の突起物はエネルギー的に安定なより太く短い形状をとることができると推測される。また、還元速度が小さい場合は緻密な鉄層を形成する傾向があった。

水素還元挙動を直接観察において、昇温前の試料表面は結晶粒が観察できる比較的平滑な組織であったのに対し、昇温後還元雰囲気になると試料表面が多孔質化した。これは、Wustite (Fe<sub>1-x</sub>O) 組成の範囲内で酸素濃度が減少する方向に還元反応が進行した結果である。その後、表面に鉄核が生成し、それを起点に同心円状に還元反応が進行し、表面は多孔質な金属鉄で覆われた。多孔質金属鉄が生成する際に、一部では切れて立ち上がる様子も確認された。また、水平方向の還元の進行と同時に一部の鉄核では試料表面から垂直方向に繊維状鉄が成長する様子が確認された。この繊維状鉄は根本周囲がすべて金属鉄に還元されたときに、垂直方向の成長が止まる。このように H<sub>2</sub> 還元で認められた繊維状鉄は、CO 還元で報告されている形成メカニズムと同様であることが分かる。一方で、CO 還元と

異なる点は、同時に水平方向への還元が進行し、多孔質な鉄も形成する点にあると考えられる。

全圧の変更に対して、いずれの温度においても加圧によって還元率および還元速度は増加した。また、5atmと3atmにおいて得られた還元率の差は大きくはなかった。全圧を3atmにして600°Cで還元した試料表面は、還元開始後、3minでは極めて微細な気孔をもつ多孔質な金属鉄表面を呈した。このような組織は、700°Cにおいても認められ、気孔径は増加していた。5minになると、試料表面の一部で微細な繊維状鉄が生成したが、これは700°Cや800°Cでは認められず、一方で900°Cでは類似した繊維状鉄が生成していた。

異なる全圧条件で還元した際の試料表面の形態は、多孔質組織、繊維状鉄をもつ多孔質組織および凹凸組織の3種類に分類された。常圧では、高温または高H<sub>2</sub>分圧で還元した際に試料表面は多孔質化し、低温または低H<sub>2</sub>分圧になると凹凸をもつ組織となった。また、900°Cおよび950°Cにおいて100%H<sub>2</sub>で還元した場合にのみ、繊維状の金属鉄が生成する。全圧が増加すると、多孔質組織生成温度域が低温側に広がった。また、常圧還元と加圧還元における顕著な違いは、後者において600°Cでの還元でも繊維状鉄の生成が確認されたことである。

H<sub>2</sub>還元条件においてもCO還元と同様、繊維状鉄生成に影響を及ぼす因子としてWustiteの還元速度およびWustite中のFe<sup>2+</sup>拡散速度に着目した。H<sub>2</sub>還元において繊維状鉄の生成範囲が高温側と低温側の2領域に存在し、それらで還元鉄の結晶構造が異なる。Fe-H系状態図から、純鉄のフェライトがオーステナイトへと変態する温度は911°Cであり、Hが入ることによりこの温度は低下する。したがって、高温側ではオーステナイトが、低温側ではフェライトが生成していると判断できる。繊維状鉄の生成密度は、低温の方が大きい値を示した。これは、先行研究<sup>2)</sup>で報告されている還元温度が低くなるにつれて鉄核の数が増加するという知見と一致する。また、fccであるオーステナイトとbccであるフェライトでは、鉄核の生成頻度が異なることを示唆する。繊維状鉄の生成密度が大きい600°Cでは、隣り合う別の繊維状鉄との距離が近いため、Fe<sup>2+</sup>の濃度勾配が小さくなり、Wustite中のFe<sup>2+</sup>拡散の駆動力が低下し、Fe<sup>2+</sup>拡散速度も小さくなる。そのために還元速度の小さい低温条件においても繊維状鉄が生成するものと推察される。

### ii-3) 繊維状鉄生成抑制条件の検討

得られた結果から、H<sub>2</sub>による微粉鉱石の流動層還元におけるスティッキングの抑制手段、すなわち繊維状鉄の生成抑制条件を検討する。流動層還元では、2~4段の流動層を用いて段階的に還元処理が行われる<sup>3)</sup>。繊維状鉄の生成抑制はWustite表面から金属鉄への還元進行時の条件設定が重要である。還元初期において、Wustiteまでの還元は比較的容易に進行するが、還元後期では十分な物質拡散速度や反応速度を確保するために高温条件が必要である。そこで、3段の流動層還元炉で還元ガス循環利用を考えた。

1段目で粉状鉄鉱石をWustiteまで還元し、2段目以降で繊維状鉄の生成抑制しつつWustiteから金属鉄への還元を進行させる。スティッキング抑制のため、低温還元が指向されるが、常圧では還元速度が小さい。加圧条件では、600°Cにおいて繊維状鉄の生成が確認されているため、還元温度を600°C以上にする必要がある。また、還元初期で表面が緻密な鉄層で覆われると、還元ガスの拡散が抑制されて還元速度が低下することが予測されるので、粒子表面に多孔質金属鉄を生成させることが必要である。そこで2段目の還元条件を5atm、700°C、100%H<sub>2</sub>とすることにより、繊維状鉄の生成を抑えつつ多孔質な金属鉄表面を生成させ、鉱石粒子内部へのガス拡散経路を確保する。そして、3段目では多孔質金属鉄表面をもつWustiteを高速で金属鉄まで還元する。ガスを循環利用の観点からH<sub>2</sub>O混合ガスでの還元が想定されるが、800°C以下では還元速度が著しく低下するため、還元温度を900°C程度に保つ必要がある。

上記の還元雰囲気を実現させるために還元ガスの循環に関して、①100%H<sub>2</sub>ガスは2段目還元炉に

吹き込む。②2 段目還元炉排ガスを O<sub>2</sub> 添加で加熱し、3 段目還元炉に吹き込む。③3 段目還元炉排ガスを 1 段目還元炉に吹き込み、鉱石を Wustite まで還元する。④1 段目還元炉排ガスを回収し、冷却して H<sub>2</sub>O を分離し、H<sub>2</sub> をリサイクルする。

本提案は、スティッキング抑制のみの観点で立案したプロセスフローであり、今後、定量的なプロセスシミュレーションによるエネルギー効率の精査、およびクラスタリングなど他のプロセス阻害要因等に関する検討が必要である。

#### (4) まとめ

- CO 還元では、緻密な Wustite 表面の欠陥部に生成した鉄核を起点に金属鉄が繊維状に成長する。1000℃までは温度が高くなると繊維状鉄が生成し易い傾向があり、短時間で繊維状鉄生成が開始する傾向も認められる。さらに、CO 分圧の高い方が繊維状鉄生成温度域は広い。
- H<sub>2</sub> 還元では、はじめに Wustite 中の酸素が除去され、表面が多孔質化する。その後、表面に生成した鉄核を起点に同心円状に還元反応が進行し、表面は多孔質な金属鉄となる。同時に、一部の鉄核では試料表面から垂直方向に繊維状鉄が成長する。
- 常圧における H<sub>2</sub> 還元では、高温または高 H<sub>2</sub> 分圧で還元した際に得られる試料表面は多孔質化し、低温または低 H<sub>2</sub> 分圧になると凹凸をもつ組織となる。また、900℃および 950℃において 100%H<sub>2</sub> で還元した場合のみで繊維状の金属鉄が生成する。全圧が増加すると、多孔質組織生成温度域が低温側に広がり、600℃においても繊維状鉄の生成が確認される。
- CO 還元、H<sub>2</sub> 還元のいずれにおいても、Wustite の還元速度と Wustite 中 Fe<sup>2+</sup>の拡散速度の関係から繊維状鉄生成範囲を整理することができる。H<sub>2</sub> 還元において、繊維状鉄の生成範囲は高温側と低温側の 2 領域に存在し、生成する還元鉄の結晶構造に起因するものと考察した。
- スティックを抑制可能な還元プロセスとして、3 段流動層を用いるプロセスを提案した。

#### 引用文献

- 1)L. S. Darken and R. W. Gurry : J. Am. Chem. Soc., 68 (1946),798.
- 2)中川大, 西原一浩, 小野陽一: 鉄と鋼, 74 (1988), 1554.
- 3)L. Guo, Q. Bao, J. Gao, Q. Zhu and Z. Guo: ISIJ Int., 60 (2020), 1.

## ① -4-3 流動層に関するボトルネック課題調査-2

### - 鉄鉱石種がスティッキング現象に与える影響評価

#### (1) 課題の整理および研究開発の目的

鉄鉱石の流動層還元技術は、鉄鉱石を粉体のまま処理することが可能であり、固体-気体間の接触面積が大きく、また物質移動の観点で優位であるため、還元反応速度が大きくなる<sup>1)</sup>。そのため、高炉法に代わる還元法として注目されてきた。しかしながら、この流動層還元プロセスの工業化を妨げてきたのがスティッキング現象である。

スティッキング現象とは流動層還元時に金属鉄が生成する段階で発生する鉄石同士の焼結である。この現象は約700℃以上の高温域において発生しやすく、粉鉄石の凝集や装置壁面の付着に繋がり、層内の運動状態の不良や運転停止等の操業上致命的な問題を引き起こすことが懸念される<sup>2-3)</sup>。しかし、 $H_2$ ガスを用いた鉄鉱石の還元反応は吸熱反応であり、その反応速度の観点から高温域での制御が好ましい。すなわち、水素還元技術の最終的な目標であるゼロカーボン・スチールにおいて流動層還元プロセスの工業化を目指す上で、高温域でのスティッキング現象の抑制が必要不可欠となる。

以前の研究より、このスティッキング現象の発生要因として、鉄ウイスキーの影響が示唆されている<sup>4)</sup>。鉄ウイスキーとは鉄鉱石還元時に粒子表面から繊維状や針状に生成される金属鉄である。この鉄ウイスキーについては、流動層還元時のスティッキングの原因となるだけでなく、鉄鉱石ペレットの異常膨張の原因とも考えられており、その生成メカニズムについて考察がなされてきた。以前の研究により報告されている生成メカニズムは次に示す通りである。粉鉄石の還元において、各鉄石は $Fe_2O_3$ から $Fe_3O_4$ を経て $FeO$ へと還元される。還元が進行すると、 $FeO$ 表面から試料内部に $Fe^{2+}$ が拡散する。その後、さらに還元が進行すると表面近傍に $Fe^{2+}$ が過飽和に存在するようになる。この過飽和が臨界値に達すると $FeO$ 表面から核生成が起これ、 $Fe^{2+}$ がその核に向かって拡散することで $Fe$ が生成する。これが連続的に発生すると生成底面から押し上げられるような形で垂直方向に核成長し、鉄ウイスキーとなる<sup>5-8)</sup>。鉄ウイスキーを有する粒子同士は互いに引っ掛かり接触することで凝集を引き起こすことから<sup>3)9)</sup>、スティッキング現象の防止には、鉄ウイスキーの生成条件を調査し抑制することが不可欠である。

本検討では、スティッキング現象の原因の一つとして考えられる、鉄ウイスキーの発生抑制の検討を目的とし、鉄ウイスキーの生成挙動について調査するとともに凝集の発生条件についての調査を行なった。種類の異なる様々な銘柄の鉄石を用いて還元実験を行うことで、鉄石ごとの被還元性について比較し、鉄ウイスキーの抑制に最適な鉄石種の選択を検討する。併せて、還元ガス組成をパラメーターとし、各鉄石の被還元性と共に評価を行うことで、高温域において鉄ウイスキーの生成抑制および凝集抑制に最適な還元ガス組成について調査することを目的とした。

#### (2) 実験試料および実験方法

##### i) 実験試料

試料は粉体のままの処理を行う流動層プロセスにおける還元を想定するため、粉鉄石を用いた。粉鉄石は篩にかけ、74-150 $\mu m$ に整粒したものを実験試料とした。粒径に関しては先行研究より、気-固反応において流動層プロセスを用いる際に、穏やかな流動化状態を伴い、ガス及び粒子間の接触状態

が良いことが報告されている粒径を選択した<sup>10-11)</sup>。

本実験では、還元を用いる鉱石種がウィスカー鉄の生成挙動に及ぼす影響を調査する。ヘマタイト系鉱石として鉱石 A・鉱石 B を、ゲーサイト系鉱石として鉱石 C・鉱石 D を用いて実験を行った。4 鉱石の化学組成を表①-4-3.1 に示す。なお、それぞれの脈石成分については鉱石中に含まれる全鉄量との比を示した値も併記した。また、各鉱石の Combined Water(以下 C. W.)を除いた化学組成を同様にして表①-4-3.2 に示す。

表①-4-3.1 C.W.を含む粉鉱石の化学組成

Sample	C.W. (mass%)	T.Fe (mass%)	SiO <sub>2</sub> (mass%)	SiO <sub>2</sub> / T.Fe (×10 <sup>-2</sup> )	CaO (mass%)	CaO/ T.Fe (×10 <sup>-2</sup> )	MgO (mass%)	MgO/ T.Fe (×10 <sup>-2</sup> )	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (mass%)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> / T.Fe (×10 <sup>-2</sup> )
Ore A	0.4	66.5	2.75	4.14	0.13	0.20	0.03	0.045	1.12	1.68
Ore B	2.1	62.5	6.3	10.08	0.0	0.0	0.0	0.0	1.4	2.24
Ore C	9.1	58.2	4.0	6.87	0.07	0.12	0.09	0.15	2.29	3.93
Ore D	10.4	57.1	6.35	11.1	0.05	0.09	0.09	0.16	1.55	2.71

C.W. : Combined

表①-4-3.2 C.W.を除いた粉鉱石の化学組成

Sample	T.Fe (mass%)	SiO <sub>2</sub> (mass%)	SiO <sub>2</sub> / T.Fe (×10 <sup>-2</sup> )	CaO (mass%)	CaO/ T.Fe (×10 <sup>-2</sup> )	MgO (mass%)	MgO/ T.Fe (×10 <sup>-2</sup> )	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> (mass%)	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> / T.Fe (×10 <sup>-2</sup> )
Ore A	66.7	2.76	4.14	0.13	0.19	0.03	0.04	1.12	1.68
Ore B	63.8	6.44	10.1	0.0	0.0	0.0	0.0	1.43	2.24
Ore C	64	4.4	6.88	0.08	0.13	0.1	0.16	2.52	3.94
Ore D	63.7	7.08	11.1	0.06	0.09	0.1	0.16	1.73	2.72

## ii) 実験装置及び実験手順

本実験で用いた熱天秤は電気炉を加熱炉として備え、反応管内径を 35mm とする縦型の装置である。この熱天秤を用いて還元実験を行い、試料重量の経時変化を測定した。試料は内径 20mm、高さ 15mm の白金バスケットの内部に、粉鉱石の落下を防止するためのセラミックファイバーを敷き、粉体のまま装入した。鉱石重量は 0.5g とし、装入後に、還元時の粉鉱石の飛散を防ぐため、上から少量のセラミックファイバーで覆った。

還元実験では N<sub>2</sub>、H<sub>2</sub>、CO ガスを使用した。ガスボンベから送られたガスをマスフローコントローラーにて制御し、任意の流量に調整して実験に用いた。

実験手順としては、まず、炉内の均熱帯温度を 800℃まで昇温し、試料設置時に環境の雰囲気と試料との反応を防止するため、反応管内を N<sub>2</sub>ガスで置換した。N<sub>2</sub>ガス流量は 2NL/min に設定し、炉下部から導入した。また、炉上部からは天秤部を保護するためのシールガスとして N<sub>2</sub>ガスを 0.5NL/min の流量で導入した。次に試料を装入した白金バスケットを、白金線を用いて懸垂し、均熱帯に設置し

た。続いて、N<sub>2</sub>ガスを反応ガスに切り替え、還元反応を進行させた。実験中、試料重量の経時変化をひずみゲージで連続的に測定した。重量変化がなくなった時点還元完了とみなし、反応ガスから再度 N<sub>2</sub>ガスに切り替え、反応管内を置換した。反応管上部の蓋を開けた状態でそれぞれの位置で 15 分間ずつ保持し、段階的に冷却を行った。この時、N<sub>2</sub>ガスを流入し続けることで試料の酸化を防止した。

鉱石中に含まれる C.W.が分解されていることを確認するため、試料設置前及び設置・昇温後の重量変化を測定した。C.W.分解時の重量変化理論値に関しては(1)式により、充填した粉鉱石の重量及び化学組成から算出した。

$$W_{C.W.} = W_{ore} \times m_{C.W.} \quad \dots (1)$$

ここで W<sub>C.W.</sub>は試料中の C.W.の重量理論値、W<sub>ore</sub>は試料充填前の粉鉱石重量、m<sub>C.W.</sub>は試料中の C.W.の重量割合である。鉱石中の C.W.がすべて除去された場合の理論重量と還元開始前の試料重量が一致したことから、還元開始時には C.W.は分解されていると見做した。したがって、C.W.の分解による重量変化量は反応中の重量変化としては考慮に入れないこととした。反応ガス組成については、H<sub>2</sub>ガスに CO ガスを混合した際の影響を調査するため、50vol%N<sub>2</sub>-50vol%H<sub>2</sub>、50vol%N<sub>2</sub>-45vol%H<sub>2</sub>-5vol%CO、50vol%N<sub>2</sub>-25vol%H<sub>2</sub>-25vol%CO の 3 水準とし、ガス流量は 2NL/min に設定した。なお、反応ガス内の N<sub>2</sub>ガスについては、還元時の急激な重量変化を防止するため、還元性ガスを希釈することで反応速度を緩和する目的で混合した。

試料の還元率を、試料の反応前後の重量変化より算出した。算出式を(2)式に示す。なお、鉄鉱石試料中の鉄が全てヘマタイトとして存在すると仮定して算出を行った。

$$Reduction\ Degree\ (\%) = \frac{\Delta W_{sample} \cdot m_{C.W.}}{m_{T.Fe} \times \frac{3M_O}{2M_{Fe}}} \times 100 \quad \dots (2)$$

(2)式において、ΔW<sub>sample</sub>は試料設置前から設置及び還元反応後までの重量変化量(g)、m<sub>C.W.</sub>は試料に含まれる C.W.の重量(g)、m<sub>T.Fe</sub>は試料中の全鉄量(g)、M<sub>O</sub>と M<sub>Fe</sub>はそれぞれ酸素と鉄の原子量である。

還元前試料・還元後試料について、低真空高感度走査電子顕微鏡(日立ハイテクノロジーズ製 SU3500)を用いて表面性状の SEM 観察・EDS 分析を行った。また、発生したウイスキーに対して、その形状やウイスキーを含む試料粒子表面の脈石分布について観察を行うため、更に高倍率での観察が可能な電界放出形走査電子顕微鏡(Carl Zeiss Microscopy Ltd.製 Sigma500)を用いて観察を行った。

### (3) 実験結果及び考察

#### i) XRD 測定

各鉱石について、試料の結晶相の同定、並びに還元の完了を確認することを目的として XRD 測定を行った。

いずれの鉱石においても、Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>もしくは FeO(OH)がそれぞれ還元され Fe が生成されており、還元が完了していることを確認した。

## ii) 還元率曲線の算出

試料の重量変化測定及び(1)式から算出した還元率より、還元率曲線を算出した。その結果いずれの鉱石においても  $H_2$ -CO 混合ガスによる還元では、CO 含有量の増加に伴い還元速度が低下する傾向が見られた。特に、25%CO 混合ガス還元においては、還元速度の低下が顕著であった。以前の研究により、酸化鉄の  $H_2$ 還元による化学反応速度が CO 還元速度と比較して大きいことが報告されており<sup>12)</sup>、本実験による結果においても  $H_2$ 及び CO の反応速度の違いによるものであると考えられる。

また、ゲーサイト系の鉱石である鉱石 C・鉱石 D はヘマタイト系の鉱石である鉱石 A・鉱石 B よりも比較的還元が進行し易い傾向が確認された。この違いについて、鉱石間の物理的差異に起因するものとし、考察を行った。

先行研究より、C.W.含有量の高い鉄鉱石について、C.W.が分解される際に数 nm の細孔が形成されることで比表面積が増加することが報告されている。また、C.W.含有量が高いほど、比表面積の増加も大きく、被還元性の向上に寄与することが示唆されている<sup>13-16)</sup>。本実験に用いた鉱石はいずれも C.W.を含んでおり、これらは還元前の昇温の過程で分解される。特に、ゲーサイト系鉱石である鉱石 C 及び鉱石 D はヘマタイト系鉱石である鉱石 A、鉱石 B と比較すると C.W.の含有量が高い。すなわち、鉱石 C 及び鉱石 D では、C.W.分解の際に、より多くの細孔を形成し、比表面積が増加するため、良好な還元挙動を示したと考えられる。

## iii) 粉鉱石の C.W.の分解による表面性状の変化

C.W.の分解前後の粉鉱石の表面性状の変化について調査するため SEM 観察を行った。いずれの鉱石においても、C.W.分解後の粒子表面に、一部が剥落したような数  $\mu m$  の空孔が形成されていることが確認された。また、一部の粒子にはクラックの導入を観察することができた。

先行研究により C.W.分解の際に数 nm の細孔が形成されることが報告されている。本実験において確認された空孔は、数  $\mu m$  と、先行研究により報告されたものと比較すると極めて大きな空孔であることが分かる。この空孔の形成について推察を行う。

先行研究<sup>13)</sup>においては、C.W.分解時の試料温度が 300°C と低温であり、昇温速度も 3°C/min と比較的小さかった。一方で本実験においては、C.W.分解時の試料温度は 800°C と高温であり、昇温後の熱天秤に試料を設置するため、粉鉱石が急速昇温される。そのため、C.W.の急激な分解が発生すると考えられる。その結果、形成された数 nm の細孔やクラックが伝播し、粒子表面が剥落したと推察した。

## iv) 還元による鉄ウイスキーの生成

粉鉱石の還元前後の表面性状の変化及び鉄ウイスキーの生成状況を調査するため、SEM を用いて観察を行った。なお、観察は各鉱石およそ 20 個の粒子の観察を行い、鉄ウイスキーが視認できた条件を鉄ウイスキーが生成される条件とした。

観察の結果、いずれの鉱石においても、還元ガス組成に関わらず、還元後に多孔質の金属鉄粒子が含まれていることが確認できた。また、一部の条件では粉鉱石表面から数  $\mu m$  程度に成長した鉄ウイスキーを確認した。

鉄ウィスカーの生成を確認した鉱石及び還元ガス組成を整理し、表①-4-3.3 に示す。

表①-4-3.3 各還元条件下のウィスカーの存在

Sample		CO(%)		
		0	5	25
Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub> 系鉱石		○	×	△
Ore A	Ore B			
FeO(OH)系鉱石		×	○	○
Ore C	Ore D			

○ : Whiskers precipitated in both fine ores.

△ : Whiskers precipitated in one of the fine ore

× : No whiskers precipitated in both fine ores.

この結果から、鉱石種によって、鉄ウィスカーが生成しやすい還元ガス条件が異なっていることが分かる。ヘマタイト系の鉱石である鉱石 A・鉱石 B に関しては、H<sub>2</sub>ガスを用いて還元を行った場合に鉄ウィスカーの生成が確認された。対して、ゲーサイト系の鉱石である鉱石 C・鉱石 D では、H<sub>2</sub>-CO 混合ガスを用いて還元を行った場合に鉄ウィスカーの生成が確認された。なお、ヘマタイト系の鉱石である鉱石 A に関しては 50%N<sub>2</sub>-25%H<sub>2</sub>-25%CO の条件においてもウィスカーの生成を確認した。これらの生成挙動の考察に関しては後述する。

鉄ウィスカーの生成と脈石分布の関連を調査することを目的とし、FE-SEM を用いて 50%N<sub>2</sub>-50%H<sub>2</sub> 条件で還元した試料について高倍率での観察及び EDS 分析を行った。

観察の結果、ヘマタイト系の鉱石である鉱石 A 及び鉱石 B において、粒子表面から数 μm 程度の鉄ウィスカーが生成されていることを確認した。鉄ウィスカー周辺の粒子の表面性状を注視すると鉱石 A では、粒子表面は多孔質になっており、その粒子表面から鉄ウィスカーが生成されていた。また、EDS 分析の結果より、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>、SiO<sub>2</sub>の粒子が付着していることが確認できた。同様にヘマタイト系鉱石である鉱石 B についてもその粒子の表面性状を注視すると、鉱石 B においては、比較的緻密な粒子表面から鉄ウィスカーが生成されていた。また、EDS 分析の結果、鉄ウィスカー近傍の粒子表面に Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の偏在が見られた。同様に、鉱石 A 及び鉱石 B で生成された鉄ウィスカーの形状を注視すると、鉱石 A では直径 2μm 程度の比較的太い鉄ウィスカーが生成されていることが確認できた。対して鉱石 B では直径 1μm 程度の細い鉄ウィスカーが生成されていることが確認できた。

次に、ゲーサイト系鉱石について観察した結果、鉱石 C 及び鉱石 D では鉄ウィスカーが生成されていないことを確認した。しかしながら、どちらの鉱石においても、その粒子の表面性状を注視すると、鉱石 A と同様に粒子の表面が多孔質になっており、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>及び SiO<sub>2</sub>の粒子の付着を確認した。なお、これらの鉄ウィスカーの生成状況に関しては前述した SEM による観察結果と一致している。

鉄ウィスカーの生成の有無と脈石分布の関連性について考察を行う。まず、鉄ウィスカーが生成された鉱石 A 及び鉱石 B について比較を行う。鉱石 B において確認した Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の偏在は、鉱石 A においては確認できなかった。対して鉱石 A において確認した Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>粒子や SiO<sub>2</sub>粒子の付着は、鉄ウィスカーが生成されなかった鉱石 C、鉱石 D においても確認した。以上を踏まえると鉄ウィスカーの生

成の有無と脈石分布には関連性を見出すには至らなかった。

次に鉄ウイスカーの形状及び粒子表面性状の比較を行う。鉱石 A と鉱石 B では生成された鉄ウイスカーの形状に差異があり、鉱石 A では直径  $2\mu\text{m}$  程度の太い鉄ウイスカー、鉱石 B で直径  $1\mu\text{m}$  程度の細い鉄ウイスカーが確認された。また、鉱石 A において確認した多孔質粒子は、鉱石 B においては確認することができなかった。以上を踏まえ、粒子の表面性状により生成される鉄ウイスカーの形状が異なり、多孔質の粒子の場合に太く、緻密な粒子の場合に細い鉄ウイスカーが生成される可能性が示唆された。

本実験ではヘマタイト系鉱石を  $\text{H}_2$  ガスを用いて還元した場合に生成された鉄ウイスカーについて観察、EDS 分析を行った。上述の通り、本研究においては、鉄ウイスカーの生成の有無と脈石分布には関連性は確認されなかったが、粒子の表面性状が生成された鉄ウイスカーの形状に影響を及ぼす可能性が示唆された。今後は、ゲーサイト系鉱石を  $\text{H}_2\text{-CO}$  混合ガスを用いて還元した場合に生成された鉄ウイスカーの観察・EDS 分析を行うことで、更に詳細に調査を行う必要があると考える。

#### v) 鉄ウイスカー生成挙動と被還元性の関係

鉄ウイスカーの生成メカニズムの生成挙動について推察する。

まず、 $\text{H}_2\text{-CO}$  混合ガスを用いて還元を行った場合に鉄ウイスカーの生成を確認した、ゲーサイト系の鉱石について考察を行う。ゲーサイト系の鉱石に関しては、比較的被還元性が良い(還元速度が大きい)鉱石種であることを確認している。また、 $\text{H}_2$  ガスによる還元は  $\text{H}_2\text{-CO}$  混合ガスによる還元と比較して還元反応速度が大きい。これらを踏まえると、被還元性の良いゲーサイト系鉱石を、還元反応速度の大きな  $\text{H}_2$  ガスを用いて還元した場合に鉄ウイスカーの生成を抑制できる可能性が考えられる。ここで、ゲーサイト系鉱石における鉄ウイスカー生成挙動について以下のように推察した。

ゲーサイト系鉱石は還元速度が大きく、比較的  $\text{Fe}^{2+}$  の過飽和状態が起りやすい鉱石であると考えられる。この鉱石を  $\text{H}_2$  ガスを用いて還元を行った場合、 $\text{Fe}^{2+}$  の過飽和状態が発生し、その還元反応速度の大きさから、粒子表面全体で金属鉄核が生成される。その結果、垂直方向への核成長は進行しづらく、平面的な成長が進行する。したがって鉄ウイスカーの生成を伴わずに還元が進行する。一方、 $\text{H}_2\text{-CO}$  混合ガスを用いて還元を行った場合について考える。 $\text{H}_2\text{-CO}$  混合ガスによる還元においても、ゲーサイト系鉱石の被還元性の良さから、 $\text{Fe}^{2+}$  の過飽和状態が発生する。しかし、 $\text{CO}$  の混合により  $\text{H}_2$  ガスによる混合と比較すると還元速度が小さくなる。そのため、粒子表面全体ではなく偏在して金属鉄核が生成される。その結果、垂直方向への核成長が進行し、鉄ウイスカーが生成される。

次に、 $\text{H}_2$  ガスを用いて還元を行った場合に鉄ウイスカーの生成を確認した、ヘマタイト系の鉱石について考察を行う。ヘマタイト系鉱石に関しては、ゲーサイト系の鉱石とは対照的に、被還元性が悪い(還元速度が小さい)鉱石種であることを確認している。被還元性の悪いヘマタイト系の鉱石を、還元反応速度の小さな  $\text{H}_2\text{-CO}$  混合ガスを用いて還元した場合に、鉄ウイスカーの生成を抑制できる可能性が考えられる。ヘマタイト系鉱石の鉄ウイスカーの生成挙動に関しては以下のように推察した。

ヘマタイト系の鉱石は還元速度が小さく、比較的  $\text{Fe}^{2+}$  の過飽和が起りにくい鉱石であると考えられる。しかし、 $\text{H}_2$  ガスを用いて還元を行った場合は、 $\text{H}_2$  ガスの還元反応速度の大きさから、 $\text{Fe}^{2+}$  の過飽和状態が発生する。そのため、金属鉄核が生成され、鉄ウイスカーが生成される。一方、 $\text{H}_2\text{-CO}$  混合ガスを用いて還元を行った場合について考える。この場合、 $\text{CO}$  の混合により、還元速度が小さくなること  $\text{Fe}^{2+}$  の過飽和の状態を避けることができる。その結果、金属鉄核が生成されず鉄ウイスカー

の生成を抑制できると考えられる。以上が本実験の結果及び鉄ウイスカーの生成メカニズムから推察した鉄ウイスカーの生成挙動である。

なお、鉱石 A に関して  $50\%N_2-25\%H_2-25\%CO$  の条件において鉄ウイスカーの生成を確認している。また、(3)-iv において前述したように、鉱石種によって生成される鉄ウイスカーの形状や粒子の表面性状は異なっている。すなわち、鉄ウイスカーの生成に関しては、鉱石の被還元性だけでなく粒子の表面性状が影響を及ぼす可能性が考えられる。今後、鉄ウイスカーの生成要因を調査するにあたり、 $H_2-CO$  混合ガスによる還元において生成された鉄ウイスカーについても高倍率観察・EDS 分析を行うことが必要であると考えられる。

(3)-v を踏まえ、鉄ウイスカーが生成された場合と、生成されない場合の還元速度について、還元率曲線から比較を行う。ゲーサイト系鉱石である鉱石 C・鉱石 D の  $H_2$  ガスによる還元及び  $H_2-CO$  混合ガスによる還元における還元率曲線を比較した。その結果、実際に鉱石 C・鉱石 D のいずれの場合においても鉄ウイスカーが生成された  $H_2$  ガスによる還元の場合に、還元速度が大きい傾向にあることが分かった。また、同様に、ヘマタイト系鉱石である鉱石 A・鉱石 B の  $H_2$  ガスによる還元及び  $H_2-CO$  混合ガスによる還元における還元率曲線を比較した。還元率曲線から、実際に鉱石 A・鉱石 B のいずれの場合においても鉄ウイスカーが生成された  $H_2-CO$  混合ガスによる還元の場合に、還元速度が小さい傾向にあることが分かった。

(3)-v では、被還元性の良いゲーサイト系鉱石においては還元速度の大きい  $H_2$  ガスによる還元の場合に鉄ウイスカーが生成され、還元速度の小さい  $H_2-CO$  混合ガスで還元した場合に鉄ウイスカーが生成されないと考察した。

対して、比較的被還元性の悪いヘマタイト系鉱石においては、還元速度の小さい  $CO$  混合ガスによる還元の場合に鉄ウイスカーが生成され、還元速度の大きい  $H_2$  ガスで還元した場合には鉄ウイスカーが生成されないと考察した。

4 鉱石において、還元速度の大きい  $H_2$  ガスによる還元の場合と還元速度の小さい  $H_2-CO$  混合ガスによる還元の場合の還元率曲線を比較した。なお、 $H_2-CO$  混合ガスに関しては、より還元速度の小さい  $50\%N_2-25\%H_2-25\%CO$  のガスを示す。ゲーサイト系鉱石である鉱石 C・鉱石 D において鉄ウイスカーが生成された  $H_2-CO$  混合ガスによる還元の場合と、ヘマタイト系鉱石である鉱石 A・鉱石 B において鉄ウイスカーが生成された  $H_2$  ガスによる還元の場合の還元速度が概ね近い傾向にあることが確認できる。これらの結果は、鉄ウイスカーの生成が発生しやすい還元速度の存在を示唆しており、上述の(3)-iv における考察と一致するものである。

しかし、ヘマタイト系鉱石である鉱石 A では  $50\%N_2-25\%H_2-25\%CO$  を用いて還元した場合にも鉄ウイスカーの生成が確認されている。この結果を考慮すると、鉄ウイスカーの生成には粒子に含まれる脈石成分や粒子のミクロな表面性状の差異など、還元速度以外の要因も影響する可能性が考えられる。実際に、(3)-iv で考察した通り、ヘマタイト系鉱石の鉄ウイスカー生成時の粒子表面性状に違いが確認されている。しかし、本研究においては鉄ウイスカーの生成の有無と粒子表面性状の関連性は見出すことはできなかった。そのため、還元速度以外の要因に関しては今後十分に検討することが必要であり、より高倍率での鉄ウイスカーの観察を重ねること、また還元速度に関しても予備還元を行い、一定の領域の還元速度に注視して速度解析を行うなど、更に詳細に調査することが重要であると考えられる。

参考文献

- 1) 近藤真一, 鉄と鋼, 10, 1974, 1542-1543
- 2) 近藤真一, 石井邦宜, 北海道大学工学部研究報告, 132, 1986, 12
- 3) Lei Guo, Qipeng Bao, Jintao Gao, Qingshan Zhu, Zhancheng Guo, ISIJ International, 60(1), 2020, 3
- 4) 宮川一也, 上条網雄, 出口幹郎, 鉄と鋼, 78(7), 1992, 1259-1261
- 5) Zhan-xia Di, Zheng-yi Li, Ru-fei, Ying Liu, Qing-min Meng, Tie-jun Chun, Hong-ming Long, Jia-xin Li, Ping Wang, Ironmaking & Steelmaking, 46(2), 2019, 159-164
- 6) 小林睦弘, H.W.グーデナウ, W.G.ブルヒャード, H.C.シェーフアー, 鉄と鋼, 71(9), 1985, 1106-1107
- 7) D.H.John, S.R.Matthew, and P.C.Hayes, Metallurgical and Materials Transactions B, 15(4), 1984, 713-714
- 8) 小野田守, 佐々木晃, 嶺浩紀, 徳田昌則: 東北大学選鑛製錬研究所彙報, 24(1), 1969, 91-92
- 9) Ben Zhang, Xuzhong Gong, Zhi Wang and Zhancheng Guo, ISIJ International, 51(9), 2011, 1403
- 10) 加藤邦夫, 粉体工学会誌, 36(8), 1999, 613
- 11) Ben Zhang, Zhi Wang, Xuzhong Gong and Zhancheng Guo, ISIJ International, 53(3), 2013, 412
- 12) 萬谷志郎, 井口泰孝, 長坂徹也, 70(1984), 1690
- 13) Ade Kurniawan, Keisuke Abe, Kouichi Ohashi, Takahiro Nomura and Tomohiro Akiyama, Fuel Processing Technology, 178. 2018, 157
- 14) Yuichi Hata, Hadi Purwanto, Sou Hosokai, Jun-ichiro Hayashi, Yoshiaki Kashiwaya, and Tomohiro Akiyama, Energy&Fuels, 23, 2009, 1130
- 15) Genki Saito, Takahiro Nomura, Norihito Sakaguchi, and Tomohiro Akiyama, ISIJ International, 56(9), 2016, 1602-1604
- 16) Yoshiaki Kashiwaya, and Tomohiro Akiyama, Journal of Nanomaterials, 2010, 3-5

## ① - 4 - 4. 流動層方式の概念設計のための基礎検討とロードマップ作成

### 1. 研究開発の目的

日本における水素還元製鉄プロセスの開発に向けて、流動層方式の実用化可能性を評価するとともに、流動層方式の技術の特徴とシャフト炉方式など他の方式と比較した優位性について明らかにし、開発課題を明らかにすることを目的とする。また、実用化に向けたプロセスの概念設計に必要な基礎検討を行い、ロードマップ作成を行う。

### 2. 研究開発の概要

流動層方式の鉄鉱石還元に関する技術開発課題を整理した。基礎検討では、数種の異なる粉状鉄鉱石を対象に、流動層水素還元プロセスの概念設計に必要な基盤データを取得するため、粉自体の静置状態での還元速度を比較するとともに、ガス流速の比較的小さな気泡型の流動層、ガス流速の比較的大きな循環型の流動層それぞれにおける粉体挙動の基礎特性（流動特性、還元特性）を実験的に評価した。

流動層実験では、小型のラボ試験機を用い、まず冷間にて試験を行った。気泡型流動層では主に粉状鉄鉱石の安定流動化条件を検討し、循環型流動層では粉状鉄鉱石の分離捕集挙動を評価した。次に熱間試験にて、水素還元流動層のボトルネックの一つと考えられる、還元過程での鉱石粒子同士の固着（スティッキング、シンタリング）挙動を実験的に評価した。最後に、技術調査、実験による基礎検討の結果を合わせて、流動層方式の技術開発に必要な開発項目と開発ステップをロードマップに整理した。

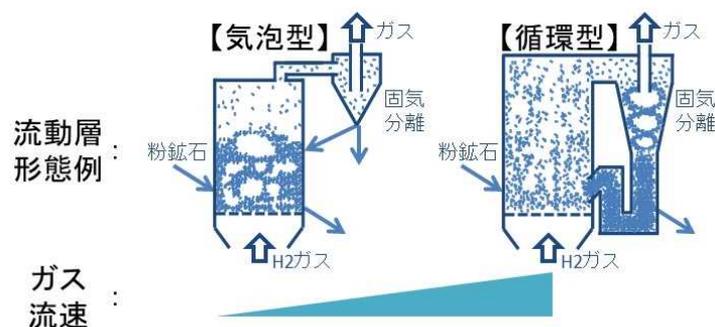
### 3. 実験基礎検討及び技術調査の成果

実験基礎検討及び技術調査の成果を下記に示す。まず、流動層方式の技術の特徴と優位性、開発課題を整理して述べたのち、実験基礎検討の結果をまとめ、開発ロードマップを示す。

#### 3. 1. 流動層方式の技術の特徴と優位性、開発課題

##### 3. 1. 1. 流動層方式の特徴

鉄鉱石を粉のまま還元する流動層方式は、単位体積当たりの比表面積を大きくとることができ、固気反応プロセスにおいて高い反応速度が実現可能となる。流動層反応容器内で固体粒子はガスによって吹き上げられるが、この際の固体粒子の速度とガス流速の差はスリップ速度と呼ばれる。流動層の形態は一般的に流動化が開始するガス空塔速度（最小流動化速度）から、気泡流動状態、乱流流動状態、高速流動状態を経て、最終的にガスと同伴して輸送される希薄輸送層（併流気流層）状態となり<sup>1)</sup>、スリップ速度はこの途中過程で最大となると考えられる。図①-4-4.1にこれらの流動状態と対応する流動層の一般的な装置形態を示す。粒子単体の反応速度を最大化する観点では、反応容器内の粒子密度は低く、スリップ速度が大きくなるガス流速条件が望ましいが、その際ガス側の利用率は低くなるため、流動層方式で還元鉄生産装置を設計する際には、粒子側の反応速度とガス側の利用率を加味した最適化が必要となる。とくに、水素還元においては、未利用の水素ガスの排出を避けるために、向流接触を増やす工夫として多段に直列で反応容器を接続したり、ワンパスで排出されたガスから水蒸気を除去して再度流動層へ導入したりするガス循環系の設備等を備えることが重要となる。



図④-4-4.1. 流動層の典型的な形態.

気泡流動層と循環流動層は、それぞれ処理可能な粒子径に範囲が存在する。気泡流動層では基本的に、ガス空塔速度が反応容器内の粒子の最小流動化速度を超えている必要があり、また、粒子が容器外へ飛び去ってしまわないようにするため、粒子の終末速度未満である必要がある。したがって、気泡流動層において特定のガス流速を設定した場合、処理可能な最小粒子径はそのガス流速に相当する終末速度をもつ粒子であり、処理可能な最大粒子径はそのガス流速に相当する最小流動化速度をもつ粒子となる。なお、粒子径が一定以下の小さな微粉（Geldart マップ<sup>2)</sup>におけるC粒子）では、粒子同士を引き離す重力に対し、ファンデルワールス力による付着力が勝り、流動化自体が困難となるため、鉄鉱石では粒径  $20\sim 50\mu\text{m}$  程度を下回る微粉鉄石については気泡流動層で処理することが難しい。

一方、循環流動層では、処理可能な最小粒径は原理的に存在しないものの、飛び出した粒子を捕集するサイクロンの捕集能力に依存して、実質的に処理可能な最小粒子径が決まる。サイクロンの微粉捕集能力はサイクロンの設計に依存するが、還元鉄プラントとして一定規模の大きさとで操業する場合、圧損を考慮して多くの場合捕集できる最小の粒子径はおおよそ  $40\mu\text{m}$  程度までとされていることが多い。最大粒子径は使用するガス流速に相当する終末速度をもつ粒子となる。なお、鉄鉱石が広い粒径分布を持つ場合、ガス流速が不足している大粒子でも、小粒子の流動化によって運動量が大き粒子に受け渡され、一緒に流動化したり、押し出される形で反応容器から飛び出したりすることが可能となる。また、単独では難流動性の微粉も一定以下の割合であれば流動化可能な粒子にまぶりつくことで一緒に流動化させることができるため、具体的な粒径分布によって処理可能な粒径範囲が左右される。

流動層内では粒子がほぼ完全混合状態となるため、水素還元吸熱反応に対する熱補償において層内温度を均一に制御しやすい利点があるが、排ガス温度が反応温度に近い温度となるため、実機においては排熱利用が重要となる。また、連続処理を前提とした場合、完全混合状態に起因して、先に投入された粒子と後に投入された粒子が混合され、排出される粒子の反応容器内の滞留時間にばらつきが生じることが基本的に避けられない。鉄鉱石の還元では、鉄鉱石粒子の粒径、反応温度、ガス流速、ガス成分等の条件に依存するものの、多くの場合、還元鉄製品に要求される金属化率  $90\%$  超とするためには数分以上の還元時間を要するため、製品還元率のばらつきを抑制するには、十分な滞留時間が確保できるよう、各種の形態により反応容器が多段化される場合が多い。多段構成とすることにより、平均滞留時間を延ばし、還元率のばらつきを低減することが可能となる。流動層還元プロセスとして商業生産実績のあるプロセスにおいても、それぞれ還元反応容器を多段化し、滞留時間を確保する工夫がなされているが、これが設備費の増大を招いている可能性がある。

### 3. 1. 2. 流動層方式の優位性

流動層方式の還元技術は、現在の還元鉄の生産においてシャフト炉方式に比較して極めて限定的である<sup>3)</sup>。流動層方式は、鉄鉱石を粉の状態ですべて直接ガスにより還元し、還元鉄を粉として得る方法であり、事前に原料鉄鉱石をペレットに塊成化することが必要となるシャフト炉方式と比較して、塊成化におけるエネルギーを必要としないことから、原理的にはペレット製造コスト（及びCO<sub>2</sub>排出量）相当の優位性があると考えられる。

還元プロセスとしてシャフト炉方式と比較すると、熱効率と温度制御性は互いに相反する傾向があり、流動層は完全混合容器であることに起因して槽内温度が均一に制御しやすいが、熱効率は低い一方、シャフト炉方式はガスと鉱石が対向流となる向流接触容器であることに起因して熱効率は高いものの、槽内温度分布制御は難しいという特徴がある。設備費に関しては流動層が高い傾向があるとされ、操業の課題に関しては、流動層においてはスティッキング、ダストに関連するトラブル、シャフト炉においては挿入物の降下異常、クラスタリングなどが挙げられる<sup>4,5)</sup>。ただし、今後の鉄鉱石資源の劣質化、とくに鉄分品位の低い鉄鉱石を活用していくことが重要となることを鑑みると、流動層方式は原料の塊成化を必要としないことに起因して、塊成化利用に課題のある低鉄分の鉄鉱石についても適用が可能であり、鉄鉱石原料の自由度の観点で利点があるといえる。しかしながら、現状、還元鉄製造における流動層方式の普及は進んでおらず、これには上記の流動層の特徴に関連し、下記に挙げるいくつかの課題が普及阻害要因となっていると推定される。

### 3. 1. 3. 流動層方式の開発課題

還元鉄生産において流動層方式の普及を阻害している要因として、従来から流動層方式の鉄鉱石還元でボトルネック課題とされてきたスティッキング（還元過程で鉄鉱石粉表層に生成した金属鉄同士の固着）の問題も関係していることが推定される。スティッキングは、還元が進行した鉄鉱石が高温状態で滞留しやすい領域で発生しやすく、これを避けることが生産プロセスの安定性を実現する大前提となるが、C系ガスを用いた従来の流動層還元では、十分な還元速度を得るためにプロセス温度を高温に設定せざるを得ず、生産性とプロセス安定性の両立が難しいとされてきた。加えて、流動層の普及阻害要因には他に、鉄鉱石の原単位（歩留）、設備の非稼働率の高さも挙げられる。これらの要因は必ずしも明らかにされていないが、原料鉄鉱石を粉体のままハンドリングする流動層方式が本質的に抱える問題として、プロセス内の各種容器内、配管内の粉体の詰まりや棚吊り現象等がこれらの原因である可能性がある。

次に水素還元流動層のイメージと主な技術課題を示す。流動層の形態には大きく分けて2つあり、ガス流速の比較的小さい領域で鉄鉱石を飛散させず槽内に留めて鉄鉱石粒子層を通る還元ガスの気泡により反応を進める気泡型流動層と、ガス流速の比較的大きい領域で鉄鉱石を飛散させ、固気分離装置（サイクロン）によって鉄鉱石を反応容器内に戻して循環させながら反応を進める循環型流動層である。前者も飛散した微粉を捕集するためにサイクロンを設置することが一般的であり、前者後者ともにサイクロンで捕集できない微粉鉄鉱石がガスに同伴して系外へ排出される。既存の還元鉄生産プロセスでは、生産性向上の観点と反応容器内の圧力変動を避ける観点から、流動層内の鉄鉱石給排出はバッチ処理ではなく連続処理が採用されており、連続的に容器内へ鉄鉱石を供給しながら、排出を行う形態がとられている。反応容器は耐火物で構成され、水素還元反応は吸熱反応となることから、還元ガスの予熱、鉄鉱石の予熱による顕熱で反応温度を保持する必要があり、未利用の水素ガスは反応によって生成される水蒸気を除去した後、新しく導入される水素ガスとともに再度予熱し、流動層反応容器に戻される。

ここで、想定される主な技術課題は5つ挙げられる。1つ目は、個別の原料鉄鉱石への流動層プロセスの適用性である。鉱石の流動特性（最小流動化速度、終末速度等）や還元特性（温度・ガス成分・圧力等に対する還元率推移）は個別鉱石に大きく依存することから、とくに今後活用が必要となる低品位の鉱石に対して条件を最適化し、コスト競争力あるプロセス条件を確立できるか否かが重要である。2つ目は、還元凝集（スティッキング・シンタリング）の対策である。還元凝集現象は鉄鉱石の還元に伴って表層に生成する金属鉄同士が固着することで引き起こされ、従来のC系ガスを用いた流動層還元プロセスにおいてボトルネック課題とされてきた。3つ目は、鉱石が流動層内で微小粒径化する粉化現象への対策である。粉化現象は流動層内で粒子同士の衝突や反応管内壁への衝突等による機械的な粉化と、昇温による結晶水脱離や還元反応に伴う結晶相の変化により鉱石粒子自体の強度が低下することに起因する粉化があり、サイクロンで捕集できない微小粒が増加するとダストロスが増大となり鉱石原単位の悪化をもたらすことから、粉化自体の抑制と、粉化により系外へ排出された微粉鉄の捕集・再利用技術が重要となる。4つ目は、粉体の流動挙動の制御/評価技術である。流動層の実機操業では流動状態の安定的な制御が重要であり、圧力損失などの操業指標を用いて粉体の詰まりを検出したり、滞留や偏析を抑制・解消したりすることが求められる。5つ目は、水素還元で得られる還元鉄への加炭技術である。鉄鋼材料とするためには炭素の添加が必要であるが、100%水素還元で得られる還元鉄には炭素が含まれないことから、一貫プロセスとして炭素の添加をどのタイミングでどのように行うことがカーボンニュートラル製鉄技術として最適であるかの検討がシャフト炉方式と同様に必要である。

### 3. 2. 鉄鉱石粉の流動特性・還元特性

実験基礎検討の結果を示す。実験基礎検討では、気泡型の流動層、及び循環型の流動層の小型ラボ試験装置を用い、鉄鉱石粉の流動化挙動、水素還元挙動の把握のための冷間・熱間実験を行った。その結果、粒径の異なる数種の鉄鉱石粉について、冷間・未還元条件における気泡流動層の流動化に必要な最小ガス流速（最小流動化速度）、循環流動層の固気分離における分離捕集率の知見が得られた。熱間・還元段階の異なる条件における気泡流動層内の還元凝集性の違い、循環流動層における鉄鉱石粉の摩耗率（粉化率）に関する知見が得られた。

#### 3. 2. 1. 気泡流動層：室温・未還元状態での最小流動化速度

実験基礎検討には、ヘマタイト精鉄を3種（A～C）、ヘマタイト系鉄粉1種（D）、ゲーサイト系鉄粉3種（E～G）の鉄鉱石粉試料を用い、鉄石種による違いを評価した。熱重量分析による少量サンプルでの測定、流動層小型ラボ試験機で供給可能なガス流速域での流動可能な粒径範囲から、試料の粒径はヘマタイト精鉄Cを除き、主として0.25mm以下に乾式分級した篩下を用いた。微粒子の含有割合など粒度分布の詳細には鉄石種特有の違いを有しているため、 $d_{50}$ は異なるものの、数十～100 $\mu\text{m}$ である。未処理状態の鉄石断面SEM像から、ヘマタイト精鉄Aは緻密な単結晶粒子からなり、ヘマタイト系鉄粉D、ゲーサイト系鉄粉Eは単一の鉄石粒子内に空隙やコントラストの異なる領域が細分化されており、Aと比較して結晶性が低いことが確認された。なお、一部の鉄石は配管径の細い小型循環流動層での流動不良を回避するため、粒径0.25-0.5mm、0.5-1.0mmも実験に用いた。

これらの鉄石に対して未処理・室温状態で最小流動化速度を測定した。測定には内径40mmの塩ビ製の筒を用い、筒内の分散盤上に投入した試料鉄石に対し、下部から空気を用いて鉄石を吹き上げ、空気流量

から計算される空塔速度  $u$  [m/s] に対して粒子層の圧力損失をプロットしながら、流動化開始に必要な最小流速 ( $U_{mf}$ : 最小流動化速度) を見積もった<sup>6)</sup>。結果、 $U_{mf}$  推算式<sup>7)</sup>を用いて鉄鉱石密度と平均粒径 ( $d_{50}$ ) から計算される最小流動化速度に対し、一部の鉱石では実測から見積もられた  $U_{mf}$  はやや大きな値を示しており、これは微粉を多く含む鉱石粉で一部が二次粒子を形成して流動化している可能性を示唆していると考えられる。3. 1. 1. に記載のように、鉄鉱石の場合は粒径  $20\sim 50\ \mu\text{m}$  程度を下回る微粉鉱石については流動化自体が難しいことに関係している。

### 3. 2. 2. 循環流動層：室温・未還元状態での粉化率

循環流動層ラボ試験機を用い、室温・未還元状態での鉱石試料の粉化率を評価した。装置は内径  $7.5\text{mm}$  の SUS 製の管にサイクロンを接続した構成であり、室温状態（冷間）で空気を用いて鉱石を一定時間循環操作し、その間にサイクロン排出ガス側に設置したフィルターの重量変化を測定することにより、流動操作で管内に発生し、排ガスに同伴されてサイクロン出口のフィルターに捕集された微粉の重量を評価した。鉱石投入量は  $260\text{g}$  ( $140\text{mL}$ )、導入する空気のライザー部の空塔速度は  $7.6\text{m/s}$  とし、バッチ処理により 1 時間循環操作を行った。

鉱石 F について得られたフィルター重量変化の例では、循環操作を開始してからフィルターの重量増加が見られるが、やがて重量増加量は低減していく傾向が確認された。この傾向は鉱石 F のみでなく、他の鉱石種についても同様の結果であった。また、鉱石の外観変化を観察した鉱石 E の例では、粒子の表層が削れ、表面にもともと付着していたまぶりつき粉が減少している傾向が確認された。室温・未還元状態の鉱石を流動層内で操作した際の粉化現象は、今回確認した試料では粒子自体が破壊されている傾向はみられず、主にせん断による粒子表面の摩耗や剥離が主体であると推定される。

### 3. 2. 3. 各種鉱石の還元速度比較

鉱石種間の還元挙動の違いを相対的に比較するため、熱重量分析装置を用い、静置状態で水素還元中の重量変化を測定した。高温型示差熱天秤 TG-DTA/H（リガク、型式：Thermo plus EVO2）を用い、アルミナ製の試料容器にそれぞれの鉱石を  $15\text{mg}$  秤量して入れ、窒素ガス流通下 ( $214\text{NmL/min}$ ) で  $10^\circ\text{C/min}$  の昇温速度で設定温度まで試料を加熱した。還元温度は流動層還元プロセスで想定される温度域から  $600^\circ\text{C}$ 、 $700^\circ\text{C}$ 、 $800^\circ\text{C}$ 、 $900^\circ\text{C}$ 、の 4 水準とし、設定温度到達後に重量安定化のため  $60\text{min}$  保持した後、温度一定の条件で窒素ガスに加えて水素ガスを同流量導入し ( $214\text{NmL/min}$ )、水素濃度  $50\text{vol.}\%$  での還元に伴う重量減少を測定した。試料中の結晶水 (CW: Combined Water) を含むゲーサイト ( $\text{FeO}(\text{OH})$ ) は昇温過程で結晶水脱離に伴ってヘマタイト ( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ ) に変化するため、還元率は水素導入直前の試料重量を基準とし、重量減少データから、ヘマタイト中の酸素が完全に除去された場合の重量を還元率  $100\%$  とし換算した。

測定の結果、鉱石によって還元温度に対する還元率の時間推移に差異があり、A~D のヘマタイト系鉱石は程度に大小はあるものの  $600\text{-}700^\circ\text{C}$  域で還元停滞する傾向があるのに対し、E~G のゲーサイト系鉱石は単純に高温ほど還元が速くなる傾向がみられた。この結果から、流動層還元プロセスの設計においては、対象とする個別鉱石に合わせて最適なプロセス温度の設定が重要となることがわかる。

### 3. 2. 4. 気泡流動層における還元凝集性の比較

従来の流動層還元プロセスにおいてボトルネック課題とされてきた還元凝集性について、鉱石間の

違いを比較するため、凝集が発生しやすい流動層反応槽内の流動の停滞領域を模擬して、最小流動化速度近傍（Umf の 6 倍未満）の流動条件で水素還元を行い、試料粉体層の圧力損失の変化と、実験後の試料の目視観察から凝集性を評価した。実験には内径 35mm の石英管内部に石英の焼結帯からなる分散板を備え、管状電気炉内で加熱しながら流動化が可能な気泡流動層小型ラボ試験機を用いた。窒素 100%ガスで流動化しながら目的温度まで 20°C/min で昇温し、目的温度で安定したことを確認後、水素 90vol.%、窒素 10vol.%で還元を行いながら、所定時間粒子層の圧損を測定した。所定時間水素を流通させた後は、窒素 100%ガスに切り替えると同時に電気加熱炉の通電を停止し、降温させた。なお、反応管からの排ガスはマイクロガスクロマトグラフィーにより水素濃度のモニタリング測定を行い、水素ガスの利用率と経過時間の関係から、試料から除去された酸素量を算出し、平均還元率を推定した。全量ではないものの、一部の試料は化学分析を行い、ガス利用率から算出された平均還元率と化学分析から得られた還元率がほぼ一致することを確認した。

実験中の粒子層の圧力損失の変化から、次のように凝集体生成の傾向を把握した。圧力損失は検出端部近傍の局部的影響を受けるものの、全粒子が流動状態を維持している場合には、流動ガスで全粒子を支持した状態となり、圧力損失はほぼ一定に保たれ、変化がないのに対し、粒子層内に一定以上の大きさの凝集体が生成され、その凝集体が流動を維持できず沈降した場合には、平均的な挙動として、流動ガスが支持している粒子数が減少することにより、凝集体を構成する粒子重量分が圧力損失の低下として検出される。還元温度を変え、所定時間の還元に対する圧力損失の変化と実験後の試料の凝集有無の目視確認結果から、試料の平均還元度（1：還元率 100%）と還元温度に対する凝集発生の有無を整理した。結果、到達還元率に拠らず、温度が高い条件での還元では凝集が発生する傾向があることがわかった。このことから、還元凝集はプロセス温度を一定温度以下に低温化することで回避可能であることが示唆される。また、ヘマタイト系鉱石よりゲーサイト系鉱石の方が高温条件でも還元凝集が起きにくい傾向があり、凝集回避温度域が広く、実際の還元プロセス温度としても高温まで選択できる可能性がある。

なお、他の鉱石種についても同様の試験を行った結果、低 T.Fe・高脈石のゲーサイト系粉鉱石 F,G は E と同様に高 T.Fe・低脈石のヘマタイト系鉱石 D より還元凝集しにくい傾向が確認された。還元凝集の要因が鉱石粒子の表層に生成される金属鉄同士の固着によると考えると、鉱石の T.Fe が低く、SiO<sub>2</sub> や Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 等の脈石成分が金属鉄同士の固着を阻害している可能性があるが、メカニズム理解にはさらに詳細な調査が必要である。

### 3. 2. 5. 循環流動層における還元粉化性の比較

高ガス流速でスリップ速度を大きくした領域で操作される循環流動層での鉄鉱石還元の基礎挙動を実験的に検証するため、粒径 0.25~0.50mm の試料を篩分けにより準備し、小型ラボ試験機を用いて水素還元を行った。循環流動層は 3/8 インチのステンレス管で構成し、ライザー長は 770mm とし、シールポットには Lバルブを採用した。サイクロンには胴径 43mm のものを用いた。試料 45g を循環流動層に投入し、ライザー下部から 4.3m/s、Lバルブ側面から 0.24m/s となる流量で水素を供給して試料を循環した。循環量は 1.6g/s となった。なお、この実験における還元率は、熱重量測定装置（Rigaku, TG 8120）を用いて還元試料を空気雰囲気下で再酸化し、重量増加から鉄と化合した酸素量を求めて算出した。

まず、循環流動層の水素還元で得られた鉱石の還元率に関する結果の例では、循環流動層ラボ装置での水素ガスによる熱間循環操作により、時間とともに還元が進行する傾向が確認された。熱重量分析に

よる鉱石種間の還元挙動の違いを反映し、630℃の還元条件では鉱石 E より鉱石 D の方が到達還元率が高くなっているほか、装置の部分的な構造を変更することにより、鉱石を吹き上げるライザー部分の長さを2倍にすること（形状タイプ I からタイプ II への変更）で到達還元率が上がる等、到達還元率は鉱石のみでなく、装置構成や循環操作方法にも依存することが確認された。

循環流動層による水素還元では鉱石粒子を循環操作する間に還元が進み、粒子の摩耗も同時に進行するため、還元率と摩耗率の相関が不明となる。したがって、還元の段階に依存して鉱石の粉化率（摩耗率）がどのように変化するか検証するため、所定温度で気泡流動層を用いて鉄鉱石の水素還元を事前に行い、還元段階の異なる試料を準備してから、循環流動層に投入して室温で循環操作することで、還元率によって摩耗率に違いが出るかどうかを調べた。摩耗率は、3. 2. 2. に記載のとおり、循環流動層で試料を1時間循環させ、サイクロン排ガス側に設置したフィルターの重量増加量を測定し、最初に投入した粒子重量で割った値として求めた。なお、還元段階の異なる試料を準備するための気泡流動層による水素還元でも流動化時に微粉が排出されるが、循環流動層での摩耗よりその量はかなり少なく、実験条件範囲では0.3~0.6%となった。

事前の還元には内径 30mm の石英管に石英分散板を固定した気泡流動層を用い、ここに試料 75g を入れ、下部から空気を流しながら所定の温度まで電気炉で加熱し、窒素で置換後、水素を供給して所定の時間、還元を行った。還元後は窒素雰囲気下で冷却した。供給する気体の流量は最初から一定に保ち、所定の温度での還元時に線速度が 0.26m/s となる値とした。基本的に反応温度を 800℃で一定とし、還元時間と供給する水素濃度を変えて異なる還元率の試料を準備した。また、還元温度の影響を確認するため、還元率が 90%超にそろえるように、低温では反応時間を長くし試料を準備した。

鉱石 D の結果では、循環流動層では還元率が高くなるほど摩耗率も明確に増加した。なお、一連の実験で摩耗試験前後の粒度分布を比較すると、全体的に分布が低粒径側へ移行するだけで、小粒径の粒子の数が増加する傾向はみられなかった。このことから、還元を経た鉱石でも流動層中の粉化は主に粒子表面の摩耗や剥離に由来し、粒子自体の割れや欠けはほとんど無かったと考えられる。これは、顕微鏡での粒子観察でも確認した。以上から、還元により粒子表面の強度が低下して循環流動層での摩耗率が増加すること、還元温度に対しては、高温ほど摩耗率が大きくなることがわかった。

他の鉱石種についても同様の実験を行った結果、全体として、今回の一連の実験では、ヘマタイト系鉱石 D よりゲーサイト系鉱石 E,F の方が摩耗率が小さい傾向が見られた。また、還元が進んだ鉱石は粒径の大きい場合の方が摩耗率が大きくなっている傾向が確認された。一方で還元温度依存性や還元率依存性は鉱石種によって統一的な傾向は見出しがたく、プロセス設計を行う場合には、個別に依存性を見極めることが必要と考えられる。

#### 4. 結論

以上、本研究開発項目において実施した実験基礎検討及び技術調査によって得られた結論は下記のとおりである。

- ・流動層方式は原理的に粉鉱利用による利点がある（塊成化不要）。
- ・開発例はシャフト炉と比較すると少ないながら、吸熱反応となる水素還元において温度制御が容易である点、塊成化利用に課題のある低鉄分の鉱石に関しても適用が可能であり、還元凝集も起きにくい点から、今後の開発に対して可能性がある。
- ・プロセス設計は扱う鉱石種に大きく依存するため、還元凝集温度、還元速度、粉化傾向を把握したう

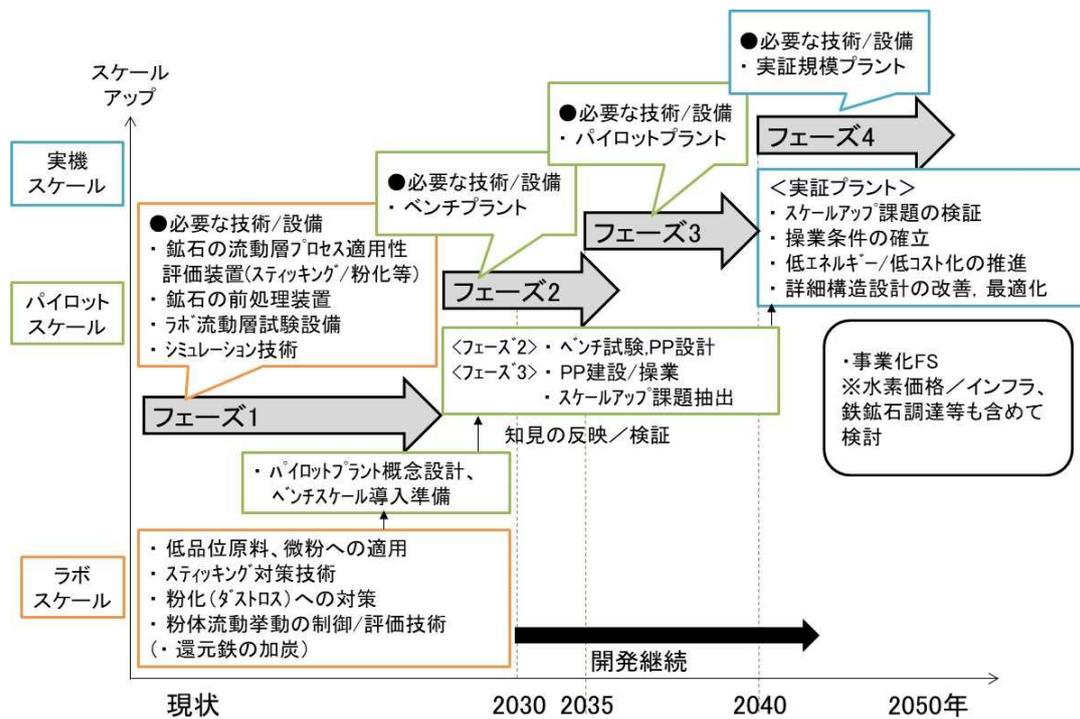
えで行う必要がある。

- ・流動層方式での水素還元の場合は、還元凝集温度未満で還元速度が可能な限り大きくなる温度とし、当該温度の還元所要時間に合わせて滞留時間を設定し給排出させることが基本的な設計の指針となると考えられる。
- ・粉化率の大きい鉱石や、超微粉を多く含む原料鉱石では、超微粉の回収・利用技術が重要となる。
- ・操業安定性については還元凝集とは別に粉の詰まりなど課題があるとされており、今回実験基礎検討に用いた小型ラボ試験機では検証困難であり、より実機に近い連続処理装置（ベンチスケール、パイロットスケール、デモ／実証設備）での検証が必要と考えられる。

## 5. 流動層方式の開発ロードマップ

以上に整理した技術開発課題と実験による基礎検討の結果から、流動層方式の鉄鉱石還元プロセス開発を想定し、必要となると考えられる開発項目と開発ステップ、想定開発期間を図2のロードマップにまとめた。開発ステップは、ラボスケールでの基礎検討から、パイロットスケール、実機スケールに分け、段階的に必要となる開発項目及び検証項目を記載した。

現在、流動層方式の水素還元プロセスは実機として稼働しているものは存在せず、海外の製鉄プラントメーカーを主体として研究開発段階であるが、生原料をそのままに近い粉の形態で扱う流動層方式では、上記にも示した通り、最適なプロセス条件は対象とする鉱石に大きく依存する。したがって、日本において対象とすべき鉱石、とくに今後資源の劣質化が進行し、活用の必要性が高まる低品位鉱石や低品位鉱石の処理に付随して発生量の増加する可能性のある微粉・ダスト、品位を高めるために粉碎・磨鉱を経た微粉鉱石など、個別の鉱石に対して基礎的な流動挙動、還元挙動を把握することがコスト競争力のあるプロセス設計を行う第一段階として重要と考えられる。そのため、ラボスケール試験での最適条件探索とラボ試験機よりスケールアップしたベンチスケール試験機またはパイロットスケール試験機での諸元検証は、所要検討期間の長短は想定されるものの、既存のC系ガスを用いたプロセスをベースとした開発においても必須となると想定される。ただし、ベンチもしくはパイロット以降のスケールアップにおいては、必ずしも段階を踏んだ検証が必要となるとは限らず、開発ステップはスケールアップにおける課題の難易度から、検証の必要性に応じて短縮できる可能性がある。



図①-4-4.2. 流動層方式の開発ロードマップ（概念図）

・フェーズ1（ラボ試験）：

フェーズ1として、ラボスケール試験機で開発が必要な技術課題項目には、原料への適用性判断と使用鉱石に合わせた最適条件探索、スティッキングやダストロスへの対策検討、還元率ばらつき低減技術等、が挙げられる。また、実機の普及阻害要因として挙げた設備稼働率の悪化に対して、粉体の流動や搬送挙動の異常を検知する評価技術や安定制御技術の検討も重要であると考えられる。さらに、100%水素還元における還元鉄には鉄鋼材料として必要となる炭素が含まれないことから、一貫製鉄プロセスとして還元鉄への最適な加炭のタイミング・加炭方法の検討も必要である。この期間に必要な技術や設備には、流動基礎挙動と還元基礎挙動を把握するためのラボ流動層試験装置のほか、対象鉱石のスティッキングや粉化の程度を評価する装置、予熱条件の最適化を含む鉱石の前処理に関する装置や、シミュレーション技術の構築などが挙げられる。

[必要な技術/設備] 流動層ラボスケール試験機、スティッキング及び粉化評価技術、鉱石前処理装置、超微粉回収利用や流動安定化等の要素技術、シミュレーション技術

・フェーズ2（ベンチ試験）：

フェーズ2として、ベンチスケール試験機にて基本操業条件の探索、ラボ試験で得られた知見の反映と検証を行う。ベンチ試験の検討結果をもとに、実機を模擬したパイロットスケール試験機的设计を行うとともに、基本操業条件を決定し、以降のスケールアップにおける課題を抽出する。

[必要な技術/設備] 流動層ベンチスケール試験機、シミュレーション技術

・フェーズ3（パイロット試験）：

フェーズ3として、パイロットスケール試験機にて操業条件最適化を行う。より実機に近い条件にて操業制御課題を抽出し、構造改良やモニタリング技術検討、スケールアップ課題抽出を行う。

[必要な技術／設備] パイロットスケール試験機、シミュレーション技術

・フェーズ4（実証試験）：

フェーズ4として、実機実証スケールの設備を用い、操業条件を確立する。また、詳細構造設計の改善・最適化を行うとともに、スケールアップ課題の検証、事業化課題・コストダウン検討、量産、低コスト化技術の確立を行う。

[必要な技術／設備] 実機スケール設備

（6）参考文献

- 1) 日本粉体工業技術協会，流動層ハンドブック，培風館（1999）7.
- 2) Geldart D: Powder Technol. 7 (1973) 285.
- 3) Midrex: AISTech Proceedings of the Iron & Steel Technology Conference (2021) 262.
- 4) 近藤 真一：鉄と鋼，60(1974)10, 154-1559, “鉄鉱石の流動層還元について” .
- 5) 西田信直：鉄と鋼，6(1976)6, 705-740, “還元鉄製造法の現状について” .
- 6) 鞭巖ほか，流動層の反応工学，培風館（1984）19.
- 7) 鞭巖ほか，流動層の反応工学，培風館（1984）18.

②. 水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査および開発ロードマップの作成

②-1. 水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬・品質に関わる技術調査および課題抽出・要素技術洗い出し

(1) 課題の整理

本項目ではシャフト炉および流動層で直接水素還元により製造した固体還元鉄を溶解・精錬し、高級鋼を製造するプロセスを実現するための課題を抽出し、開発ロードマップを作成することが目標となる。天然ガスや石炭などを使用してシャフト炉や流動層で還元鉄を製造し、電気炉を用いて溶解・精錬するプロセスは海外で多数稼働しており、これらに関する技術調査を行うとともに、本PJの前提である豪州鉱石のような劣質鉱石を原料とし、水素還元により製造した還元鉄を原料とした条件で現行の高炉・転炉プロセスと比較しつつ検討した。

まず、溶解・精錬プロセスにおける課題を明確化するために、豪州鉱石に代表される劣質鉱石に由来する原料面と、溶解・精錬を担うプロセス面から検討を行った。南米および豪州産鉱石組成の一例を表②-1.1に示す。提示されたのは一例であり、鉱山や工区により異なるが豪州鉱石は鉄品位が低く、SiO<sub>2</sub>やAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の脈石分が多く、りん濃度が高い傾向にある。

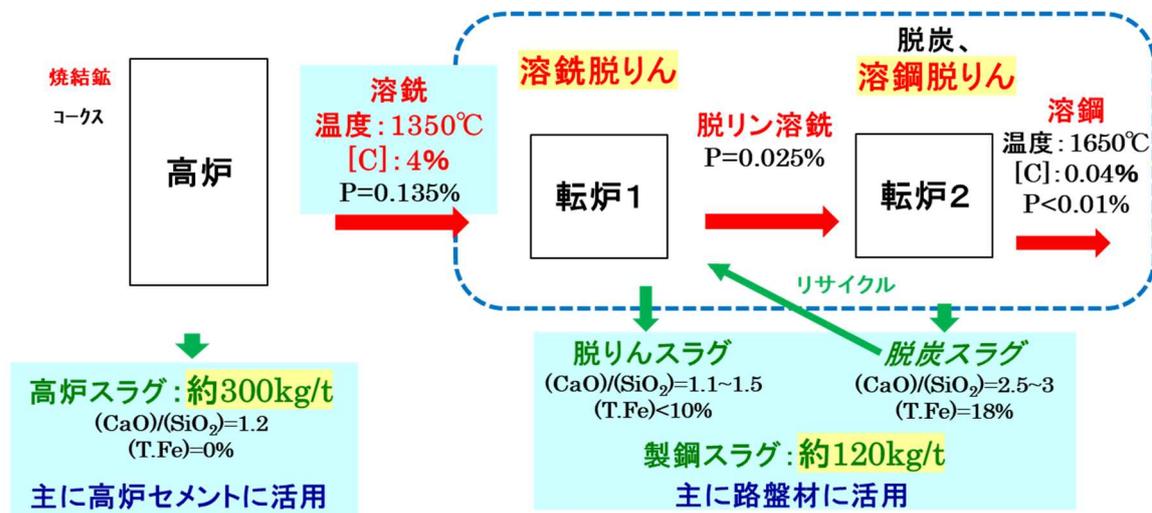
表②-1.1 南米および豪州産鉱石組成の一例

	鉱石銘柄	単位	T-Fe	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	P	P/Fe
			%	%	%	%	×100
豪州産高P鉱石	Brockman	鉱石分析値	59.60	4.0	2.5	0.14	0.23
	MarraManba	鉱石分析値	59.60	4.8	2.5	0.14	0.23
	Brockam#2	鉱石分析値	60.60	5.2	2.6	0.12	0.20
南米産低P鉱石	Carajas	鉱石分析値	65.40	1.0	1.1	0.04	0.06
	Itabira	鉱石分析値	68.90	0.4	0.6	0.03	0.04

NEDO「戦略的省エネルギー技術革新プログラム／テーマ設定型事業者連携スキーム／鉄鉱石の劣質化に向けた高級鋼材料創生のための革新的省エネプロセスの開発」で整理した鉄鉱石成分の推移と2030年の予測によれば、我が国の高炉で使用する主要鉱石である豪州産鉄鉱石は、欧米における主要原料である南米産鉱石などと比較して、①鉄品位が低位、②相対的に高脈石割合、③高りん含有量といった特徴を有することに加えて、これらの低品位化が年々進行している。さらに、今回は水素還元により還元鉄を製造することから天然ガスや石炭で還元した還元鉄と異なり、還元鉄中に炭素が含まれないという特徴がある。本項目ではこれらの条件を踏まえて検討を進める。

次に、現行の高炉・転炉法における精錬プロセス例と設計思想の模式図、あわせてプロセスにおけるスラグの発生挙動の一例を図②-1.1に示す。我が国では欧米と比べて相対的に劣質である豪州鉱石を使用し、かつ不純物の少ない高級鋼を製造してきたこともあり、長年、高効率な脱りんプロセスの構築に力が注がれてきた。その結果、各社設備構成は異なるものの図に例示されるように、転炉もしくは取鍋やトピードカーなどを活用した他の精錬装置により、予備処理として脱りんを行ったうえで転炉の吹錬を実施する2段階の精錬プロセスが主流となっている。これらのプロセスは、脱りに有利な高炭素濃度、かつ低温の溶銑を強力な攪拌力で処理するという利点を活用しており、具体的には溶銑(1350℃、C=4%)の脱りん能は溶鋼(1650℃、C=0.05%)の約20倍となり、スラグ排出量の削減に

つながっている。各工程での処理時間は通常 40-60 分程度であり、高炉の出銑量や連続鑄造サイクルに見合う高生産性を確保している。スラグの観点では、高炉出銑段階で 300kg のスラグを分離し高炉スラグとしてセメント用途などに活用されている。その後転炉では脱りん及び脱炭の工程でリサイクルも実施するものの 120kg 程度の製鋼スラグが生成し、路盤材などに活用されている。



図②-1.1 現行の高炉-転炉法における精錬プロセス例とスラグ発生挙動

また、高炉-転炉法と電気炉法を比較した時の成分面での特徴として、電気炉法ではスクラップに由来するトランプ元素の混入が課題となるほか、鋼中に含まれる窒素濃度が高炉-転炉法と比べ高くなることが知られている。これは、転炉では吹錬に伴う脱炭反応と同時に脱窒も進行するのに対し、電気炉ではこのような反応は生じないことに加え、電気炉の操業では一般的に大気との接触による吸窒が生じることに起因する。高級鋼の鋼種によっては窒素濃度を低減する必要がある、脱窒についても検討をする必要がある。

本項目では、このような現状を踏まえ、劣質の鉱石を原料とする水素還元鉄を溶解・精錬し高級鋼を製造するプロセスについて検討を行った。

## (2) 技術調査

### i) 調査の概要

前述のように天然ガスをベースにシャフト炉や流動層で還元鉄を製造し、電気炉を用いて溶解・精錬するプロセスは海外で多数稼働している。①-1 で記述したように、世界で生産されている還元鉄(炭素 or NG還元)は 1 億トン超/年であるが、大部分は電気炉で溶解している。しかしながら高炉法と比べると 1 基あたりの生産規模は小さく、水素直接還元-電気炉プロセスには技術的な課題の他に高炉法を代替するための生産規模拡大の課題も存在している。そこで、技術調査では電気炉法に関する情報の収集と、世界の還元鉄(DRI/HBI)製造及び電気炉への適用状況に関する調査を実施した。

### ii) 電気炉法に関する技術調査

鋼の製造法は高炉-転炉法と電気炉法に大別されるが、世界の粗鋼生産で電気炉法の占める割合

は 30%弱程度である。長年、炉の大型化と電源の大容量化により大規模化の技術が進められ、現在ではヒートサイズが 350t 規模の設備も存在するが<sup>1)</sup>、多用されているのは 150t 規模であり、年間生産量にすると 140 万 t/年程度に相当する。これは大規模高炉の 400 万 t/年規模と比較すると小さく、高炉法の代替を想定すると大規模化も必須となる。

一般に電気炉の操業は、炉蓋を開放してバケットによりスクラップを投入、アークにより加熱・溶解する。必要に応じて酸素を導入して脱炭や脱りんなどの酸化精錬や、脱酸材や合金鉄を投入して還元精錬を行う。技術開発は生産性の向上、操業コストの削減、高品質鋼の製造などを目的に進められてきたが、最近では EBT(Eccentric Bottom Tapping)と呼ばれる炉底偏芯出鋼方式やスクラップの予熱と連続装入、フラットバス化を可能とするシャフト炉方式や横型連続搬送方式が多く導入され、これらの課題への対応が進められている<sup>1,2)</sup>。

### iii) 還元鉄の溶解・精錬に関する技術調査

自動車用鋼板など比較的高級と考えられる鋼材への電炉材適用を推進している北米を中心に調査を進めた結果、Nucor をはじめ各電炉の電気炉容量、溶解原料、連铸機形式の情報を得ることができた。Nucor はシャフト炉（トリニダードトバコ、ルイジアナ）で 400 万 t 超/年の還元鉄を製造し各製鉄所に溶解原料として、配分しているが、情報を整理した結果を表②-1.2 に示す。

表②-1.2 Nucor 社各製鉄所の溶解原料と連铸機形式

EAFF	LOCATION /WORKS	TAP	TYPE OF CHARGE	CASTER TYPE
AC	CRAWFORDSVILLE, IN	118t×2	SCRAP,DRI	THIN-SLAB
DC	BERKELEY, SC	160t×2	SCRAP+PIG IRON+HBI	SLAB+BLOOM
DC	HICKMAN	155t×2	SCRAP+PIG IRON, PELLETS	THIN-SLAB
DC	DECATUR, AL	154t×2	SCRAP, DRI	THIN-SLAB
DC	GHENT, KY	172t	SCRAP+PIG IRON+DRI	THIN-SLAB
DC	TUSCALOOSA, AL	136t	SCRAP, DRI	SLAB
AC	AUBURN, NY	50t	SCRAP, DRI	BILLETS
DC	NORFOLK, NE	95t	SCRAP, DRI	BILLETS
AC	SEATTLE, WA	100t	SCRAP	BILLETS
AC	MEMPHIS, TN	91t	SCRAP	ROUNDS
DC	DARLINGTON, SC	100t	SCRAP(PREHEATED)	BLOOMS

連铸機形式に Thin-Slab もしくは Slab と記載されている製鉄所では鋼板も製造していると考えられるが、原料との対比を見ると、これらのミルでスクラップのみでなく DRI や銑鉄も装入している傾向がある。北米の他社についても同様の整理を実施したが、同様の傾向が得られた。また、一例として、Nucor Hickman ではスクラップ 60%・DRI 30%・溶銑 10%程度を使用しているとの情報が得られた。DRI や溶銑を併用する理由としては、スクラップ中のトランプエレメント希釈に

加え、脱窒促進等の高級鋼対策と考えられる。

iv) 電気炉以外の溶解法に関する調査

ここまで想定してきた通常の電気炉法以外の溶解法として、過去にわが国では、国内高炉メーカー、電炉メーカーに海外の一家が参加してスクラップの全量回生を目的とした「新製鋼プロセス・フォーラム」(1991-2000)の活動で電気炉型、転炉型(攪拌浴)型、及び充填層型の溶解炉が<sup>3)</sup>、(社)日本鉄鋼連盟(高炉 8 社の参加)と(財)石炭利用総合センターの共同研究で DIOS 溶融還元法(Direct Iron Ore Smelting Reduction Process)、(1988-1996)が検討された<sup>4)</sup>。

これらの開発技術と、現状の代表的溶解精錬プロセスである転炉法及び電気炉法の特徴を比較し表②-1.3 にまとめる。転炉法は設備に加熱機構を備えておらず、溶銑中に 4%強溶存する炭素を燃焼することにより加熱するプロセスであり、溶銑の加熱・温度維持のためにもあらかじめ炭素を含有することは必須である。一方、電気炉法はアークにより加熱・溶解するので炭素含有は必須とはしないが、転炉法と比べると浴深が浅く強力な攪拌を実施することができないため精錬能力に課題がある。上記の開発はこれらの課題の克服も意図しており、新製鋼プロセス・フォーラムの転炉型(攪拌浴)型ではアーク加熱と攪拌を両立するために転炉型の形状を採用している。また、DIOS で試験を実施した溶融還元法には、DIOS の他に欧州で開発がすすめられた HI-Sarna、HI-Smelt と呼ばれている鉄浴炉方式と、COREX や FINEX に適用されているシャフト炉方式に大別される。両者の特徴及び得失については、(3)iii)溶解法の検討の項で述べるが、溶融還元法は加熱のための熱源として炭素を使用するため、カーボンニュートラルを実現するためには大量の CN 炭が入手できることもしくは CO<sub>2</sub> 排出に見合う分の CCU もしくは CCS が実現できることが前提となる。

表②-1.3 転炉法及び電気炉法と過去検討溶解技術例の比較

	現状の設備		参考技術例	
	転炉	電気炉	転炉型電気炉	溶融還元炉
加熱	溶銑中炭素の燃焼	電気	電気	炭素の燃焼
特徴・課題	加熱機構なし (溶銑中Cの燃焼により加熱)	・浅浴、低攪拌⇒ 低加炭効率、 低精錬能	・深浴・高攪拌⇒ 加炭効率、精錬能改善 ・アークの制御性	・必要炭素量(CN材)の増加 ・排ガス温度制御

v) 劣質鉱石への対応を志向した最近の動き

前述のように天然ガスをベースにシャフト炉や流動層で還元鉄を製造し、電気炉を用いて溶解・精錬するプロセスは海外で多数稼働しているが、従来は高品質の鉱石を使用する前提であった。これに対して各国でカーボンニュートラル製鉄のプロジェクトが動き始め、高品質鉱石の供給に限界が見えてきたこともあり、2021 年になり欧州を中心に急激に劣質鉱石を原料とする還元鉄の溶解精錬に関する報告が欧州のプラントメーカーを中心に相次いで公表された<sup>5)</sup>。

ここでは高品位原料の場合には DRI プラントで製造した還元鉄を溶鋼製造型電気炉で溶解精錬

するのに対して、低品位原料の場合には還元鉄を OSBF と呼ぶ溶銑製造型の電気炉で溶解し、一旦溶銑を製造したのち既存転炉にて精錬することを示している。溶銑製造に特化した電気炉とすることにより高炉スラグ相当のスラグが生成するため、高炉スラグ代替として活用できること、製造した溶銑相当の炭素含有溶鉄を精錬する工程に関しては既存の転炉設備を活用可能かつ技術開発の必要もないというメリットがある。同様の提案は SMS-Siemag や ThyssennKrupp Stahl からも同時期に発表されており、欧州でも劣質鉱石への対応が急激に注目されていることをうかがわせる。しかしながら、いずれの報告の視点も高脈石に伴うスラグ発生量の増加であり、りん濃度や脱りんに関する記載はない。

### (3) 水素還元鉄溶解・精錬における技術課題

以上に述べてきた技術調査結果を踏まえ、溶解原料として豪州産鉱石を使用して製造した水素還元鉄を 100%使用し、電気炉で溶解・精錬することを想定して検討を行った。検討では製鋼プロセスの設計にあたり重要な因子となるスラグ発生量、必要となる生石灰量(CaO 原単位)、脱りに伴うスラグ中への鉄分ロス、工程で必要となる電力原単位を試算した。

前提として、豪州産鉱石初期りん濃度を 0.144%、精錬後りん<0.01%と想定した。検討では還元鉄から直接溶鋼を製造する場合(case1)と、溶解段階で一旦加炭する場合(case2)を想定し、比較のために現行の還元鉄の電気炉溶解・精錬と同様の、りん濃度の少ない高品位鉱石(P=0.047%)を前提とした試算もあわせて示した。前提条件、得られた結果を表表②-1.4 に示すとともにそれぞれの Case についての結果を以下に記述する。

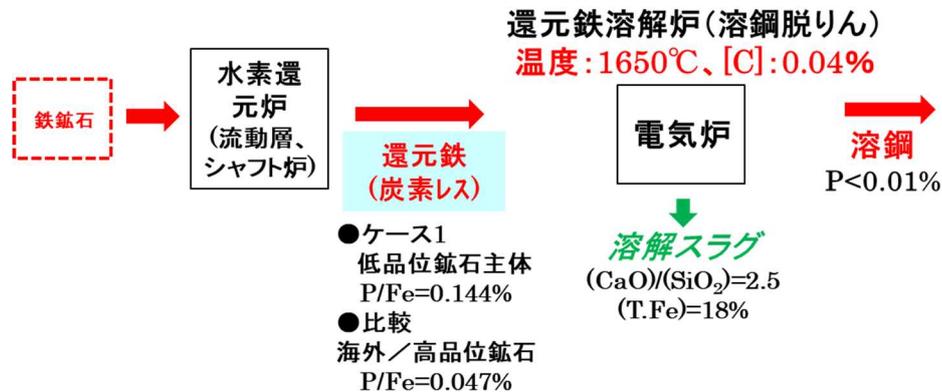
表②-1.4 溶解・精錬工程におけるスラグ発生量、CaO 原単位、鉄分ロス、電力原単位の試算結果

検討条件		case1	case2	参考 高品位鉱石
		非加炭プロセス	加炭想定プロセス	
検討条件	精錬温度(°C)	1650	1350	1650
	鉱石中りん濃度(%)	0.144		0.047
	処理後りん(%)	<0.01		
	塩基度 (CaO) / (SiO <sub>2</sub> )	2.5	1.1	2.5
	平衡りん分配係数	28	22	34
検討結果	発生スラグ量(kg/t)	600	230	110
	CaO 原単位(kg/t)	230kg	90kg	40kg
	鉄ロス	10%超	3%弱	約 3%
	電力原単位 (ホットチャージ無し)	約 1350kWh	約 750kWh	約 800kWh

#### i) Case1 還元鉄から直接溶鋼を製造する場合

Case1 で想定するプロセスの概要を図②-1.2 に示す。水素還元を前提とすると還元鉄中に炭素を

含有しないことから 1650℃という高温での溶解が必要となることに加え、脈石に含まれる鉱物層は全量電気炉に持ち込まれる。これらの条件を踏まえて、脱りんのために必要と考えられるスラグ塩基度 (CaO)/(SiO<sub>2</sub>)を 2.5 と想定すると、必要となる生石灰量(CaO 原単位)や発生スラグ量が計算できる。



図②-1.2 水素還元鉄を電気炉で溶解・精錬するプロセスの工程イメージ

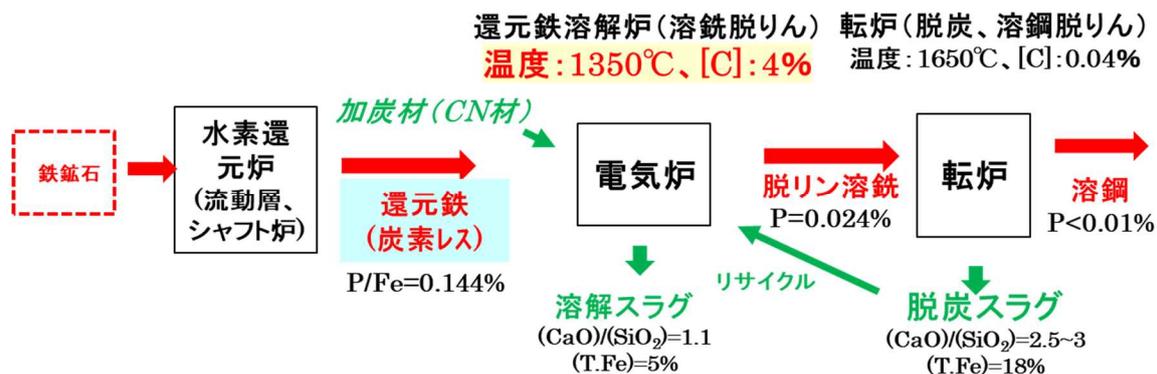
得られた結果によれば、豪州鉱石を前提とすると、脱りん負荷と多量の脈石に起因して 600kg もの多量のスラグが発生し、CaO 原単位は 230kg/ton、鉄分ロスは約 10%といずれも極めて大きな値となることが判明した。さらに、発生スラグは鉄分が多く脱りんも実施していることから、製鋼スラグ組成に近く、用途の確立している高炉セメントの代替とはならないという課題もある。また、溶解温度が高温であることに加え、比熱の大きい多量のスラグも同時に加熱する必要があることから電力原単位も非常に大きくなる。

これに対して、参考のために検討した高品位鉱石を前提とすると同水準までの脱りんを実施してもスラグ発生量も 110kg と対処可能な量にとどまり、鉄ロス、CaO 原単位とも大幅に減少する。

多量に発生するスラグの対応や溶解のためのエネルギーコスト、精錬負荷などを考えると、この条件では経済性や生産性も兼ね備えたプロセスとしての成立は困難と判明した。

#### ii) Case 2 溶解段階で一旦加炭する場合

次に、水素還元鉄の溶解に際し、一旦[C]=4%程度まで加炭し、電気炉で溶解した後に脱炭するプロセスを想定し同様の検討を行った。プロセスの概要を図②-1.3 に示す。一旦加炭することにより溶銑相当の組成となることから、電気炉で溶解した後、高炉メーカーであれば既存の転炉を活用して吹錬を行うことも可能となる。この思想は(2)技術調査 v)で示した劣質鉱石への対応を志向した最近の動きと類似しており、文献調査に基づきここで提示した内容ではないにもかかわらず、劣質鉱石を想定した場合、同様の思考に至ったことを示している。



図②-1.3 水素還元鉄を一旦加担し溶解・精錬するプロセスの工程イメージ

この条件では炭素を飽和濃度近くまで含有することにより、溶鉄の融点が低下し 1350°C程度での溶解が可能となる。溶解温度の低下は、脱りんにも有利に作用することから、同じ豪州鉱石を前提としても必要となるスラグ塩基度 (CaO) / (SiO<sub>2</sub>) も 1.1 程度まで低下させることができ、必要となる生石灰量 (CaO 原単位) や発生スラグ量も case1 と比べて大幅に減少することが明らかとなった。あわせて溶解精錬時の電力原単位を試算したところ、溶解温度が低下すること、溶解した炭素の燃焼熱も昇温に寄与すること、発生スラグの加熱に要するエネルギーが減少することから表 5 に示した通り case1 と比べて大幅低減でき、高品位鉱石を前提とした参考条件に相当する程度となることを確認した。この検討の結果、水素還元鉄の溶解、精錬時には脱りんやスラグ発生、消費エネルギーの観点から、還元鉄に一旦加炭すべきと判断した。

### iii) 溶解法の検討

ここまで溶解法としては電気炉を想定してきたが、他の方法についても検討を行った。前述の深浴型電気炉及び鉄浴炉方式とシャフト炉方式の 2 種類の熔融還元法について電気炉法と比較して概要及び検討結果を表②-1.5 に示す。(2)技術調査 v) で記載したとおり熔融還元法は熱源が炭素の燃焼熱であり CO<sub>2</sub> 排出削減に対して負の面がある。前者の鉄浴炉方式は前述の DIOS の他、Hi-sarna あるいは Hi-Smelt としてコークス炉や焼結機を必要としない製鉄プロセスとして欧州で研究開発が進められている。炉の構造から脱りん機能を付与することが可能であることに加え、完全 O<sub>2</sub> 運転とすれば排ガスは高濃度 CO<sub>2</sub> となり、CCU との相性がよいこと、原料品質に対する尤度も大きいことが長所として挙げられる。これに対してシャフト炉方式の熔融還元炉は Finex や Corex などの稼働実績はあるものの、脱りん機能を持つことができず、今回の高りん鉱石を前提とした検討にはなじまない。このため熔融還元炉の選択の可能性としては鉄浴炉方式となるが、耐火物寿命の課題などが克服されておらず、実機稼働実績もないことから、限られた時間や研究資源の条件では、溶解プロセスとしては電気炉を中心に開発を進めるべきと考えられる。但し、電気炉溶解と精錬を担うことは生産性やスラグリサイクル対応の点で困難を伴う可能性もあり、技術調査の項で記載したような溶銑製造に特化電気炉を選択するなど、電気炉の機能や使用については引き続き検討が必要である。

表②-1.5 各種溶解方式の比較

方式	電気炉方式 (溶銑製造前提)	鉄浴炉方式溶融還元 (高二次燃焼タイプ)	シャフト炉方式溶融還元 (二次燃焼なし)
プロセス(例)	直流/交流電気炉	DIOS,Hi-Sarna,Hi-Smelt等	COREX,FINEX 等
必要炭素量 (木炭前提で推定)	加炭:40kg程度 ○	加炭+溶解:100kg程度 △	加炭+溶解:>200kg ×
精錬機能	脱りん機能あり ○	脱リン機能あり ○	脱りん機能なし ×
稼働状況	還元鉄からの溶鋼製造では各国で稼働中 ○	開発中もあるが実用化は未達成。耐火物等の課題あり △	各国で稼働中 ○

iv) 溶解・精錬プロセスにおける技術課題のまとめ

ここまでの調査、検討の結果、脱りんやスラグ発生の問題を克服するためにも水素還元鉄の溶解、精錬時には還元鉄に一旦加炭し、電気炉で溶解すべきと考えられるとの結果が得られた。しかしながら、高りん濃度かつ高脈石の劣質炭素を原料とし、炭素を含有しない水素還元鉄を溶解、精錬し高級鋼を製造するプロセスを実際に構築するためには多くの技術課題があり、基礎実験や実際に電気炉を使用した実験なども必要である。

技術課題としては、相互に関連はあるものの劣質鉱石由来の脈石に起因する多量スラグに対する対応と高級鋼の製造を前提とした精錬能力に対する対応、さらには高炉法の代替を想定した大型化に分類し、考えられる要検討項目を表②-1.6 にまとめる。

表②-1.6 溶解精錬プロセスにおける要検討項目

分類	課題	検討項目
多量スラグ		<p><b>スラグ減量化</b>：鉍石事前処理</p> <p><b>排滓方法、時期</b>：炉設計、工程設計</p> <p><b>スラグ利材化</b>：脱りん前排滓など</p> <p>想定条件・・・加炭想定時スラグ量：230kg, 非加炭時スラグ量：600kg (cf.現状の電気炉プロセス：100kg 以下)</p>
精錬	加炭	<p><b>必要加炭量の見極め</b>：溶銑相当(C≒4%) or 脱N推進目的 (電気炉薄板製造時の現状)：C=max1.8%相当 (18kg/t)</p> <p><b>最適加炭工程の選定</b>：電気炉もしくは水素還元工程</p> <p><b>加炭用 CN 炭材の確保</b>：電炉：木炭等のバイオマス、シャフト炉等：バイオガス (メタン)、リサイクルガス</p>
	攪拌	<p><b>必要攪拌力見極め</b>：加炭に必要な攪拌力の定量化</p> <p><b>攪拌方式</b>：現状の電気炉では多くは攪拌なし</p>
	脱窒	<p><b>吸窒防止</b>：炉設計、操業方式、スラグフォーミング制御</p> <p><b>炉内脱窒技術</b>：脱炭同時脱窒</p>
大量生産		<p><b>電気炉大型化</b>：電源設計、炉設計、附帯機構の対応</p>

多量のスラグに対する対応については、鉍石を事前脱りんしたり、脈石分を除去する選鉍を実施するなどの排出量の減量につながる事前処理とともに、電気炉からの排滓技術、排滓性の優れたスラグ設計、炉設計、排滓時期などの検討が必要である。また、脱りん前に初期に一旦排滓して利材化に優れた高炉スラグ相当のスラグを分離するなど、プロセスの最適構成を検討する必要がある。

加炭については、溶湯中炭素濃度を溶銑相当(C≒4%)まで必要か、脱窒推進目的最低限度(C=max1.8%程度)で対応可能かの見極めが必要である。また、炭素を含有しない水素還元鉄に対して、加炭工程として水素還元工程と電気炉、もしくは両プロセスで分担することが考えられる。加炭の際には着炭効率が課題となる可能性が高く、実際に小型炉などで実験を行い最適な工程の選択や分担、加炭方法を選択する必要がある。さらに、炭素が必要となることから加炭用 CN 炭材の確保や炭材の製造技術の確立も考える必要がある。

炉内の攪拌は精錬(脱りん)効率や炭材添加に伴う着炭効率に大きな影響を与えるが、他にも還元鉄やスクラップの溶解挙動や炉内温度の均一化などの操業とっても役割は大きく、高級鋼製造能力と生産性の両者にとって重要な因子となる。一方で、一般的に電気炉は攪拌能力を有しないか極めて小さい。電気炉などの大型の金属浴の攪拌にはガス吹込みが常用されるが、電気炉は溶解効率を重視し一般的に浅浴であり、強攪拌には適さない形状であることが一因である。精錬や加炭に必要な攪拌力を定量化するとともに攪拌方式の開発や浴形状の最適化も含めた従来にない発想も必要と考えられる。

SULC や電磁鋼板などの高級鋼では極低窒素レベルの実現が必要となり、脱窒に関しても検討の必

要がある。通常、電気炉の操業では炉蓋を全開してスクラップを投入するとともに大気雰囲気中でアーク放電するために、高炉法より高窒素濃度となる。これに対して、近年電気炉においても吸窒防止の観点で浴と大気との接触を極力回避するための原料供給方式や操業方式、スラグフォーミング制御などがすでに適用されている。さらに、一旦加炭するプロセスを想定すると脱炭同時脱窒が可能となる。これらの技術によりどの程度の実績が得られるのか見極める必要がある。

さらに、大量生産技術の確立のためには電気炉の大型化も必要となる。近年世界で大型電気炉の建設、稼働が進んでいるが、現在でも大規模高炉の400万t/年規模と比較すると小さく、さらなる大型化と生産性の拡大技術を確立する必要がある。そのためには炉体そのものの大型だけでなく、電源方式や電源設計、炉形状やユーティリティ配置などの炉体設計、バーナーやランスなどの附帯機構の対応などを通じ炉内の流動や温度制御などを中心とした多岐にわたる検討が必要となる。

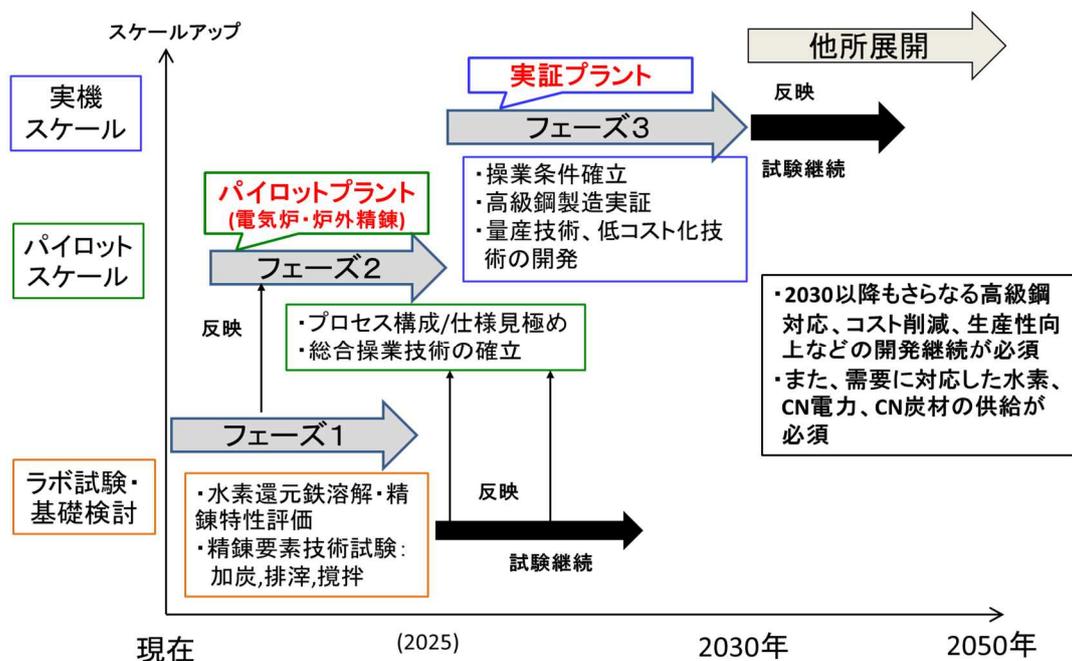
## ②-2. 水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関する開発ロードマップの作成

### (1) ロードマップの作成

ここまで整理してきたように、劣質鉱石を原料として高級鋼を製造するためには水素還元鉄の溶解・精錬時には脱りんやスラグ発生の課題を克服する必要がある。そのためには還元鉄に一旦加炭し、電気炉で溶解すべきと考えられる。前述のように還元鉄を電気炉で溶解するプロセスには操業実績があるものの、高品質原料の使用が前提である。これらの課題を克服しつつ高炉プロセスの生産性に匹敵する量産技術を確立するためには、電気炉で高級鋼用途の精錬まで実施することが可能か、溶解及び排滓や脱りんなどと吹錬を分離すべきか、炉外精錬の活用や最適分担の見極めなど非常に多岐に渡る検討を行いプロセス設計を行う必要がある。これらの課題を踏まえて作成したロードマップを図②-2.1に示す。各国のカーボンニュートラル製鉄の動きや我が国の2050年のカーボンニュートラルの実現方針やグリーンイノベーション基金事業の動きなどを踏まえ、2030年度に実機規模の実証プラントにおいて高級鋼の製造を実証することを想定して作成した。

まず、フェーズ1として水素還元鉄の溶解および精錬特性や電気炉内精錬の要素技術となる、加炭、排滓、攪拌などの基礎試験の知見を蓄積すると同時に前述の多量スラグ対応の排滓や精錬課題の加炭、攪拌などに関してはモデル実験や数値解析などの基礎試験も必要である。一方で、2030年までに上記目標を実現することを想定すると、早期に小規模の電気炉のパイロットプラントを製作し還元鉄の溶解や電気炉における精錬に関する知見を蓄積する必要があると考えられる。この様な観点からフェーズ1のラボ試験・基礎検討とフェーズ2のパイロット試験を並行して進めることと設定した。これらの知見を踏まえてプロセス・設備設計に反映し2025年度以降にフェーズ3として実機規模の実証プラントを建設、試験を実施するようなスケジュールで開発を進める必要があると考える。なお、試験としては外部購入還元鉄を使用することも可能と考えられるが、水素直接還元特有の炭素フリー還元鉄に対する溶解挙動や加炭技術を試験するためには溶解炉の規模にあわせて水素還元鉄の供給が必要であり水素直接還元法とあわせて開発スケジュールを調整する必要がある。

2030年ころまでに実証プラントにて劣質鉱石を原料として製造した水素還元鉄を使用した高級鋼の製造技術が実証できれば、それ以降は他所展開のフェーズとなる。しかしながら2030年以降も他所展開とともに、さらなる高級鋼対応、コスト削減、生産性向上などの開発継続が必須となる。また、水素還元-電気炉ルートでのグリーン製鉄製造の実現と拡大のためには、需要に対応した水素、カーボンニュートラル電力、カーボンニュートラル炭材の供給が必須であり、これらに関する開発を同時に進める必要がある。



図②-2.1 水素還元鉄の溶解・精錬法の開発ロードマップ概要

今回のプロジェクトでは、ここまで電気炉に投入する溶解原料として水素還元鉄を 100%もしくは大半となることを想定して検討してきた。しかしながら、実際には溶解原料としてスクラップを併用し、溶解や精錬負荷を緩和するとともにトランプエレメントによる悪影響を克服もしくは希釈しながら商用化が進められるものと考えられる。したがって、今後の研究開発では、これまで述べてきたことの他に、スクラップの供給状況やトランプエレメントの動向などに関する技術調査や将来動向推定も実施すると同時に、高級鋼製造のための最適条件を見極めるような開発が必要となる。

## (2) 結果のまとめ

本項目ではシャフト炉および流動層で直接水素還元により製造した固体還元鉄を溶解・精錬し、高級鋼を製造するプロセスを実現するための課題を抽出し、開発ロードマップを作成した。得られた結果の要点を以下にまとめる。

- 1) 世界で生産されている還元鉄は1億トン超/年であり、大部分は電気炉で溶解している。鋼板を製造しているミルではスクラップと還元鉄 or 銑鉄を併用する傾向がある。
- 2) 豪州鉱石に代表される劣質鉱石の使用を想定すると、スラグ発生量、溶解精錬時の必要エネルギーなどを考慮すると、一旦溶鉄に加炭することが必要と考えられる。この時、電気炉で溶解、精錬の一連の工程を実施することの他、炉外精錬を活用して分担する方法、電気炉は溶解とスラグ分離に特化し後の精錬が転炉など別工程とする方法などが考えられ、今後の研究開発を踏まえ判断していく必要がある。
- 3) 最近、欧州プラントメーカーを中心に、劣質鉱石の使用を視野に、溶銑製造特化型電気炉・既存転炉プロセスの提案、発表が複数あったが、いずれも鉄分品位の低下、脈石の増加が焦点であり、りんに関する言及はない。
- 4) 電気炉を想定した時の溶解・精錬工程の主要技術課題は発生スラグへの対応、脱りんと脱窒を

含む製錬、大量生産対応と想定される。これらの課題の内発生スラグへの対応としてはスラグの減量化、排滓、利材化の視点での検討、精錬課題を克服するためには炉内で加炭、攪拌、脱窒、高炉に匹敵する大量生産のためには電気炉大型化のための電源やアーク制御、炉内の流動や温度制御法などの開発が必須と考えられる。

#### 参考文献

- 1) 江見俊彦：鉄と鋼、100(2014),p31
- 2) 日本鉄鋼協会編：第5版鉄鋼便覧 第1巻 製鉄・製鋼, (2014),p323
- 3) 水上義正：電気製鋼, 68(1997),p29
- 4) 石川 稔：まてりあ, 35(1996),p255
- 5) 例えば Steel Times Int. January/February 2021, 44 “Decarbonising the steelmaking industry” TENOVA

### ③. 高炉一貫製鉄所における CCU 技術（バイオマス含む）のポテンシャル調査とロードマップ作成

#### ③-1. 高炉一貫製鉄所における CCU 技術のポテンシャル調査 およびロードマップ作成

##### (1) 緒言

高炉一貫製鉄所における CCU 技術のロードマップを作成することを目的に、複数の CCU 技術の中から、高炉一貫製鉄所から発生する炭素の有価化という点に絞り込んで、CO<sub>2</sub> 削減ポテンシャルを評価し、その結果を踏まえてロードマップを作成した。

実施内容は以下の通りである。

- ・ 高炉一貫製鉄所オフガス等に含まれるカーボンの有効利用や脱炭素化に関する、国プロ・鉄鋼メーカー等で検討されている先進プロセス等を踏まえた化学産業等の他産業との協力体制の調査。
- ・ 日本国内における産業間協業体制構築に向けた検討。
- ・ 国内製鉄所に CCU を実装した場合の CO<sub>2</sub> 削減効果、導入コストの分析、有望な技術の選定。
- ・ 上記の結果に基づき、選定した技術のロードマップの検討。

本ポテンシャル調査およびロードマップ作成は、デロイト トーマツ コンサルティング合同会社に外注を行い、同社と連携しながら実施した。

##### (2) 調査結果

###### i) 要旨

本調査の結果から 2050 年のゼロカーボン・スチールの実現に向けて、まずは水素を要しない CO<sub>2</sub> 削減コストの低い技術から順次技術開発・商用化していくことが重要であることが分かった。

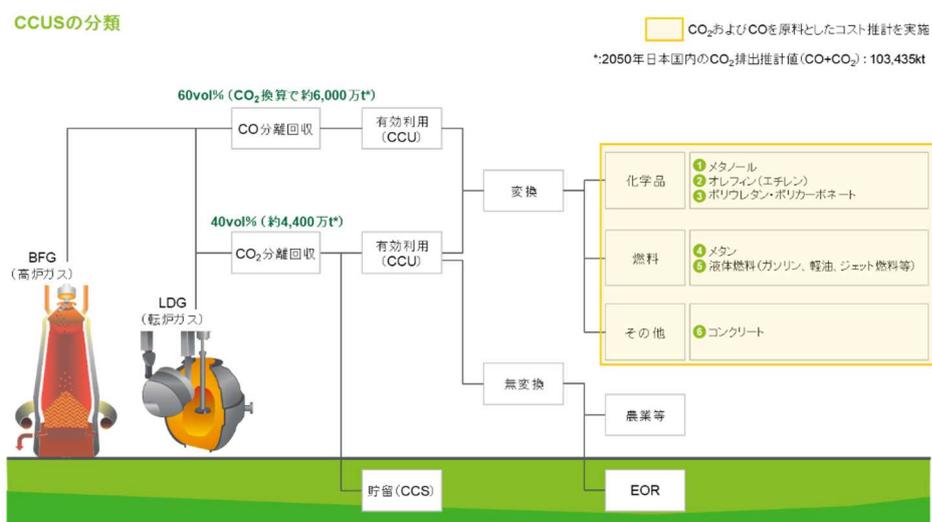
1. オレフィン等の化学品、先進製鉄プロセス、メタネーションの優先順で CO<sub>2</sub> を削減することでコストの最適化が可能となる。
  - 鉄鋼排ガスの特徴である CO を化学品原料として活用することが合理的であり、残る CO<sub>2</sub> を高炉技術、H<sub>2</sub> DRI、メタネーションで削減・利用することで、安価にゼロカーボン・スチールを実現可能である
  - CO の化学品活用ポテンシャルはオレフィン需要が制約条件となり、我が国においては約 3,500 万 t-CO<sub>2</sub> 相当の CO の活用が上限となる。
2. 水素を利用しない技術から順次商用化しつつ、2050 年に向けて水素を活用した技術を研究開発することが好ましい。
  - 水素を要しない CCUS を商用化しつつ、水素を活用した CCUS、H<sub>2</sub> DRI を順次研究開発すべきと考える。
  - CO の化学品への利活用は合理的な選択肢であるものの、原料となる水素価格が当面高いと考えられることから、水素価格が低下する 2030 年後半以降を商用化のターゲットとした研究開発計画が好ましい。

3. 水素が安価に供給できない可能性も考慮し、水素が安価な国と連携した CCU プロジェクトの組成も検討すべきである。
- 例えばメタノールの生成に関しては、再エネ電力単価が 6.25¥/kWh 程度に高止まりする場合には、我が国から CO<sub>2</sub> を海上輸送し、豪州において安価な水素を活用した CCU を実施した方がコスト優位となる可能性がある。
  - このように電力や水素のコスト次第で、バリューチェーン全体の最適配置を検討すべきである。
4. 化学品に接続可能なコンビナートに隣接する高炉一貫製鉄所にて産業間連携の検討を具体化すべきである。
- CO を活用可能な化学品との接続は最も合理的であり、コンビナートに隣接する千葉、水島、大分が有望なサイト候補である。
  - 産業間連携の実現のためには関係企業のプラントコンフィグレーションの抜本的な転換が必要となることから、サイト候補それぞれにおいて提携候補企業と早急に連携を深めるべきと考える。

ii) カーボン有効利用技術の調査・検討

図 1 に、今回の調査範囲を示す。高炉ガス (BFG) と転炉ガス (LDG) 中に含まれる二酸化炭素 (CO<sub>2</sub>) と一酸化炭素 (CO) を分離回収して有効利用 (CCU) することを検討した。CCU 技術としては、図に示した化学品、燃料、コンクリートに関する検討を行い、CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストを推計した。

2050 年における粗鋼生産量は 2018 年に等しい 1 億 340 万トン进行想定して、粗鋼生産に占める高炉プロセスの割合を 60% と仮定した。



出所: 日本鉄鋼連盟資料, 新日本製鐵「鉄鋼系副生ガスからのFCV(燃料電池車)用液体水素供給システム」より DTC 作成(データは 2018 年度)

図③-1.1 検討の範囲(デロイトトーマツ報告書より<sup>1)</sup>)

図 2 に、CCU 製品の CO<sub>2</sub> 削減コストカーブを示す。CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストを計算するに当たり、設備費は類似の既存設備のコスト情報から推算して、償却期間は 20 年に設定した。CCU 製品に用いる水素の価格は、2050 年に 20 円/Nm<sup>3</sup> として、製造工程に用いるエネルギーには CO<sub>2</sub> を発生しない再エネ電力を用いることを想定した。再エネ電力コストは 4 円/kWh として、感度分析のために 6.25 円/kWh のケースも検討した。

図に於いて、上半分が CO<sub>2</sub> を原料とした場合であり、下半分が CO を原料とした場合である。図で、縦軸が 1 トンの CO<sub>2</sub> を削減するために要する費用 (CO<sub>2</sub> アボイデッド・コスト/円/t-CO<sub>2</sub>) であり、横軸は CCU 製品の CO<sub>2</sub> 削減ポテンシャルを CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストが小さい順に積算した値である。CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストは、再エネ電力単価が 4 円/kWh、水素単価が 20 円/Nm<sup>3</sup> として計算した CCU 製品コストから、CCU 製品の販売価格を差し引いた値である。従い、製造コストが同じ場合は、販売価格が大きい方が CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストは小さくなる。また、CO を原料とする場合には、CO の燃料利用に相当するエネルギーを再エネ電力で補うこととして、その分に相当する費用を CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストに加算した。

原料が CO<sub>2</sub> であり、再エネ電力単価が 4 円/kWh の場合、CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストは、ガソリンが一番小さくて約 1,000 円/t-CO<sub>2</sub> であり、小さい順に、ガソリン、エチレン、コンクリート、メタノール、軽油、メタン、ポリウレタン・ポリカーボネート、ジェット燃料、バンカー油の順番であった。ここで、メタン製造は、共電解を利用した固体酸化物型電解セルを用いるメタン製造システムとした。H<sub>2</sub> DRI の CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストについても、CCU 製品と同じ前提条件で試算した。H<sub>2</sub> DRI の CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストは、再エネ電力単価が 4 円/kWh、水素単価が 20 円/Nm<sup>3</sup> の場合に、約 1 万円であった。このことから、図で軽油よりも左側に位置する CCU 製品の CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストが H<sub>2</sub> DRI よりも安価な結果となった。CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストが安価な手段から導入されると考えると、CCU 製品で約 8,000 万トンの CO<sub>2</sub> 削減ポテンシャルを有する可能性があることが分かった。

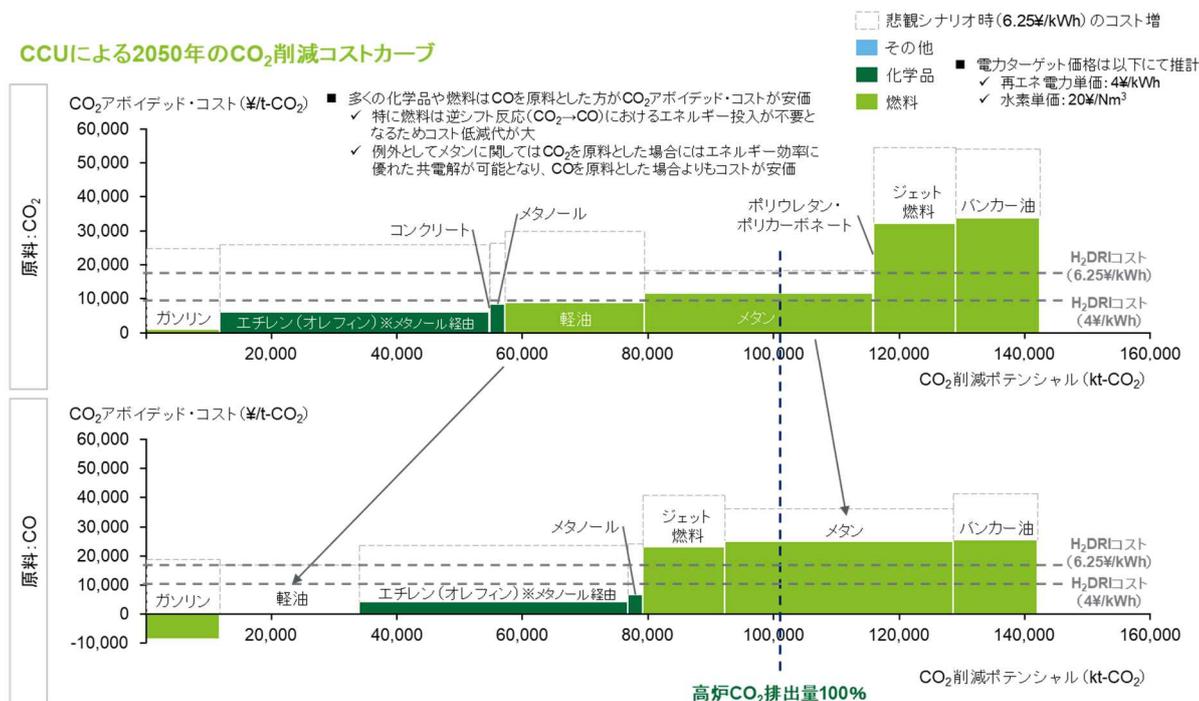
電力コストが 6.25 円/kWh の場合の CCU 製品の CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストを点線で示す。電力コストが 4 円/kWh から 6.25 円/kWh になると、図に示した全ての CCU 製品の製造コストが高くなる結果となった。再エネ単価が 6.25 円/kWh の場合、検討した CCU 製品の中で合成メタンの CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストが最も安く、約 18,000 円/t-CO<sub>2</sub> であった。メタンの次に安価なガソリンの CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストは約 25,000 円/t-CO<sub>2</sub> であり、再エネ電力コストが 4 円/kWh の場合における約 0 円/t-CO<sub>2</sub> に比較して大幅に増加する結果となった。再エネ電力コストが 6.25 円/kWh における H<sub>2</sub> DRI の CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストが約 18,000 円/t-CO<sub>2</sub> であることから、メタン以外は H<sub>2</sub> DRI に比較して CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストが高額である結果となった。この結果から、CCU 製品の CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストは、再エネ電力単価に大きく影響を受けること、今回の試算から再エネ電力単価が 6.25 円/kWh の場合には、H<sub>2</sub> DRI で可能な限りの CO<sub>2</sub> を削減した上で、CCU を用いることが好ましいことが推察される。

図 2 で、原料が CO の場合には、CO<sub>2</sub> の場合に比較して CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストが安価である結果を得た。例えば、再エネ電力コストが 4 円/kWh の場合に、ガソリンの CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストは約 8,000 円であった。再エネ電力コストが 4 円/kWh の場合に、CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストが H<sub>2</sub> DRI よりも安価な CCU 製品はガソリン、軽油、エチレン、メタノールであり、CO<sub>2</sub> を原料とする場合に比較して、安価な CO<sub>2</sub> アボイデッド・コストで CO<sub>2</sub> 削減効果

を上げることが分かった。一方で、これらを合計した CO<sub>2</sub>削減量は約 8,000 万トンであった。この CO<sub>2</sub>削減ポテンシャルは、CO<sub>2</sub>を原料とする場合と変わらなかった。

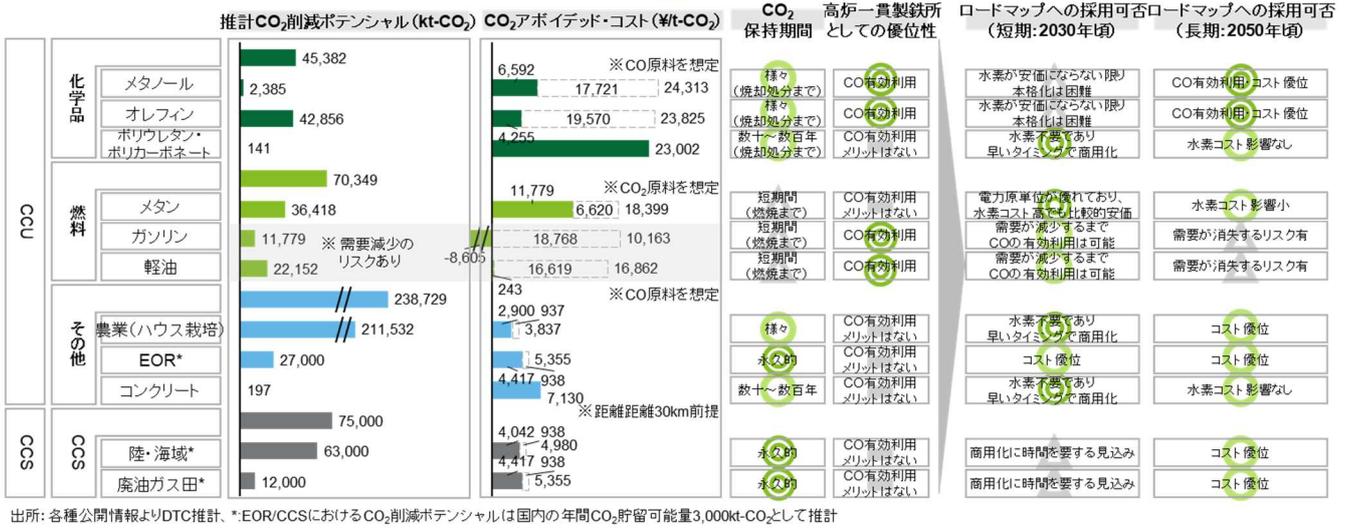
原料が CO の場合においても再エネ電力コストが 6.25 円/kWh に上がると、CO<sub>2</sub>アボイデッド・コストが増加した。軽油が H<sub>2</sub> DRI と同額であり、ガソリン、エチレン、メタノールでは、H<sub>2</sub> DRI よりも高額となった。

図 3 に、CCUS 技術の 2050 年における推計 CO<sub>2</sub>削減ポテンシャル(t-CO<sub>2</sub>)と CO<sub>2</sub>アボイデッド・コスト (円/t-CO<sub>2</sub>)を示す。合わせて、選定した CCU 製品を製造する場合における高炉一貫製鉄所の優位性と、ロードマップへの採用可否を示す。ここで、CCU 製品の CO<sub>2</sub>削減ポテンシャルは、図 2 において、CO<sub>2</sub>アボイデッド・コストが H<sub>2</sub> DRI よりも安価な場合を想定した。図から、CO を有効利用することが高炉一貫製鉄所において CCU 技術が優位であることが分かる。また、再エネ電力・水素価格の影響が小さいポリウレタンやメタンから CO<sub>2</sub>の有効利用を開始して、再エネ電力が安価になってからは、オレフィン等に取り組むことが望ましいと考える。



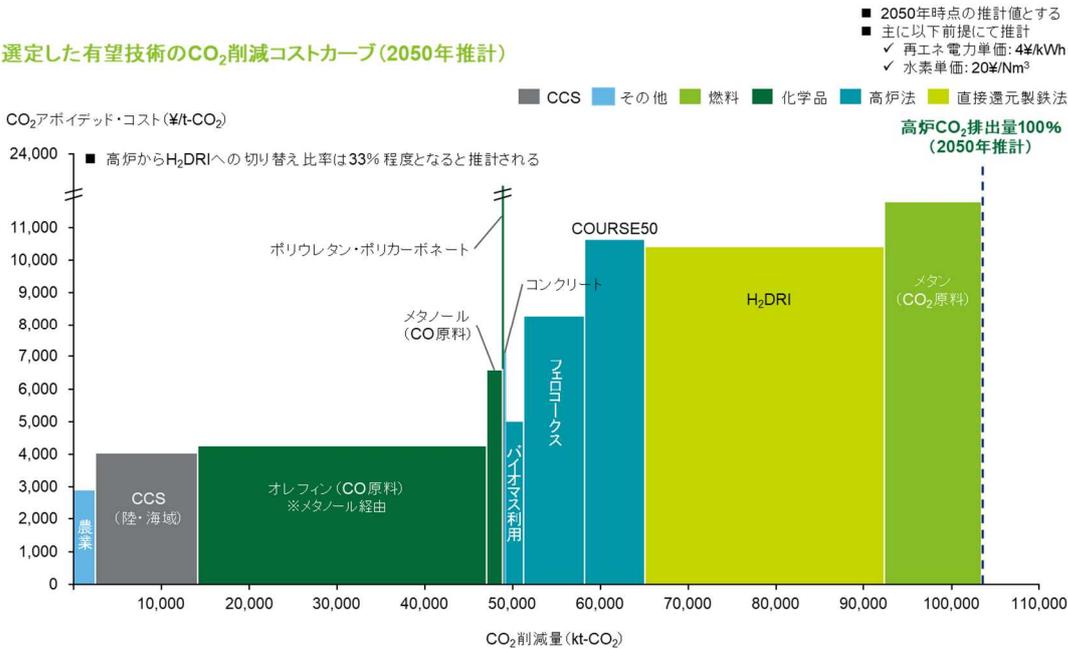
図③-1.2 CCU 製品の CO<sub>2</sub>アボイデッド・コストカーブ(デロイトトーマツ報告書より<sup>1)</sup>)

### CCUSのサマリ(2050年推計)



図③-1.3 CCUS技術の比較(デロイトトーマツ報告書より<sup>1)</sup>)

### 選定した有望技術のCO<sub>2</sub>削減コストカーブ(2050年推計)



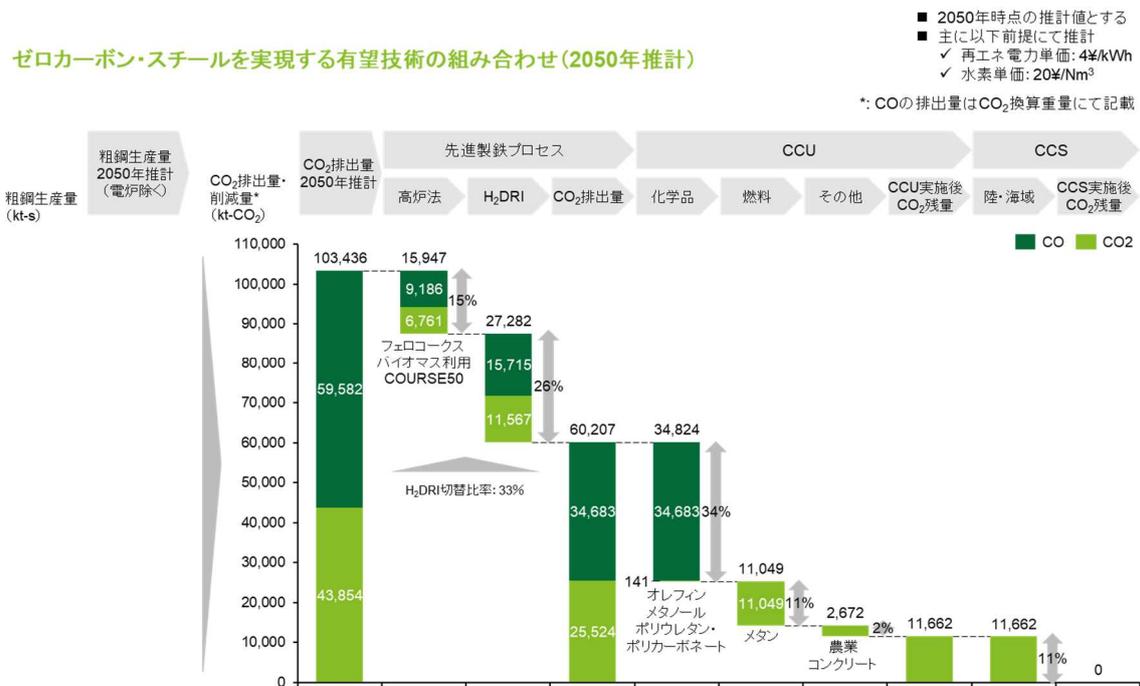
図③-1.4 選定した有望技術のCO<sub>2</sub>削減コストカーブ(デロイトトーマツ報告書より<sup>1)</sup>)

図4に、2050年に2018年相当の粗鋼量の60%を既存の高炉法で生産する際に発生するCO<sub>2</sub>排出量に相当する1億340万トンのCO<sub>2</sub>を削減する場合のCO<sub>2</sub>削減コストカーブを示す。図に示したCO<sub>2</sub>削減技術は、図3で選定した一貫高炉製鉄所に有望なCCUと共に、農業、CCS、バイオマス、フェロコックス、COURSE50、H<sub>2</sub>DRIの有望技術を加えた。ここで、再エネ電力単価は4円/kWh、水素単価は20円/Nm<sup>3</sup>である。

図に示した複数の技術を用いることで、現行の高炉法をそのまま使用するBAUで2050年に発生する約1億340万トンのCO<sub>2</sub>を削減することが可能となる。図に示した技術の中で、農業のCO<sub>2</sub>アボイデッド・コストが最も安価であり、CCS、CO原料のオレフィン、バイオマス

利用が 5,000 円/t-CO<sub>2</sub> 以下で安価な結果となった。図 2 から、CCU 技術の CO<sub>2</sub>アボイデッド・コストは再エネ電力単価に大きく影響を受けることが明らかになった。図 4 においても、電力単価が上がると CCU 製品の CO<sub>2</sub>アボイデッド・コストが増加して、H<sub>2</sub> DRI 等の製鉄技術が有利になると推察される。

図 5 に、ゼロカーボン・スチールを実現するための、先進製鉄プロセス、CCU、CCS の各有望技術の組み合わせを示す。再エネ単価が 4 円/kWh、水素単価が 20 円/Nm<sup>3</sup> の場合に、BAU で 2050 年に発生する 1 億 434 万トンの CO<sub>2</sub> の内、先進製鉄プロセスで 4,300 万トンの CO<sub>2</sub> を削減して、残りの 6,021 万トンの CO<sub>2</sub> の内、4,855 万トンを CCU で、1,166 万トンを CCS で削減するシナリオを考えることが出来る。先進製鉄プロセスで 41%、CCU で 47%、CCS で 12%を削減する内容であり、再エネ電力単価が 4 円/kWh で有る場合には、CCU が大きな CO<sub>2</sub> 削減ポテンシャルを有する結果となった。



図③-1.5 ゼロカーボン・スチールを実現する有望技術の組み合わせ (デロイトトーマツ報告書より<sup>1)</sup>)

図 6 に、地域別の CO<sub>2</sub> 排出量と CCU 及び CCS による CO<sub>2</sub> 利用可能量を示す。再エネ電力単価は 4 円/kWh である。CCU では近隣の化学工場との連携が重要であること、CCS では貯留サイトがあることが条件となることから、地域ごとで CCU と CCS における CO<sub>2</sub> の利用可能量が異なる。千葉地区では、近隣に化学工場が多いことから、CCU による CO<sub>2</sub> 利用のポテンシャルが大きいことが分かった。

図7から図9に、それぞれ千葉地区、水島地区、大分地区におけるCCUのポテンシャルと近隣化学プラントとの連携の可能性を示す。ここで、再エネ電力単価は4円/kWhである。図7から、千葉地区においては、近隣の化学プラントとの連携によるCCUのポテンシャルが大きく、CCUにより77%のCO<sub>2</sub>を削減可能となる結果を得た。図8の水島地区では、CCUで57%のCO<sub>2</sub>削減可能性を有する。図9の大分地区では、CCUの削減ポテンシャルは28%であるが、CCSの削減ポテンシャルが17%であり、CCUSでは45%のCO<sub>2</sub>削減ポテンシャルを有する結果となった。

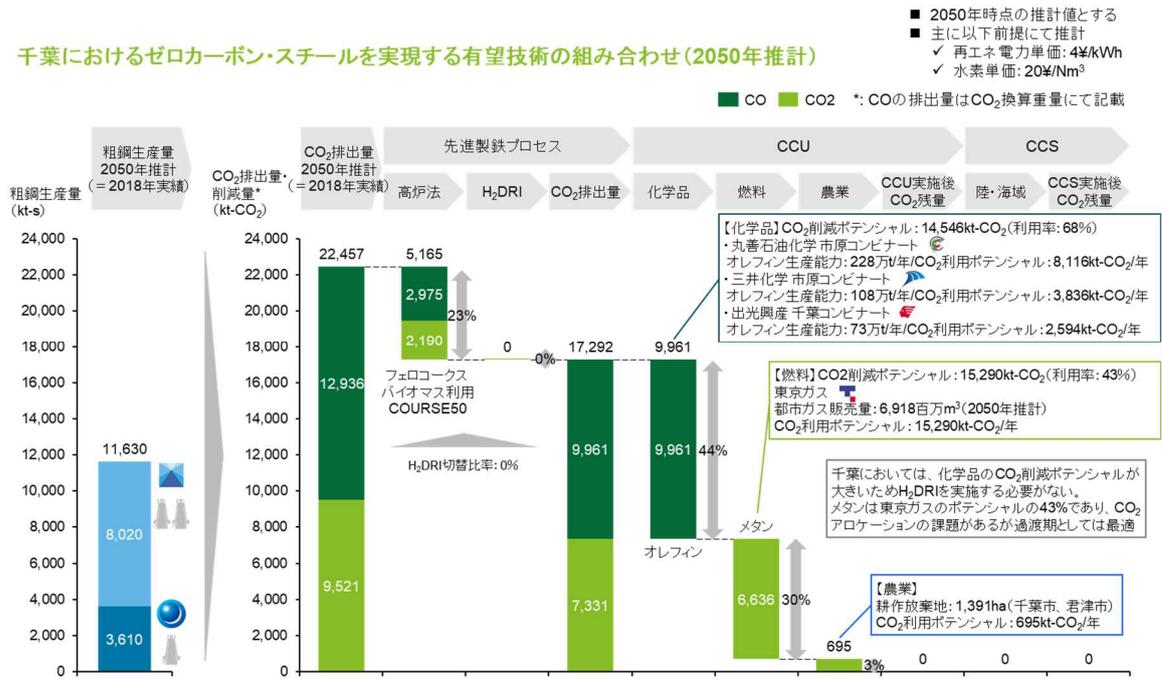
CCUは近隣の化学プラントとの連携が重要であることから、地域の特性を生かしたCCU技術の選定が必要であると言える。

### 地域別CO<sub>2</sub>排出量・利用可能量

分類	室蘭	千葉	名古屋	加古川	水島	大分								
ネットゼロ化に必要なCCUSコンポーネント	農業 CCS	農業 化学 燃料	農業 化学 燃料	農業 CCS メタン	農業 化学 燃料	農業 CCS 化学 燃料 メタン								
CO <sub>2</sub> 排出量	3	23	11	15	17	17								
主要一貫製鉄所	室蘭	君津 千葉	名古屋	KOBEKO 加古川	倉敷	大分								
粗鋼生産量	143万トン	1,163万トン	1,129万トン	764万トン	859万トン	875万トン								
CO <sub>2</sub> 利用可能量	15	55	33	16	17	13								
EOR	-	-	-	-	-	-								
CCS	<ul style="list-style-type: none"> <li>廃油ガス田</li></ul>	-	-(最寄りの磐城沖廃ガス田まで約350km)	-	-	-	-	<ul style="list-style-type: none"> <li>陸海地域</li></ul>	9(内浦湾まで約30km, 苫小牧まで約81km)	-(最寄りの相馬~鹿島沖まで約200~435km)	6(伊勢湾まで約30km)	9(大阪湾まで約40km)	-(最寄りの大阪湾まで約140km)	3(別府湾まで約9km)
CCU	<ul style="list-style-type: none"> <li>メタン(都市ガス)</li></ul>	0.85(2050年北海道内の都市ガス販売予測から算出)	15.3(2050年の東京ガスの都市ガス販売予測から算出)	4.6(2050年の東邦ガスの都市ガス販売予測から算出)	6.7(2050年の大阪ガスの都市ガス販売予測から算出)	0.27(2050年の岡山県、鳥取県の都市ガス事業者の販売予測から算出)	0.05(2050年の大分県、熊本県、宮崎県、鹿児島県の都市ガス事業者の販売予測から算出)	<ul style="list-style-type: none"> <li>農業(ハウス栽培)</li></ul>	0.01(室蘭市の耕作放棄地転用として算出)	0.7(千葉市、君津市の耕作放棄地転用として算出)	0.08(名古屋市の耕作放棄地転用として算出)	0.13(加古川市の耕作放棄地転用として算出)	0.01(倉敷市の耕作放棄地転用として算出)	0.4(大分市の耕作放棄地転用として算出)
	<ul style="list-style-type: none"> <li>化学品</li></ul>	-	14.5(千葉県内のオレフィン製造能力から算出)	3.4(四日市のオレフィン製造能力から算出)	-	3.4(水島のオレフィン製造能力から算出)	4.3(大分のオレフィン製造能力から算出)	<ul style="list-style-type: none"> <li>燃料</li></ul>	5.6(2050年燃料需要を周辺製油所に割り当てて算出)	24.0(2050年燃料需要を周辺製油所に割り当てて算出)	18.8(2050年燃料需要を周辺製油所に割り当てて算出)	-	13.2(2050年燃料需要を周辺製油所に割り当てて算出)	5.1(2050年燃料需要を周辺製油所に割り当てて算出)
	否小牧のCCUに接続するか、内浦湾でのCCSIに依存	貯留地まで遠く、燃料用途でのCO <sub>2</sub> 利用がポイント	貯留地が近く、CCUのコンポーネントも豊富	貯留地が近く、CCUではメタネーションが有力	液体燃料でのCO <sub>2</sub> 利用をしないとネットゼロ化が困難	先進製鉄プロセスを併用したネットゼロ化が必要								

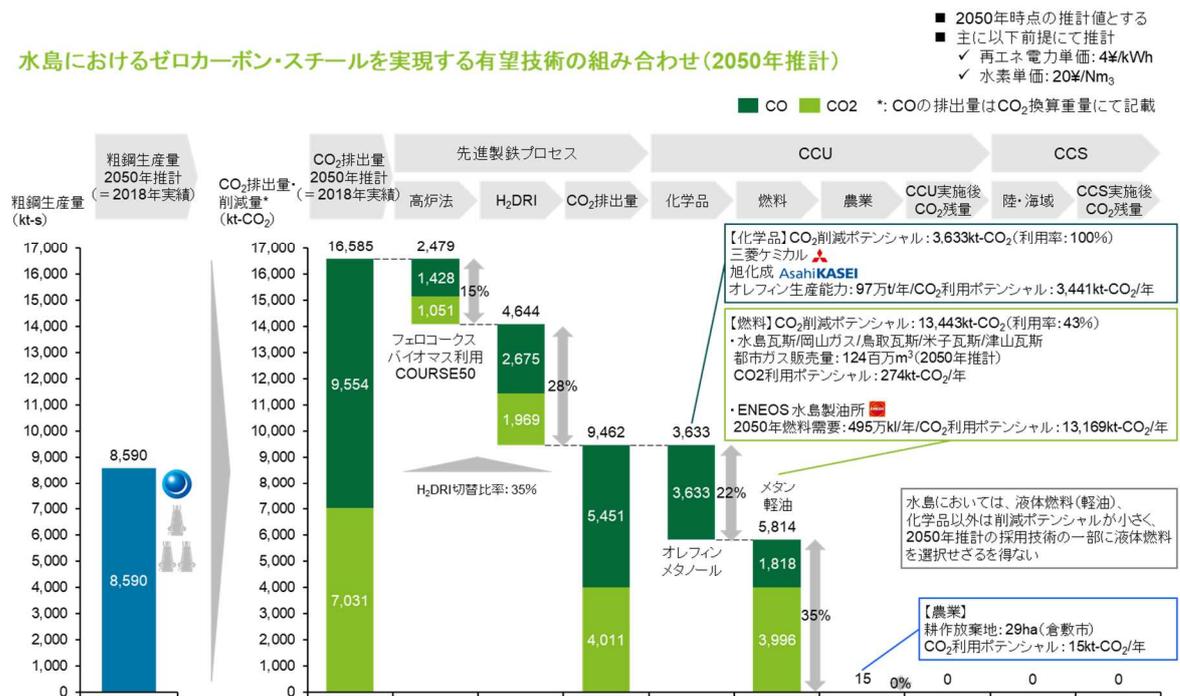
図③-1.6 地域別のCO<sub>2</sub>排出量と利用可能量(デロイトトーマツ報告書より<sup>1)</sup>)

千葉におけるゼロカーボン・スチールを実現する有望技術の組み合わせ(2050年推計)



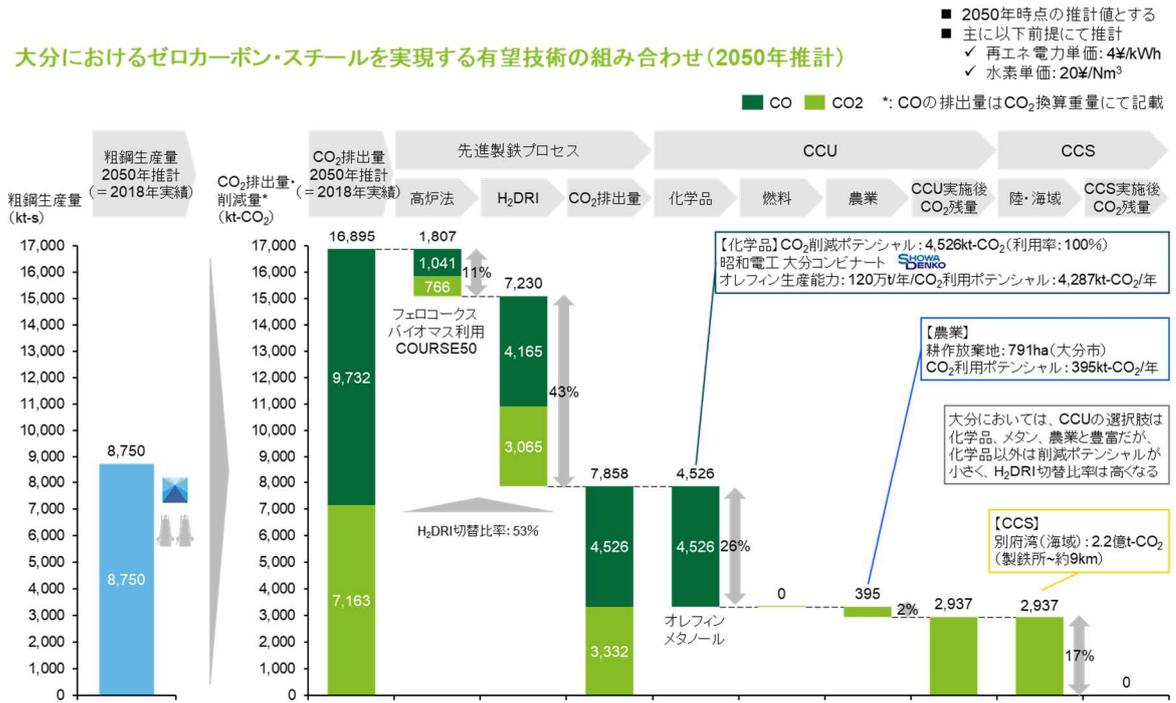
図③-1.7 千葉地区のCCUによるCO<sub>2</sub>利用ポテンシャル(デロイトトーマツ報告書より<sup>1)</sup>)

水島におけるゼロカーボン・スチールを実現する有望技術の組み合わせ(2050年推計)



図③-1.8 水島地区のCCUによるCO<sub>2</sub>利用ポテンシャル(デロイトトーマツ報告書より<sup>1)</sup>)

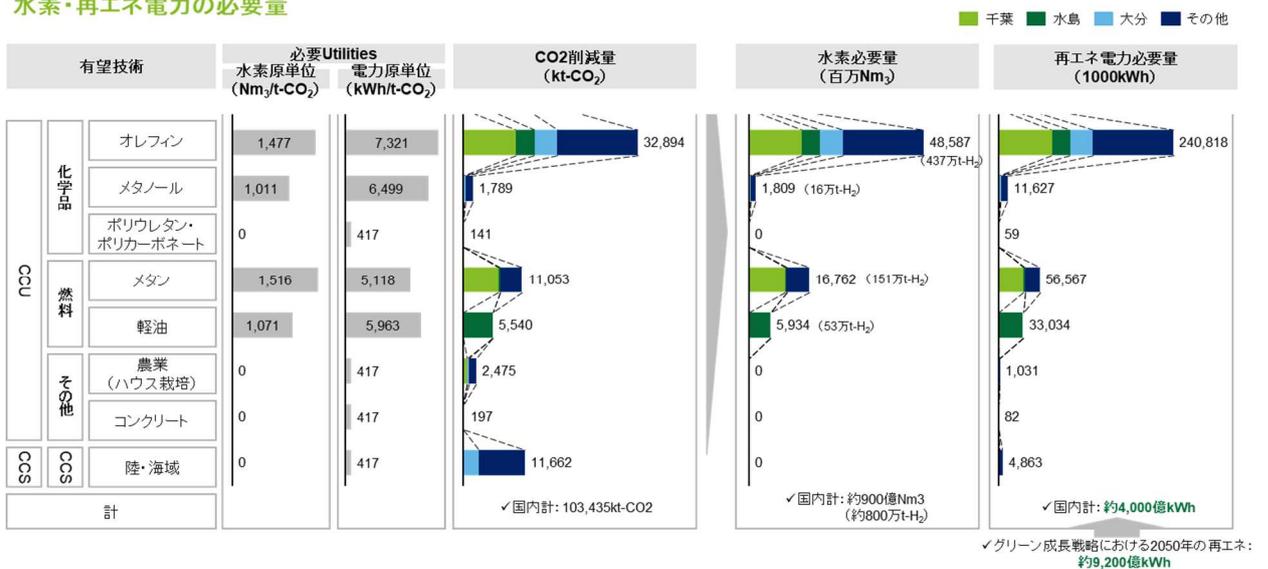
大分におけるゼロカーボン・スチールを実現する有望技術の組み合わせ (2050年推計)



図③-1.9 大分地区のCCUによるCO<sub>2</sub>削減ポテンシャル(デロイトトーマツ報告書より<sup>1)</sup>)

図10に、選定したCCU技術の水素と再エネ電力の必要量を示す。図から、オレフィンのCO<sub>2</sub>削減ポテンシャルが3,289万トンと最も大きく、このオレフィンの製造に必要な水素は486億Nm<sup>3</sup>であり、再エネ電力は240GWhである。オレフィン、メタノール、メタン、軽油の製造には水素を要するが、ポリウレタン・ポリカーボネート、農業、コンクリートでは水素を必要としない。水素を必要としない用途では、農業(ハウス栽培)のCO<sub>2</sub>利用ポテンシャルが大きく、今回の検討から、約250万トンのCO<sub>2</sub>削減ポテンシャルと有することが分かった。

水素・再エネ電力の必要量



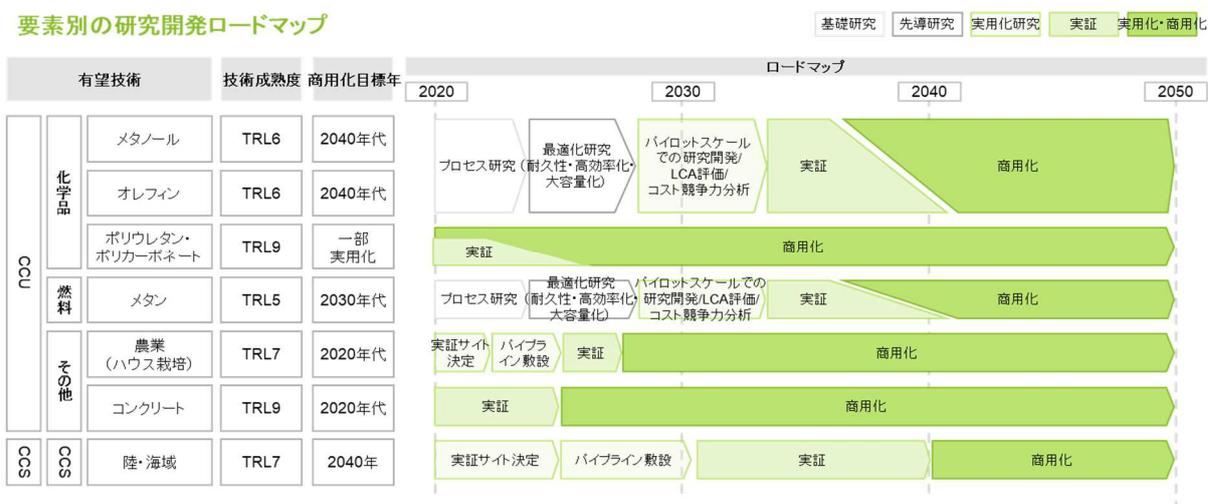
図③-1.10 一貫高炉製鉄所に有望なCCU技術の水素・再エネ電力の必要量 (デロイトトーマツ報告書より<sup>1)</sup>)

図3に示した通り、CCU製品のCO<sub>2</sub>保持時間は製品毎に異なる。コンクリートのCO<sub>2</sub>保持時間は数十年から数百年と長い。一方で、メタノール、オレフィンは用途により保持時間は異なるが、焼却処分される際にCO<sub>2</sub>が放出される。ポリウレタン・ポリカーボネートも用途でCO<sub>2</sub>保持時間が異なるが、数十年～百年程度でリサイクルされるか、焼却されると考える。また、メタン、ガソリン、軽油については、比較的短時間で焼却されることが予想される。農業（ハウス栽培）でも農産物が消費される過程でCO<sub>2</sub>が放出される。

CCU製品におけるCO<sub>2</sub>削減ポテンシャルを最大化するためには、燃焼や焼却処分が発生するCO<sub>2</sub>の回収と、CCU製品としての保持時間も含めた有効利用技術とを考慮したカーボンリサイクルシステムの構築が重要と考える。

### iii) 一貫高炉製鉄所に有望なCCU技術のロードマップ

図11に、一貫高炉製鉄所に有望なCCU技術のロードマップを示す。ここで、メタン製造は、共電解を利用した固体酸化物型電解セルによるメタン製造システムを想定した。ポリウレタン・ポリカーボネートとコンクリートのように水素を必要としないCCU製品から実用化が進むと考える。農業用途も有望であり、実証サイトの選定とパイプラインの敷設、実証を得て、2020年代の後半には商用化することが期待される。一方で、水素を必要とするCO<sub>2</sub>利用ポテンシャルが大きいメタノール、オレフィン、メタンは、2040年以降の商用化が期待される。



図③-1.11 CCUの研究開発ロードマップ(デロイトトーマツ報告書より<sup>1)</sup>)

#### 参考文献

1) 調査外注報告書：デロイトトーマツコンサルティング合同会社「高炉一貫製鉄所におけるCCU技術のロードマップ作成」2021年3月30日

③-2. 主要要素技術に関わる技術調査：排ガスからのメタノール生成に関する調査および基礎検討

1) 課題の整理

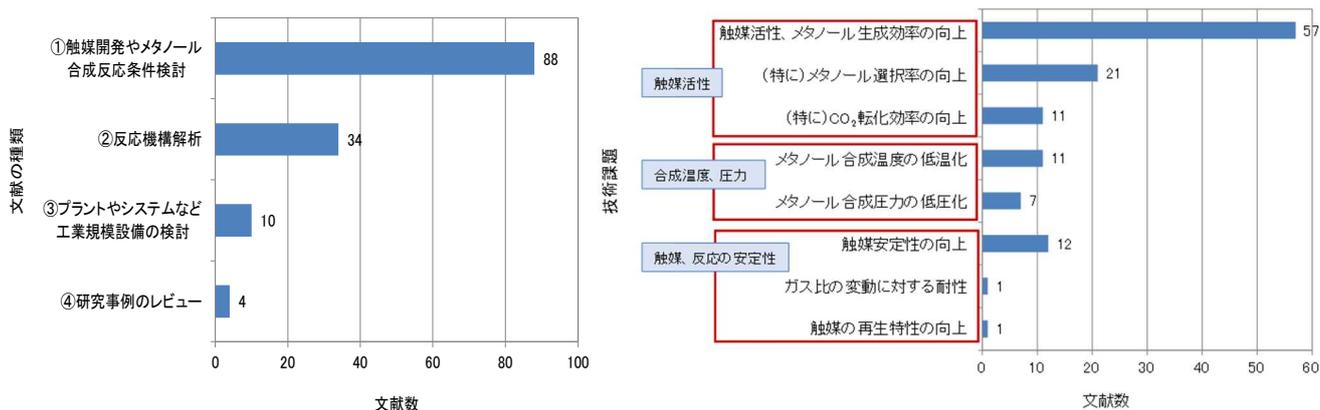
高炉一貫製鉄所における CCU 技術のうち、重要な要素技術であり技術成熟度 (TRL) の高いメタノール生成に関して、高炉ガス CO<sub>2</sub> 分離回収からメタノール製造までの製鉄所への適用を想定したプロセスの検討を行った。CO<sub>2</sub> を原料とした CCU メタノール合成 (CO<sub>2</sub> + 3H<sub>2</sub> ⇌ CH<sub>3</sub>OH + H<sub>2</sub>O) は、反応効率の違いや反応生成水の発生など、従来の天然ガスを原料としたメタノール合成プロセスとは異なる反応系となる。そのため、CCU メタノール合成技術の最新技術調査及び技術課題抽出を行った。また、メタノール合成シミュレーションおよび小型ラボ反応試験装置によるメタノール合成実験をそれぞれ実施し、CCU メタノール合成のスケールアップ時の技術課題抽出および製鉄所への最適な適応方法についての検討を行った。

<技術課題>

- ・ 反応機構, 触媒活性向上, CCU メタノール合成プラント → 技術調査
- ・ 高効率メタノール合成反応器 スケールアップ影響 → 反応器シミュレーション, ラボ反応試験
- ・ 製鉄所への適用方法検討 → シミュレーション, プロセス検討

2) 技術調査 (再委託先: RITE)

CO<sub>2</sub> を原料とする CCU メタノール合成を対象に、2018 年以降の開発状況および技術課題を調査し、反応機構、触媒活性向上、CCU メタノール合成プラントに関する有望な文献の抽出を行った。図③-2.1 に、今回調査により抽出された文献 136 件の種類および技術課題について分類した結果を示す。最も多かったものは触媒活性に関するものであり、次に反応機構 (合成温度、圧力など) に関する文献が挙げられている。プラントやシステムに関しては、現状 CO<sub>2</sub> を原料とした CCU メタノール合成については実証試験の事例が少なく、また、プラント構成としては従来型の天然ガスを原料としたメタノール合成方法と共通する部分もあることから、今回抽出された文献は少なかった。



図③-2.1 CCU メタノール合成技術調査

i) 技術調査 1 : 反応機構, 触媒活性向上

メタノール合成反応は、熱力学的には低温・高圧有利 (転化率大&メタノール選択性大) な反応であり、CO<sub>2</sub> を原料とした場合においても同様の反応機構である。メタノール選択性を高めて CO<sub>2</sub>→CO の副生を抑えるためには 200°C-5MPa 程度の運転条件が望ましい<sup>1)</sup>。メタノール合成触

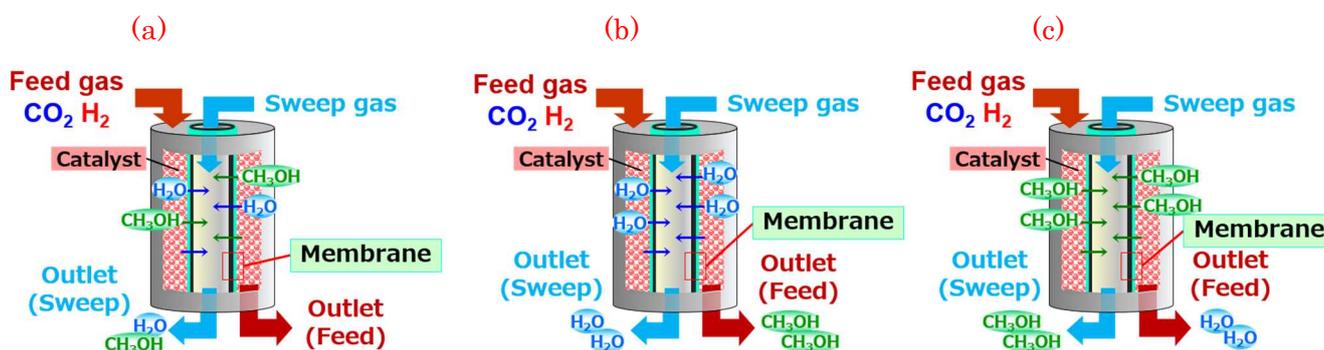
媒に関しては、CO<sub>2</sub> 転化率やメタノール選択性の向上を目的とした各種触媒が報告されている。メタノール合成は一般的には Cu/Zn 系触媒が用いられるが、他にも貴金属触媒 (Pd 系) の一部で従来 Cu/Zn 触媒と同等以上の性能が得られている<sup>2)</sup>。

ii) 技術調査 2 : CCU メタノール合成プラント

CCU メタノール合成については、国内、海外含めて幾つかの試験プラント建設事例がある<sup>3)</sup>。CO<sub>2</sub> を原料とした CCU メタノール合成は CO<sub>2</sub> 転化率が 20% 程度と低いため、未反応ガスのリサイクル率が高い非効率な運転方式となる。天然ガスを水蒸気改質した合成ガス (CO, H<sub>2</sub>) からのメタノール合成では高い CO<sub>2</sub> 転化率が得られるため、メタノール合成反応器の前段に逆シフト反応器 (CO<sub>2</sub> + H<sub>2</sub> → CO + H<sub>2</sub>O) を設けるプラント構成も報告されている<sup>4)</sup>。しかしながら、吸熱反応を用いる逆シフト反応器 (RWGS) は 800℃ 以上の高温運転となり、更に H<sub>2</sub>O 除去も必要となるため非効率である。従って、メタノール合成の高効率化には CO<sub>2</sub> 転化率の向上が重要となる。

iii) 技術調査 3 : 高効率メタノール合成反応器

CO<sub>2</sub> を原料とした CCU メタノール合成における CO<sub>2</sub> 転化率改善のために、反応生成物を反応系から分離除去しながら反応を促進されるメンブレンリアクターが報告されている。CCU メタノール合成用メンブレンリアクターは、図③-2.2 のように、(a) H<sub>2</sub>O、メタノール同時分離型、(b) H<sub>2</sub>O 選択分離型、(c) メタノール選択分離型、の 3 つの方式がある。何れも原料ガスを触媒存在下で反応させる Feed 側、生成物を膜透過させて排出する Sweep 側に区画され、特定の生成物を Feed 側から Sweep 側へ分離除去することで反応平衡 (CO<sub>2</sub> + 3H<sub>2</sub> → CH<sub>3</sub>OH + H<sub>2</sub>O) を生成側へシフトさせて CO<sub>2</sub> 転化率を改善する。平衡シフト効果が最も大きいのは生成物を全て分離除去する (a) 方式であるが、Sweep 側は H<sub>2</sub>O とメタノールの混合溶液となるため蒸留処理など後工程が必要となる。(b) 方式と (c) 方式はどちらも選択分離型であるため同等の効果が得られるが、生成 H<sub>2</sub>O による性能劣化懸念がある触媒を用いる場合には、Feed 側に H<sub>2</sub>O が残存しない (b) 方式の適用が優位と考えられる。



図③-2.2 CCU メタノール合成用メンブレンリアクター

(a) H<sub>2</sub>O、メタノール同時分離型<sup>4)</sup>、(b) H<sub>2</sub>O 選択分離型<sup>5-6)</sup>、(c) メタノール選択分離型<sup>7)</sup>

iv) 技術調査結果まとめ

表③-2.1 に技術調査結果のまとめと今後の開発方針を示す。前述のように、CO<sub>2</sub> を用いた CCU

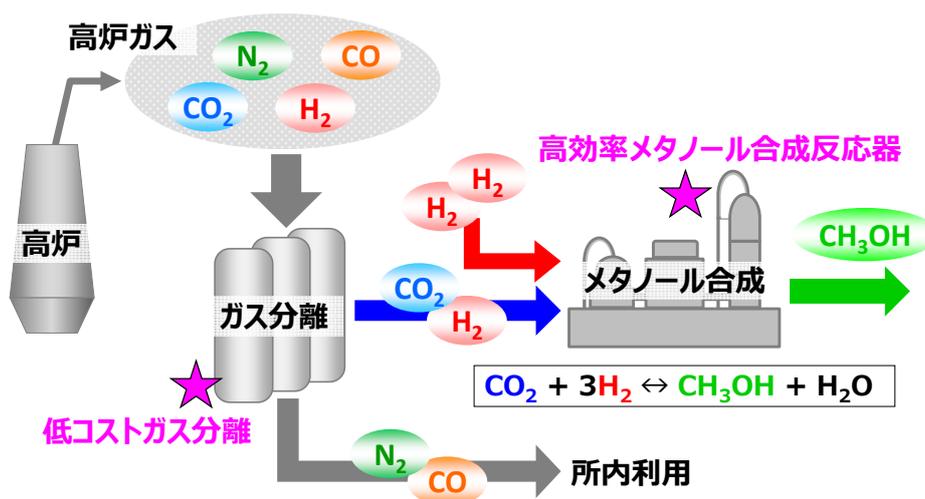
メタノール合成における単通 CO<sub>2</sub> 転化率およびメタノール選択性の向上には、メンブレンリアクターによる低温、高圧でのメタノール合成が望ましい。メンブレンリアクターの反応効率については小型のラボスケール実験ではその性能が確認されているが、何れも開発段階であり、今後、大型ラボ試験やベンチ試験での実証が必要である。

表③-2.1 技術調査結果まとめ

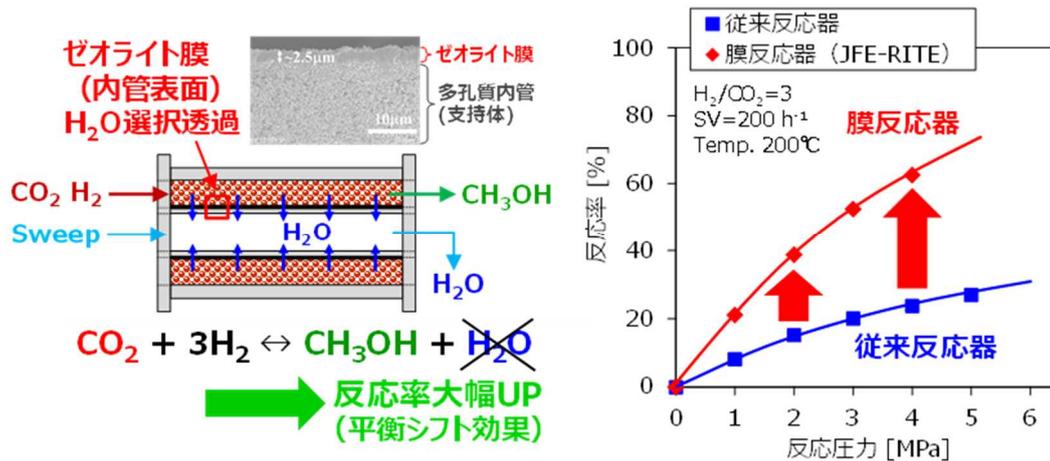
項目	調査結果	開発方針
反応効率向上	低温、高圧（200℃-5MPa 程度）	大型ラボ試験、ベンチ試験にて実証
高効率メタノール合成反応器	メンブレンリアクターによる生成物同時分離 or 選択分離	蒸留レス化および触媒 H <sub>2</sub> O 影響抑制のため H <sub>2</sub> O 選択分離型で検討
プラント構成	単通 CO <sub>2</sub> 転化率の向上が必要	高効率メタノール合成反応器の適用検討
触媒	Cu-Zn 系, Pt 系など	有望な触媒でメタノール合成実験

### 3) 反応器シミュレーションおよびラボ反応試験

図③-2.3 に、製鉄所排ガスを用いた CCU メタノール合成のプロセスイメージを示す。製鉄所排ガスには、高炉ガス、コークス炉ガス、転炉ガスなど様々な種類があるが、CO<sub>2</sub> 濃度が高く CO<sub>2</sub> 集中排出源である高炉ガスの CO<sub>2</sub> 有効利用が有望である。高炉排ガス中には窒素等の不純物成分が含まれるが、後工程のメタノール生成を大きく阻害しない程度の不純物を許容する低純度 CO<sub>2</sub> 分離回収を行うことにより、分離回収コストの低減を図れる可能性がある。今回、スケールアップ設計時の反応管形状および運転条件がメタノール収率に与える影響をシミュレーションで評価した。また、小型ラボ反応試験装置を用いたメンブレンリアクター（図③-2.4）によるメタノール合成実験により、原料ガス流量の増加によるメンブレンリアクターの反応効率への影響について実験的評価を行った。



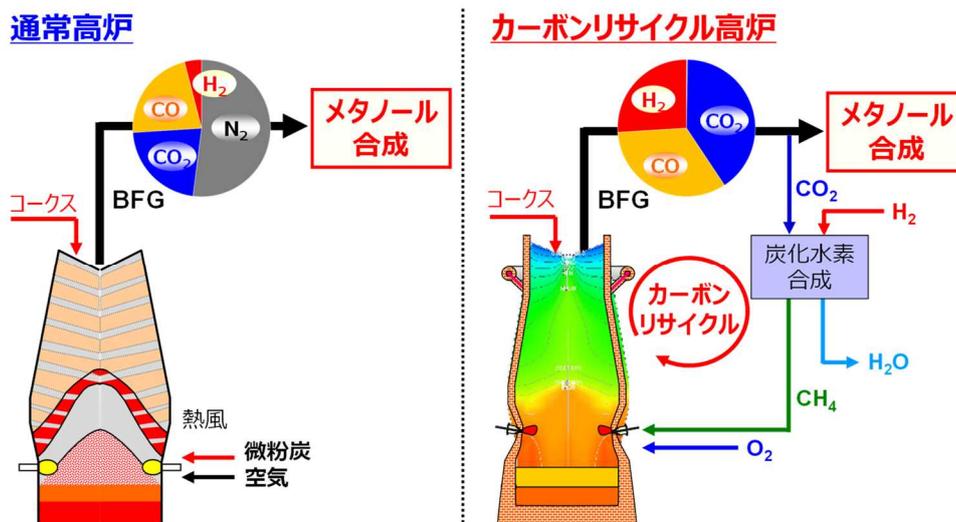
図③-2.3 製鉄所排ガスを用いた CCU メタノール合成プロセスイメージ



図③-2.4 H<sub>2</sub>O 選択分離型メンブレンリアクター

4) 製鉄所への適用の最適化検討

高炉ガス組成は、高炉操業における酸素富化率やメタン等のカーボンリサイクル還元材の吹込みにより変化する。図③-2.5 は、通常高炉、カーボンリサイクル高炉（先進高炉 2 より）を想定した高炉ガス組成での CCU メタノール合成プロセスの適用イメージ図である。通常高炉では羽口送風が空気であるため、高炉ガス中には約 50% の N<sub>2</sub> を含む。一方でカーボンリサイクル高炉（メタンによるリサイクル想定）では、羽口送風として N<sub>2</sub> を事前に分離した酸素を用いるため、高炉ガスは N<sub>2</sub> を含まない組成となる。高炉ガス中の、CO<sub>2</sub>, CO, H<sub>2</sub> はメタノール合成反応に利用可能であるが、N<sub>2</sub> は未反応成分であり、メタノール合成の反応効率を阻害するので、事前に除去する必要がある。このような異なる組成の高炉ガスに対して、それぞれ CCU メタノール合成反応器の効率に及ぼす影響について、反応器シミュレーションによる評価を行った。また、シミュレーション結果に基づき、CCU メタノール合成を製鉄プロセスに適用した際の全体プロセスについての検討を行った。



図③-2.5 通常高炉およびカーボンリサイクル高炉と CCU メタノール合成プロセス

5) 製鉄所排ガスからの CCU メタノール合成 技術開発ロードマップ

表③-2.2 に、今回調査結果に基づき作成した、製鉄所排ガスからの CCU メタノール合成に関する技術開発ロードマップを示す。高炉ガスからの CO<sub>2</sub> 分離については COURSE50 プロジェクトにおいて実績があるため、CCU メタノール合成向け CO<sub>2</sub> 分離についても比較的早期の実用化が見込まれる。CCU メタノール合成反応器については、従来型の充填層反応器は既に実用化段階であるが、高効率メタノール合成のためのメンブレンリアクターについては現状まだ小型反応器による要素技術開発の段階であり、今後、実用化に向けた実証試験が必要である。実機化に向けたフェーズでは、反応器は並列化によるスケールアップが可能であるため、低コスト化、量産化によるコスト削減および長期運転による信頼性の向上が望まれる。また、CCU メタノール合成では水素コストがメタノール製造コストに占める割合が大きく、安価水素調達のための水素インフラの構築も今後の重要な施策となる。

表③-2.2 技術開発ロードマップ

	フェーズ1	フェーズ2	フェーズ3
開発ステップ	要素技術開発	実証試験	実機
規模(実験・生産量規模)	大型ラボ設備 (～10ton/y)	実証設備 (～5000ton/y)	実機 (数万～数百万 t /y)
タイムライン	2022～2025	2026～2030	2031～
技術開発項目	<ul style="list-style-type: none"> <li>・CO<sub>2</sub>分離動力削減</li> <li>・前処理設備 (脱Sなど) 設計</li> <li>・反応器設計, 性能評価</li> <li>・操業条件最適化, コストダウン</li> <li>・実証設備設計</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・長期運転耐久性評価</li> <li>・操業条件最適化, コストダウン</li> <li>・実機化課題明確化</li> </ul>	<ul style="list-style-type: none"> <li>・量産化, 低コスト化</li> <li>・信頼性向上</li> </ul>
技術課題とそれに対する開発方針	<b>【CO<sub>2</sub>分離】</b> 分離コスト削減 → ベンチ試験 <b>【反応器】</b> 耐圧・耐熱性 → ラボ試験 全体最適化 → シミュレーション	<b>【反応器】</b> 耐圧・耐熱性 → 実証試験 耐久性 → 長期連続運転試験 低コスト・量産化 → 設備改良	<b>【反応器】</b> 大規模商用生産 長期設備運用
必要な技術、設備	大型ラボ設備	実証設備	実機設備、水素インフラ
連携先(想定)	RITE, ゼオライト膜メーカー 高圧容器メーカー	化学系エンジニアリング会社 ゼオライト膜メーカー	化学系エンジニアリング会社 化学系メーカー (近隣コンビナート連携)
備考	NEDO委託事業 (後継PJ) 「CO <sub>2</sub> を用いたメタノール合成における最適システム開発」	実証試験のための後継PJ取得	水素インフラ、水素価格、炭素税などのインセンティブに応じて量的展開

#### 参考文献

- 1) J. Zhong et al., Chem. Soc. Rev., 49 (2020) 1385.
- 2) O.A. Ojelade et al., Catal. Surv. From Asia, 24 (2020) 11.
- 3) Thousand-ton scale demonstration of solar fuel synthesis starts operation in Lanzhou, China, <https://www.eurekalert.org/news-releases/621503>
- 4) 松方正彦, 瀬下雅博, 吉田大輝, 藤田優, 矢野和宏: 特許第 6511307, ゼオライト分離膜および分離モジュール (早稲田大学, 日立造船株式会社) .
- 5) 余語克則, 沼口遼平, 茂木康弘, 原岡たかし, 紫垣伸行, 鷺見郁宏: 特開 2018-8940, メタノール製造方法およびメタノール製造装置 (公益財団法人地球環境産業技術研究機構, JFE スチール株式会社) .
- 6) M. Seshimo, B. Liu, H. Lee, K. Yogo, Y. Yamaguchi, N. Shigaki, Y. Mogi, H. Kita, S. Nakao: membranes, 11 (2021), 505.

- 7) 坂本尚之, 堤内出, 遠藤浩悦, 大貫正道, 藤田直子, 原美沙: 特開 2020-23488, メタノールの製造方法 (三菱ケミカル株式会社, 人工光合成化学プロセス技術研究組合) .

### ③-3 バイオマス利用技術動向とポテンシャル評価

#### (1)研究開発の目的と目標

製鉄プロセスにおけるバイオマス利用の実態及び開発状況を把握するため、高炉転炉法におけるコークス・PCI代替や焼結用炭材へのバイオマス利用、直接還元製鉄におけるバイオマスガス化利用等の実態調査を行うとともに、廃プラスチックの利用状況についても状況を把握する。

- ・鉄鋼上工程を含む製鉄プロセスにおけるバイオマス利用状況
- ・石炭とバイオマスの性状比較
- ・バイオマスの国際市場、資源量、調達可能量
- ・廃プラスチック利用の現状調査

さらに、これらの調査結果に基づき、日本を想定した高炉一貫製鉄所または直接還元製鉄所におけるバイオマス利用に向けた開発課題を整理し、実用化に至るまでのロードマップ案に繋がる追加調査を実施する。

#### (2)研究開発の内容

ゼロカーボンスチール実現に向けては、CO<sub>2</sub>排出量の大幅削減が可能な革新的製鉄技術の開発が望まれる。その一環として、製鉄プロセスにおけるバイオマス利用の実態と開発状況を把握するために、日本および世界の製鉄プロセス（製鉄・製鋼、電炉、直接還元製鉄）を対象として、バイオマス利用技術動向と技術評価を調査する。

まず、バイオマス利用技術動向について、高炉におけるコークス・PCI代替や焼結用炭材へのバイオマス利用並びに直接還元製鉄におけるバイオマスガス利用等の鉄鋼上工程におけるバイオマス利用の実施状況/開発状況を網羅的に調査する。次いで、バイオマス、廃プラスチックと石炭の比較からバイオマス利用の技術的課題を抽出する。そして、有効なバイオマス製品に関して原料、技術、市場規模および将来性について調査し、日本の製鉄所を対象としたバイオマス利用のパフォーマンスを評価する。

以下の手順で文献調査ベースの技術情報を調査し、バイオマス利用技術動向を整理する共に製鉄プロセスでのバイオマス利用のポテンシャルについて評価した。

- ① 製鉄プロセスへのバイオマス利用技術を文献検索するためのキーワードを選定
- ② 上記キーワードを用いてデータベース等から対象技術を検索・抽出
- ③ 抽出された情報より、製品・原料・技術・市場性ならびに製鉄利用状況を整理

#### (3)研究成果と考察

##### i)バイオマス利用技術の動向

##### i-1) 製鉄プロセスにおけるバイオマス利用形態の分類

製鉄プロセスに使用されるバイオマスの種類としては、代表的なものは木質バイオマスと想定されるが、調査前に対象を特定することはなく、出来るだけ広い範囲のバイオマスをカバーできることを前提とした。バイオマスの広義の分類は、表③-3.1に示すように、「廃棄物系」と主に食料用途で栽培されていた「作物系」に区分でき、また、含まれる水分量によって「乾燥系」と「湿潤系」に分類することができる。「廃棄物系」には、さらに下表のように様々な種類のバイオマスが存在し、バイオマス原料種に適した収集方法、利用形態、変換手段や必要な処理などにより、主にエネルギーとして利用されている。

表③-3.1 バイオマス原料の広義の分類

分類		例	
廃棄物系	農林 水産系	農業	稲わら、籾殻、麦わら、バガス、その他農業残渣
		畜産	家畜ふん尿
		林業	林地残材、間伐材、製材廃材
		漁業	漁業残渣
	産業系	建築廃材、食品廃棄物、水産加工残渣、排水処理汚泥、黒液、廃糖蜜	
	生活系	下水・し尿汚泥、厨芥ごみ、廃食用油	
その他	牧草、水草、海草		
栽培作物系		サトウキビ、トウモロコシ、菜種、甘藷、米、大豆	

(出典：日本電機工業会-HP <https://www.jema-net.or.jp/Japanese/res/bunrui.html>)

バイオマスの主な利用形態、利用手段を表③-3.2に示すが、エネルギー源の形態としては、電気（ガスエンジン、マイクロガスタービン、燃料電池等）、熱（ボイラー、排熱等）、燃料（バイオエタノール、バイオディーゼル燃料等）に分類され、電力利用分野では、発電と排熱利用を併用するコージェネレーションシステムとして利用される場合も多く見られる。また、最終的に発電して、電気エネルギーとして利用するのがバイオマス発電となる。さらに、バイオマスは単独で利用する他、石炭との混焼による火力発電、ガソリンにバイオエタノールを混ぜたエタノール混合ガソリンという、他のエネルギー源と併用される場合もある。一方、バイオマスを変換する過程の副産物である木酢液やリグニンの利用、残渣が肥料として利用されるなど、バイオマスは様々な使用形態が想定される。

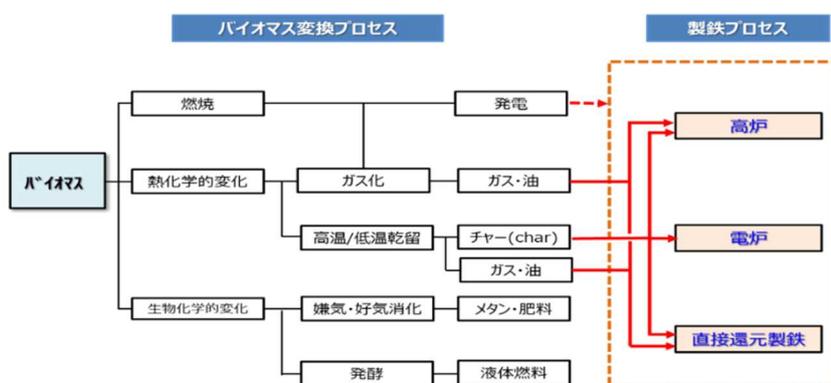
表③-3.2 バイオマスの主な利用技術

変換手段	利用形態	利用手段	
燃焼	直接燃焼	原形又は乾燥物	電気、熱
	混焼	乾燥物	電気、熱
	固形燃料化	チップ、ペレット	電気、熱
熱化学的変換	ガス化	合成ガス、水素	燃料、電気
	液化	スラリー・液状化物	燃料
	炭化	炭化物	燃料、土壌改良材
	エステル化	液状燃料	自動車燃料(バイオディーゼル燃料)
生物化学的変換	メタン発酵	バイオガス	電気、熱、燃料
	エタノール発酵	エタノール、ETBE	自動車燃料

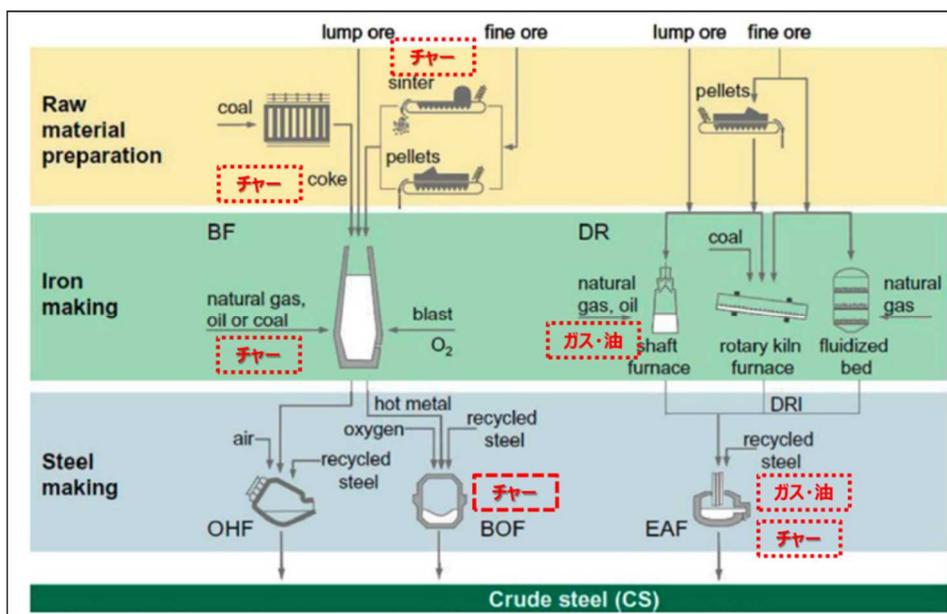
(出典：日本電機工業会-HP <https://www.jema-net.or.jp/Japanese/res/bunrui.html>)

バイオマスの利用として、想定される代表的な形態には、バイオマスを燃焼して、電力として利用する方法、熱化学的反応（高温ガス化、低温ガス化、熱分解、直接液化）により、合成ガス、炭化水素、水素、液体燃料、化学原料として利用する方法、生物化学的変化（嫌気性消化、好氣的消化、加水分解、発酵）により、メタン、肥料液体燃料として利用する方法、を挙げることができる。製鉄業における広義の利用技術は、還元材、脱硫・脱硝材、土壌改良剤、造粒原料、燃料および肥料が挙げられる<sup>1)</sup>。今回の調査対象となる『「ゼロカーボンスチール」実現に向けた技術開発』が可能な範囲の要素技術の適応を想定した場合、製鉄プロセスとしては「製鉄」「製鋼」「電炉」「直接還元製鉄」となり、還元材化や造粒原料化が対象として選定される。

実際の調査を行うに当たっては、以上の考察に基づき、図③-3.1のバイオマス変換プロセスと製鉄プロセスの組合せが考えられるが、バイオマスの発電による電力供給は製鉄所のような製鉄プロセス全体は適切ではないため、今回の対象外とした。これらの結果を元に、高炉、電炉、直接還元製鉄の各工程における想定されるバイオマスの供給形態（チャー、ガス・油）を図③-3.2に示した。



図③-3.1 本調査において想定される製鉄プロセスへのバイオマス利用形態



図③-3.2 想定される製鉄プロセスにおけるバイオマス適応箇所

i-2) 製鉄プロセスにおけるバイオマス利用状況

製鉄プロセスにおけるバイオマス利用状況の調査にあたり、前節「製鉄プロセスにおけるバイ

オマス利用形態の分類」を元に、①バイオマス、②製鉄、③製鉄プロセス、④製鉄技術のカテゴリーを想定して、表③-3.3 に示す検索キーワード群を選出した。この分類に基づき、項目別に「①×②」、「①×③」、「①×④」の検索式を設定し、国内外の文献について調査した。①×②にはついて、更に検索式に「高炉」「電炉」「DR」「還元」「銑鉄」「PCI」「製鋼」「CO<sub>2</sub>削減」を組み合わせて追加の検索を行った。「①×③」、「①×④」の検索では、タイトルから重要性・関連性があると推察される文献を抽出した。

表③-3.3 製鉄プロセスへのバイオマス利用状況調査の検索キーワード

No	カテゴリー	検索キーワード
①	バイオマス	バイオマス (Biomass)、木質バイオマス (Woody Biomass)、バイオマス炭化 (Biomass Carbonization)、バイオマスガス化 (Biomass Gasification)
②	製鉄	製鉄 (Steelmaking)、鉄鋼 (Iron and Steel)、製鉄産業 (Steel Manufacture)
③	製鉄プロセス	高炉 (Blast Furnace)、転炉 (Converter)、電炉 (Electric furnace、Electric Arc furnace)、直接還元製鉄 (Direct Reduction Iron Making)
④	製鉄技術	還元 (Reduction)、製銑 (Pig Iron Making)、微粉炭吹込み (PCI、Pulverized Coal Injection) 製鋼 (Steel Making)、CO <sub>2</sub> 削減 (CO <sub>2</sub> Reduction)

#### i-2-1)製鉄プロセスにおけるバイオマス利用状況 (総説)

製鉄所内各プロセスへのバイオマス利用時に関してプロセス別の個別評価を行い、総合的にバイオマスの CO<sub>2</sub> 削減効果を論じている総説が 20 件以上報告されている。収集した情報より重要性、関連性の高いと思われる文献、情報を実施機関別に表③-3.4 に示す。

表③-3.4 製鉄プロセスへのバイオマス利用状況 (製鉄プロセス全般)

	実施体	地域	時期	概要	重要性
1	Master of Science in Sustainable Energy Technology	ドイツ	2019 年	製鉄プロセス内へのバイオマス利用時の CO <sub>2</sub> 削減効果に関する評価	高
2	Aachen 大学	ドイツ	2017 年	PCI、焼結のバイオマスチャー利用・DRI への展開可能性	低
3	PBL Netherlands Environmental Assessment Agency	オランダ	2019 年	オランダを対象とした製鉄プロセス内へのバイオマス利用時の CO <sub>2</sub> 削減効果に関する評価	高
4	EU 内大学連合	EU	2017 年	EU 域内製鉄プロセスにおけるバイオマスの利用可能性検討	高
5	Oulu 大学、他	フィンランド/スウェーデン	2013 年 2018 年	高炉用コークス/PCI/重油/ガスへの利用可能性評価バイオマスの性状と製鉄利用可能性、プロセス別削減量	中
6	CSIRO	豪州	2012 年	豪州におけるバイオマスの利用可能量試算/LCA 評価	低
7	新日本製鉄/東北大学	日本	2003 年 2009 年 2019 年	バイオマスの製鉄利用検討・評価	低
8	Lawrence Berkeley National Laboratory	米国	2013 年	バイオマスの製鉄利用可能性検討及び評価	低
9	Abo Akadem 大学	フィンランド	2012 年 2013 年 2017 年	バイオマス利用条件とマスマバランスのコンピュータ解析 バイオマスのガス化とガス・PCI 併用の効果評価	中
10	Johannes Keple 大学	オーストリア	2020 年	バイオマスガス化の製鉄所内有効利用-CO <sub>2</sub> 削減量評価	低
11	MEFOS	スウェーデン	2016 年	バイオマスの製鉄利用可能性検討及び評価	中
12	CCRA/CanmetENERGY	カナダ	2016 年	バイオマスの製鉄所内各工程への適応検討	低

以下、代表的な事例を取り上げ、概要を記載する。

①No.1 製鉄プロセス内へのバイオマス利用時の CO<sub>2</sub> 削減効果に関する評価

実施者：Master of Science in Sustainable Energy Technology（ドイツ）

報告書：2050 Decarbonization of the Dutch Steelmaking Industry (2019)

ドイツの鉄鋼業界における 2050 年に向けた脱炭素を実現するために、各種新技術の適応可能性をまとめて紹介しており、その中で製鉄所内の各工程、製鉄プロセスにバイオマスとして木炭を使用した際の導入可能量（表 3.1-5）および CO<sub>2</sub> 削減可能量に関して試算・比較を行い、長期的な開発計画への提言を行っている。

②No.3 製鉄所内各プロセスへのバイオマス利用時の評価

実施者：PBL Netherlands Environmental Assessment Agency

報告書：Decarbonization Options for the Dutch Steel Industry (2019)

No.1 と同様に、製鉄所内の各プロセスにバイオマスとして木炭を使用した際の CO<sub>2</sub> 排出量の下限值/上限値を推算し、将来的な製鉄所の脱炭素オプションについて言及している。

③No.4 製鉄所内各プロセスへのバイオマス利用時の評価

実施者：EU 内大学連合（EU）

報告書：Achieving carbon-neutral iron and steelmaking in Europe through the deployment of bioenergy with carbon capture and storage (2017)

No.1 と同様に、製鉄所内の各プロセスにバイオマスを使用した際のバイオマス使用量の下限/上限を仮定し（表③-3.6）、バイオマス原料の調達可能性、CO<sub>2</sub> 削減に伴うコスト評価も含めて総合的な考察を行っている。木質バイオマスを製鉄所で利用する過程では、バイオマスと CCS との組合せに関するコンセプトも案が考察されており、製鉄プロセスにおける CO<sub>2</sub> 回収工程の想定箇所が提示されている。

表③-3.6 想定される製鉄プロセスにおけるバイオマス代替可能量

プロセス	代替燃料	熱量	CO <sub>2</sub> 発生	燃料価格	代替可能量の評価			
		MJ/kg	Kg/kg	€/GJ	木炭	ペレット	チャー	分解油
コークス炉	原料炭	31.10	2.89	3.98	2-10%	-	-	-
焼結	粉コークス	29.01	3.23	5.35	50-100%	-	-	-
高炉	コークス	29.01	3.23	5.35	50-100%	-	-	-
	微粉炭	33.37	3.19	3.17	0-100%	20%	25%	22.8%

④No.5 北欧における製鉄分野へのバイオマス利用可能性研究

実施者：Oulu 大学、他（フィンランド/スウェーデン）

報告書：Use of biomass in integrated steelmaking -Status quo, future needs and comparison to other low-CO<sub>2</sub> steel production technologies (2018)

北欧では自国内の豊富な木質バイオマス資源を有効利用することに関する研究事例は多く、バイオマスの高炉用コークス/PCI/重油/ガスへの代替利用可能性評価や使用可能なバイオマスの性状とプロセス別 CO<sub>2</sub> 削減量などが報告されている。

⑤No.6 豪州におけるバイオマスの利用可能量試算/LCA 評価

実施者：CSIRO（豪州）

報告書：The Greenhouse Gas Footprint of Charcoal Production and of Some Applications in Steelmaking (2012)

豪州では CO<sub>2</sub>BTP（Australian CO<sub>2</sub> Breakthrough Program）と称した総括的な CO<sub>2</sub> 削減技術開発事業が国家レベルで実施されており、その一環で鉄鋼はバイオマス利用を目指した研究として ISP（low emission Integrated Steelmaking Program）というプログラムが展開されている。政府系研究機関の CSIRO が中心的な実施者として、製鉄プロセスへのバイオマス利用時の CO<sub>2</sub> 削減量の評価等を検討している。

⑥No.11 製鉄プロセスへのバイオマス利用可能性検討

実施者：MEFOS（スウェーデン）

報告書：Biomass applications in iron and steel industry : An overview of challenges and opportunities (2016)

製鉄所内各工程に対して、木炭系バイオマスを適応した際の CO<sub>2</sub> 削減量を評価し（No.1/3/5 と類似）、併せて木炭の製造コストに基づく経済性検討も実施している。

⑦No.12 カナダ CCRA/CanmetENERGY のバイオマス利用検討

実施者：CCRA/CanmetENERGY（カナダ）

報告書：Development of Biocarbon for Canadian Steel Production (2016)

木質バイオマスの豊富なカナダでも、バイオマスの製鉄分野への利用検討が行われており、Canadian Carbonization Research Association (CCRA) という研究機関が Canmet ENERGY 社と共同で、高炉（コークス・PCI）及び電炉へのバイオコークスやバイオチャーの供給を想定した時のバイオマス利用の可能性を検討している。

i-2-2) バイオマスの高炉利用

木質系バイオマスの高炉還元材としての利用方法は、①コークス代替（バイオマスと石炭を混合してコークス炉原料とする。あるいは、バイオマス由来の炭化物を高炉炉頂から装入）、②焼結凝結材代替（粉コークスと代替して焼結鉱を製造）、③微粉炭代替（微粉炭と代替してバイオチャーを羽口から吹き込む）の 3 形態がある。

i-2-3) 高炉でのコークス代替利用

高炉利用としてコークスの代替に関する実施、検討事例を表③-3.7 にまとめた。以下、代表的な実施例、取組み事例を記載する。

表③-3.7 バイオマスの高炉でのコークス代替利用の検討事例

	機関	地域/国	期間	概要	レベル	原料	市場規模	重要性
1	ブラジル製鉄会社	ブラジル	～現在	国内バイオマスチャー利用木炭高炉の操業	実炉 操業	木質 バイオマス	鉄鉄 5.7百万t/年	高
	ブラジル鉄鋼業界	ブラジル	2007 2011 2018	黒檀によるコークス代替時の高炉内反応挙動の基礎研究	基礎 研究	木質 バイオマス		中
2	Institute Jean Lamour	フランス	2014	木炭のコークス代替と副生物(ガス・オイル)の発電利用の研究	実験室	木質 バイオマス		中 ～低
3	日本製鉄			木炭のコークス代替に関する高炉内反応挙動の基礎研究	実験室	木質 バイオマス		中 ～低
4	Newcastle 大	日本	2015	木炭の反応性試験と高炉でのCO <sub>2</sub> 削減に関する基礎研究	実験室	木質 バイオマス		中
5	ArcelorMittal	豪州	2017	Treero プロジェクトにおけるバイオコールの高炉コークス代替と併せて高炉炉頂ガス中COを原料に微生物発酵でバイオエタノールを製造	実証炉	木質 バイオマス	バイオエタノール 8,000万L/年	高
6	CanmetENERGY	EU	2019	木炭のコークス・微粉炭代替使用のLCA評価	机上 検討	木質 バイオマス		中
7	韓国エネルギー技術研究院	カナダ	2011 2012 2016	バイオマスと石炭を混合炭化したバイオコークスの反応性に関する基礎研究	実験室	木質 バイオマス		低
8	日本鉄鋼協会	日本	2014	石炭とバイオマスの共炭化によるコークス製造と反応性評価に関する基礎研究	実験室	木質 バイオマス		中 ～低

①No.1 木炭高炉における鉄鋼生産

実施者：ブラジル国内製鉄会社（ブラジル）

報告書：Bragirian Green Steel-Assessment of CO<sub>2</sub> Mitigation Potential, Biomass Use and Plantation Areas to Sustain Charcoal-Ironmaking

製鉄技術の開発から工業化を歴史的に見ると、18世紀の初めまで世界全体で製鉄用エネルギー源として木質バイオマスを低温炭化して得られる木炭が広く利用されていた。1709年にイギリスにおいてエイブラハムダービー社が、最初に高炉での木炭をコークスに置き換えを実施した以後、コークスは木炭代替として世界に広く普及していった。しかし、20世紀でも未だ木炭高炉（CBF：Charcoal Blast Furnace）は稼働していた。現在、製鉄用に木炭を使用している国は、ブラジルおよびパラグアイの小型高炉に限定されている。木炭は機械的強度が低いために利用量は制限があり、木炭高炉の最大規模は約1,200t/日（容積568m<sup>3</sup>）となっている。

ブラジル国内の木炭高炉は163基、能力15.8百万t/年、生産量は5.7百万t/年（ブラジル全体粗鋼生産量22.6百万t/年、2016年）であり、ブラジル国内の粗鋼生産量の推移からは、木炭製鉄の比率は全鉄生産量の1/3から1/4へと徐々に減少してきているが、一定の生産比率を維持しているこ

とが伺われる。他国では、パラグアイに 2 基の木炭高炉が稼働している。ブラジル国内では木炭製鉄用に約 400 万 ha のユーカリとマツのプランテーションが実施されており、木炭ベースの溶銑を 1.0 百万 t/年生産するには、12 万 ha の作付面積が必要と報告されている。

ブラジル国内では 2008 年の経済危機と森林原料由来製品の産業における需要の減少により、国内における木炭利用製鉄品の需要は減少傾向にあり、ブラジルからの木炭利用製鉄品の輸出状況も低下してきている。ただし、ブラジルからの木炭利用鉄鋼輸出品は Green Steel (CO<sub>2</sub> が低減された品目) としての価値が認められており、米国 Ford 社は CO<sub>2</sub> フリー鉄鋼製品としてブラジルからの木炭製鉄品の輸入を継続している。

ブラジルにおける木炭利用製鉄では、通常の高炉生産に比べて、銑鉄 1t 当たり 2.9t の CO<sub>2</sub> 低減が可能と試算され、温暖化対策としてのメリットが主張されている。その一方で、木炭製造工程における大規模植林による森林破壊や、生産現場における労働環境・条件の悪化等の環境や人権を問題視する動きも見られている。

ブラジルにおける木炭利用高炉に関しては、自国内研究機関による基礎研究も実施されており、木炭利用高炉の操業に関する基礎的データ解析や他国への展開可能性に関する検討事例が報告されている。

#### ②No.4 ArcelorMittal Torero Project

実施者：ArcelorMittal (EU)

報告書：ArcelorMittal Climate Action Report 2018

ArcelorMittal 社は、廃材である木質バイオマスを原料としたバイオコークを外部企業に製造委託し、高炉用コークスに使用するとともに、高炉排ガス中の CO を原料として微生物発酵を行い、バイオエタノールを製造する Torero プロジェクトを開発中である。

本プロジェクトは、Joanneum Research、ChalmersTechnical University、Torr-Coal の共同研究として、ベルギーのアントワープに建設した大規模実証プラントで、予算 4,000 万€ (内 1200 万€は EU Horizon 2020 からの資金提供) で進められている。

利点：既存の鉄鋼生産設備への新規設備追加のみで高炉設備の改造不要と想定

将来：年間 12 万 t の廃材のバイオコーク変換を目指し、将来的には全製鉄所で年間 8,000 万 L のバイオエタノールを生産する。

本プロジェクトにおける木質バイオマスの低温炭素化は、Torr-Coal 社保有の焙焼技術 Torrefaction を利用する。代表的な処理温度は 280~310℃であり、無酸素下で原料バイオマスを加熱処理して、バイオコークを製造する。Torr-Coal 社の生産設備はベルギーの Dilsen-Stokkem にあり、年産 30,000t が製造可能と報告されている。

#### ③No.5 カナダにおける Bio-Coke の利用可能性検討

実施者：CCRA/CanmetENERGY (カナダ)

報告書：Bio-Carbon for Canadian Iron and Steel Production (2016)

カナダでは国内に豊富に存在する木質バイオマスの炭化物を Bio-Coke/Bio-char として、製鉄プロセスにおける高炉 (コークス・PCI) 及び電炉へ供給することを想定した時の可能性を検討している。

i-2-4) 焼結凝結材代替利用

焼結工程でのバイオマス利用の検討は少ない（表③-3.8）。概要を以下に記載する。

表③-3.8 焼結凝結材代替の事例

	実施機関	地域/国	実施期間	実施概要	レベル	対象	重要性
1	CSIRO	豪州	2013年	焼結製造工程におけるバイオマスチャーのコークス粉代替利用に関する研究	実験室	木質バイオマス	中
2	Kosice 大	スロバキア	2015年	各種バイオマス種から製造した木炭の焼結コークス粉代替利用研究	実験室	木質バイオマス	低

①No.1 CSIRO による焼結製造へのバイオマス利用可能性研究

実施者：CSIRO（豪州）

報告書：Substitution of Charcoal for Coke Breeze in Iron Ore Sintering（2013）

豪州 CSIRO では、焼結製造工程における粉コークス代替としてバイオチャー（F.C.=70.8-84.6%）を使用した反応挙動および製品性状についてラボ評価している。焼結工程におけるバイオチャーのコークス代替可能量は、最大 25%と報告されている。

i-2-5) 微粉炭代替

バイオマスの高炉利用における微粉炭代替の検討事例を表③-3.9 にまとめた。以下、代表的な取り組み事例を示す。

表③-3.9 高炉における微粉炭代替利用の事例

	実施機関	地域/国	実施期間	実施概要	レベル	対象	重要性
1	MEFOS /SSAB	スウェーデン	2018-2019	SSAB Brahestad 製鉄所の高炉でバイオコールの微粉炭代替試験を実施（2018/2019年）、併せて関連する基礎的研究を報告	実炉試験	木質バイオマス	高
2	Swedish Energy Agency	スウェーデン	2013	バイオマスチャーのコークスおよび微粉炭の代替可能性に関する基礎研究	実験室	木質バイオマス	中
3	JFE/東北大/京都大	日本	2005-2008-2013	バイオマス炭化物の高炉吹込に関する基礎的実験とシミュレーション（5件）	机上検討	木質バイオマス	中
4	Aachen 大	ドイツ	2009-2011年	バイオマスチャーの微粉炭代替に関する実験研究（2件）	実験室	木質バイオマス	中
5	New South Wales 大	豪州	2017-2020	バイオマスチャーの微粉炭代替時における炉内反応のシミュレーション解析（3件）	机上検討	木質バイオマス	低
6	Canmet/ ArcelorMittal	カナダ	2011-2017	高炉利用に関する解析（①と重複）	実験室	木質バイオマス	低
7	Macquarie 大	豪州	2015年	各国製鉄所へ Bio-PCI の利用可能性の机上検討	机上検討	木質バイオマス	高

①No.1 SSAB におけるバイオコール PCI 代替

実施者：SSAB/MEFOS（フィンランド）

報告書：Reduced Carbon Consumption and CO<sub>2</sub> Emission at the Blast Furnace by Use of Briquettes Containing Torrefied Sawdust（2019）

SSAB は、MEFOS、VTT 技術研究センター、Oulu 大学と共同して、フィンランドの Brahestad 製鉄所でバイオコールによる高炉微粉炭代替試験を実施している。

第 1 回試験：2018 年 8 月、8 時間（微粉炭の 4%をバイオコールで代替）

第2回試験：2019年5月、9日間（微粉炭の10%を代替、バイオコール使用量 820t）

微粉炭代替の操業上の課題はなく、通常運転が可能であった。10%代替でCO<sub>2</sub>排出量が年間10万t削減可能と推算される。また、高炉関連設備の変更なしで、最大20%代替可能との評価である。しかし、バイオコールの代替可能上限についての言及はない。微粉炭の10%代替には、年間約35,000tのバイオコールが必要となるが、フィンランド国内ではこの量の調達に困難であり、バイオコールの調達が課題である。

②No.4 バイオマスチャーのPCI炭代替に関する基礎的実験・研究

実施者：Aachen University（ドイツ）

報告書：Charcoal Behavior by Its Injection into Modern Blast Furnace（2019）

各種バイオマス由来チャーの基礎的ガス化反応特性を評価するとともに、パイロット試験設備による微粉炭吹き込み実験およびコンピュータシミュレーションを実施し、バイオマスの微粉炭代替適応可能性を評価している。

③No.7 Macquarie 大学による各国高炉へのPCI代替効果評価

実施者：Macquarie 大（豪州）

報告書：Charcoal injection in blast furnaces (Bio-PCI): CO<sub>2</sub> reduction potential and economic prospects（2015）

各国高炉（日本製鉄、POSCO、Tata、Baosteel等）において微粉炭の使用実態を調べ、微粉炭をバイオチャーにより代替した場合のCO<sub>2</sub>削減効果を試算、評価している。

i-2-6) バイオマスの直接還元製鉄法での利用

バイオマスの直接還元製鉄法への適用の検討事例の一覧を表③-3.10に示す。以下、代表的な事例を記載する。

表③-3.10 バイオマスの直接還元製鉄法への適用の検討事例

	実施機関	地域/国	実施期間	実施概要	レベル	対象	重要性
1	Luleå Technical University、LKAB、MEFOS	スウェーデン	2015	バイオマスガス化合成ガスを供給する還元鉄製造プロセスを想定した可能性評価(2件)	実証試験(計画)	木質バイオマス	高
2	日鉄エンジニアリング	日本/マレーシア	2011	パーム油用椰子殻残渣を原料とした、直接還元製鉄用バイオコークス製造事業	事業化	椰子殻(PKS)	低
3	Semnan University	イラン	2019	バイオマス・酸化鉄混合物の還元特性に関する基礎研究	実験室	木質バイオマス	低
4	青島工業大学/中国科学院/華中科技大学/北京科技大学	中国	2011-2017	各研究機関における反応性評価等の実験、分析等の基礎的研究(5件)	実験室	木質バイオマス	低
5	ECN Technology	オランダ/豪州	2013-2016	バイオマスガス化(MILENAガス化技術)の直接還元製鉄利用の経済性検討	机上検討	木質バイオマス	中
6	Michigan 工科大学	米国	2013	E-Iron Nugget 製造プロセスへのバイオマス利用	実証試験	木質バイオマス	低
7	北大/産総研/九大	日本	2012	バイオマスタールによる鉄鉱石還元促進に関する基礎研究	実験室	木質バイオマス	低

①No.1 MEFOS等におけるバイオマスガス化の直接還元製鉄への適用検討

実施者：Luleå Technical University、LKAB、MEFOS（スウェーデン）

報告書：Forestry meets Steel. A Technoeconomic study of the possible DRI production using biomass（2015）

スウェーデンの LKAB、MEFOS では、バイオマスをガス化した際の生成ガスを還元鉄製造プロセスに還元ガスとして供給し、生産した還元鉄（BioDRI と称する）の製鉄所利用を想定した事業を検討している。検討過程において、北欧におけるバイオマスの調達可能性、バイオマスのガス化反応特性、BioDRI の高炉供給時の CO<sub>2</sub> 削減効果等を評価している。

②No.5 MILENA indirect gasification によるバイオマスガス化の直接還元製鉄での利用

実施者：CCRA/CanmetENERGY（カナダ）

報告書：Towards green iron and steel industry: opportunities for MILENA biomass gasification technology in Direct Reduction of Iron（2016）

オランダ ECN 社が石炭ガス化用に開発した MILENA ガス化プロセスを元にしたバイオマスガス化とシャフト炉による還元鉄製造プロセスが検討されている。バイオマスガス化による天然ガス代替の可能性があり、CO<sub>2</sub> 削減効果が期待できる。しかし、典型的な商用還元鉄プラントに必要なガス化プラント規模（合成ガス量 360～400MW/th）は、現在のバイオマス/廃棄物ガス化プラントの実規模（<100 MW/th）よりもはるかに大きく、必要ガス量の全ての供給は困難と推定されている。

i-2-7) バイオマスの電炉利用

バイオマスの電炉への適用の検討事例を表③-3.11 に示す。以下、代表的な事例を記載する。

表③-3.11 バイオマスの電炉への適用の検討事例

	実施機関	地域/国	実施期間	実施概要	レベル	対象	重要性
1	近畿大学	日本	2012	近畿大学のバイオコークスを高周波誘導溶解炉で銑鉄・鉄スクラップを加熱溶解時に添加・ casting 利用に関する基礎研究	実験室	木質 / 廃棄物	低
2	スチールプランテック	日本/インドネシア	2008	椰子殻（PKS）を原料したバイオマスコークスの電炉用炭素源利用に関する事業検討	実証試験	椰子殻（PKS）	中
3	EUROPEAN COMMISSION (GreenEAF)	EU	2013 2015 2017	電炉挿入物としての石炭・コークス代替としてのバイオチャー評価研究（性状、反応性、経済性、CO <sub>2</sub> 削減効果）	工業用電炉	木質 バイオマス	高
4	Ouro Preto 大	ブラジル	2015	各種バイオマスのガス化ガス発電とチャーの電炉供給の併用に関する基礎研究	実験室	木質 バイオマス	低
5	New South Wales 大	豪州	2015	LPM (Lignin-rich Press Mud) の電炉利用に関する基礎研究	実験室	木質 バイオマス	低
6	RS Consultant	ブラジル	2008	バイオチャーの電炉利用に関する基礎研究	実験室	木質 バイオマス	低

①No.2 製鋼用アーク炉におけるインドネシアバイオマス利用検討

実施者：スチールプランテック（日本/インドネシア）

報告書：インドネシア・製鋼用アーク炉におけるバイオマス利用の事業調査（2008年）

平成 19 年度環境省 委託事業 CDM/JI 事業調査

インドネシアの鉄鋼生産のうち、約 200 万 ton/年は鉄スクラップまたは還元鉄を原料とする電炉で製造されており、精錬工程では挿入される鉄源に対して、2～3wt%の化石燃料（石炭・石油等）由来の粉コークスを使用している。このコークス代替用に国内のパーム油生産の副産物である椰子殻

(PKS) を原料とした粉コークスを試作し、技術的に立証する技術開発を日本企業が経済産業省の支援事業として実施し、日本において電炉実証試験を行い、商業時における経済性検討を実施している。

## ②No.3 EUにおけるバイオチャーの電炉挿入試験 GreenEAF

実施者：EUROPEAN COMMISSION【GreenEAF】(EU)

報告書：EAF long term industrial trials of utilization of char from biomass as fossil coal substitute (2017)

欧州委員会は、電炉鉄鋼生産に使用される石炭・コークスに対してバイオチャーによる代替技術の開発プロジェクト RFCS を実施し、基礎的研究段階におけるバイオチャーの性状や試験電炉使用時の反応性評価とともに、実炉投入試験を実施し、CO<sub>2</sub>削減可能量や経済性の検討を行っている(表③-3.12)。

実施期間：GREENEAF1 (2009-2012年)、GREENEAF2 (2014-2016年)

実施規模：基礎実験、パイロット試験(200kg炉)、実炉試験

表③-3.12 国別の電炉におけるバイオマス利用時のCO<sub>2</sub>削減量の推算

国	電炉生産量	CO <sub>2</sub> 削減可能量
ドイツ	13.2百万t	0.8百万t (▲22.7%)
カナダ	5.5百万t	0.3百万t (▲39.5%)

### ii) バイオマス、廃プラスチックと石炭の比較

#### ii-1) 木質バイオマス

製鉄プロセスのバイオマス利用の実施例は、ほとんどが木質バイオマスの利用技術であった。そこで、木質バイオマスの代表的な性状、生産、日本への輸入状況等について整理した。

針葉樹と広葉樹では木部組織や組成に違いがあるが、基本的に3主要成分(セルロース、ヘミセルロース、リグニン)が約90%を占める。中性溶剤不溶部として無機成分、窒素化合物、ペクチン質などが含まれ、無機成分にはカルシウム、カリウム、シリカ等がある。温帯産の一般的木材では、その含有量は0.1~0.9%であり、針葉樹で少なく、広葉樹に多く含まれる。また、中性溶剤可溶部は、脂肪族化合物、糖類、芳香族化合物、テルペン類等があり、樹種によって大きくバラツキがある<sup>2)</sup>。主成分であるセルロース、ヘミセルロース、リグニンでは、セルロース、ヘミセルロースは細胞壁構成成分であり、リグニンは細胞壁中および細胞間層に分布して木質化に関係するとともに樹体の形成に直接関わっている。副成分である樹脂、精油、タンニン、アルカロイド、タンパク質、色素などは、多くは細胞内腔や細胞間隙などの特殊な組織に存在しており、樹体の構成に直接には預かっていないが、樹木の生理作用と直接結びついていることが多く、必要不可欠な成分である。

利用形態としては、木材チップ、木粉、木質ペレット、薪に加工しての使用が主となっている。日本では消費量が年々増加しており、不足分を海外より輸入している<sup>3)</sup>。木質バイオマスは、国内生産・消費のルートが確立しており、2016年度の種別木質バイオマスの利用量は、木材チップが約87%、木粉が約3%、木質ペレットが約2%、薪が約0.5%で全体の約93%を占めている。木材チップに関しては、建設資材廃棄物約52%、間伐材・林地残材等約25%、製材等残材約21%の構成比になっている。

木質ペレットは木粉を圧縮成形した燃料であり、形状が一定でエネルギー密度も高く、含水率が低くかつ運搬・貯蔵も容易等の利点があり、広く使用されている。国内生産量は12万t(2016年度)で数年に亘りに大きな変動はなく、国内生産施設数は140～150箇所程度、そのうち生産量が年間100～1000t程度の小規模生産工場が約6割を占めており、日本での生産量や施設数の増加は困難と考えられている。従って、将来的には海外からの輸入量が増加すると予想される。

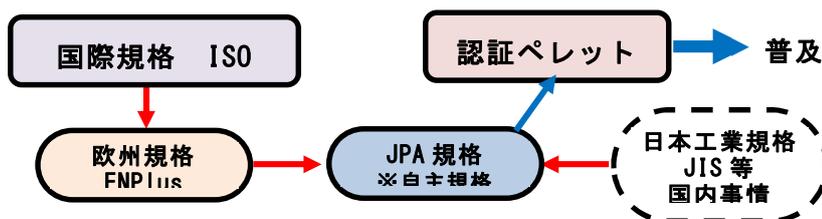
主にバイオマス発電と石炭混焼発電用に使われている木質ペレットとPKS(Palm Kernel Shell、パームヤシ殻)の輸入量に関する2019年度統計によると、輸入木質ペレットは前年比1.5倍の161,4万トン、PKSは同じく1.3倍の163,8万トンと大幅に増加してきている。日本へのバイオマス輸入価格はここ数年に亘り安定しており、大きな変化はない<sup>4)</sup>。

木質ペレットの日本への輸入量はカナダが最も多いが、タイ、ベトナムのアジア圏からの輸入も増加している。カナダ及びベトナムの輸入木質ペレットの価格を比較すると5,000円/t程度の値差があり、カナダ材の方が高い傾向にある<sup>4)</sup>。

地球温暖化対策の一貫として、日本国内では石炭火力発電所における木質バイオマスペレットの混焼が進んでおり、その多くを輸入木質バイオマスペレットに依存している。ただし、木質バイオマスペレット製品を国際市場で扱うには、製品規格に適合していることが求められており、幾つかの国際規格が整備されている(表③-3.13、図③-3.3)。日本に輸入される木質バイオマスも国際認証を受けていないと、CO<sub>2</sub>削減効果を認められないため、認可品であることが必要となる。

表③-3.13 木質ペレットに関する代表的な国際規格

種類	内容
EN規格	2011年欧州規格 EN14961-2 制定(非産業用のみ)
ISO規格	2014年国際規格 ISO 17225-2 制定(非産業用+産業用基準)
ENplus	2015年8月 ISO 17225-2 に準拠した ver3 が発効 <ul style="list-style-type: none"> <li>・参加国は欧州以外にロシア、米国、カナダ、マレーシアなど35か国</li> <li>・2015年の非産業用認証ペレットの生産は770万t(EU需要の7割)</li> <li>・欧州では、品質規格で評価された一定水準以上が市場参入の必須要件</li> </ul>
JPA品質規格(日本)	ISO、ENplusとも整合性あり、JIS他国内事情も配慮



図③-3.3 木質バイオマス製品ペレットの品質規格に関する関係

近年、木質ペレットの品質改善として、バイオマスを焙煎して半炭化するTorrefaction処理により石炭性状に近づけた「ブラックペレット」の開発が進んでいる<sup>5)</sup>。Torrefactionは低温炭化処理の一種であり、重量および熱量の歩留が各々70%と90%で、エネルギー密度は(90/70=)1.3倍に向上される。ブラックペレットの最大の特徴は石炭と同程度に炭素分の比率を高めることにより、従来の石炭火力発電所にそのまま投入でき、受け入れ側の設備改造が不要な点にあり、製鉄利用の分野では、コークス、PCI代替品としての適用が進んでいる。2010年代に入って欧米を中心に開発が始まり、Arbafume、NewBiomass Energy、Airex Energy、日本製紙、出光興産などがプロセス開発と

商業設備建設を進めている。木質バイオマスチップの利用は、製紙産業向けが主であり、一部がバイオマスボイラで使用されている。木質バイオマスチップの輸入量は1.0百万~1.2百万t/月、価格は18千~24千円/tである<sup>4)</sup>。

また、日本への輸入量が増加しているのが、パーム油の生産プロセスから排出されるPKS (Palm Kernel Shell: パーム椰子殻) である。農園から出荷されたアブラ椰子 (FFB: Fresh Fruit Bunch) は、搾油工場で果房からパーム粗油 (CPO: Crude Palm Oil)、種子からパーム核油 (CPKO: Crude Palm Karm Oil) が搾油され、次に、精油工場においてオレイン酸やステアリン酸などに精製された後、食品、薬品、バイオ燃料などの原料として出荷される<sup>6)</sup>。製品収率は、およそパーム粗油43%、パーム精油21%とであり<sup>6)</sup>、大量に発生する副生物 (PKS、EFB: Empty Fruit Bunches、Mesocarp Fibres) の処理が課題となっている<sup>7)</sup>。現地での燃焼・廃棄に代わって分離・成型 (ペレット化) し、燃料として輸出される比率が増えている。

パーム油の主生産国はマレーシアおよびインドネシアで、世界的な食料需要増加に伴って広域プランテーションを元に年々増産傾向にあり、パーム油残渣のPKS発生量も同様に増加している。インドネシア・マレーシアにおけるPKS発生量は約12百万t(2015年)であり、特にインドネシアで顕著に増加している<sup>8)</sup>。この2国以外のPKS商業的輸出可能国には、タイ・ナイジェリア・コロンビア等がある。日本のPKS輸入量は約200,000t/月である<sup>4)</sup>。PKSを用いた製鉄用バイオコークスの製造は、日鉄エンジニアリングが2011年時点にマレーシアで事業として実施している。

世界的な木質バイオマスの将来における需給予測としては、2030年時点において生産量は3500PJ程度、世界輸出量は1200PJ程度であり、世界全体の需給における日本の必要量は生産量に対して7~10%、輸出量に対しては21~29%と、非常に高い割合を占めると予測される<sup>9)</sup>。また、パリ協定後の地球温暖化対策より、各国におけるバイオマスの需要が高まることが予想され、日本における木質バイオマスの必要量確保が困難になることが懸念されている。

## ii-2) 廃プラスチックの製鉄分野での利用状況

①廃プラスチック、②プラスチックリサイクル、③製鉄産業、④製鉄プロセス、⑤製鉄技術をカテゴリーに表③-3.14に示すキーワード群を選出した。この分類に基づき、項目別に①×③、①×④、①×⑤、(①or②)×③、(①or②)×④、(①or②)×⑤の検索式を設定、国内外の文献を調査した。書誌情報 (タイトル、著者、資料名等) から関連性を判断し、124件を抽出した。なお、検索結果からは、2000年から2010年に掛けての日本からの報告が多く、この時期に盛んに廃プラスチックの製鉄利用の開発が行われていたことが伺われる。

日本国内では年間約1,000万tのプラスチックが生産され、各分野で消費された後、約850-900万tの廃プラスチックが排出されている<sup>10)</sup>。廃プラスチックは、ポリエチレン、ポリプロピレン、ポリスチレン、塩化ビニルが主要構成成分となっている<sup>11)</sup>。回収された廃プラスチックの処理方法の内訳としては、発電等の熱回収: 57%、単純焼却やリサイクルが難しく廃棄物として埋め立て: 16%で処理されており、再生利用にあたるリサイクルは、マテリアルリサイクル: 23%、ケミカルリサイクル: 4%となっている<sup>10)</sup>。

表③-3.14 製鉄プロセスへの廃プラスチック利用状況調査の検索キーワード

No	カテゴリー	検索キーワード
①	廃プラスチック	プラスチック (Plastic)、廃プラスチック (Waste plastic)、プラスチックごみ (Plastic Trash、Plastic Garbage)
②	プラスチックリサイクル	プラスチック リサイクル(Plastic Recycle)、熱分解(Thermal Decomposition)、ケミカルリサイクル (Chemical Recycle)、サーマルリサイクル (Thermal Recycle)、プラスチックガス化 (Plastic Gasification)
③	製鉄産業	製鉄 (Steelmaking)、鉄鋼 (Iron and Steel)、製鉄産業 (Steel Manufacture)
④	製鉄プロセス	高炉 (Blast Furnace)、転炉 (Converter)、電炉 (Electric Furnace、Electric Arc furnace)、直接還元製鉄 (Direct Reduction Iron Making)、コークス炉 (Coke Oven)
⑤	製鉄技術	還元 (Reduction)、製鉄 (Pig Iron Making)、微粉炭吹込み (PCI、Pulverized Coal Injection) 製鋼 (Steel Making)、CO <sub>2</sub> 削減 (CO <sub>2</sub> Reduction)

2018年度の実績としては、プラスチック廃棄物は9.4百万トン/年で、全廃棄物総量431百万トンの2%に相当し、リサイクル率は24.8%、リサイクルと熱回収率と併せた回収率は81.6%となっている<sup>11)</sup>。プラスチックリサイクル技術はマテリアルリサイクル、ケミカルリサイクルおよびサーマルリサイクルに分類され、前者は①同一製品の原料に再生するレベルマテリアルリサイクルと②低品質製品の原料に再生するダウンマテリアルリサイクル、中者は①原料・モノマー化、②ガス化、③油化、④高炉還元材化、⑤コークス炉化学原料化に更に分類される<sup>12)</sup>。サーマルリサイクルはボイラー等で燃焼し、発電等でエネルギーを回収する。プラスチックリサイクルの国際的分類を表③-3.15<sup>11)</sup>に示す。

表③-3.15 プラスチックリサイクルの国際的分類<sup>11)</sup>

分類 (日本)	リサイクル技術	ISO 15270
マテリアルリサイクル	再生利用 プラ原料化/プラ製品化	Mechanical Recycle メカニカルリサイクル
ケミカルリサイクル	原料・モノマー化	Feedstock Recycle フィードストックリサイクル
	コークス炉化学原料化	
	高炉還元材化	
サーマルリサイクル (エネルギー回収)	ガス化 油化	化学原料化 燃料
	セメント原料化・燃料化 ゴミ発電、RPF/RDF	Energy Recovery エネルギーリカバリー

プラスチック製容器包装に関する日本におけるリサイクル状況としては、2012年度以降は約60%がケミカルリサイクルで推移しており、そのうち内訳としては、製鉄分野におけるリサイクル処理であるコークス炉化学原料化が40-44%、高炉還元材化が6%と、全体の半分を占める大きな比率となっている<sup>11)</sup>。

#### ①コークス炉化学原料化

コークス炉化学原料化<sup>13)</sup>は日本製鉄(旧新日本製鐵)が開発した廃プラスチック処理法であり、現在、日本製鉄の全国7か所のコークス炉で実用化されている。日本におけるケミカルリサイクルの中では、コークス炉化学原料化は廃プラスチック処理量が最も多い手法となっている。

コークス炉化学原料化法の概要は、石炭に混合廃プラスチックを約1%混ぜ、コークス炉において1,200℃の無酸素条件下で蒸し焼きにし、ガス(水素、メタン)40%、オイル40%、コークス20%の生成物が得られている。ガスは燃料や発電に、コークスは高炉還元材に利用される。また、オイルは

芳香族成分が多く、化学品やプラスチックに誘導することが可能である。ただし、この処理法は1回きりの使用のため、厳密にはリサイクルではなく、再利用と定義されている。また、混合廃プラスチックは、コークス炉供給までにできるように事前処理が必要である。

日本製鉄は、全国7カ所の製鉄所で廃プラスチックの受け入れ体制を確立し、容器包装リサイクル法に基づく廃プラスチック処理として参画している。全国740の市町村・組合のうち、210ヶ所(2019年度)の自治体と提携し、全国の約3割にあたる年間約20万tを処理している。日本製鉄からは、コークス炉を使用した廃プラスチックのリサイクル処理は、リサイクル効率やキャパシティの面で性能が高いため、地域における循環型社会の形成に寄与していると公表している。廃プラスチックの累計処理量(2000～2019年度)は、約328万トンに至り、CO<sub>2</sub>削減量で1,050万tに相当すると報告されている<sup>11)</sup>。また、最近では、オイル成分を利用した化学繊維や食品トレイへの製品化を進めており、製鉄分野以外への再資源化を促進している。

コークス炉化学原料化法の特徴としては、処理温度が1200℃と通常の熱分解処理の400℃より非常に高いため、廃プラスチックの熱分解生成物は脱水素環化反応が進み、芳香族系オイル(ベンゼン、トルエン、キシレン)となる<sup>10)</sup>。コークス炉化学原料化法には一般廃棄物の混合廃プラスチック(ポリエチレン/ポリプロピレン/ポリスチレンが主体)が主に使用されるが、一部産業廃棄物も使用可能とされている。ただし、ポリ塩化ビニルの混入は好ましくなく、熱分解して塩化水素の形で脱塩するか、除去する事前処理を行っている。また、コークス炉の主原料である石炭に対して、廃プラスチックの混合率は約1%と微量のため、廃プラスチック組成のばらつき等の変動要因の影響は小さい。

コークス強度に及ぼす廃プラスチック添加率の影響は、これまでの操業実績として把握されている。廃プラスチック添加時のコークス強度(DI<sup>150</sup><sub>15</sub>)およびコークス反応後強度(CSR)は、配合石炭に対する添加率が1%以上で共に低下し、これらを踏まえて添加率としては1%が上限とされている<sup>14)</sup>。

コークス炉化学原料化法による炭素低減に関する可能性評価としては、コークス炉における石炭および廃プラスチックからの製品転化率の値を用いて、製鉄プロセスでのカーボンバランスが評価されている(表③-3.16<sup>11)</sup>)。そのLCA的評価からは、廃プラスチックのコークス炉使用による炭素削減効果が1.18kg/tHMと試算されている。

表③-3.16 コークス炉での製品転化率<sup>11)</sup>

	石炭	廃プラスチック
コークス	74%	20%
コークス炉ガス	17%	40%

日本製鉄における廃プラスチック処理の将来計画として、2019年12月のプレスリリースにて以下の様に報告されている。

日本製鉄ではコークス製造における廃プラスチックのケミカルリサイクルによる鉱石還元材や化学品材料化の実施・拡大に努めてきており、地球温暖化ガス排出抑制を図り、2018年11月度までの累計：省CO<sub>2</sub>カウント量960万tを達成している。一方、鉄鋼連盟は「鉄鋼関係のケミカルリサイクルとして、多大の設備投資により処理能力100万t/年の実施体制が整備されているが、当初に予定した量の半分の廃プラスチックしか入手できず、処理量は約50万t/年にとどまっている。これを倍増し

て 100 万 t/年（廃プラスチックと廃タイヤ）にすることを目指す」と発表している。これを受けて、今後の社会要請に応えるべく、日本製鉄では廃プラスチック多量処理時のコークス炉操業影響緩和を目的に、廃プラ成形物の高密度化を計画しており、研究所・製鉄所・本社部門が連携して技術開発を行い、1～2 年間で技術確立し、既設の廃プラ成形ラインに順次投入を図ることを目指す。

#### 【目標】

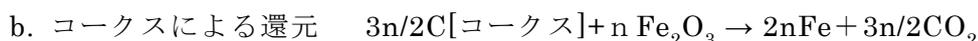
- ・廃プラ資源化量：+20%増量
- ・省 CO<sub>2</sub>：現状から更に△12 万 t/年 規模の削減
- ・その他：国内外で大きな問題となっている廃プラの有効活用量拡大
- ・化学原料や還元材としての活用拡大

#### 【具体的なアクション】

- ・高密度化手法の評価確認：2020 年度～2021 年度
- ・オフラインテスト装置の設計製作
- ・オンラインテストの実施：2021 年度～2022 年度
- ・オフラインで確認されたことに基づいて、装置改造の設計製作
- ・高密度化成形物のコークス炉活用評価実施
- ・実機実証：2022 年度～

#### ②高炉還元材化

高炉還元材化は、JFE スチール（旧 NKK）が 20 年以上前に開発・実用化した技術であり、現在は JFE プラリソース株式会社が 2000 年に稼働した福山と川崎の処理工場を操業している。高炉還元材化では、造粒または破碎されたプラスチックを微粉炭に混合し、コークス炉の 1,200℃よりさらに高温である 2,400℃の高炉羽口前領域に直接供給する。高炉内で廃プラ構成元素の炭素と水素は還元材として鉄鉱石（Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>）を還元する<sup>15)</sup>。回収された廃プラスチックベール（廃プラスチック製品を圧縮して結束したもの）の内、75%が高炉還元材として利用され、10%は水分として蒸発し、15%が残渣として処理される。以下の反応式に示すように、廃プラをコークス製造に使用する場合に比べて、高炉還元材化では CO<sub>2</sub> 発生を 2/3 に減らすことが期待できる。ただし、廃プラスチックは 1 回の使用で終わるため、厳密にはリサイクルと定義されない。



JFE グループ内における使用済みプラスチックリサイクルは、関連会社の JFE プラリソース株式会社および J&T 環境株式会社で実施されており、その処理能力は以下の通り。

京浜事業所（川崎市川崎区、処理能力 242t/日、26,000t/年）

福山事業所（広島県福山市、処理能力 254t/日、40,000t/年）

JFE グループでは、20 年間の累計処理量は 105 万 t に達している。

廃プラスチックを高炉還元材として利用するために、微粉炭と同様に羽口から吹き込める様に粉碎した上で 6～8mm 程度に圧縮造粒する加工技術を開発した<sup>11)</sup>。

その後、NEDO 事業において、廃プラスチックを加熱溶融・脱塩素・冷却固化し、高炉内での反応性が高い微粉プラスチック APR（Advanced Plastic Recycling）を製造する技術を確立し、試験プ

ラントを2007年に建設し、操業試験を行っている。高炉羽口から吹き込まれた廃プラスチック粒は2,000℃以上のレースウェイ空間で熱分解され、炭素と水素になり、更に炭素はCOに部分酸化される。しかし、羽口先端の流速は200m/s以上の高速のためレースウェイ内滞留時間は0.02秒と短時間となり、反応性が高い微粉炭に比べてプラスチック粒は反応が遅く、還元ガスへの変換が遅れるという課題が明らかとなった。特に、高生産性下では羽口流速が増し、レースウェイ内滞留時間が更に減少するため、6～8mmのプラスチック粒ではレースウェイ内で分解反応が終了せず、未反応プラスチックが残留する問題が生じていた。粒径を変えた廃プラスチックの評価実験を行った結果、最適な粒径が1mm程度であることを明らかにした<sup>17)</sup>。

廃プラスチックを微粉化する場合、必要以上に粒径を小さくすると粉塵爆発を起こす恐れがあることや、粉砕にかかるコストが増大する懸念などの問題もあるが、これらを考慮した上で適正粒径（平均0.4mm）の製造プロセスを確立した<sup>17)</sup>。現在、JFEスチール東日本製鉄所では、15,000t/年のAPRを高炉還元材として使用し、約60%が鉄鉱石還元利用され、残りの約40%もエネルギーガスとして回収されて製鉄所のエネルギー源として利用されている。APRを還元材として利用することで、コークス使用時より製鉄プロセスにおけるCO<sub>2</sub>排出量をプラスチック1t当たり約2.8t削減でき、年間で42,000tのCO<sub>2</sub>排出量削減効果が得られている<sup>17)</sup>。

### ③電炉における廃プラスチックの利用

電炉における廃プラスチックの利用としては、製鋼工程から発生するミルスケール（熱間圧延中の表面酸化鉄）の電炉工程内でのリサイクル・還元利用が東京製鐵、北九州市立大等で検討されている<sup>18)</sup>。リサイクル過程において、還元材としての廃プラスチック利用を想定しており、廃プラスチック高度利用での低炭素社会構築へ寄与も目的としている。現在までに、廃プラスチックの回収・選定、粉砕・選別、ブリケット成型、電炉操業の試験を実施しており、スラグ生成量の減少効果を確認している<sup>18)</sup>。

### ④廃プラスチックの製鉄利用における省エネルギー効果、将来計画

各種廃プラ処理技術と廃プラスチックの高炉利用法（高炉還元材化とコークス炉化学原料化）に関する環境負荷低減効果のLCA評価がなされた<sup>19)</sup>。廃プラスチックの高炉利用は、代替する天然資源の種類により削減効果が異なるが、他の再商品化技術と比較しても、CO<sub>2</sub>削減効果が高いことが判る。なお、各手法内で複数の点がプロットされているが、主に利用製品が異なるためとなっている。

高炉還元材法とコークス炉化学原料化法に関するLCA的評価として、廃プラスチックを処理した場合のCO<sub>2</sub>削減効果を検討した結果（前提として、ゴミ1tあたり廃プラスチック44kgを含み、高炉・コークス炉までの輸送距離が100km）が報告されており、高炉還元材化で△209Mcal/t、コークス炉化学原料化では△222Mcal/tの削減効果と試算されている（表③-3.17<sup>20)</sup>）。

表③-3.17 コークス炉化学原料化の LCA 的評価<sup>20)</sup>

	高炉還元材法	コークス炉化学原料化法
エネルギー消費 (Mcal/t)	△209	△222
CO <sub>2</sub> 排出量 (kg/t)	△202	△217

日本全体における 2011～2019 年度までの間のプラスチック製容器包装リサイクルによるエネルギー資源削減効果と CO<sub>2</sub> 削減効果は大きい<sup>21)</sup>。特に、2011 年度から 2013 年度に掛けては、材料リサイクルによるエネルギー資源削減が進み、全体のエネルギー資源・CO<sub>2</sub> 削減効果が増加している。その後、材料リサイクルの再商品化製品の品質向上と若干の収率減少により全体としてのエネルギー資源削減・CO<sub>2</sub> 削減効果は横ばいとなっている。コークス炉化学原料化および高炉還元材化は高い比率を示し、両技術が重要な位置付けとなっている。

経済産業省、環境省および関連団体は、将来における廃プラスチックのリサイクル対策として、「プラスチック資源循環戦略（2019 年）」を策定して、以下の目標を掲げている。リユース・リサイクルにおいて、コークス炉化学原料化および高炉還元材化は重要な役割を期待されている。

【リデュース】

- ・2030 年までにワンウェイプラスチックを累積 25% 排出抑制

【リユース・リサイクル】

- ・2025 年までにリユース・リサイクル可能なデザインに
- ・2030 年までに容器包装の 6 割をリユース・リサイクル
- ・2035 年までに使用済プラスチックを 100% リユース・リサイクル等により有効利用

【再生利用・バイオマスプラスチック】

- ・2030 年までに再生利用を倍増
- ・2030 年までにバイオマスプラスチックを約 200 万トン導入

特に、ケミカルリサイクル分野では、次の取り組みが重要とされている。

【鉄鋼】一般家庭から回収された容器包装プラスチックを、製鉄所のコークス炉を使ったケミカルリサイクルによりほぼ 100% 再資源化しており、2018 年 11 月までに累計 300 万トン进行处理した実績を有する。

【化学】プラスチックを含む可燃性ごみからエタノールを生成し、プラスチックの原料として再資源化、再利用化する。また、アンモニア原料の安定供給を目的として、使用済プラスチックから水素を取り出すプラスチック・ケミカル・リサイクルを実施する。

この廃プラスチックリサイクル強化の動きを受けて、経団連、日本鉄鋼連盟では既存の廃プラリサイクルフローを元に、処理能力の強化、処理量の増加予備 CO<sub>2</sub> 削減への貢献を目指すことを対外的に発表している。

日本鉄鋼連盟の「低炭素社会実行計画」では、廃プラ等の利用拡大に関する目標として、CO<sub>2</sub> 削減効果 200 万 t-CO<sub>2</sub> 程度を目指すことを発表している（表③-3.18<sup>22)</sup>）。

表③-3.18 鉄鋼業界の低炭素社会実行計画(2030年目標)<sup>22)</sup>

No	実施項目	CO <sub>2</sub> 削減効果
1	次世代コークス製造技術の導入	130 万 t-CO <sub>2</sub> 程度
2	発電設備（共火/自家発）の効率改善	160 万 t-CO <sub>2</sub> 程度
3	省エネの強化	150 万 t-CO <sub>2</sub> 程度
4	廃プラ等の利用拡大	200 万 t-CO <sub>2</sub> 程度
5	革新的技術の開発・導入	260 万 t-CO <sub>2</sub> 程度

現在までの日本鉄鋼業における廃プラ利用実績と CO<sub>2</sub> 削減貢献量は表③-3.19<sup>22)</sup>となっており、廃プラスチックの回収過程で、十分量が集められていない点が課題と指摘されている。今後の対応としては、政府等による集荷システムの確立等を前提に、廃プラスチック等の製鉄所でのケミカルリサイクルとして、100 万 t 活用まで拡大する計画であり、200 万 t-CO<sub>2</sub> 削減を目指しているが、処理量には廃タイヤのリサイクル分を含んでカウントされている<sup>22)</sup>。

表③-3.19 製鉄業における廃プラ処理量及び CO<sub>2</sub> 削減量推移<sup>22)</sup>

	高炉還元材化		コークス炉化学原料化	
	高炉還元材	CO <sub>2</sub> 削減量	コークス（還元材） 炭化水素油 コークス炉ガス	CO <sub>2</sub> 削減量
2015 年度	28,989	128,000	192,146	671,000
2016 年度	27,780	120,000	190,594	679,000
2017 年度	26,599	115,000	194,276	699,000
2018 年度	26,890	119,000	170,620	579,000
2019 年度	26,491	114,000	196,217	702,000

(t/年)

ii-3)海外における廃プラスチックの製鉄分野での利用状況

① EU における廃プラスチックの発生とリサイクル状況

EU 域内では廃プラスチックが約 27 百万 t 発生しており、そのうち 65-70%が回収され、30-40%がリサイクル処理されている<sup>23)</sup>。今後、EU では循環経済の枠組みにおいてプラスチックリサイクル産業が強化される見通しであり、関連産業部門への投資が活発化している。特に、EU 委員会では 2018 年 1 月に「循環型経済における欧州プラスチック戦略」を公表し、2030 年までに全てのプラスチック包装のリサイクルの徹底を目指すことを表明、55%のリサイクル率を目標に掲げている。

EU における廃プラスチックの製鉄分野への適応検討としては、IEA 報告書に基づき、以下の方法が提唱されているが、具体的に実施された例は限定的となっている。

【製鉄分野への廃プラスチックの利用方法】

- ・ 廃プラスチックのガス化により還元ガスとして利用
- ・ 廃プラスチックのコークスブレンド
- ・ 高炉羽口を介したプラスチック廃棄物の直接注入

歴史的には、1994 年にドイツ鉄鋼会社 Stahlwerke Bremen 社により 50t/日の規模で高炉における廃プラスチックの石炭代替（高炉還元材化）が実施されており、1995 年に年間 75 千 t 規模で操業され、1998 年には 162 千 t/年の廃プラスチックが処理され、当時、ドイツで回収された廃プラスチック

の約 1/4 を占めている、と報告されている。適応した処理プロセスとしては、繊維状や金属類の不純物を除去後、プラスチックを粉砕し、粒径 18mm 以下にして高炉に投入しているが、制約条件として、連続操業には廃プラスチックの密度が 0.3t/m<sup>3</sup> 以上が必要であり、廃プラ中の塩ビ製品の混入許容量は最大 3%とされている。高炉還元材化による廃プラスチック処理は他の製鉄所でも実施されている<sup>24)</sup>。

廃棄物枠組み指令改正案では、「廃プラの高炉還元材利用」は、焼却またはエネルギー回収の扱いとなり、リサイクルの範囲から排除されている。オーストリアでは廃プラの高炉利用を焼却と定める法令を 2006 年に発効し、高炉における廃プラ投入分に関して焼却税（トン当たり 7€ [当時]）の徴収が課せられた。

Voestalpine では、高炉における重油消費量を削減するために Linz 製鉄所の高炉（表③-3.20）で 2006 年より廃プラスチックの使用を開始した。当初 30,000t、現在は年間最大 220,000t の廃プラスチックを利用している。銑鉄 1t の生産に対して 370kg のコークスと 90kg の重油を消費していたが、重油を最大 70kg の廃プラスチックで置換することを計画し、年間 150,000t の重油と 220,000t の廃プラスチックの代替を想定した。廃プラスチックはオーストリアとイタリア域内で収集し、廃棄物処理プラントで塩ビ等の腐食性物質を除去している。Linz と Salzgitter への供給を計画しており、Linz では自動車シュレッダーダストも含まれている。

表③-3.20 Voestalpine Linz 高炉構成<sup>24)</sup>

	BF5	BF6	BFA
改修年	2015 年 3 月	2009 年 9 月	2004 年 10 月
炉容積(m <sup>3</sup> )	1,175	1,201	3,125
炉床径(m)	8.0	8.0	12.0
装入装置	Z & J	Z & J	Paul Wurth
羽口数	17	17	32
出銑口数	1	1	3
通常出銑量(t/d)	1,850	1,850	7,850

Voestalpine Linz 製鉄所の BFA 高炉において、還元材として、コークス・重油・タール・天然ガス・微粉炭および廃プラスチックが使用されているが、2010 年以降は廃プラスチックで重油が全て置換できている。Linz 製鉄所では最大 10,000t/日の溶銑が生産されており、廃プラスチック 220,000t/年の使用により、以下の省エネルギー効果が期待されている<sup>25)</sup>。

- ・埋立地 880,000m<sup>3</sup>、トレーラートラック積載量 11,000 台分の減少
- ・1,000 万 GJ のエネルギー削減
- ・年間 40 万 t 以上の CO<sub>2</sub> 削減効果

## ② アジアにおける廃プラスチックの製鉄利用状況

中国・アジアにおける廃プラスチックの製鉄利用状況の調査結果を表③-3.21 に示す。中国各社、インド Tata、韓国 POSCO において、廃プラスチック製鉄利用の取り組みの事例が見受けられるが、工業的規模の事例は限定的と考えられる。

表③-3.21 各国における廃プラスチック製鉄利用計画・実施状況

国	実施企業	適用技術	実施状況・計画
中国	宝鋼集团有限公司（広東省）	高炉還元材化法	BF3 試験（2008 年）
	山東鋼鉄集団（山東省）	高炉還元材化法	将来計画
	唐山鋼鉄集団（河北省）	高炉還元材化法	14 万 t の廃プラ高炉使用の計画
	広西柳州鋼鉄集団（広西壮族自治区）	高炉還元材化法	将来計画
	首鋼貴鋼（貴州省）	高炉還元材法	将来計画
インド	Tata	コークス炉化学原料化法	基礎検討段階
韓国	POSCO	高炉還元材化法	浦項製鉄所（1996 年）

以下、各国における廃プラスチック利用計画予備実施状況を記す。

【広西柳州鋼鉄集団 Liuzhou Steel 他/中国】

廃プラスチックを製鉄プロセスに使用する計画があることを公表<sup>26)</sup>。

【Tata Steel/インド】

Tata Steel では、コークス製造プロセスへの廃プラスチック添加を実験室規模から試験プラント規模で研究している。スタンプチャージ下のコークス炉操業でにおいて、廃プラスチック最大 1%添加までは、コークス強度を低下させることなくコークス製造に使用でき、コークス・タール・油・ガスの回収が可能としている。

【韓国】

韓国の産業分野における地球温暖化対策として、製鉄業における廃プラスチックの利用が必要な技術と位置付けられている<sup>24)</sup>。

iii)製鉄プロセスでのバイオマス利用の評価

製鉄プロセスへのバイオマス利用は、大半が木質バイオマスの炭化処理物の高炉利用である。利用方法は先行する廃プラスチック同様にコークスや微粉炭の代替であるが、その品質による利用制限はより大きいと推察される。

木質バイオマスの生産は陸生植物の再生速度に依存し、工業規模での製鉄利用における最大の課題は、「調達安定性」と考えられる。再生速度に優位性を持つ水生植物については、利用技術の研究開発が始まったところであり、利用可能となるには未だ時間を必要であろう。また、廃棄物系バイオマスの利用も期待されるが、高炉利用においては石炭相当の品質の作り込みが課題となろう。

実炉レベルでの利用実績が認められる「高炉還元材化」での微粉炭代替利用が主流となると考えられるが、製品としてのバイオコール/バイオチャーの品質が重要である。現行の微粉炭設備等を活用する上で粉碎性・搬送性が重要であり、高炉内での還元ガス生成の点からは燃焼性（ガス化性）の制御技術が課題と考えられる。

#### (4)まとめ

製鉄プロセスへのバイオマス利用における最大の課題は「調達安定性」と考えられる。工業規模の需要に合う原料として、水生植物や廃棄物系のバイオマス変換技術の発展が望まれる。陸生植物である木質バイオマス利用という点では、高炉微粉炭代替が主流と考えられるが、現行の微粉炭再生速度に優位性を持つ水生植物については、利用技術の研究開発が始まったところであり、利用可能となるには未だ時間を必要であろう。また、廃棄物系バイオマスの利用も期待されるが、高炉利用においては石炭相当の品質の作り込みが課題となる。

実炉レベルでの利用実績が認められる「高炉還元材化」での微粉炭代替利用が主流となると考えられるが、製品としてのバイオコール/バイオチャーの品質が重要である。現行の微粉炭設備等を活用する点で粉碎性・搬送性が、還元ガス生成の点からは燃焼性が重要であり、それらの制御技術が課題となる。

#### 引用文献

- 1)加藤健次ら；廃棄物循環学会誌,20(2009)5,p.245
- 2)バイオマスハンドブック,化学工学会・日本エネルギー学会共編(オーム社)
- 3)再生可能エネルギーの現状と課題,三井住友銀行,2017-09
- 4)日本木質バイオマス協会 HP <https://jwba.or.jp/>
- 5)国内で注目を集める石炭火力発電でのバイオマス混焼の今後の見通し,三井物産戦略研究所,2017
- 6)日本植物油協会 HP <https://www.oil.or.jp/>
- 7)Country Presentation on Status of Bioenergy Development in Malaysia,IEA,2014
- 8)燃料用バイオマス事情について,住友商事,2017
- 9)日本の2030年木質バイオマス発電導入見込量とその燃料供給可能性評価,日本エネルギー経済研究所,2017-01
- 10)プラスチック資源循環の現状と展望,環境省,2020
- 11)プラスチックリサイクルの基礎知識 2019年,プラスチック循環利用協会
- 12)世界で変換期を迎えたプラスチック資源循環,三井物産,2020
- 13)日本製鉄 HP <https://www.nipponsteel.com/>
- 14)使用済みプラスチックのリサイクル技術の現状,新日本製鉄,2007
- 15)JFE スチール HP <https://www.jfe-steel.co.jp/>
- 16)J&T 環境株式会社 HP <https://www.jt-kankyo.co.jp/>
- 17)新エネルギー・産業技術総合開発機構(NEDO)HP <https://www.nedo.go.jp/>
- 18)廃プラスチックの高度利用による製錬反応研究会,福岡県リサイクル総合研究事業化センター,2019
- 19)プラスチック製容器包装再商品化手法に関する環境負荷等の検討,日本容器包装リサイクル協会,2007
- 20)コークス炉廃プラスチック使用技術の省エネルギー効果の評価,新日本製鉄,2001
- 21)日本容器包装リサイクル協会 HP <https://www.icpra.or.jp/>
- 22)日本鉄鋼連盟 HP <https://www.jisf.or.jp/>
- 23)リサイクルデータブック 2020,資源・リサイクル促進センター(産業環境管理協会)<http://www.cjc.or.jp/>

24) Injection of coal and waste plastics in blast furnaces, IEA, 2010

25) The long way to PCI in Linz – First operation experience, Voestpine, 2016

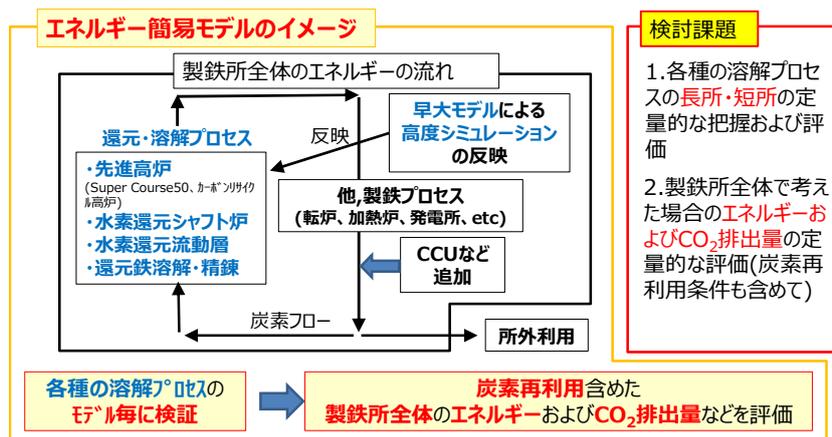
26) Review of successful IS methods and systems for the steel industry, EPOS, 2018

#### ④. 全体評価および全体ロードマップの作成

##### ④-1 エネルギー・物質収支を考慮したエネルギー簡易モデルの作成および全体評価

###### (1) 研究概要

既存プロセスからゼロカーボンスチールに向けた各種新プロセスに移行するに際しての、CO<sub>2</sub>削減量および製鉄所内のエネルギーバランスを評価することを目的に、製鉄所エネルギーモデルに関する概念設計を開始し、プログラムを作成した。図④-1.1 に実施内容および検討内容についての概念図を示す。



図④-1.1 エネルギー・物質収支を考慮した簡易モデルのイメージ

###### (2) 実施内容

現在、一般的に存在する製鉄所の既存プロセスについて、物理定数の候補整理とエネルギー簡易モデルの作成を行った。モデルは、高炉1基を保有する400万/年の粗鋼生産量の製鉄所をイメージしている。モデルは、表計算ソフトで作成し、各既存プロセス（コークス、焼結、高炉、転炉、一次圧延、二次圧延、発電所）について、シート毎に分けて、物理定数を入力し、計算が可能なモデルとした。また、計算はそれぞれの物理定数とリンクさせて計算させた。ゼロカーボンスチールに向けた各種新プロセス（先進高炉、シャフト炉、流動層）も評価対象として加え、CO<sub>2</sub>排出量および製鉄所内のエネルギーバランスの評価を行った。

###### (3) エネルギー簡易モデルによる検討結果

既存製鉄所およびゼロカーボン製鉄所における計算前提を図④-1.2 にまとめた。前提条件としては

原料：豪州鉱

水素：外部調達 100%の水素

電力：不足分は外部より購入

各工程で必要とする不足エネルギーは、水素

としている。また、上述した通り、新規プロセスがほとんどであり、諸元も未定や推定している点が多い。また水素の取り扱いについては、現段階では、CO<sub>2</sub>排出係数については、グリーン水素使用を前提とし、水素は、使用量に応じて、CO<sub>2</sub>排出量は増えない点について留意する必要がある。また、操業の諸元は、まだ机上計算であり、これまでの報告から、表④-1.1 と仮定して計算した。

- 前提条件 1)原料：豪州鉱  
 2)水素：外部調達100%水素  
 3)電力：不足分は外部購入  
 4)各工程（加熱炉など）でガス系エネルギーが必要な場合は水素

(B),(C)は過去報告より推定

(D),(E)は想定

	製鉄所	(A)既存	(B)先進高炉 (Super C50)	(C)先進高炉 (CR高炉)	(D)シャフト炉	(E)流動層
原料	石炭	○	○	○	×	×
	外部水素	×	○	○	○	○
工場	①コークス	○	○	○	×	×
	②ペレット	(○)	(○)	(○)	○	×
	③シャフト炉	×	×	×	○	×
	④流動層	×	×	×	×	○
	⑤焼結	○	○	○	×	×
	⑥電炉	×	×	×	○	○
	⑦圧延	○	○	○	○	○
	(OCU)	×	(○)	(○)	×	×

○：使用、×：未使用

図④-1.2 エネルギー簡易モデル計算におけるプロセスの前提（炭素再利用を含む）

表④-1.1 計算に使用した諸元

			(A) 既存 (通常高炉)	(B) 先進高炉 (Super-C50)	(C) 先進高炉 (CR高炉)	(D) シャフト炉	(E) 流動層
コークス	コークス比	kg/t	335	310	363	-	-
微粉炭	微粉炭比	kg/t	200	-	-	-	-
水素	水素比	Nm <sup>3</sup> /t	-	300	-	2255	3251
	温度	℃	-	1200	-	800	800
合成メタン	メタン比	Nm <sup>3</sup> /t	-	-	210	-	-
送風	送風量	Nm <sup>3</sup> /t	945	620	333	-	-
	温度	℃	1180	1180	25	-	-
	酸素濃度	%	26	26	100	-	-
シャフトガス	吹込み量	Nm <sup>3</sup> /t	-	-	166	-	-
	温度	℃	-	-	900	-	-
出鉄滓	スラグ比	kg/t	330	307	313	-	-
	温度	℃	1500	1500	1500	-	-
ヒートロス	ヒートロス	Mcal/t	100	100	100	114	164

得られた計算結果のまとめを表④-1.2 に示す。

表④-1.2 計算に使用した諸元

CO <sub>2</sub> 排出原単位	合計	内訳(工場・プロセス別) (単位: kg-CO <sub>2</sub> /t-s)												
	(t-CO <sub>2</sub> /t-s)	焼結	コークス	高炉	製鋼	圧延	購入水素 <sup>2)</sup>	購入電力 <sup>2)</sup>	ペレット工場	シャフト炉	流動層	電炉・連鉄	圧延	
(A) 既存(通常高炉)	2.08	94	1426	540	17	0	0	0	-	-	-	-	-	
(B) 先進高炉(Super-C50) <sup>1)</sup>	1.46	94	1346	0	17	0	0	0	-	-	-	-	-	
(C) 先進高炉(CR高炉) <sup>1)</sup>	1.63	94	1515	0	17	0	0	0	-	-	-	-	-	
(D) シャフト炉 <sup>1)</sup>	0.01	-	-	-	-	-	-	-	0	0	-	11.3	0	
(E) 流動層 <sup>1)</sup>	0.01	-	-	-	-	-	-	-	-	-	0	11	0	

エネルギー量 <sup>3)</sup>	合計	内訳(工場・プロセス別) (単位: GJ/t-s)												
	(GJ/t-s)	焼結	コークス	高炉	製鋼	圧延	購入水素 <sup>2)</sup>	購入電力 <sup>2)</sup>	ペレット工場	シャフト炉	流動層	電炉・連鉄	圧延	
(A) 既存(通常高炉)	21.8	0.0	16.4	5.4	0.0	0.0	0.0	0.2	-	-	-	-	-	
(B) 先進高炉(Super-C50) <sup>1)</sup>	20.9 <sup>4)</sup>	0.0	15.5	0.0	0.0	0.0	4.3	1.1	-	-	-	-	-	
(C) 先進高炉(CR高炉) <sup>1)</sup>	27.1	0.0	17.4	0.0	0.0	0.0	7.9	1.8	-	-	-	-	-	
(D) シャフト炉 <sup>1)</sup>	27.5	-	-	-	-	-	-	-	3.7	19.7	-	1.9	2.2	
(E) 流動層 <sup>1)</sup>	28.7	-	-	-	-	-	-	-	-	24.8	1.7	2.2	-	

注1) 既存プロセス以外は、推定した諸元で計算  
注2) CO<sub>2</sub>排出源単位は、将来を想定したため、購入電力と購入水素は、ゼロと仮定  
注3) 今回のまとめ表においては、エネルギー量の算出は、影響の大きい、石炭、電力、水素のみカウント  
注4) (B)の先進高炉Super-C50は、1200℃までの水素を加熱のエネルギー量は、不明のため、今回の検討では、ゼロと仮定

上述もした通り、不明な点が多いため仮定も多く、以下の点について注意する必要がある。

- 1) CO<sub>2</sub> 排出源単位は、将来を想定したため、購入電力と購入水素は、ゼロと仮定する。
- 2) 今回の表④-1.2 のまとめ表においては、エネルギー原単位の算出は、影響の大きい、石炭、電力、水素のみカウントしている（エネルギー簡易モデルにおいてはすべて計算も可能）。
- 3) (B)の先進高炉 Super-C50 は、1200 °Cまで水素を加熱するエネルギー原単位は、不明のため、今回の検討では、ゼロと仮定する。高炉の諸元も過去の報告などから、推定している。

これより、高炉に限定して議論するならば、先進高炉は、既存高炉と比較して、CO<sub>2</sub> 排出原単位は 22～30%と大幅に削減が可能であることがわかる。しかしながら、エネルギー原単位については、5.3 GJ/t-s 増加し、24%の増加となっている。

#### (4)まとめ

エネルギー簡易モデルの設計にあたり、物理定数の整理、プラットフォームの作成を行い、エネルギー簡易モデルを作成し、製鉄所の全体の物質、熱収支を計算し、CO<sub>2</sub> 排出ゼロを目指すゼロカーボン製鉄所の定量的な評価を行った。

- 1) エネルギー簡易モデルの設計に必要な共通の物理定数候補の整理を完了した。
- 2) 製鉄所における各プロセスを統一的に評価するためのプラットフォームの作成し、CO<sub>2</sub> 排出原単位とエネルギー原単位を同時に評価するエネルギー簡易モデルのプログラムを作成した。その結果、ケースAである既存高炉と比較した場合、先進高炉（ケースB，C）において 22～30%の CO<sub>2</sub> 排出原単位の削減の可能性があることがわかった。
- 3) 同時に算出されるエネルギー原単位を計算した結果、CO<sub>2</sub> 排出原単位とは逆にエネルギー原単位は、一般に増加傾向にあることがわかった。特に、炭素の再利用であるケース（C）である先進高炉-CR 高炉を例に挙げると、CO<sub>2</sub> 排出原単位は 22%減少するが、エネルギー原単位は 24%増加する可能性があることがわかった。

なお、繰り返しになるが、今回の検討においては、机上検討段階のプロセスがあることや、操業諸元が公知になっていないケース（ケースD，E）や、水素を 1200℃まで加熱するケース（ケースB）も手法や投入エネルギー量などが未定であることなど、不明な点も現段階では多く、過去文献や知見などから推定しており、今後の技術開発により、詳細の検討を今後継続していく必要がある。

## ④-2. 全体ロードマップの作成

### 1. 目的

本研究では、2050年までにゼロカーボン・スチールを実現するための有望な技術について、①開発課題の特定と要素技術を整理するとともに、②概念設計に必要なシミュレーションモデル等の構築や、③基礎データの収集等の基礎検討を行い、①～③の結果から得られた知見・開発課題を基に、それぞれの技術について、④開発ロードマップを作成した。本章では、これらを俯瞰し、有望な技術を組み合わせた全体ロードマップを作成して、本事業後の研究開発の位置づけ・目的を明らかにすることを目的とする。

### 2. カーボンニュートラル実現に向けた技術経路と本研究の検討範囲

製鉄プロセスのカーボンニュートラル化として提案されている技術経路は図表④-2.1に示す4ルートにほぼ集約される<sup>1-2)</sup>。本研究では、経路①「先進高炉+CCUSルート」、経路②「水素直接還元ルート」について検討した。

#### ①先進高炉+CCUSルート

炭素を還元材として有効活用し、発生するCO<sub>2</sub>をCCUSで循環または固定化  
先進高炉+CCUS

先進高炉：SuperCOURSE50、カーボンリサイクル高炉など

CCUS：CCU（メタノール製造等）、CCS（地層貯留等）

+バイオマス炭の利用拡大

高炉PCI代替、焼結用炭材代替など →化石燃料の更なる追い出し

+スクラップの利用拡大

転炉におけるスクラップ利用拡大 →溶銑比低減、化石燃料追い出し

+製鉄所外でのCO<sub>2</sub>削減によるクレジット獲得

ブルーカーボン、植林 →残るCO<sub>2</sub>排出をオフセット

#### ②水素直接還元ルート

炭素をほぼ使わず、水素で還元する製鉄プロセス

鉄鉱石の水素直接還元+溶解精練

水素直接還元：シャフト炉方式、流動層方式

還元鉄の溶解精練：電気炉単体、予備溶解電気炉（溶銑製造・スラグ分離）+転炉（精練）

+バイオマス炭の利用（加炭）

#### ③鉄鉱石の還元で電気エネルギーを利用する製鉄プロセス

鉄鉱石の高温熔融酸化物電解

（ポストンメタル社等）

鉄鉱石粉末の高温濃厚アルカリ/酸水溶液中からの電析

（欧州SIDERWINプロジェクト等）

水素プラズマアークによる鉄鉱石還元

（オーストリア/SUSTEELプロジェクト等）

#### ④スクラップ+電炉一貫（再エネ電力前提）

図表④-2.1 カーボンニュートラルを実現する鉄鋼製造ルートの類型

### 3. 全体ロードマップ

図表④-2.2 に全体ロードマップを示す。「先進高炉」、「CCUS」、および「水素直接還元・溶解精練」別に整理した。

#### (1) 鉄鉱石還元ルートの必要性

2050 年に向けた世界鉄鋼需給予測に関する検討が日本鉄鋼連盟等から発表されているが、いずれもスクラップの再利用だけでは鉄鋼需要を満たせず、鉄鉱石還元ルートによる鉄鋼製造が必要である。日本鉄鋼連盟によれば、2050 年～2100 年の間、世界で約 10 億 t/年の銑鉄生産が必要と試算されている<sup>2)</sup>。したがって、高炉法や直接還元法などの鉄鉱石還元プロセスが必要である。

#### (2) 先進高炉+CCUS ルート

わが国は、高炉法における CO<sub>2</sub> 排出量削減技術の開発を世界に先駆けて推進してきた。また、地理的な制約から比較的低位な豪州鉱石を大量に使わざるを得ない。これまで高度な精練プロセスを開発、実機化して、低位な原料を使いながらも高級鋼を製造・供給する技術を確認してきた。わが国の鉄鋼業は高級鋼を製造しながら脱炭素を実現する必要がある。そのためには、現行の高炉法で極限までの CO<sub>2</sub> 削減を図り、残る CO<sub>2</sub> を CCUS 技術でオフセットする技術ルートの開発と実機化が重要である。

また、CO<sub>2</sub> 排出量削減にはバイオマス炭利用技術や廃プラスチック利用技術や、高炉への還元鉄(DRI、HBI) 装入技術などの技術実装も想定する。最終的に残る排出 CO<sub>2</sub> は、CCU、CCS により循環利用または固定化を図る。さらには製鉄所外での CO<sub>2</sub> 削減への貢献によるオフセット(例:ブルーカーボンなど)も活用する。

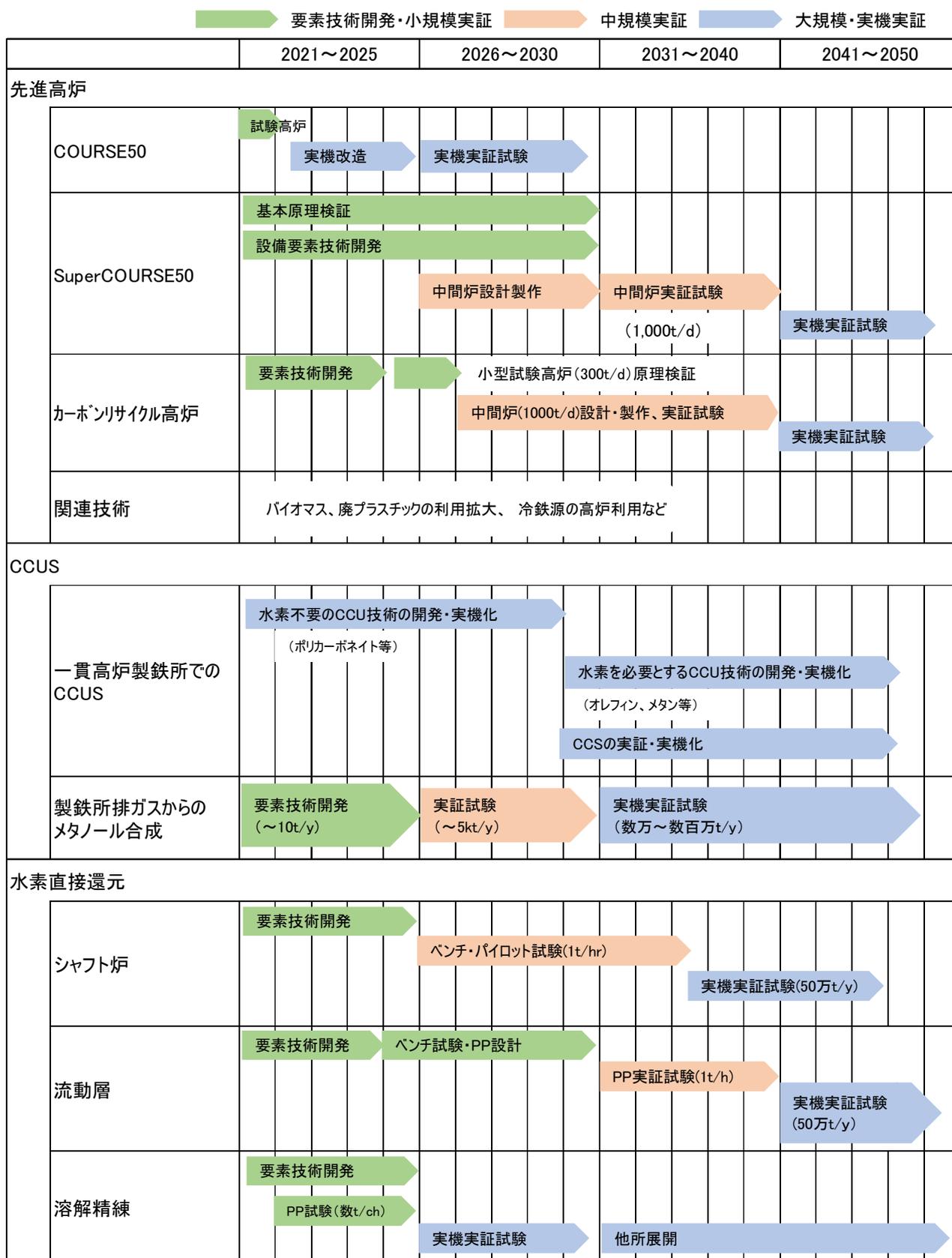
先進高炉では、COURSE50 高炉、SuperCOURSE50 高炉、カーボンリサイクル高炉の開発・実機化を進める。COURSE50 高炉では、試験高炉による技術開発(～2022)、実機改造・設備製作(2022～2025)、実機実証試験(2026～2030)を進め、2030 年の実機化を目指す。SuperCOURSE50 では、基本原理検証および設備要素技術開発を進めつつ(2022～2030)、中間炉の設計・製作を 2020 年代後半に進め、2030 年代に中間炉実証試験、2040 年代前半に実機実証試験・実機化を目指す。カーボンリサイクル高炉では、要素技術開発、小型試験高炉での原理検証を 2020 年代半ば頃までに進め、2020 年代後半から 2030 年代にかけて中間炉設計製作、実証試験を行い、2040 年代に実機実証試験を進める。

CCUS では、2020 年代は水素を必要としない CCUS 技術の開発・実機化を先行して進め、2030 年代に水素を必要とする CCU 技術の開発・実機化を本格的に進め、2030 年代には分離回収した CO<sub>2</sub> の地層貯留の実機化を想定する。水素を必要とする CCU 技術の例として本研究で検討した CO<sub>2</sub> と水素によるメタノール製造では、要素技術開発(2020 年代半ばまで)、実証試験(2020 年代後半)、実機実証試験(2030 年代)のスケールアップ・実機化を想定している。

#### (3) 水素直接還元・電炉ルート

シャフト炉方式では、天然ガス還元シャフト炉をベースとして開発に着手し、2020 年代前半に要素技術開発、同後半にベンチ・パイロット試験、2030 年代に実機実証試験を想定している。流動層方式では、2020 年代前半に要素技術開発、後半にベンチ試験およびパイロットプラント設計を進め、2030 年にパイロット実証試験、2040 年代前半に実機実証試験を想定している。水素で製造された還元鉄を溶解精練するプロセスの開発では、2020 年代前半に要素技術開発とパイロットプラント試験を進め、2020 年代後半に実機実証、2030 年代に実機化を想定している。

図表④-2.2 本研究で整理した全体ロードマップ



#### 4. まとめ

本研究で得た技術知見を総合し、ゼロカーボン・スチール実現に向けた全体ロードマップ（案）を作成・提示した。

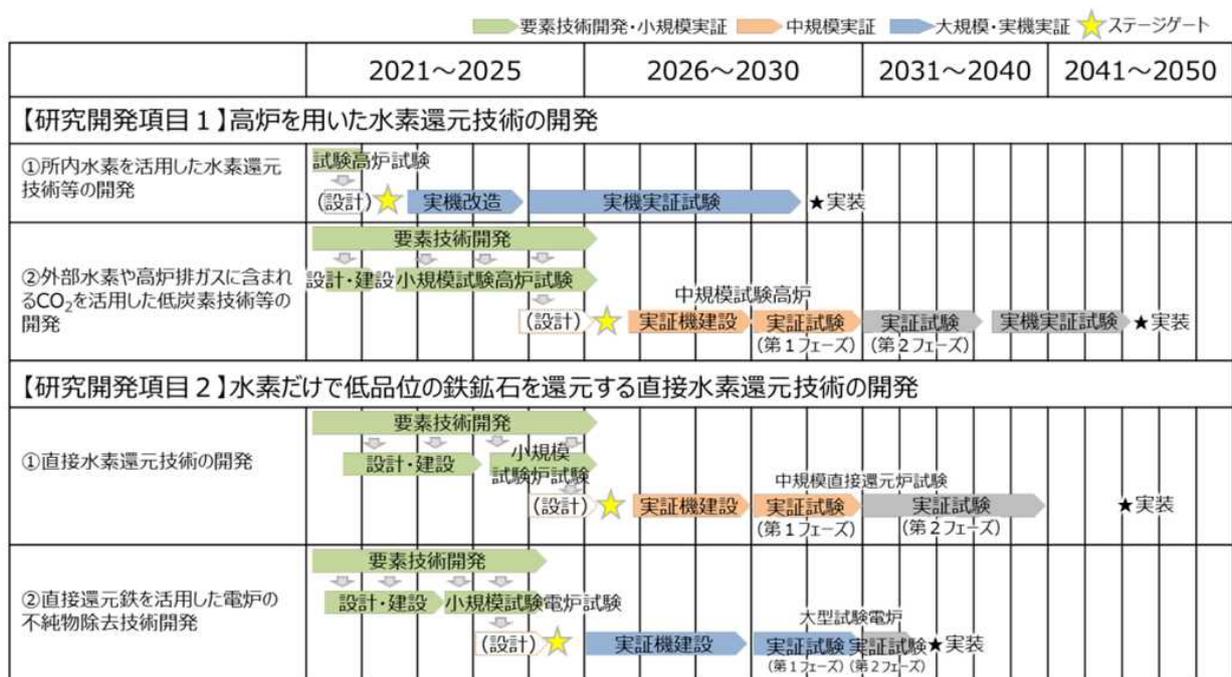
#### 参考文献

- 1) 有山達郎, 鉄と鋼 105(6), 567-586, 2019
- 2) 日鉄総研株式会社、調査報告「技術ロードマップの情報収集・整理・分析」 2022年2月
- 3) 日本鉄鋼連盟、長期温暖化対策ビジョン「ゼロカーボン・スチールへの挑戦」 2018年10月

#### IV. 成果の実用化に向けた取組及び見通しについて

本事業における実用化とは、ゼロカーボン・スチールの実現に向けて抽出した有望な技術や作成した各技術の開発ロードマップにより、取り組むべき技術開発の位置づけ・目的が明確化されるとともに、その成果が本格的な研究開発事業につながることである。

Ⅲ章で提示したようにカーボンニュートラル製鉄の実現に向けて実装、実用化が必要な超革新的技術および過渡的技術として有望技術を抽出し、ボトルネックとなる課題や重要要素技術を整理するとともに、ベンチ規模／パイロット規模／実証開発を明示して2050年までの開発ロードマップを作成した。これらの技術が、2021～2030年の研究開発事業である、グリーンイノベーション基金事業「製鉄プロセスにおける水素活用」プロジェクトに既に活用され、下記スケジュールにて研究開発事業が推進中である。



※想定されるスケジュールの一例を記載

(出典)METI「製鉄プロセスにおける水素活用」プロジェクトに関する研究開発・社会実装計画より

一方で「製鉄プロセスにおける水素活用」プロジェクトで開発する技術の実用化に関しては技術開発の他にも以下の課題がある。

- (1) カーボンニュートラル製鉄法を実現するには革新的な技術開発が必須であるが、あわせて大量の水素やカーボンフリー電力の供給とCCUS技術の適用に関して、規模やコストの面で製鉄プロセスの規模に見合う供給基盤を確立する必要がある。
- (2) グリーンスチールの環境価値が国内外を問わず適切に評価され、需要家も含めたサプライチェーン全体でコスト負担する社会的な理解と仕組みを構築する必要がある。
- (3) 長期にわたる研究開発投資に加え、その技術を実装する際の新たな設備投資、既存設備の転換に必要な巨額の資金を手当とする。

## V. 成果一覧

### (1) 研究発表・講演

発表者	所属	タイトル	雑誌名・学会名・イベント名等	発表年月
豊島菜々子 丸岡大佑 村上太一 葛西栄輝	東北大学	酸化鉄の水素還元により生成する微細繊維状金属鉄組織の形成機構	日本鉄鋼協会第182回秋季講演大会	2021年 9月
Hiroshi Nogami1 Jeong-In Kim2 Shusei Kubota3 Andrey Stephan Siahaan4 Shungo Natsui	東北大学	INTRA-PARTICLE ANALYSIS ON HYDROGEN REDUCTION BEHAVIOR OF IRON ORE	4th EMECR - International Conference on Energy and Material Efficiency and CO <sub>2</sub> Reduction in the Steel Industry	2022年6 月
大野光一郎 前田敬之 丸田凌平	九州大学	鉍石の被還元性が鉄ウィスカー生成挙動に及ぼす影響	日本鉄鋼協会第184回22年秋季講演大会	2022年 9月
水谷守利 西村恒久 樋口謙一	日本製鉄	酸化鉄塊成鉍のクラスタリング挙動に及ぼす還元ガス組成の影響	日本鉄鋼協会第184回22年秋季講演大会	2022年 9月
西川祐太 紫垣伸行 茂木康弘 木島秀夫 佐々和明 瀬下雅博 喜多英敏 中尾真一	JFE スチール	膜反応器を用いたメタノール合成における運転条件の検討	化学工学会第53回秋季大会(Web講演発表資料)	2022年 9月
紫垣伸行	JFE スチール	製鉄所排出CO <sub>2</sub> を用いたCCUメタノール合成技術開発	未来を拓く無機膜環境・エネルギー技術シンポジウム	2022年 11月
村上太一 豊島菜々子 丸岡大佑 葛西栄輝	東北大学	酸化鉄の水素還元により生成する金属鉄組織の形態制御	日本学術振興会製鉄第54委員会 令和4年12月期本委員会	2022年 12月

### (2) 論文

なし

### (3) 特許等 (知財)

出願済：1件

**1. 件名：「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた技術開発**

**2. 根拠法**

国立研究開発法人新エネルギー・産業技術総合開発機構法第十五条第一号八、第六号イ

**3. 背景及び目的・目標**

地球規模の課題である気候変動問題を解決するためには、クリーンエネルギー技術の開発と実用化に向けた抜本的なコストダウンが必要である。日本としても、世界の脱炭素化を牽引すべく、「パリ協定に基づく成長戦略としての長期戦略」（2019 年 6 月閣議決定）において、2050 年までに 80%の温室効果ガス削減目標を掲げるとともに、非連続なイノベーションの推進を表明した。また、2019 年 10 月の「グリーンイノベーション・サミット」での議論を踏まえ、2020 年 1 月に「革新的環境イノベーション戦略」が策定された。同戦略において、温室効果ガス削減量が大きく、日本の技術力による大きな貢献が可能な 39 テーマのひとつとして、『水素還元製鉄技術等による「ゼロカーボン・スチール」の実現』が設定された。

国内の CO<sub>2</sub> 排出量の現状として、産業分野は排出量の約 3 分の 1 を占めており、その内の約 40%を占める鉄鋼業は国内 CO<sub>2</sub> 排出の全体量で見ると約 13%という大きな割合を占めている。

現在 NEDO では高炉法におけるコークスの一部を製鉄所内で発生する水素で代替すること及び高炉から発生する CO<sub>2</sub> を分離・回収することで CO<sub>2</sub> 排出量の削減を目指す技術（COURSE50）の研究開発をおこなっており、2030 年頃の実用化を目指している。しかし、CO<sub>2</sub> 排出量の大幅な削減には、従来取り組みの延長では実現することが困難なので、究極的には高炉を用いずに水素のみで鉄鉱石を還元する水素還元製鉄技術などの超革新新技術による「ゼロカーボン・スチール」の実現に挑戦することとしている。

本事業では、「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた研究開発に取り組むため、現段階で諸課題を克服し、研究開発を加速させるための先導研究を行う。

[委託事業]

**最終目標（2021 年度）**

- ・ 水素還元製鉄の技術開発や実用化における諸課題の抽出等
- ・ 「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた研究開発ロードマップの作成

**アウトカム目標（2050 年以降のできるだけ早い時期）**

- ・ 水素還元製鉄等による「ゼロカーボン・スチール」の実現

#### 4. 実施内容及び進捗状況

##### 4.1 2020年度（委託）実施内容

###### 研究開発項目①「水素還元製鉄プロセスの概念設計」

還元プロセスにおけるCO<sub>2</sub>削減技術に関する技術調査および課題抽出・要素技術の洗い出し、ボトルネック課題にかかわる技術調査、水素還元プロセスの概念設計のための基礎検討を行い、開発ロードマップの作成に着手した。

###### 研究開発項目②「概念設計に必要な水素反応等に関する基礎データの収集」

水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査および課題抽出・要素技術洗い出し、水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関する開発ロードマップの作成に着手した。

###### 研究開発項目③「その他「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた諸課題の抽出」

高炉一貫製鉄所におけるCCU技術のポテンシャル調査、主要要素技術に関わる技術調査：排ガスからのメタノール生成に関する調査および基礎検討、バイオマス利用技術動向調査とポテンシャル評価を行い、開発ロードマップの作成に着手した。

###### 研究開発項目④「「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた研究開発ロードマップの作成」

エネルギー・物質収支を考慮したエネルギー簡易モデルの作成および全体評価、全体ロードマップの作成に着手した。

##### 4.2 実績推移

	2020年度	2021年度
実績額 (百万円)		
需給勘定	89	

#### 5. 事業内容

##### 5.1 2021年度（委託）事業内容

###### 研究開発項目①「水素還元製鉄プロセスの概念設計」

引き続き還元プロセスにおけるCO<sub>2</sub>削減技術に関する技術調査および課題抽出・要素技術の洗い出し、ボトルネック課題にかかわる技術調査、水素還元プロセスの概念設計のための基礎検討と開発ロードマップの作成を行う。

#### 研究開発項目②「概念設計に必要となる水素反応等に関する基礎データの収集」

引き続き水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関わる技術調査および課題抽出・要素技術洗い出し、水素還元を前提とした還元鉄溶解・精錬に関する開発ロードマップの作成を行う。

#### 研究開発項目③「その他「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた諸課題の抽出」

引き続き高炉一貫製鉄所における CCU 技術のポテンシャル調査およびロードマップ作成、主要要素技術に関わる技術調査：排ガスからのメタノール生成に関する調査および基礎検討、バイオマス利用技術動向調査とポテンシャル評価を行う。

#### 研究開発項目④「「ゼロカーボン・スチール」の実現に向けた研究開発ロードマップの作成」

引き続きエネルギー・物質収支を考慮したエネルギー簡易モデルの作成および全体評価、全体ロードマップの作成を行う。

## 5.2 事業規模

需給勘定 191百万円（委託額）

事業規模については、変動があり得る。

## 6. 研究開発体制



## 7. その他重要事項

### (1) 評価の方法

NEDO は、技術的及び政策的観点から、研究開発の意義、目標達成度、成果の技術的意義並びに将来の産業への波及効果等について、技術評価実施規程に基づき、プロジェクト評価を実施する。事後評価を 2022 年度に実施する。

### (2) 運営・管理

必要に応じて技術検討委員会を実施し、外部有識者の意見を適切に反映し、着実な運営を図る。

### (3) 知財マネジメントに係る運用

「NEDO プロジェクトにおける知財マネジメント基本方針」に従ってプロジェクトを実施する。

### (4) データマネジメントに係る運用

「NEDO プロジェクトにおけるデータマネジメントに係る基本方針」に従ってプロジェクトを実施する。

### (5) 標準化施策等との連携

得られた研究開発成果については、知的基盤整備事業との連携を図ることとし、データベースへのデータの提供を必要に応じて行う。

## 8. 改訂履歴

(1) 2021 年 2 月 制定

(2) 2021 年 5 月 6. 研究体制の PM の変更。

以 上