© 1983 ISIJ

連続精錬プロセスへのアプローチ —金属材料技術研究所における基礎的開発研究—

技術トピックス

田 中 稔*・吉 松 史 朗*

Approaches to the Continuous Refining Processes (Fundamental Research in National Research Institute for Metals)

Minoru TANAKA and Shiro YOSHIMATSU

1. ま え が き

我が国の鉄鋼業は日本経済の柱として大きな役割を果たしてきているが、その発展の大きな要因は、高炉-転炉法を軸とした臨海一貫製鉄所の大型化と連続化プロセスの積極的導入にあつたと考えられる。

高度成長期におけるプロセス開発のニーズは、高生産性であり、省力化、自動化であるが、プロセスの大型化、連続化はこれに応える正しい方法論であつた。しかしながら石油危機、環境問題によるインパクトは鉄鋼業に大きな試練を与え、プロセス開発のニーズも変革をよぎなくされ、省エネルギー、公害防止、高品質化などがクロズアップされてきている。

この時期に至つてはプロセスの大型化はほぼ限界に達したが、このようなニーズの変化に対してもまたプロセスの連続化はその特長すなわち一機能の分割、工程の制御性の向上、反応の定常化、設備投資効率の向上などが生かされて新しいプロセス開発に導入されてきている。すなわち、高炉を出発点とする製鉄ルートにおいては、純酸素転炉法が完成の域に進みつつあるが、一方製品の高品質化のニーズは、転炉法の機能の分割化をよぎなくするすう勢にあり、溶鉄の連続予備脱りん、脱硫法の開発研究が行われている¹⁾。高炉の連続出鉄を受けて溶鉄の連続精錬を行うことは、すなわち連続製鋼の一部であり、1960年代に開発研究された成果がその応用として実つてきているといえよう。

また、1970年代は、エネルギー問題に基づいて高炉によらない製鉄法開発のニーズが強く生まれてきた時期でもある。高炉によらない製鉄法に関しては、屑鉄を原料とする電気炉製鋼ルート、直接還元法-電気炉製鋼法ルート、未来技術として溶融還元法の開発による新製鉄ルートなどがあり、それぞれ連続法の特長を生かした研究開発が進行している。

なかでも直接還元鉄は、従来の屑鉄補完の目的から第3の鉄源として注目されるようになり、エネルギー資源

立地の性格の強いプロセスとして直接還元法が産油国を中心とした開発途上国の製鉄工業化に大きく寄与している。しかしながら、本方法も現状ではいくつかの問題点を有しており、Alternative Routeとして確立するためには、その生産性の増大、省エネルギー化、専用製鋼法の開発などが要望されている²⁾。

また、粗鋼生産量の25%以上を占める電気炉製鋼法においては原料とする屑鉄はそれ自体エネルギーを有するため高炉-転炉法に比してエネルギー消費量は少ない利点を有するが、エネルギーの大部分を電力に依存しているため、将来の発展のためにはその省エネルギー化、エネルギー代替化は大きな課題である。

本報告は、製鉄製鋼プロセスの新しいInnovationの中で、以上の観点からプロセスの連続化という基本思想のもとで、金材技研でこれまで手掛けたプロセス開発の基礎研究について概観してみたいと思う。

2. 鉄鋼一貫製鉄体系における連続製鋼技術

2.1 連続製鋼技術

1960年代から1970年代の初頭にかけて、IRSID, WORCRA, Bethlehem, BISRA, MISiS, 金材技研などの連続製鋼法が研究されたが、いずれも実用化されずにその開発を終了している。しかしながら、この中で多段炉においては、脱りんを確実にに行わせうることが確認されており、溶鉄の連続予備脱りんに大きな示唆を与えている。金材技研においては、複雑な製鋼反応をできるだけ分離し、これに関する計測、制御を単一炉内で行える機能をもち、かつ溶湯の輸送が最も単純な形で行えるような製鋼装置を実現させることを目的として、1964年より研究を開始し、多段傾型連続製鋼炉の開発に成功している。操業結果³⁾の例をTable 1に示す。この操業条件は、滞留量1tの傾型炉を2段用い、溶鉄流量130 kg/min、酸素流量2.4 Nm³/min (第1段炉)、4.4 Nm³/min (第2段炉)で、造滓剤流量は各段それぞれ10~13 kg/minと4~5 kg/min酸素同時供給された。Ta-

昭和58年5月23日受付 (Received May 23, 1983) (依頼技術トピックス)

* 金属材料技術研究所 工博 (National Research Institute for Metals, 2-3-12 Nakameguro Meguro-ku 153)

Table 1. Result of NRIM continuous steelmaking process.

Number of operation		59		60		62	
Stage of furnace		1	2	1	2	1	2
Temp. (°C)	Pig iron	1 380		1 430		1 390	
	Output	1 470	1 650	1 510	1 660	1 490	1 710
Composition of pig iron (%)	C		3.91		3.87		3.89
	Si		0.40		0.53		0.58
	Mn		0.53		0.64		0.57
	P		0.12		0.13		0.11
	S		0.016		0.024		0.038
Composition of output metal (%)	C	3.07	0.05	2.73	0.03	2.89	0.04
	Si	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01	0.01
	Mn	0.18	0.06	0.33	0.06	0.28	0.12
	P	0.019	0.005	0.023	0.004	0.010	0.004
	S	0.013	0.023	0.012	0.015	0.013	0.016
Composition of output slag (%)	CaO	50.4	34.6	57.7	27.4	51.7	36.4
	SiO ₂	20.3	18.0	14.1	9.9	13.5	11.6
	P ₂ O ₅	2.7	0.4	2.1	0.4	1.9	0.4
	T.Fe	9.1	20.4	2.6	35.3	5.1	18.8
	MnO	4.2	3.5	3.6	4.3	3.7	3.9
	MgO	2.0	11.4	1.2	14.1	2.5	13.3
	CaF ₂	7.8	6.2	13.3	5.7	10.8	7.4

NRIM : National Research Institute for Metals

ble 1 から明らかなように第1段で 80% 以上の脱りん率が得られ、全体では 96% 以上の脱りん率が容易に達成されている。この脱りん特性を検討するために、前記第1段炉に関して滞留量 300 kg の連続予備脱りん実験をおこなった⁴⁾。その結果脱りんには種型炉型で複数ランスの直列配置が望ましいことが確かめられた。しかしこの実験では、(T.Fe) が高くなつたにもかかわらず 70% 程度の脱りん率しか得られなかつた。この相違は検討の結果造滓剤供給方法の違いによることが明らかとなり、粉体造滓剤の酸素による同時供給は脱りん反応の進行に寄与するとともに、スラグ中の (T.Fe) を低下する点で非常に効果的であることが判明した。

溶鉄予備処理の必要性は、スラグ発生量の低減と転炉の脱炭専用炉化による成分適中率の向上の2点からクローズアップされてきており、製鋼反応をスラグ・メタル反応とガス・メタル反応とに分割し、特定の反応を特定の炉でおこなわせ全体としてその工場に最適な製鋼反応システムが構成されるようになるであろう。その際、溶鉄予備処理は高炉出鉄種でおこなわれ、製鉄ヤードを出た湯は [C] と [Mn] を残すだけというイメージが描かれるのではないだろうか。

先に述べたように、連続製鋼法そのものの実用化はまだであるが、金材技術系連続製鋼法の脱炭炉(第2段炉)を用いて構成された屑鉄を原料とする新製鋼法が、現在北海道地区で開発研究中である。その詳細は後述するが、年産 10 万 t オーダーのこのパイロットプラントで培われた技術は、更に連続製鋼法自体の実現を大幅に推進するものと期待される。

2.2 周辺技術

鉄製錬プロセス、特にその連続プロセスを制御するためには、溶鉄中の諸成分を迅速に分析する必要がある、従来より製鉄所現場から新しい迅速分析法の実現が望まれていた。このような背景に加えて、直接的には当研で

開発した多段種型連続製鋼プロセスの制御のため、溶鉄中の諸成分の直接分析法の開発が行われた。

既存技術の調査に基づき、ジャイアントパルス(以下 G.P. と略称) レーザー光を励起発光エネルギー源とした発光分光分析法が採用された。これは多元素同時定量性および迅速性の点から発光分光分析が、また遠距離よりエネルギーを供給でき、応用範囲が広くかつ発展途上の技術であることから G.P. レーザー光が選ばれたものである。予備的な検討の結果、この方法が技術的に可能であること、溶鉄の表面レベルの変動の影響の防止が重要で、このためにレーザー光集光系と分光器集光系を同軸にするのが適していること、雰囲気制御が重要なことなどが明らかになつたので、これに基づいて装置の改造が行われ、本格的な実験が実施された。

溶鉄中の [C], [Si], [Mn] 分析について、とくに C に重点を置いて検討したが、[C] 分析については CO ガスの影響を除去するために円錐型の先細り雰囲気制御装置の使用が効果的であることがわかつた⁵⁾。

G.P. レーザー光を用いる発光分光分析法固有の問題点である SN 比(線スペクトル強度の連続スペクトル強度に対する比で、分析感度と考えてよい)が良くない点を改善する手段として本分析法に空間分解を適用し、プラズマ周辺部からのスペクトルの採光が有効であることがわかつた。これにより従来の採光法では分析困難であつた [P], [S] 分析の可能性の見通しを得ている。

さらに溶浴の直接分析へ適用するための基礎研究として、固体 Fe₂O₃-CaO-SiO₂ 系試料を用いてその可能性を検討した。その結果(Fe₂O₃) 10% 程度までは分析可能であり、条件によつては (CaO), (SiO₂) の分析も可能であることを明らかにした⁶⁾。

近年固体電解質の応用研究が広く行われ、中でも酸化物固体電解質を用いた酸素センサーは鉄鋼生産プロセスの中で工程管理などに多量に使用され、品質向上に著し

い成果を上げている。硫化物は酸化物と類似したイオン結晶構造であることから固体電解質として期待できる。

固体電解質を検討するためには高純度の硫化物が必要であるが、硫化物は調製が難しく酸化しやすいことなどから高純度硫化物の高温における電導機構の研究はきわめて少なかった。

当研究所においては高純度 (>99.99%) 硫化物の製法とその電導特性を明らかにし、固体電解質としての可能性を検討するため、IIa 族の CaS, MgS, SrS および IIIa 族の Y_2S_3 , Sc_2S_3 各硫化物を調製し、広範囲の硫黄分圧下の導電率を測定することによって硫化物本来の電導機構を検討した。その結果つぎのことが明らかになった。

(1) IIa 族元素の硫化物では CaS はイオン伝導性を示し⁷⁾, MgS および SrS は低 Ps_2 領域ではイオン伝導性を示すがその導電率が小さいので、単体のまま固体電解質とすることは困難である。

(2) IIIa 族元素の硫化物 Y_2S_3 ⁸⁾ は低 Ps_2 領域で n 型半導体, 高 Ps_2 領域では p 型半導体, Sc_2S_3 はすべての Ps_2 領域で n 型半導体である。

以上本研究によって硫化物電解質本来の性質が明らかになったので、複合硫化物固体電解質応用への途が開けるものと思われる。

2.3 ヘイゼレット連铸機による鋼の薄板連铸

最近薄板高速連铸の関心が高まってきたが、1960年代に Bethlehem Steel⁹⁾ をはじめとする米鉄鋼会社が非鉄用連铸機であるヘイゼレット連铸機の鋼への適用を試みていた。金材技研においては、遊星圧延機との組み合わせで造塊・圧延工程の大幅な短縮を計る構想のもとに、1967 年より研究をおこなった。ヘイゼレット連铸機は、(1) 铸造角度の変換が容易である。(2) 冷却速度が大きい。(3) スラブサイズの変換が容易である。(4) 铸造片と铸型との摩擦がない(同期式铸造方式)ため、美しい表面が得られる。などの特長を有するとされているが、これが鋼に適用できれば薄物スラブの連铸機として大きなメリットを有すると考えられる。実験機は 20-3 型と称する 2 wheel 型で、そのレイアウトを Fig. 1

Table 2. Operational conditions of Hazellet caster.

Mould	Mild steel belt (1mm thick) and stationary water-cooled side dum
Slab dimension	50×250 mm
Casting angle	20°
Casting speed	2-3 m/min
Mould coating	Graphite lubricant (contained resine)
Tundish	Opened 2 nozzle
Cooling water	9 m ³ /min
Charge weight	200-300 kg/Ch

に示す。実験は SC 材, バネ鋼などを対象に Table 2 に示す条件でおこなわれた¹⁰⁾。

小容量の実験の範囲ではあるが、得られた結果を要約すると次のとおりである。

まず铸型の冷却能については、2 m/min の铸造速度で SUP 7 を铸造した場合、約 40 cal/cm²・s の抜熱量であり公表されていた値 302 cal/cm²・s¹¹⁾ よりかなり低い値が得られた。また本研究で用いた固定式水冷サイドダムは、铸型と铸造片との間のエヤギャップを最小にするセッティングが肝要であり、エヤギャップが大きいと铸片サイドの凝固シェル形成が不十分で二枚皮等の欠陥を生成する事例が認められた。得られたスラブの寸法精度については、厚さ方向で±0.5 mm, 幅方向で±1 mm 程度に押さえることは可能である。スラブ表面性状は铸型内への溶湯の供給方法に最も影響を受け、スラグの流入と溶鋼プールの攪拌を押さえるようなタンディッシュならびにノズル型式の最適化を計ることにより本機の特長を最大限に引き出すことが可能となろう。非金属介在物の分布に関してはベツレヘム社の報告のように上面近くへ集中することなく、上下対称に上下面からそれぞれ 1 cm 附近にピークが認められた。

本研究は小容量実験の範囲で終了したが、铸造材の圧延試験では良好な結果が示されており、本機の鋼連铸への適用の可能性は示し得たと考えている。本機を薄板高速連铸機として将来実用化をはかるためには、前述の溶湯供給方法、サイドダム型式の検討がぜひ必要であると考えられる。

Fig. 1. Layout of Hazellet caster.

3. 高炉によらない連続製鉄・製鋼技術

3.1 鉄鉱石を原料とする新製鉄法

直接還元法に関しては、粉鉄鉱石をあたかも流体のように処理し得、連続化が容易であることから流動層法に着目し、これの高温加圧化と多段多室化による生産性と製品還元率の向上を図る研究を実施した。

小型炉およびコールドモデルを用いた基礎実験¹²⁾に基づき、内径 25 cm、処理能力約 3 t/d (還元鉄換算) の高温加圧連続流動還元パイロットプラントを設計製作して実験を行った¹³⁾。装置の構成を Fig. 2 に示す。還元ガスは水素ガスを用い、粉鉄鉱石は 16~115 メッシュの赤鉄鉱石を用いた。本プロセスの特徴は (1) 還元速度とガス利用率を高めるため最終段温度を 900°C とした。(2) このような高温での焼結トラブルを防止するため、微粉の少ない粉鉄を使用した。(3) 加圧することにより (7 kg/cm² G) 層内において適正な流動化流速を保ちながら大量の還元ガスを循環した。(4) 多段、多室を併用

1. Compressor 2. Flow meter 3. Surge tank 4. Heat exchanger 5. Heater 6. Partial combustion furnace 7. Reactor 8. Scrubber 9. Cooler 10. Hopper 11. Product 12. Nitrogen gas holder 13. Hopper 14. Hopper 15. Feeder 16. Ore bin

Fig. 2. Schematic diagram of NRIM fluidized bed process.

したことである。この結果 Table 3 に示すように製品還元率、生産性の高い、同程度の規模で行われた他の流動還元プロセスに比較して高温、高圧下での還元反応により還元率および生産性においてすぐれた成績を得た。また粉状還元鉄の溶解の問題と関連して、水素プラズマによる含 FeO スラグの還元の研究を行った¹⁴⁾。

さらに直接還元法を基点とする製鉄ルートの生産性向上と省エネルギーをはかる新技術の開発を目的として、還元鉄の物性と溶解性について系統的な基礎研究を行った¹⁵⁾。その結果、還元鉄の溶解性は溶湯の炭素量に強く依存し、未還元酸化鉄があるときは溶解速度最大となる炭素範囲があること (約 2.5% C)、また還元ペレットが約 20% の酸化鉄を含有しても溶解性が大きく低下しないことがわかった。

これらの結果に基づくベンチスケールでの操業実験においては、(1) スラグ層厚さの定常化、(2) 還元鉄の熱間装入の効率化、(3) 排ガス顕熱および潜熱の定常的利用をはかるため連続法を採用し、炉床移動式溶解還元炉を開発した。これによつて (1) 還元鉄ペレットの溶湯表面への均一な装入、(2) アークスポットから溶湯への熱伝達の均一化、(3) 溶湯におけるボイリング効果の均一化による熱効率の向上、(4) アークスポットの移動による炉壁のホットスポットの軽減などの効果を得た¹⁵⁾。

これらの基礎研究と操業実験の結果を組み合わせることにより Fig. 3 のような連続式直接溶融還元プロセスが想定されるが、この方法によれば直接還元と溶融還元との最適配分をはかり、生産性の向上と省エネルギーを達成することができると考えられる。

3.2 屑鉄を原料とする新製鋼法

金材技研および新技術開発事業団によつて、連続製鋼法の開発研究の成果と製鋼法の機能の分割の思想を基にした屑鉄を原料とする製鋼の Alternative な方法の開発が進められている。

本プロセスは当初自動車スクラップを対象原料に、また将来は還元鉄の導入も考慮して構成されており、無公害、脱電力、低コストの新しい製鋼法を確立しようとする

Table 3. Comparison of operation results of NRIM Fluidized Bed Process and others.

		NRIM Process	Nu-IRON ²⁾ Process	YAWATA ⁷⁾ TOKEN Process
Feed rate	kg/h	153	113	30-60
Circulating gas	Nm ³ /h	341	177	150-250
Concentration of H ₂	%	97.1	85.0	80-97.5
Temp. of entering gas	°C	1180	870	600-650
Pressure in reactor	kg/cm ² G	7.0	0.1 0.2	2-3
Temp. of reduction	°C	890	704	550
No. of stage for reduction	—	3	2	3
Degree of reduction	%	95.7	90.0	95.0-90.0
Utilization of H ₂	%	23	30	11-12
Total mean residence time	h	0.52	17	3.2-4.5
Production	t/d	2.7	2.0	1.1-1.4
Productivity	t/m ² d	55.1	14.5	15.6-19.8

Fig. 3. Process flow of the continuous melting and smelting reduction process.

Fig. 4. Process flow of the continuous steelmaking process for the mini-mill steel plant.

るものである。

近年日本におけるモータリゼーションの進展は著しく、その廃車発生量も年々増加し 1985 年には 300 万 t との予測もなされている。廃車スクラップは不純物が多く、製鋼段階の公害対策が重要であり、またかさ比重が小さいため現用の回分式電気炉製鋼法では対処に困難をともなう。さらに廃車スクラップは地域的に普遍的に発生するため、その再生利用はローカルなサイトでの処理が経済的であり、ミニミル規模のプラントが必要となる。本プロセスはこれらのニーズに対応するため検討され、Fig. 4 に示す各工程を連結して構成されている。開発研究としては月産 10 000 t の規模の装置で 1981 年 4 月より実験操作が開始されたが、溶解加炭工程はあらゆる型のスクラップと、更には還元鉄の溶解も可能でかつエネルギー源を石炭に求めるという条件を満たす装置としてキューボラ型溶解炉が採用された。本溶解炉の設計目標は容量 15 t/h、廃車スクラップを原料とした場合コークス比 100~130 kg/t で 2.5% C、1 450°C の溶鉄の連続的な製造である。加炭された溶鉄は予備脱硫と連続流量調整工程を経て酸素精錬工程へ送られる。精錬炉は容量 4 t、造滓剤、酸素吹精により目標の炭素量、温度の溶鋼を製造する。酸素原単位は 30 Nm³/t 以下である。なお不純物はこの段階で P、S とともに数 10 ppm

Table 4. Comparison of new process with arc furnace steelmaking process.

15 t/h capacity	Arc furn. process	New process
Electricity (Melting)	~7 500 kVA × 2	200 kW (Blower)
(Holding)	—	300 kW
Refining & holding furn	—	Necessary
Ladle	15 t × 2	—
Building	1	1/3
Dust collector	1	1/2
C.C. machine (120 φmm)	2 strand	1 strand
Raw material	Standard	Sized
Energy consumption	500-550 kWh/t	~130 kg coke/t
Electrode consumption	5.5 kg/t	—
Oxygen consumption	10 Nm ³ /t	30 Nm ³ /t

の低水準にある。更に調整工程が後続し、合金元素、脱酸剤の連続供給と溶鋼温度の調整をおこない、後続する連铸工程へ最適な溶鋼を連続供給する。連铸機は 100 φ mm ビレット 2 スtrand の仕様 (1 スtrand は予備) である。本プラントでの開発研究は 1982 年 3 月まで続けられ、最大 48 h の操業を含む間欠操業により各工程の機能の最適化、操業ノウハウの収集をはかった。従来の回分法による電気炉製鋼法と本プロセスとの比較は、Table 4 に示すとおりである。施設、設備費としては同規模の電気炉製鋼法に比して約 20% 低減が見込まれており、また製鋼コストの試算では、エネルギー費、資

材費、間接費の低減、歩留りの向上などによって 10% 程度の低下が期待されている。

現在本プラントは実用化にそなえて改修には入っており、今秋には一週間程度の長時間運転を目標によいよ実用化の最終段階に入る。

4. ま と め

製鉄プロセスの技術開発にたいするニーズは、生産性向上、省力化、省エネルギー化、省資源化、高品質化、資源の多様化、エネルギー代替化など多様化の一途をたどると共に、増々その要求の度合いを深めてくることが予想される。また製鉄プロセスプロパーに限らず、例えば現在私共が取り組んでいる複雑鉄鉱石からの有価金属の回収のような鉄・非鉄製錬の複合化や石炭ガス化に見られるような製鉄技術を応用した他産業とのコンビナート化を計る技術開発もまた将来増加してゆくことであろう。これらの中には在来技術の延長上にはあり得ず、我が国独自の革新技術が必要であるものが多く存在する。プロセスの連続化はそのための有力な武器となり、私共もこれら未来技術の実現に多少なりとも貢献できることを念じてまとめとしたい。

文 献

- 1) 鉄と鋼, 66 (1980), A137
- 2) 還元鉄溶解技術の現状と展望 (1979) [日本鉄鋼協会]

- 3) 吉松史朗, 中川龍一, 上田卓弥, 三井達郎, 佐藤彰, 福沢 章, 尾崎 太: 学振 19 委-No. 9575 (昭和48年 5 月)
- 4) A. FUKUZAWA, R. NAKAGAWA, S. YOSHIMATSU, A. SATO, T. MITSUI, and T. OZAKI: Trans. ISIJ, 19 (1979), p. 735
- 5) 尾崎 太, 高橋 務, 岩井良衛, 郡司好喜, 須藤恵美子: 鉄と鋼, 68 (1982), p. 872
- 6) 尾崎 太, 松本文明, 笠原 章, 岩井良衛, 中川龍一, 吉松史朗: 鉄と鋼, 67 (1981), S1088
- 7) 中村博昭, 郡司好喜: 日本金属学会誌, 42 (1978), p. 635
- 8) 中村博昭, 郡司好喜: 日本金属学会誌, 47 (1983), p. 490
- 9) B. C. WHITMORE, J. W. HLINKA: J. Met. (1969) Aug., p. 68
- 10) 福沢 章, 中川龍一, 吉松史朗, 中村保之: 鉄と鋼, 54 (1968) 10, S428
- 11) Steel Times, Sept., 16 (1966), p. 372
- 12) 神谷昂司, 桜谷和之, 森中 功, 北原宣泰, 尾沢正也, 田中 稔: 鉄と鋼, 65 (1979), p. 169
- 13) 森中 功, 神谷昂司, 桜谷和之, 北原宣泰, 尾沢正也, 田中 稔: 鉄と鋼, 65 (1979), p. 185
- 14) 神谷昂司, 北原宣泰, 森中 功, 桜谷和之, 尾沢正也, 田中 稔: 鉄と鋼, 68 (1982), p. 956
- 15) 中川龍一, 吉松史朗, 佐藤 彰, 福沢 章, 尾崎太, 笠原和男, 岩井良衛, 福沢安光, 松本文明, 笠原 章, 荒金吾郎, 三井達郎, 渡辺敏昭: 金材技研研究報告集, 2 (1981), p. 1