湿式法による高炉ダストからの亜鉛分離技術の開発

篠田 万里子^{1)*}・山口 東洋司¹⁾・村井 亮太¹⁾・鷺見 郁宏¹⁾

Development of Zinc-separating Process of Blast Furnace Dust using Hydrometallurgical System

Mariko SHINODA, Toyoshi YAMAGUCHI, Ryota MURAI and Ikuhiro SUMI

Synopsis : Blast furnace (BF) dust is recycled as iron source in sintering process. However, dust-recycling rate is limited due to the zinc in dust. Thus, it is necessary to remove zinc from dust in order to improve dust-recycling rate. In this study, zinc-separating process of BF dust using hydrometallurgical (wet-type) system is proposed with a zinc purification process. Laboratory-scale experiments using BF dust were conducted to investigate zinc and iron behavior. This process is composed of (1) acid leaching treatment, (2) leachate-purification process and (3) zinc-recovery process as alkali precipitation. By acid leaching treatment, 68 wt% of zinc was selectively leached into the solution under the pH value of 2.0 with sulfuric acid, while only 6.4 wt% of iron was leached. Leachate-purification process is the key process. The iron leached by acid leaching treatment was completely separated from leachate as iron hydroxide under the pH value of 5.0, added with hydrogen peroxide as oxidizing agent. On the other hand, zinc in leachate was maintained at the same level and well-purified successfully. Zinc was finally recovered as sludge of zinc hydroxide precipitation at alkali condition such as the pH value of 9.0. Zinc concentration in the sludge was concentrated to 42.6 wt%. With this new process, zinc in dust was successfully separated and the sludge containing high concentrations of zinc was obtained. Thus, dust can be potentially used as zinc source as well as iron source.

Key words : blast furnace dust; zinc-separating process; hydrometallurgy; acid leaching; pH; oxidation-reduction potential.

1. 緒言

1970年代の2度にわたる石油危機以降、我が国の産業界は省資源化・省エネルギー化技術を積極的に開発・導入してきた。鉄鋼業においても、1990年までに約3兆円もの投資を行い、10%以上の粗鋼歩留り向上（省資源化）と20%以上の省エネルギー化を実現した¹⁾。また1990年代以降顕在化した地球環境問題により、企業の社会的責任の観点からも、さらなる省資源化・省エネルギー化技術の開発が求められている。

製鉄プロセスで発生するダストやスラグといった副産物の活用も、省資源化技術の1つである。特に高炉および転炉ダストの発生量は日本国内で年間約580万トン²⁾にもなり、その主成分は鉄および炭素である。製鉄所ではこれらダストの再資源化を推進しており、鉄源として高炉や転炉に装入している。しかし、高炉および転炉ダストには鉄・炭素以外に亜鉛をはじめとする操業に悪影響を及ぼす元素も含まれており、これらは鉄鉱石や鉄スクラップ中に混在したものが蒸発し、ダスト中に濃縮したものである。特に亜鉛は高炉内で揮発し側壁付着物となり、装入物荷下がり悪化、通気・通液悪化の要因となるため³⁾、高炉および転炉ダストの再資源化量には亜鉛による制約がある。高炉および転炉ダストの再資源化をさらに推進するためには、こ

れらダストから亜鉛を分離する必要がある。

現在実用化されている亜鉛分離プロセスは、乾式法と湿式法に大別される。実用化されている主な乾式法は、ロータリーキルン法⁴⁻⁶⁾・回転炉床炉 (RHF) 法⁷⁾・シャフト炉法⁸⁾の3種であり、亜鉛分離と還元鉄製造を目的とする。細かな差異はあるものの、いずれの手法も高い亜鉛分離率を達成するために1000℃以上で亜鉛を揮発・分離することを特徴としている。しかし乾式亜鉛分離プロセスは前処理として、ダストを造粒する必要がある、特にRHF法・シャフト炉法では高度な造粒技術が求められる。また、ダストの性状（炭素濃度等）によっては造粒が難しく、処理困難なものもある。加えて、これらの手法は処理設備が大規模で建設費が高額になる傾向があり、大型化してスケールメリットを享受しないと経済的に成立しない場合が多い。実際、現在日本国内で実用化している乾式亜鉛分離設備の大半は、年間処理能力が数十万トンクラスの大型設備である。

一方、湿式法については国内での実用例はない。国外では、イタリアでEZINEX法⁹⁾と呼ばれる湿式亜鉛分離プロセスが実用化されており、乾式プロセスにより電炉ダストから酸化亜鉛を分離した後、湿式処理で浸出、電解により高純度金属亜鉛を得る手法である。電解に伴う電力原単位は高く（ダスト1トンあたり約900 kWh）、電炉ダストに比

2019年2月13日受付 2019年3月27日受理 (Received on Feb. 13, 2019; Accepted on Mar. 27, 2019)

1) JFEスチール(株)スチール研究所 (Steel Research Laboratory, JFE Steel Corporation, 1-1 Minamiatarida-cho Kawasaki-ku Kawasaki Kanagawa 210-0855)

* Corresponding author : E-mail : m-shinoda@jfe-steel.co.jp

DOI : <https://doi.org/10.2355/tetsutohagane.TETSU-2019-011>

べ亜鉛含有量の少ない高炉および転炉ダストにEZINEX法を適用することは、経済的ではない。

過去には、電炉ダストや転炉ダスト中の亜鉛を酸で浸出することにより除去を試みた報告例¹⁰⁻³¹⁾があるが、ダストの性状によっては十分な亜鉛浸出率が得られない、多量の酸薬剤を消費するなどの課題がある。他方、高炉ダスト中の亜鉛を酸で浸出した報告例^{32,33)}は非常に少ない上に、高価な有機酸（ジカルボン酸アミン・カルボン酸）を使用している。これらの報告は有機酸のアニオンが特定のpHで亜鉛のみと配位化合物を形成し液中に溶解することを利用している。これにより鉄の浸出を抑制しつつ亜鉛の選択的な浸出を行っている。しかし、有機酸は無機酸（硫酸・塩酸等）に比べると高価であるため、経済的なプロセスとはいえない。

そこで本研究では高炉ダストの再資源化率向上を目的に、湿式処理における硫酸による亜鉛浸出・分離条件の検討および浸出亜鉛の高純度回収技術の検討を行い、新たな湿式亜鉛分離プロセスを提案したので報告する。

2. 実験方法

2・1 供試ダスト

本研究では、JFEスチール（株）東日本製鉄所千葉地区にて回収されたスラリー状の高炉ダストを、105℃で12時間乾燥し実験に供した。ダストはICP発光分光分析法による成分分析を行った。

2・2 硫酸によるダスト中亜鉛の浸出

鉄としてのダスト再資源化率を向上するために、鉄の浸出を抑制し、再資源化に支障がない水準まで亜鉛を浸出・除去することが可能な処理条件を検討した。

硫酸による浸出試験をFig.1に示す装置で行った。高炉ダスト50 gに、蒸留水を500 mL（固液比1：10）になるように混合し懸濁液とした。懸濁液を500 rpmで攪拌しつつ硫酸を添加してpHを2.0から5.0に制御し、25℃で1時間の浸出試験を行った。pH2.0以下では鉄の浸出量が増加したため、本系から外した。また、浸出液中の亜鉛濃度は、処理

開始後約1時間で飽和したため、以降の検討では処理時間を全て1時間とした。浸出試験後の懸濁液をろ過により浸出液および残渣に分離し、浸出液および残渣中の亜鉛および鉄をICP発光分光分析法により定量した。

また、亜鉛の浸出率に及ぼす亜鉛化合物形態の影響を調べるため、供試ダストおよび硫酸浸出処理後の残渣に含まれるZnO、ZnS、ZnFe₂O₄を、Fujimotoらの手法³⁴⁾に則り定量した。

2・3 硫酸浸出液の精製（亜鉛の純化）

硫酸浸出液に亜鉛以外の金属類（本研究では主として鉄）が浸出した場合、浸出液のアルカリ処理により亜鉛以外の金属も同時に沈殿し、沈殿物中の亜鉛含有率が低下することが予想された。すなわち、分離された沈殿物の亜鉛源としての価値が低下する。そこで金属種ごとに水酸化物沈殿形成pHが異なることを利用し、亜鉛以外の金属類（主として鉄）を硫酸浸出液から沈殿・回収することによる浸出液の精製、すなわち亜鉛の純化について検討した。処理フローをFig.2 (a) に示す。硫酸浸出液に酸化剤（過酸化水素水）および水酸化ナトリウム水溶液を添加し、鉄を水酸化物として沈殿・分離した。

Fig. 1. Experimental apparatus for leaching treatment using sulfuric acid.

Fig. 2. Simplified process flowsheet. (a) leachate-purification process, (b) Zn-recovery process as alkali precipitation.

2・3・1 pHの影響調査

主たる沈殿・回収対象元素である鉄は、アルカリ性領域のみならず弱酸性領域においても、条件により水酸化物として沈殿することが知られている。

そこで沈殿挙動に及ぼすpHの影響を調査した。Fig.1に示す実験装置を用い、2・2の検討において、最も良好な亜鉛浸出率を示したpH2.0の硫酸浸出試験で得た浸出液に、水酸化ナトリウム水溶液を添加し、pHを4.0から6.0に制御した。処理温度は25℃、攪拌強度は500 rpm、処理時間は2・2に準じて1時間とした。

2・3・2 過酸化水素水の添加効果検討

硫酸により浸出した鉄は、溶液中で2価の陽イオン Fe^{2+} で存在することが知られており³⁵⁾、また、水酸化鉄は鉄が3価の陽イオンである $\text{Fe}(\text{OH})_3$ が一般的な化合物形態である。そのため、鉄を浸出液から効率よく沈殿・回収するためには、浸出液中の Fe^{2+} を Fe^{3+} に酸化することが有効であると考えた。

そこで、硫酸処理で得られた浸出液のpHを制御しつつ、酸化剤である過酸化水素水を添加した (Fig.2 (a))。pHは前節の検討において、亜鉛をほとんど沈殿させることなく鉄をより沈殿させることができたpH5.0とした。なお、過酸化水素水は、ICP 発光分光分析法により定量された浸出液中の鉄に対して1当量添加した。

いずれの実験も処理後の溶液を孔径1 μm のろ紙でろ過し、ろ液および残渣中の亜鉛・鉄をICP 発光分光分析法により定量した。

2・4 アルカリ沈殿法による亜鉛回収

一般的なアルカリ沈殿法により、2・3・2で得た精製浸出液中の亜鉛を固形物として回収した。処理フローをFig.2 (b) に示す。精製浸出液に水酸化ナトリウム水溶液を添加し、Fig.1に示す装置を用いてpHを9.0に制御した。処理温度は25℃、攪拌強度は500 rpm、処理時間は前節までと同様に1時間とした。処理後の溶液を孔径1 μm のろ紙でろ過し、ろ液および残渣中の亜鉛・鉄をICP 発光分光分析法により定量した。

2・5 物質収支

(1) 硫酸によるダスト中亜鉛の浸出、(2) 硫酸浸出液の精製 (亜鉛の純化)、(3) アルカリ沈殿法による亜鉛回収の実験結果から、供試ダスト1000 kgあたりの亜鉛および鉄の物質収支を解析した。比較として、従来型プロセス (2) の硫酸浸出液の精製を行わない) についても同様に物質収支を解析した。

3. 実験結果

3・1 供試ダストの性状分析

供試ダストの成分分析結果をTable 1に示す。本研究で用いた高炉ダストには亜鉛が1.04 wt%、鉄が35.7 wt%含まれ

ていた。

3・2 硫酸によるダスト中亜鉛の浸出

硫酸浸出試験時の、pHに対する亜鉛および鉄の浸出率をFig.3に示す。亜鉛および鉄の浸出率は供試ダストおよび浸出液中の亜鉛・鉄量を用いて式 (1) より求めた。

$$y = \frac{x_{\text{sol}}}{x_{\text{ini}}} \times 100 \quad (1)$$

x_{ini} : 高炉ダスト中亜鉛もしくは鉄 (g)

x_{sol} : 浸出液中亜鉛もしくは鉄 (g)

y : 浸出率 (wt%)

亜鉛の浸出率はpHを下げるとともに上昇し、pH2.0で68 wt%の亜鉛をダストから溶液中に浸出させることができた。それに対し、鉄浸出率はpH2.0で6.4 wt%であり、高炉ダストから亜鉛のみを選択的に浸出可能であることが分かった。

また、供試ダスト中の亜鉛化合物の割合を、硫酸処理 (pH2.0での浸出処理) 前後で比較した結果をTable 2に示す。硫酸処理前の亜鉛化合物の割合はZnOが67 wt%、ZnSが33 wt%であり、その他 ZnFe_2O_4 がごく微量 (0.3 wt%) 含

Table 1. Chemical composition of BF dust used.

	Chemical composition (wt%)	
	Zn	Fe
BF dust	1.04	35.7

Table 2. Quantitative analysis of Zn-compounds in BF dust before and after leaching treatment.

	Zn compounds (wt%)		
	ZnO	ZnS	ZnFe_2O_4
BF dust (before treatment)	67	33	0.3
Residue at leaching treatment	6.6	31	0.3
	Leaching rate (wt%)		
	ZnO	ZnS	ZnFe_2O_4
Leaching treatment	90	6.1	0

Fig. 3. Effect of pH on percentage of metal-leached in leaching treatment using sulfuric acid.

まれていた。硫酸処理により、ダスト中の ZnS 、 ZnFe_2O_4 の含有率はほとんど変化が見られず、 ZnO のみが浸出することが分かった。 ZnO 、 ZnS 、 ZnFe_2O_4 の浸出率はそれぞれ 90、6.1、0 wt% であった。

3・3 硫酸浸出液の精製（亜鉛の純化）

3・3・1 pHの影響調査

浸出液精製工程の pH に対する浸出液中の亜鉛および鉄の残存率を Fig.4 に示す。浸出液精製工程では、亜鉛を極力沈殿させることなく鉄を選択的に沈殿・回収することが必要である。過酸化水素水を添加しない場合は、pH4.0 および 5.0 では亜鉛はほぼ浸出液中に残存し沈殿しなかったのに対し、pH6.0 では亜鉛残存率は 83 wt% と一部の亜鉛が沈殿することが分かった。したがって、亜鉛を沈殿させない条件は pH4.0 ないしは 5.0 と分かった。また、鉄については pH の上昇とともに残存率が低下する傾向が見られ、鉄を沈殿させるためには pH を高く必要があると分かった。したがって、亜鉛を極力沈殿させることなく鉄を選択的に沈殿・回収するのに好適な pH は pH5.0 と分かった。

しかし、pH5.0 においても 46 wt% が浸出液中に留まり回収できなかったことから、さらなる鉄の沈殿・回収の効率化が必要であると考えられた。

3・3・2 過酸化水素水の添加効果

2・3・2 で述べたように、浸出液中の鉄は Fe^{2+} 、水酸化鉄中の鉄は Fe^{3+} と予想された。そこで、酸化剤である過酸化水素水で浸出液中の Fe^{2+} を酸化、 Fe^{3+} として沈殿させるこ

Fig. 4. Effect of pH on percentage of Zn and Fe-remained in leachate.

とにより、鉄の沈殿・回収効率向上を試みた。

鉄の選択的な沈殿に好適である pH5.0 において、過酸化水素水を添加した際の浸出液中の亜鉛および鉄残存率を Fig.4 に同時に示すが、過酸化水素水を添加することにより、鉄の残存率は 0 となり、鉄のみを完全に沈殿・回収できることが分かった。

3・4 アルカリ沈殿法による亜鉛回収

3・3・2 で得られた浸出液から、アルカリ沈殿法により亜鉛を回収した。得られた沈殿物ならびに供試ダストの亜鉛・鉄濃度を比較した結果を Table 3 に示す。沈殿物中の亜鉛および鉄濃度は、それぞれ 42.6 wt%、0.03 wt% であり、供試ダスト中に 1.04 wt% 含有していた亜鉛を、42.6 wt% まで濃縮できることが分かった。

3・5 物質収支

供試ダスト (1000 kg 換算) に、(1) 硫酸によるダスト中亜鉛の浸出、(2) 硫酸浸出液の精製（亜鉛の純化）、(3) アルカリ沈殿法による亜鉛回収からなる、新規亜鉛分離プロセスを適用した際の物質収支を、Table 4 に示す。処理前の亜鉛・鉄量に比べ、処理後の亜鉛・鉄量は 15 wt% ないしは 10 wt% 少ないが、これはビーカーやろ紙に付着した固形分の回収ロスに起因すると考えられた。

亜鉛低減ダストおよび鉄濃縮スラッジ中の亜鉛濃度はそれぞれ 0.36 wt%、0.08 wt% まで低減した。この値は、高炉原料として再資源化可能とされる $\text{Zn} \leq 0.4 \text{ wt}\%$ ³⁰⁾ を満たしており、再資源化が可能と考えられた。

亜鉛低減ダストならびに鉄濃縮スラッジには鉄が合計で 322 kg/t-dust 含まれており、これは処理前のダストに含まれる鉄量 (357 kg/t-dust) の 90 wt% に相当する量であった。亜鉛濃縮スラッジ中には鉄が 0.004 kg/t-dust しか含まれないことから、10 wt% の鉄ロスは亜鉛低減ダストならびに鉄濃縮スラッジ回収時の回収ロスに起因すると考えられ、鉄は全量リサイクル可能と考えられた。

比較として、中段の浸出液精製工程を含まない従来型の

Table 3. Chemical composition of Zn-concentrated sludge and BF dust.

	Chemical composition (wt%)	
	Zn	Fe
Zn-concentrated sludge	42.6	0.03
BF dust (before treatment)	1.04	35.7

Table 4. Material balances focused on Zn and Fe in proposed zinc-separating process.

	Yield (kg/t-dust)	Zn (wt%)	Zn (kg/t-dust)	Fe (wt%)	Fe (kg/t-dust)
BF dust (before treatment)	1000	1.04	10.4	35.7	357
Zn-reduced dust (after acid leaching)	906	0.36	3.3	34.6	313
Fe-concentrated sludge (after leachate purification)	31.2	0.08	0.02	29.0	9.0
Zn-concentrated sludge (after Zn-recovery)	12.8	42.6	5.5	0.03	0.004
	Yield (m ³ /t-dust)	Zn (mg/L)	Zn (kg/t-dust)	Fe (mg/L)	Fe (kg/t-dust)
Waste water (after Zn recovery)	10	11.7	0.1	< 0.1	< 0.001

プロセスである硫酸浸出-アルカリ沈殿法による物質収支を Table 5 に示す。一連の処理を経て得られる亜鉛濃縮スラッジ中の亜鉛は、8.1 wt%、鉄は 27.3 wt% となった。それに対して、Table 4 に示すように、新規亜鉛分離プロセスを適用した場合の亜鉛濃縮スラッジ中の亜鉛および鉄はそれぞれ 42.6 wt%、0.03 wt% であった。すなわち、浸出液精製工程を追加することで、発生残渣の亜鉛濃縮が可能となり、亜鉛源としての価値が向上したことが示唆された。

4. 考察

4・1 硫酸浸出処理における亜鉛・鉄の元素挙動

Fig.5 に亜鉛および鉄の電位-pH 図^{36,37)}を示す。pH2.0 において鉄は溶液の酸化還元電位により支配的な形態が異なる。pH2.0 の硫酸浸出試験時の酸化還元電位を ORP 計により測定したところ、0.65 V であった。Fig.5 (b) より、この電位では酸化物態 (Hematite) が最も支配的であることから、鉄の硫酸による浸出は進まず、鉄源として回収できたと考えられる。

一方、亜鉛は Zn^{2+} として浸出するのが支配的であるが、pH2.0 における亜鉛浸出率は 68 wt% と完全な浸出には至っていない。ダスト中亜鉛化合物の形態による浸出挙動を調査した結果、ZnO は 90 wt% が浸出したが、ZnS および ZnFe_2O_4 はほとんど浸出しなかった。過去の報告においても、ダスト中の ZnS や ZnFe_2O_4 は高温・高圧下で浸出した報告例はあるが²²⁾、本研究のような処理条件で浸出した報告は見られない。この事実は ZnS および ZnFe_2O_4 が、ZnO に比べ硫酸に浸出しづらいことを示唆している。pH2.0 において、ダスト中の ZnO が選択的に浸出したことから、本研究における亜鉛浸出率はダスト中の ZnO の含有率により決定されることが考えられる。

4・2 硫酸浸出液の精製工程における鉄の挙動

Fig.6 に Zn-Fe-O-H 系の電位-pH 図^{36,38)}を示す。pH5.0 で亜鉛は Zn^{2+} として溶液中に存在するのが支配的である一方、鉄は溶液の酸化還元電位により支配的な形態が異なる。pH5.0 における酸化還元電位を ORP 計により測定したところ、過酸化水素水を添加しない系で 0.39 V、過酸化水素水を添加した系で 0.60 V であった。Fig.6 に示すように、過酸化水素水を添加しない系の酸化還元電位は、鉄が Fe^{2+} として溶存する領域と水酸化物として沈殿する領域の境界付近の

値を示すため、鉄の形態は不安定であり、その結果 54 wt% しか沈殿・回収できなかったと考えられる。それに対し、過酸化水素を添加した系では、溶液の酸化還元電位を鉄が水酸化物として沈殿する領域の電位まで上昇させることができた結果、pH5.0 で鉄を完全に沈殿・回収できたと考えられる。

4・3 アルカリ沈殿法による亜鉛回収

Fig.6 より、pH9.0 の領域は亜鉛・鉄ともに水酸化物として沈殿する領域である。したがって、従来法のように酸浸出液にそのままアルカリ沈殿法を適用すると、浸出液中の残存鉄が水酸化鉄として沈殿し、同時に沈殿した水酸化亜

Fig. 5. Potential-pH diagrams. (a) Zn-water system at 25°C³⁶⁾, (b) Fe-water system at 25°C³⁷⁾.

Table 5. Material balances focused on Zn and Fe in conventional Zn-separating process.

	Yield (kg/t-dust)	Zn (wt%)	Zn (kg/t-dust)	Fe (wt%)	Fe (kg/t-dust)
BF dust (before treatment)	1000	1.04	10.4	35.7	357
Zn-reduced dust (after acid leaching)	906	0.36	3.3	34.6	313
Zn-concentrated sludge (after Zn-recovery)	78.9	8.1	6.4	27.3	21.5
	Yield (m ³ /t-dust)	Zn (mg/L)	Zn (kg/t-dust)	Fe (mg/L)	Fe (kg/t-dust)
Waste water (after Zn recovery)	10	< 0.1	< 0.001	< 0.1	< 0.001

鉛が希釈されるため、沈殿物（亜鉛濃縮スラッジ）中の亜鉛含有率が8.1 wt%に留まったと考えられる。

それに対してアルカリ沈殿法による亜鉛回収の前段に、鉄を沈殿・回収する浸出液精製工程を導入することにより、鉄をあらかじめ回収することが可能になり、結果として鉄を0.03 wt%しか含まず、亜鉛を42.6 wt%含有した亜鉛濃縮スラッジを得ることができた。

4・4 新規亜鉛分離プロセスの提案

本実験より提案する新規亜鉛分離プロセスをFig.7に示す。まず高炉ダストに硫酸による処理 (pH2.0) を適用する。固液分離後の亜鉛低減ダストは焼結工程を経て、高炉原料として再利用される。酸浸出液は、水酸化ナトリウム水溶液によりpHを5.0に制御し、過酸化水素水の添加により鉄の水酸化物沈殿を生成する領域まで電位の調整を行うことで、鉄を沈殿・回収する。固液分離後に得られる鉄濃縮スラッジは、亜鉛低減ダストと同様に焼結工程を経て、高炉原料として再利用される。最後にpH5.0の浸出液に残留する亜鉛を、水酸化ナトリウム水溶液を添加しpHを9.0とすることで、水酸化物沈殿として回収する。

Fig. 6. Potential-pH diagrams of Zn-Fe-O-H system^{36,38)}.

Fig. 7. Proposed zinc-separating process.

本プロセスを適用することにより、ダスト中の亜鉛を高炉原料として再資源化可能な0.4 wt%以下³⁰⁾にまで低減でき、酸浸出液に浸出した鉄は、浸出液精製工程で全量回収できる。したがって、理論上ダスト中の鉄を全量再資源化可能である。さらに、最終的に得られる亜鉛濃縮スラッジは亜鉛含有率が42.6 wt%と高く、しかも鉄をほとんど含まないため、亜鉛源として利用できる可能性を有する。

5. 結言

高炉ダストの亜鉛分離プロセスに関して実験的検討を行い、以下の知見を得た。

(1) 硫酸によるダスト中亜鉛の浸出

製鉄所から発生する高炉ダストを用い、硫酸処理においてpHが亜鉛・鉄の浸出に及ぼす影響を調査した。その結果、pH2.0で高炉ダスト中の亜鉛の68 wt%が浸出し、鉄と分離できた。一方、鉄の浸出率は6.4 wt%に留まり、過去の研究よりも穏和な処理条件で亜鉛を優先的に浸出することができた。

(2) 硫酸浸出液の精製（亜鉛の純化）

アルカリ沈殿法による亜鉛回収の前に、浸出液中の鉄を選択的に沈殿させる新規浸出液精製工程を導入した。pH5.0とし、過酸化水素水の添加で溶液の酸化還元電位を高電位側にすることにより、亜鉛の96 wt%を浸出液中に溶存させたまま、鉄を全量沈殿・回収できた。

(3) アルカリ沈殿法による亜鉛回収

浸出液のpHを9.0とし、浸出液中の亜鉛を水酸化物沈殿として回収した。その結果、鉄をほとんど含まず、亜鉛含有率が42.6 wt%の亜鉛濃縮スラッジが得られた。

以上、硫酸による高炉ダスト中亜鉛の浸出工程、硫酸浸出液精製工程、アルカリ沈殿法による亜鉛回収工程から構成される新規亜鉛分離プロセスにより、ダスト中の鉄を全量再資源化すること、ダスト中に1.04 wt%含まれる亜鉛を42.6 wt%まで濃縮し、除去することに成功した。

文 献

- 1) M.Naito: *Kogyo Kanetsu*, **42**(2005), 5 (in Japanese).
- 2) 田中英年: 第205・206回西山記念技術講座, 日本鉄鋼協会, 東京, (2011), 113.
- 3) K.Maeda, H.Egashira and M.Yamamoto: *CAMP-ISIJ*, **20**(2007), 741 (in Japanese).
- 4) H.Sugimoto, H.Takizawa and H.Ueda: *J. Min. Metall. Inst. Jpn.*, **123**(2007), 723 (in Japanese).
- 5) K.Nagai, Y.Matsumoto and H.Watanabe: *J. Min. Metall. Inst. Jpn.*, **123**(2007), 726 (in Japanese).
- 6) X.Sun, J.-Y.Hwang and X.Huang: *JOM*, **60**(2008), 35.
- 7) T.Ibaraki and H.Oda: *Rev. Metall.-Cah. Inf. Tech.*, **99**(2002), 809.
- 8) Y.Hara, N.Ishiwata, H.Itaya and T.Matsumoto: *ISIJ Int.*, **40**(2000), 231.
- 9) M.Olper and M.Maccagni: Int. Symp. on Lead and Zinc Processing, Lead & Zinc 2008, South African Institute of Mining and Metallurgy, Johannesburg, (2008), 85.
- 10) V.Montenegro, P.Outstadakis, P.E.Tsakiridis and S.Agatzini-Leonardou: *Metall. Mater. Trans. B.*, **44**(2013), 1058.
- 11) T.Havlik, F.Kukurugya, D.Orac and L.Parilak: *World Metall.-Erzmetall.*, **65**(2012), 48.
- 12) P.Oustadakis, P.E.Tsakiridis, A.Katsiapi and S.Agatzini-Leonardou: *J. Hazard. Mater.*, **179**(2010), 1.
- 13) T.Havlik, B.V.Souza, A.M.Bernardes, I.A.H.Schneider and A.Miskufova: *J. Hazard. Mater.*, **B135**(2006), 311.
- 14) R.A.Shawabkeh: *Hydrometallurgy*, **104**(2010), 61.
- 15) Š.Langová, J.Riplová and S.Vallová: *Hydrometallurgy*, **87**(2007), 157.
- 16) Š.Langová and D.Matýsek: *Hydrometallurgy*, **101**(2010), 171.
- 17) J.G.Strobos and J.F.C.Friend: *Hydrometallurgy*, **74**(2004), 165.
- 18) T.Havlik, M.Turzakova, S.Stopic and B.Friedrich: *Hydrometallurgy*, **77**(2005), 41.
- 19) M.C.Mantovani, C.Takano and P.M.Buechler: *Ironmaking Steelmaking*, **31**(2004), 325.
- 20) M.Kawahara and Y.Fujita: *Resour. Process.*, **49**(2002), 9 (in Japanese).
- 21) J.Antrekowitsch and H.Antrekowitsch: *JOM*, **53**(2001), 26.
- 22) H.Ito, T.Takasu, T.Nakamura, H.Uno, K.Sato and M.Harada: *Shigen-to-Sozai*, **2000**(2000), 121 (in Japanese).
- 23) T.Min-Shing, L.Shi-Yao and W.Shi-Hau: *Resour. Recycl. Technol.*, (1997), 510.
- 24) E.C.Barrett, E.H.Nenniger and J.Dziewinski: *Hydrometallurgy*, **30**(1992), 59.
- 25) I.Halikia and N.Voudouris: *Trans. Inst. Min. Metall. C*, **114**(2005), C95.
- 26) T.Havlik, B.Friedrich and S.Stopic: *World Metall.-Erzmetall.*, **57**(2004), 113.
- 27) M.Cruells, A.Roca and C.Nunez: *Hydrometallurgy*, **31**(1992), 213.
- 28) J.A.Barrera-Godinez, T.J.O'keefe and J.L.Watson: *Miner. Eng.*, **5**(1992), 1365.
- 29) T.J.O'keefe, J.L.Watson and L.M.Chia: *Proc. Conf. Hazard Waste Res.*, Kansas State Univ. Engineering Extension, Manhattan, Kan, (1990), 438.
- 30) S.Kelebek, S.Yoruk and B.Davis: *Miner. Eng.*, **17**(2004), 285.
- 31) Z.H.Trung, F.Kukurugya, Z.Takacova, D.Orac, M.Laubertova, A.Miskufova and T.Havlik: *J. Hazard. Mater.*, **192**(2011), 1100.
- 32) D.Zhang, X.Zhang, T.Yang, S.Rao, W.Hu, W.Liu and L.Chen: *Hydrometallurgy*, **169**(2017), 219.
- 33) J.M.Steer and A.J.Griffiths: *Hydrometallurgy*, **140**(2013), 34.
- 34) K.Fujimoto, M.Shimura and K.Yoshioka: *Tetsu-to-Hagané*, **85**(1999), 24 (in Japanese).
- 35) 千谷利三: 新版無機化学(下巻), 産業図書, 東京, (1983), 1187.
- 36) M.Pourbaix: Atlas of Electrochemical Equilibria, Pergamon Press, Oxford, (1966), 409.
- 37) M.Pourbaix: Atlas of Electrochemical Equilibria, Pergamon Press, Oxford, (1966), 312.
- 38) M.Pourbaix: Atlas of Electrochemical Equilibria, Pergamon Press, Oxford, (1966), 313.