

JFE スチール製鉄分野での CO₂ 削減技術

Recent Progress in Ironmaking Technology for CO₂ Mitigation at JFE Steel

佐藤 道貴 SATO Michitaka JFE スチール スチール研究所 製鉄研究部長・博士 (工学)
山本 哲也 YAMAMOTO Tetsuya JFE スチール スチール研究所 製鉄研究部 主任研究員 (課長)・博士 (工学)
櫻井 雅昭 SAKURAI Masaaki JFE スチール 製鉄技術部長

要旨

地球温暖化防止のため、製鉄所からの CO₂ 削減は製鉄業に課せられた大きな課題となっている。JFE スチール製鉄部門においてもこの課題に真摯に取り組み、過去 10 年の間にさまざまな CO₂ 削減技術を開発してきた。本稿では JFE スチールにおいて開発されすでに実用化された技術、および開発中の技術をいくつか取り上げ、技術の概要と適用時の効果について述べる。

Abstract:

In order to contribute of the prevention of global warming, the reduction of CO₂ from the steel works becomes a major issue imposed on the steel industry. A variety of new CO₂ reduction technologies have been developed in the past decade in the ironmaking area of JFE Steel. This paper focuses on some of the technologies developed in JFE Steel, such as natural gas injection technology into the sintering bed and burden distribution control of blast furnace with coke mixed charging. The outline of the technology and the effects of application are described.

1. はじめに

鉄鋼業からの CO₂ 発生量は日本国内における全発生量の約 15% を占め¹⁾、中でも製鉄工程からの排出量はそのうちの約 7 割を占めている。したがって、製鉄工程が CO₂ 削減へ果たすべき役割は極めて大きいといえる。

製鉄工程は、溶銑を製造する高炉を中心として、高炉の原料である焼結鉱を製造する焼結機、還元材としての大きな役割を担うコークスを製造するコークス炉、高炉に吹き込む高温 (1200℃程度) の熱風を発生する熱風炉を主要な付帯設備として有する。そして、高炉における還元反応 ($\text{Fe}_2\text{O}_3 + 3\text{CO} \rightarrow 2\text{Fe} + 3\text{CO}_2$) や焼結機やコークス炉、熱風炉における炭材 (コークス粉など) や炭素含有ガス (高炉ガス (B ガス) やコークス炉ガス (C ガス)) の燃焼反応 ($\text{C} + \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2$, $\text{C}_n\text{H}_m + (n+m/4)\text{O}_2 \rightarrow n\text{CO}_2 + (m/2)\text{H}_2\text{O}$) によって多量の CO₂ を発生する。

本稿では、まず、製鉄工程の各プロセスから発生する CO₂ 量の現状をモデル製鉄所における計算結果に基づき説明する^{2,3)}。その上で、排出量を削減するための基本的な考え方について述べる。次いで、この考えに基づき JFE スチールにおいて開発され、すでに実用化された技術として以下を取り上げ、技術の概要と適用時の効果について述べる。実用化された技術として、ここでは焼結機での炭化水素ガ

スの焼結層吹き込み技術⁴⁾、高炉での CO₂ 削減技術として、還元材比の大幅な低減を目指した鉱石へのコークス多量混合装入技術^{5,6)}、および炭素 (C) 含有量の少ない天然ガスベースのガスとして都市ガスを直接高炉に吹き込むことで C 使用量削減を図った都市ガス吹き込み技術⁷⁾ を取り上げる。さらに、将来の高炉の抜本的な還元材比の削減を目的として、当社では新しい概念に基づく高炉新原料 Carbon Iron Composite (以下、CIC)⁸⁾ の開発にも取り組んでいる。その技術内容と期待効果についても述べる。

2. 製鉄工程における CO₂ 排出の現状³⁾

製鉄工程の各プロセスから発生する CO₂ 量を定量的に評価するため、製鉄工程と下工程とを区別する境界条件 (バウンダリー)、および製鉄工程における物質フローを図 1 のように設定した。外部から供給される石炭のうち原料炭はコークス炉へ装入・乾留され、一般炭および天然ガスは高炉へ直接吹き込まれる。コークス炉で製造されたコークスは粒度ごとに篩分けられた後、微粉は焼結の凝結材として使用され、残りは高炉へと装入される。コークス炉、高炉から発生するコークス炉ガス (C ガス)、高炉ガス (B ガス) は製鉄の各プロセス (焼結、コークス炉、熱風炉、発電所) で燃料として、あるいは高炉への吹き込み還元材として消費された後、余剰分が M ガスとして下工程 (製鋼、圧延工程など) へ供給される。なお、発電所へ供給される M ガス

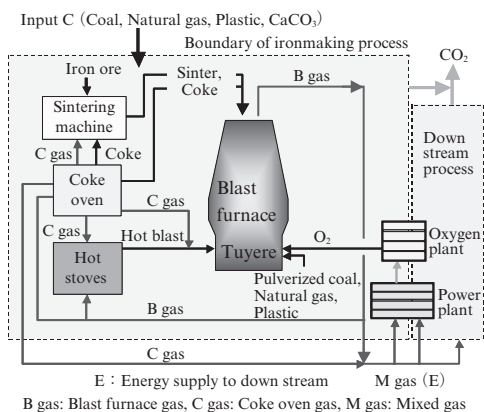


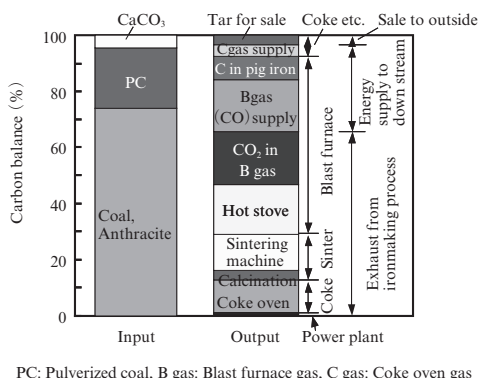
図1 製鉄工程のバウンダリーと製鉄工程における物質フロー概要

Fig. 1 Schematic diagram of material flow in ironmaking process and boundary of ironmaking

量は、製鉄工程と下工程に供給される量を区別して扱った。製鉄工程への供給量は、製鉄工程で必要とされる電力および酸素を製造するのに必要十分な量のみとした。

上述の境界条件と物質フローを考慮した熱・物質収支モデル²⁾を用い、モデル製鉄所 (RAR (還元材比) = 495 kg/t, PCR (微粉炭比) = 150 kg/t, CR (コークス比) = 345 kg/t) における C 収支を計算した結果を図 2 に示す。製鉄所に供給される炭素 (以下, Input C) は、ほとんどが石炭由来であり、残りが焼結で必要とされる生石灰 (CaO) を得るために仮焼工程に導入される石灰石 (CaCO₃) である。一方、製鉄工程において排出される炭素 (以下, Output C) の内訳は、高炉関連設備から約 65% (熱風炉での燃料燃焼、還元で発生する CO₂ 由来の C)、コークス炉と焼結機からの発生分が約 15% ずつ (コークス乾留用の燃料燃焼、焼結機での凝結材の燃焼など) であり、残りが外販分 (CO₂ 発生から控除) というバランスとなっている。

一方、先述した下工程へと供給される余剰 M ガスは加熱炉等の燃料用、あるいは発電用に有効利用され、また溶銑中の C も転炉ガス (LD ガス) に変換された後に同様に燃料として利用される。したがって、B ガス中の CO、C ガス中



PC: Pulverized coal, B gas: Blast furnace gas, C gas: Coke oven gas

図2 モデル製鉄所における炭素 (C) バランス
Fig. 2 Carbon (C) balance in the model steel works

の炭化水素、溶銑中の C は最終的にはすべて CO₂ に変換されるため、これらに含まれる C の総計が下工程プロセスで排出される CO₂ 量に相当する。図 2 に示すように、量的には全体の約 30% となる。残りが製鉄工程において直接排出される量であり、約 70% のバランスとなっている。

3. 製鉄工程における CO₂ 排出削減のアプローチ

図 2 より、製鉄工程における C 排出量を削減するには、

- (1) 高炉の還元材比低減による必要熱風量の低減 (発生 B ガス量の低減) と熱風炉エネルギーの削減
- (2) 高炉のコークス比低下によるコークス炉稼働率低下、これに伴う総乾留熱量低減
- (3) 焼結での凝結材比低下による燃焼排ガス中の CO₂ の低減

などの対策を積み上げ、入り口での必要 C 量 (Input C) を低減していくことが基本的なアプローチとなる。4~7 章では、前述した各プロセスの概要と CO₂ 削減への寄与について、順に紹介する。

4. 炭化水素ガスの焼結層吹き込み⁴⁾

4.1 研究の背景

従来、焼結工程では、焼結鋳強度の改善には粉コークスや無煙炭などの凝結材の増配が志向されてきたが、過度の増配により層内最高到達温度が上昇することで、加熱過程で生成したカルシウムフェライトがヘマタイトとスラグに分解し、逆に強度や成品歩留が低下する可能性があった。

4.2 開発技術の概要

炭化水素ガス利用焼成技術では、熱不足により強度が低い焼結ベッド上層部への熱補填を目的として、この部分での焼結進行時に、ベッド表面より炭化水素ガスを添加する。これにより、焼結ベッド内の高温領域を 1200℃~1400℃に長時間保持し液相焼結を進行させつつ、強度と被還元性に優れたカルシウムフェライトを残留させることで、強度と被還元性に優れた焼結鋳の製造が可能と考えられる。

図 3 に炭化水素ガス利用焼成技術におけるヒートパターン³⁾の模式図を示す。実験結果によれば、焼結ベッド表面から添加された炭化水素ガスは、凝結材の燃焼位置に達する前の 700℃付近すなわちコークス燃焼位置より上方で燃焼を開始する。このためヒートパターンは高温部分が上方に拡がるように変化し、1200~1400℃保持時間の延長が可能となった。

4.3 実機適用結果

図 4 に炭化水素ガス利用焼成設備の概要を示す。実機では (1) 毒性がないこと、(2) 爆発下限濃度が高いこと、

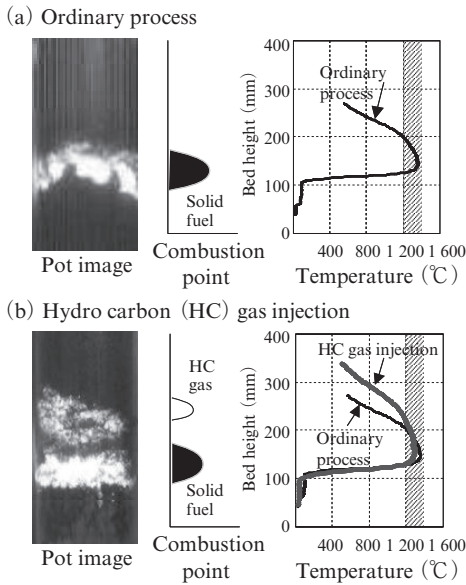


図3 炭化水素ガス添加時のヒートパターンと添加挙動の模式図

Fig. 3 Schematic diagram of heat pattern and ignition behavior with hydrocarbon gas injection technology

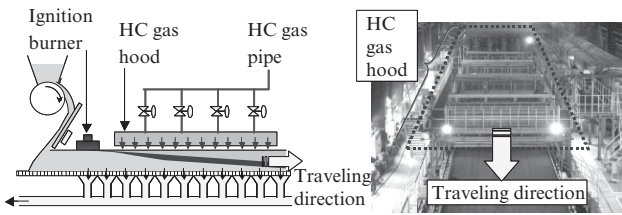


図4 東日本製鉄所（京浜地区）第1焼結工場での炭化水素ガス吹き込み装置

Fig. 4 Hydrocarbon (HC) gas injection equipment at No. 1 sinter plant in East Japan Works (Keihin)

(3) 工場に高压で供給できることなどを考慮し、炭化水素ガスとして都市ガスを用いた。その代表的組成は、CH₄ 89%、C₂H₆ 5%、C₃H₈ 6%である。焼結ベッド上層部への熱補填のため、点火炉に隣接して、焼結機上に機長の1/3の範囲で複数の都市ガス添加用フードを設置し、吸引している大気に所定量の都市ガスを添加・混合する。実操業試験の結果、落下強度は約1%改善、被還元性指数RIは約3%改善、凝結材原単位は3 kg/t低減の効果を確認した。この際、熱量的には、添加した炭化水素ガスの約4倍に相当する量の焼結材が削減できた。本焼結鉱を使用することにより、被還元性が向上し、高炉での還元材比約3 kg/tの低減効果が得られた。

5. 鉱石層へのコークス多量混合装入技術の開発⁵⁾

5.1 研究の背景

製鉄工程でのCO₂削減には高炉での低還元材比操業が重

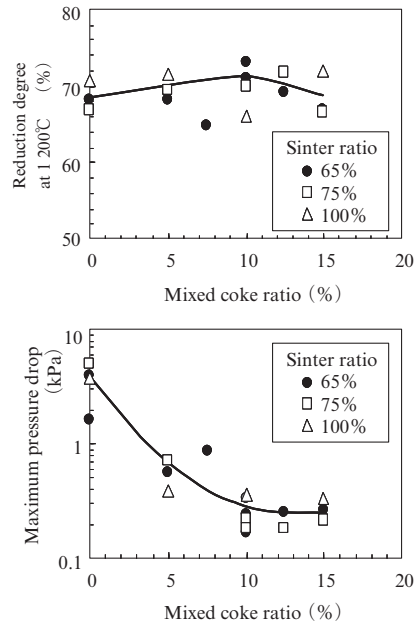


図5 コークス混合率と焼結鉱比が1200℃還元率および最大圧力損失に及ぼす影響

Fig. 5 Effects of mixed coke ratio and sinter ratio on the reduction degree at 1200°C, and on high temperature gas permeability of burden material

要であるが、低還元材比操業では原料の還元停滞や融着帯肥大化による通気性悪化、熱バランス悪化などの問題がある。改善策としては、原料性状の改善、装入物分布制御による還元性の向上、周辺流制御による熱バランスの改善などが有効であるが、JFEスチールでは鉱石層へのコークス多量混合装入に着目した。鉱石層へのコークス混合装入は、融着層における鉱石収縮挙動の抑止に加え、混合コークスが優先的にソルロス反応を受けコークス層が保護されるため、コークス粉発生が抑制され、融着帯での空隙率が維持される効果が期待される。この結果、炉内の通気性が改善し、還元材比低下、出鉄比の増加、劣質原料の多量使用につながる可能性がある。

5.2 開発技術の概要

荷重軟化実験により、1200℃における焼結鉱の還元率および最大圧力損失値に及ぼすコークス混合率と焼結鉱比の影響を調査した結果を図5に示す。いずれの焼結鉱比の場合でも、コークス混合率が増加するほど最大圧力損失値が減少する傾向を示している。ただし、混合率12.5 mass%までは顕著な効果が現れているが、それ以降で飽和する傾向となっている。還元率についてはデータのばらつきは大きいものの、混合率10 mass%レベルまでは混合率とともに還元率が向上している。以上より、混合率10 mass%程度までは、焼結鉱の還元性促進、および圧力損失の大幅改善が得られることが分かる。

5.3 実機適用結果

実機適用に向けて、径方向で均一なコークス混合率分布を得るための装入物分布パターンについて、数式モデルおよび冷間模型実験により検討した。これら結果に基づき、実機ではコークス、鉱石を各2バッチに分割し、鉱石1バッチ目には塊コークスを、2バッチ目には小中塊コークスを混合する方針とした。鉱石1バッチ目に塊コークスを装入する方法としては、JFE スチール東日本製鉄所（千葉地区）第6高炉の3パラレルバンカーを活用し、焼結鉱と塊コークスを2つの炉頂バンカーから同時に切り出すとともに、逆傾動装入により中心から周辺に向かって装入物を積み上げていくことによりコークスの分離・偏析を防止しつつ、径方向にも均一に装入させることを目標とした。混合量は、両バッチそれぞれ3.75 mass%とし、合計で7.5 mass%（原単位：120 kg/t）を目指した。

表1に2004年に東日本製鉄所（千葉地区）第5高炉吹き止め前に東日本製鉄所（千葉地区）第6高炉で実施したコークス多量混合装入時の操業結果を示す。従来操業(Period A)に比べ、コークス多量混合時(Period B)はガス利用率（シャフト効率）、通気性の向上や熱ロスの低下により還元材比の低下（22 kg/t 低下）が達成された。また第5高炉休止後の出鉄比の増加が要求された期間（Period C）では、直送焼結比が低下する条件であっても低還元材比操業を継続することができ、多量混合装入の効果が確認された。

6. 水素系吹き込み還元材の高炉使用技術⁷⁾

6.1 研究の背景

高炉での還元材比低減の手段として、還元効率の改善、ヒートロスの低減、金属鉄の使用の他、水素含有量の高い還元材、たとえば廃プラスチック（C_nH_m）や天然ガス（CH₄ 主体）吹き込みが有効と考えられる。これら水素含有量の高い還元材を高炉で有効に利用するためには、通常操業において羽口に既に吹き込まれている微粉炭（PC）との同時吹き込みが基本になると考えられる。しかしながら、微粉炭燃焼性へ及ぼす影響や高炉内の原料の還元挙動に及ぼす水素の影響については定量的な知見は少ないのが実情であった。

6.2 開発技術概要

固体還元材（微粉炭、廃プラスチック）の燃焼性に及ぼすガス状還元材（CH₄）の影響を明らかにするため、ホットモデルを用い燃焼実験を実施した。実験に供した微粉炭の粒径は-74 μm, 80%, 廃プラスチックは約4 mmである。実験は、送風温度1200℃一定とし、羽口先理論燃焼温度（TFT）が一定になるように送風中に酸素富化を行なった。吹き込み条件としては、固体還元材単独の場合と、固体還元材をCH₄と同時に吹き込んだ場合との両ケースで行なった。そして、酸素過剰率（送風中の酸素と全吹き込み還元材を完全燃焼させるのに必要な酸素量との比）と固体還元材の燃焼ガス化率の関係を調査した。燃焼ガス化率はホットモデルにおける炭素（C）収支から実験的に求めたものであり、固体還元材の合計の値である。

図6に酸素過剰率と固体還元材の燃焼ガス化率の関係を示す。固体還元材の単独燃焼時と比較して、CH₄との同時

表1 従来装入と多量混合装入との操業状況比較

Table 1 Comparison of the operational data for conventional charging (period A) and coke mixed charging

		Conventional charging (Apr. 6–May 8, 2004) Period A	Coke-mixed charging (May 10–June 21) Period B	After No. 5 Blast Furnace blown off (July 1–11) Period C
Operation	Productivity (t/m ³ ·d)	2.06	2.18	2.39
	Reducing agent ratio (kg/t)	517.8	495.8	495.7
	Coke ratio (kg/t)	412.4	396.1	395.1
	ηCO (= CO ₂ /(CO + CO ₂)) (%)	47.3	49.9	49.8
	Shaft efficiency (%)	87.5	91.0	90.4
	Gas permeability index	0.993	0.927	0.913
	Stave heat loss (GJ/h)	40.6	31.8	29.5
Burden	Agglomerate ratio (%)	72.9	74.1	74.7
	No. 4 Sinter ratio (%)	49.4	45.4	39.5
	Mixed-coke ratio (kg/t)	60.0	109.0	116.3
	Tumbler index of coke 400-6 (%)	84.4	85.3	84.9
Tapping	Si Content in metal (%)	0.288	0.305	0.268
	(MnO)/[Mn]	1.31	1.13	1.17
	Tapping (d ⁻¹)	7.53	7.43	7.45

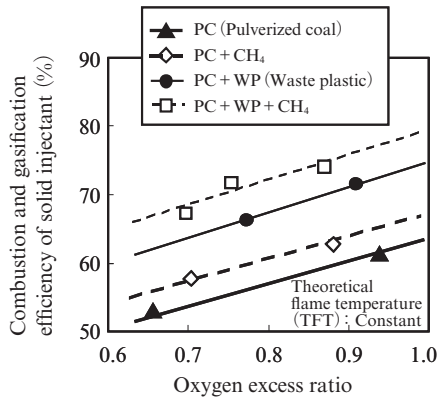


図 6 固体還元材の燃焼性に及ぼす CH₄ ガス吹き込みの影響
Fig. 6 Effect of methane gas injection on combustion and gasification efficiency of solid injectants

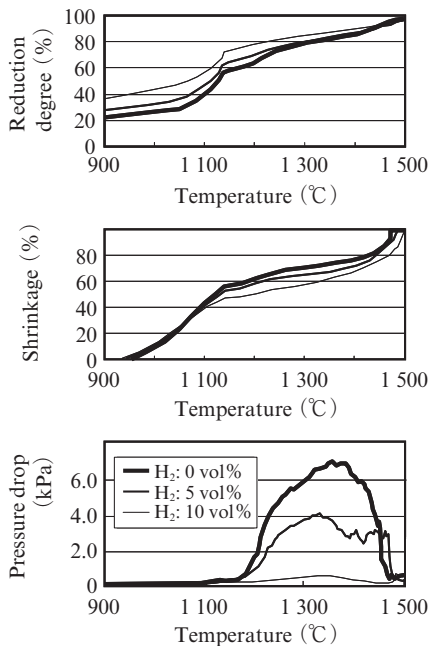


図 7 還元率、収縮率および圧力損失に及ぼすガス組成の影響
Fig. 7 Effect of gas composition on reduction degree, shrinkage, and pressure drop

吹き込み時の燃焼ガス化率は、微粉炭の場合約 4%，微粉炭とプラスチックの同時吹き込みの場合で約 5% 向上した。燃焼速度が速い気体還元材の CH₄ が吹き込み直後に着火・燃焼し、雰囲気温度を上昇させ、微粉炭およびプラスチックの昇温、揮発化、揮発分の燃焼、固体分の燃焼といった一連の燃焼ガス化反応を促進したためと考えられる。燃焼ガス化率向上の結果、未燃粉の発生量が低下するため、これらが炉芯や炉下部へ蓄積して炉下部の通気性を悪化させる影響を小さくできることが期待される。

次に、還元ガス中の水素濃度が焼結鉄の還元挙動に及ぼす影響を荷重軟化試験により調査した。図 7 には水素濃度を 3 水準 (0, 5, 10 vol%) に変化させ、焼結鉄の還元率、収縮率および圧力損失に及ぼす水素の影響を示した。水素濃度の上昇に伴い、同一温度における還元率の向上と収縮

表 2 都市ガス吹き込み前後の操業実績比較

Table 2 Comparison of operating results before and after natural gas (NG) injection

	Before NG injection	After NG injection
NG rate (kg/T)	0	30
Productivity (T/m ³ ·d)	2.34	2.52
O ₂ Enrichment (%)	4.7	5.6
Permeability index at upper part	0.23	0.23
Permeability index at lower part	1.22	1.11
CO ₂ Emission	100	97.7

率の低下、および圧力損失の著しい低下が認められた。これは、水素による焼結鉄の還元速度が速く、軟化融着温度域に至るまでに未還元 FeO 量が低下したことに起因すると考えられる。すなわち、軟化融着層での FeO を含むスラグホールドアップ量が低下し、結果、層内の空隙が確保されたためと考えられる。

6.3 実機適用結果

東日本製鉄所 (京浜地区) 第 2 高炉では、2004 年 12 月から都市ガス吹き込み (天然ガスをベースに組成を調整したもの) を実施している。表 2 に都市ガス吹き込み前後の操業諸元比較を示す。都市ガス吹き込み量は 30 kg/t とし、TFT が一定となるように酸素富化量を調整している。通気性に関しては、上部では吹き込み前と同程度であったが、下部が大きく改善していることが分かる。これは、上述の還元促進、融着層の空隙確保などによるものと考えられる。この通気余力を活用し、出鉄比の上昇が可能であり、約 10% の増加を達成している。また、生産量一定条件下での CO₂ 削減効果は約 2.3% と推定された。

7. 新高炉用原料 (Carbon Iron Composite) の開発⁷⁾

7.1 研究の背景

高炉での還元材比を抜本的に低減するため、新しい高炉

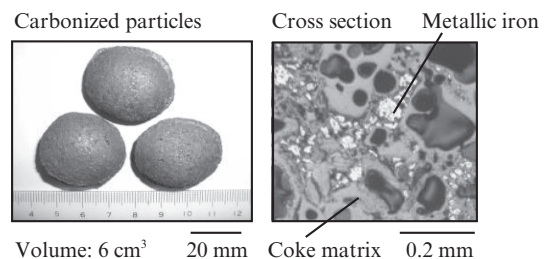


写真 1 CIC の外観と組織

Photo 1 Appearance of Carbon Iron Composite

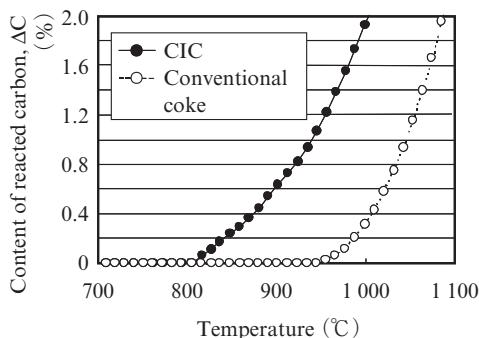


図8 CICと室炉コークスでの反応開始温度の比較

Fig. 8 Comparison of reaction initiating temperature between Carbon Iron Composite (CIC) and conventional coke

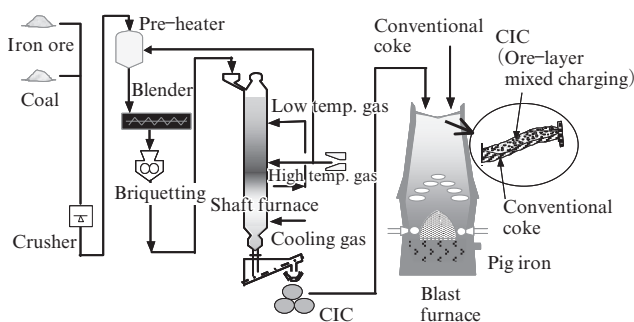


図9 CIC製造のプロセスフロー

Fig. 9 Process flow for the Carbon Iron Composite (CIC) production

用原料 (Carbon Iron Composite, 以下 CIC) の開発を行なっている。CIC は金属鉄を含有する成型コークスであり、従来の室炉コークスに比べて鉄の触媒効果により CO₂ ガスとの反応性が著しく高い。この高反応性の CIC を高炉で使用することで、熱保存帯温度を低下させて、還元材比を低減することを目的としている。

7.2 開発技術の概要

写真1 に、実験室で製造した CIC の外観を示す。原料として非微粘結炭と鉄鉱石を 7:3 の割合で混合、ブリケット化、乾留したものである。含有する鉄は、乾留過程でほぼ金属鉄に還元されている。

図8 に、高炉内を想定した条件での CO₂ ガスとの反応性について、CIC と室炉コークスを比較した結果を示す。CIC は室炉コークスに比べて約 150°C 低温から反応していることが分かる。したがって、高炉用原料として室炉コークスの一部代替として CIC を使用した場合、高炉の熱保存帯温度を低下できる可能性がある。高炉数学モデルによる計算により、本 CIC (100 kg/t) の使用で、高炉での還元材比約 30 kg/t の低減が期待できる。

図9 に、本技術のプロセスフローを示す。安価な鉄鉱石および非微粘結炭を粉碎、混合、ブリケット化し、シャフト

炉で加熱、乾留し、CIC を製造する。高炉用原料のため、CIC の強度は重要な性状となるが、ブリケット化による圧密効果とシャフト炉による比較的精度の高い温度制御により、劣質な原料からでも従来の室炉コークスと同等の強度を持つ CIC を製造できる可能性がある。高炉内での CIC の使用方法としては、鉱石層中に混合して使用することを想定している。高炉内では CIC がその高反応性、かつ低温から始まるソリューションロス反応を活かした鉱石還元反応の促進と、保存帯温度制御を担い、通常の室炉コークスが通気・通液性を確保する機能分化の考えである。よって、CIC の使用比率は高炉内のソリューションロス反応に相当する 80~100 kg/t が適切と推測される。

8. おわりに

本稿では、JFE スチールにおいて実機化または最近開発中の CO₂ 削減プロセスを紹介した。CO₂ 削減は一朝一夕に達成できるものではなく、本論に示したように、10年スパンで開発してきた技術の一つずつ積み上げ、少しずつ削減できるものである。

今後、短中期の視点からは、ここに掲げた実機化完了技術を他の製鉄所に水平展開することにより、CO₂ 削減を堅実に図っていく必要がある。また長期的な視点からは、CIC の開発に代表される新しい原料製造プロセスを是非完成させ、高炉における抜本的な還元材比の低減と製鉄所からの CO₂ 排出量の大幅削減に結びついていくことを期待したい。

参考文献

- 1) 地球環境研究センター, 国立環境研究所. 日本国温室効果ガスインベントリ報告書. 2012-04.
- 2) Ariyama, T.; Sato, M. ISIJ Int. 2006, vol. 46, p. 1736.
- 3) 佐藤道貴, 武田幹治, 櫻井雅昭. 金属. 2012, vol. 82, p. 950.
- 4) Oyama, N.; Iwami, Y.; Yamamoto, T.; Machida, S.; Higuchi, T.; Sato, H.; Sato, M.; Takeda, K.; Watanabe, Y.; Shimizu, M.; Nishioka, K. ISIJ Int. 2011, vol. 51, p. 913.
- 5) Watakabe, S.; Takeda, K.; Nishimura, H.; Goto, S.; Nishimura, N.; Uchida, T.; Kiguchi, M. ISIJ Int. 2006, vol. 46, p. 513.
- 6) Mura, A.; Kashihara, Y.; Watakabe, S.; Sato, M. ISIJ Int. 2011, vol. 51, p. 1360.
- 7) Kashihara, Y.; Sato, T.; Sato, M.; Takeda, K.; Nagaki, M.; Hasegawa, S. La Revue de Metallurgie-ATS-JSI. 2007, p. 8.
- 8) 山本哲也, 佐藤健, 藤本英和, 庵屋敷孝思, 深田喜代志, 佐藤道貴, 武田幹治, 有山達郎. 鉄と鋼. 2011, vol. 97, p. 501.



佐藤 道貴



山本 哲也



櫻井 雅昭