

# 間接製鉄法への直接製鉄法の挑戦の技術史 —溶融還元法の変化と発展を中心とした—

解説

下村 泰人\*

## Challenge of Direct Methods to Indirect Ones in the History of Iron and Steelmaking

—Change and Development of Smelting Reduction—

Yasuto SHIMOMURA

### 1. 緒 言

今からちょうど 100 年前の 1891 年に、鉄鉱石からの直接製鉄法としてオーストリアの EHRENWERTH 教授が<sup>1)</sup> 独自のプロセスを提案している。原文によると、「炭素を含有する鉄は、高温の溶融状態で溶けた鉄を含むスラグ—溶けた鉄鉱石—と反応し、鉄が還元されて集まる。この反応は、溶鉄中の炭素が消費されるまで続く。他方溶鉄は再び、温度に依存するが、5% 近くまでの炭素を溶解する。かくして脱炭された鉄を直ちに含炭させることができる。そうして炭素を含んだ鉄は、再び新たに鉄鉱石を還元する能力を持ち、これを繰り返すことで適量の溶鉄または溶鋼を直接に鉱石より得ることができる。」と、今日の溶融還元製鉄法と同じ内容が述べられている。

しかしこの反応は、1850 年代の UCHATIUS や SIEMENS の時代にさかのぼり、その源泉を求めることができる。SIEMENS は、Siemens-Martin 式平炉法の発明者の 1 人として、BESSEMER と共に今日の溶鋼法の発展に著しい貢献をした技術者として有名であるが、それ以上に直接製鉄法の研究に情熱を燃やし、それは失敗したとはいえ、今日の溶融還元製鉄法への道を開いた先駆者の 1 人だったといえよう。

今日の製鉄の主流は、高炉で銑鉄を製造し、それを転炉などで精錬して鋼にする間接製鉄法である。このような間接製鉄法が定着するまでには、鉄鉱石から 1 ステップで直接に鉄ないし鋼を造ることが、より合理的ではないかと考えられ、多くの直接製鉄法が試みられてきた。また間接法の主体である高炉は、高シャフトなるがゆえに厳格に準備された原燃料を使わざるを得ないという技

術的特質のため、これもまた多くの高炉によらざる製鉄法の挑戦を受けてきた。

このような状況の中で、コークス炉を必要とせず直接に石炭と粉鉱石を使い、生産量も柔軟に制御可能だと言われる溶融還元製鉄法が注目されるようになり、1988 年から日本鉄鋼連盟を主導に製鉄 8 社の共同研究が始まった。この目的は間接製鉄法における銑鉄製造技術の開発にある。しかし初期の溶融還元は直接製鋼を狙って実施されたもので、約 150 年たった今日その技術が違った形でよみがえろうとしている。

こうした製鉄の技術史の中での直接製鉄法の間接製鉄法への挑戦と、溶融還元製鉄法の変化を眺めることは、今日の溶融還元製鉄法の課題を検討するうえでも意味のあることと考えられる。

なおこれまでの文献において、関係する用語がかなり違った使い方をされているので、本論文では次のように言葉を定義して用いた。すなわち、途中で特別な工程としての加炭・脱炭の作業なしに鉄鉱石から酸素を除去して鉄を製造する方法を直接製鉄法、途中で加炭された銑鉄をつくり、それを脱炭して鉄または鋼にする方法を間接製鉄法と呼ぶことにした。したがってここでは直接製鋼法、直接還元法は直接製鉄法に含まれるものとし、広義には電気炉製鋼法も直接法の中に分類されるとした。

### 2. 製鉄技術の概略史

鉄鉱石から鋼鉄を製造するまでの製鉄技術史を、図 1 のように直接法と間接法との発展に分けて示した。

長い間の主要鉄材であった錬鉄が鋼鉄にとって代わられたのは、図 2 に示されるように英・米・独では 1880~1890 年の間であった。20 世紀は鋼の時代で、特に前半

平成 3 年 10 月 15 日受付 (Received Oct. 15, 1991)

\* 関東銑鉄(株)顧問 (Kanto Iron Co., 2-11-15 Nishikata Bunkyo-ku, Tokyo 113)

Key words : history of iron- and steelmaking ; indirect ironmaking process ; direct ironmaking process ; direct steelmaking process ; smelting reduction ; direct reduction.

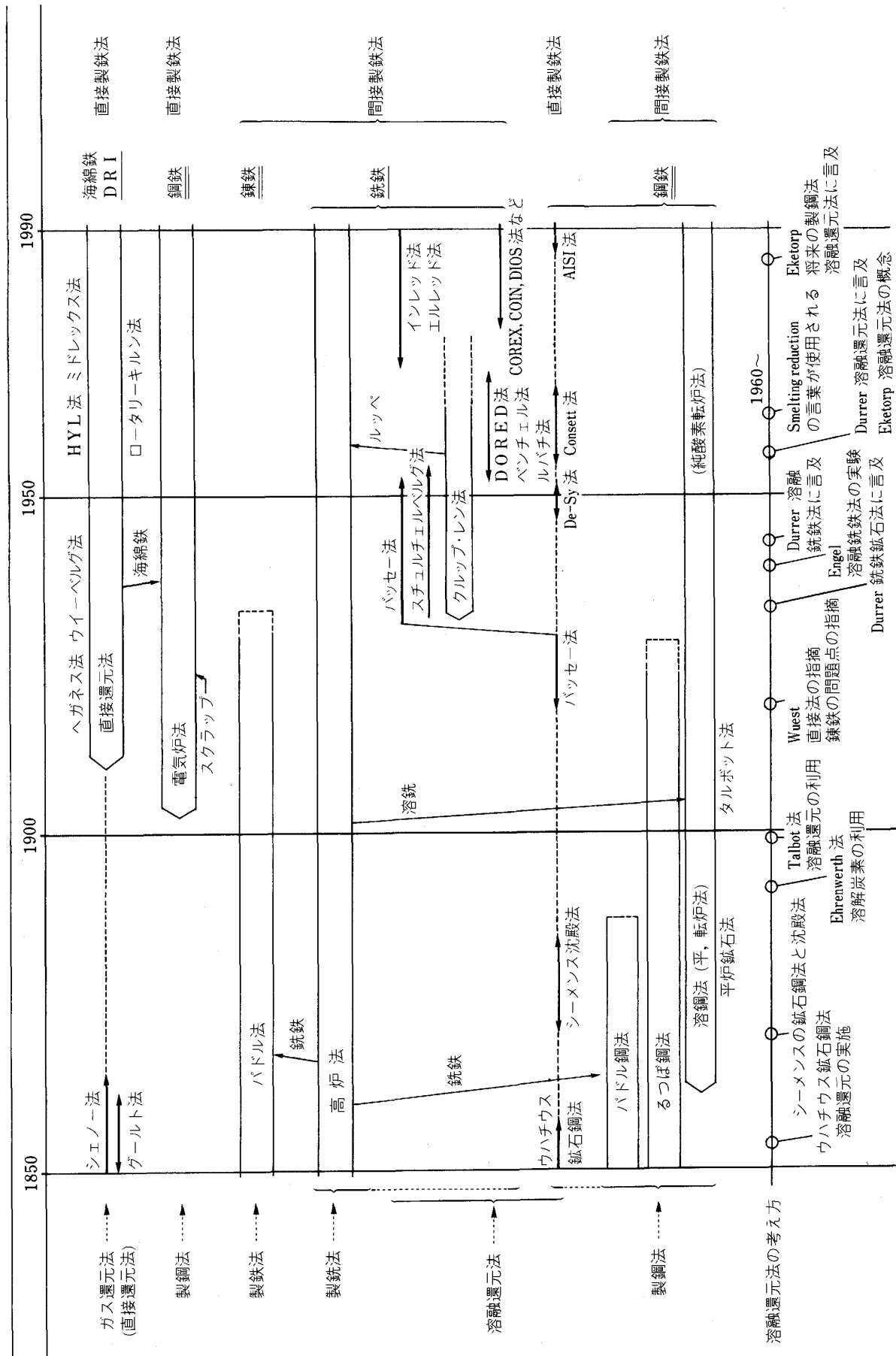


図1 直接製鉄法と間接製鉄法の技術発展史概略

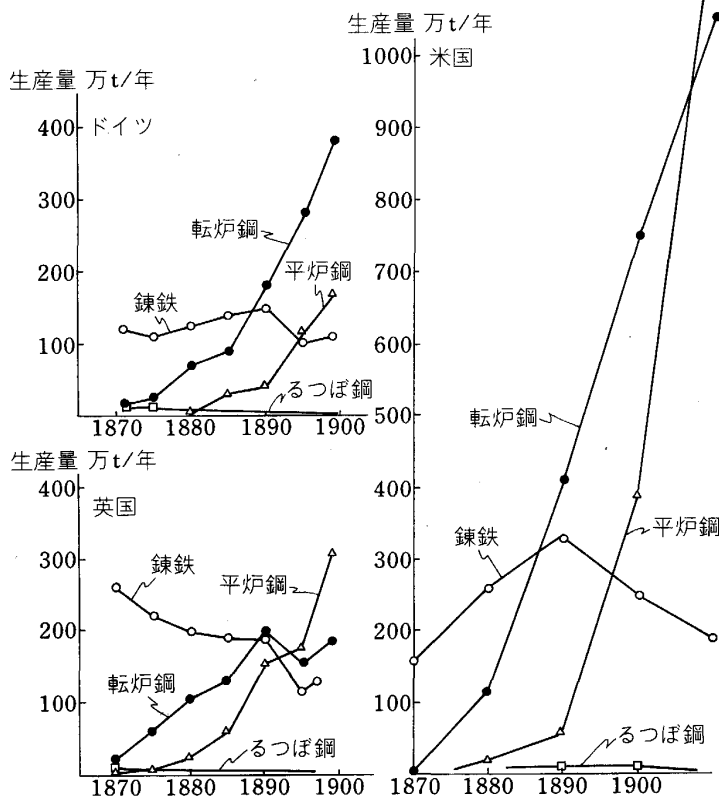


図2 主要国における鍊鉄と鋼の生産量の推移

は平炉鋼が主要な地位を占めた。鍊鉄は、高炉銑やルッペをパドル炉で精鍊して、脱炭・除滓し、半熔融状態から0.05%以下の炭素を含む鉄片として生産された。今日の鋼との差は、パドル炉での完全な除滓が不可能なため2~3%の繊維状スラグを含んでいることで、しかしこれが逆に鍊鉄に靱性を与えていた。この鍊鉄をるつばで溶かし不純物を除去し、炭素量を調節したものがるつば鋼である。少量生産のため鍊鉄に比べ極めて高価であった。

したがって19世紀後半の大きな技術目標は、鍊鉄を直接鉱石から造る方法とるつば鋼に代わる鋼の製法の開発であった。るつば鋼に代わる方法としては、パドル鋼が開発された。これはパドル炉で脱炭を途中で止めて製造する方法であったが、炭素の制御が困難で1890年頃には製造されなくなった。かくて登場したのがBessemerの転炉法とSiemens-Martinの平炉法である。高炉銑が高温で精鍊され、スラグをまったく含まない鋼が造られ、今日の間接製鉄法が確立された。1905年頃から電気炉が実用化され、スクラップから鋼を製造する方法の主流になってきた。各種製鋼法の発達でパドル炉による鍊鉄の製造は衰退した。

上述の鍊鉄・鋼鉄の製法は、いずれも加炭された銑鉄の炭素を除去する間接製鉄法で、今日では技術的にも経済的にも合理的なものとして高く評価されているが、長い間不合理なものとして、鉄鉱石から1ステップで鉄を製造する直接法が熱心に研究されてきた。しかしまだ実

用化されていない。今日間接製鉄法は極めて成熟した完成技術体系となり、特に転炉製鋼技術の進歩によって他の技術の挑戦を受け付けぬ状態にある。

### 3. 冶金技術の基本概念

関係する主要な冶金技術として、酸化鉄の還元における鉄-酸素-炭素系の平衡と還元反応速度の問題がある。

#### 3.1 鉄-酸素-炭素系の平衡

EKETORPは、製鉄プロセスを酸素ポテンシャルの変化ないしその制御として、図3<sup>2)</sup>のように簡潔に説明して

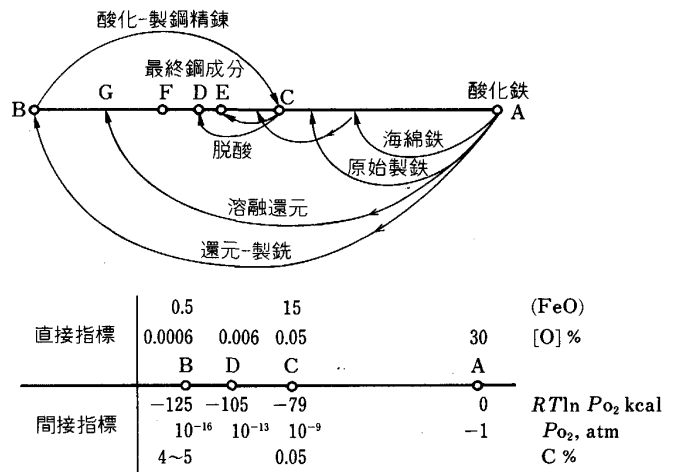


図3 酸素ポテンシャルの変化で示した製鉄プロセス

いる。酸化鉄を炭素で還元する場合に、鉄歩留りを高めるには溶銑を 4~5% の炭素で飽和し、その酸素ポテンシャルをほとんどゼロにせねばならない。これが高炉法による銑鉄である。銑鉄を鋼にするには、含まれている炭素やけい素を酸素で燃やして除去するが、これは鋼中の酸素ポテンシャルを高くして炭素の減少を計るため、スラグ中の FeO が高くなり鉄ロスとなる。最終的にはある炭素で平衡する残った酸素を脱酸剤を添加して除去し、目的の成分の鋼が得られる。これが間接製鉄法である。

固体状態の酸化鉄をガス還元する場合には、低炭の還元鉄（または海綿鉄）が得られるが、酸素を完全に除くことも困難だし、鉱石に含まれる他の成分もそのまま残るので、電気炉などで精錬されねばならない。

熔融酸化鉄を炭素で還元し鋼を得ようとする試みが直接製鋼法である。その一つの方法が熔融還元法である。鋼中に炭素が入らないようにして還元すると、溶鉄中の酸素ポテンシャルが高くなり、スラグ中の FeO が増加して鉄歩留りは低くなる。したがって、低炭の鉄を直接に製造することは可能であるが、これまで間接法に経済的に劣るため実用化されていない。

3.2 還元反応の速度

酸化鉄の高温、熔融状態での炭素による直接還元反応の速度が速いことは、ずっと以前から知られていたが、その反応機構や実際の反応速度の研究が盛んに行われるようになったのは 1950 年代からである。代表的な文献で反応機構ごとの速度を比較して図 4 に示した。この場合反応面積を求めるのがもっとも困難であったが、実験の内容よりこれを推算した。

図より固体酸化鉄の CO ガス還元と比べ、その熔融炭素による還元反応が 100 倍程度速いことがわか

る。現在熔融還元注目されている理由の一つがここにある。

4. 19 世紀後半の直接製鉄法

4.1 るつぼ鋼、錬鉄に代わる直接製鋼法の開発

4.1.1 パドル鋼法

19 世紀の中頃には高価なるつぼ鋼に代わる安価な製鋼法と、鉄鉱石から 1 工程で錬鉄を製造する、より合理的な直接製鉄法の開発が試みられた。鋼は錬鉄より炭素を多く含むので、パドル炉作業を途中で止めれば、各種炭素含有量の鋼質のものが得られるとの考え方でドイツで開発されたのがパドル鋼<sup>3)</sup>で、1840~1890 年の間にかなりの工場で生産された。しかし炭素量の制御が困難なため溶鋼法の発展と共に消滅した。パドル法は間接製鉄法の中の精錬部分の代替法であった。

高価なるつぼ鋼に代わる鋼の製法として開発されたのが、現在の間接製鉄法の主流に発展した Bessemer の転炉法と Siemens-Martin の平炉法である。ここでの本題ではないし、多くの資料があるので内容は省略する。

4.1.2 直接製鉄法の試み

鉱石より直接に錬鉄を造る多くの試みがあるが、これが結局は今日の直接還元製鉄法につながってきたものと言える。

海綿鉄の初期の製法の一つにフランスの Chenot 法<sup>4)</sup>がある。この方法は鉄鉱石と木炭粉のブリケットをシャフト炉に装入し、外部加熱により固体状態で還元し、得られた海綿鉄を粉砕、磁選した後、鉄が圧縮鍛造される。普通のもつぼ鋼より安く製造できると宣伝されたが、実際には高品位鉱石が必要で製造コストも高く、1856 年にフランスに工場が建設されたが長くは操業されなかった。

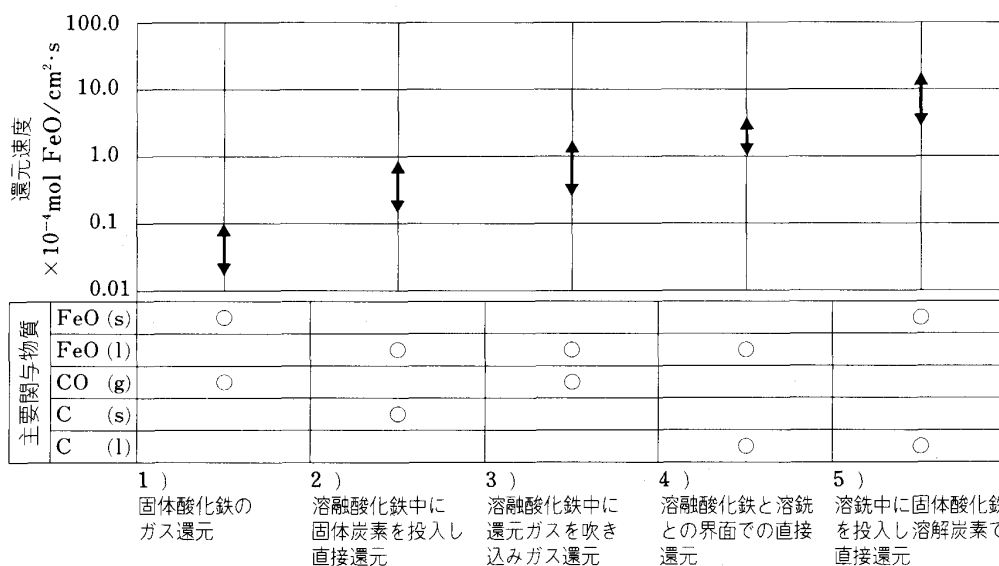


図 4 還元反応機構ごとの反応速度の比較

ドイツの GOULT<sup>5)</sup> も Chenot 法と同時期に、シャフト炉で発生炉ガスによる鉄鉱石の還元を試みた。できた海綿鉄は反射炉で溶解して鋼とされたが、試験は失敗した。しかしこの方法の中に、今日のシャフト炉還元の源泉と平炉につながる溶解炉の原形とを見ることが出来る。

加炭されない海綿鉄から直接に錬鉄ないし鋼鉄を製造する直接製鉄法の主要な試みは、次の 20 世紀初めのヘガネス法まで中断される。しかし LOEBNER<sup>6)</sup> が、1900 年に出した文献リストによると、19 世紀後半に数十件の直接製鉄法があげられており、研究が活発に行われていたことがうかがえる。

#### 4.2 SIEMENS の直接製鋼への挑戦

SIEMENS の前に UCHATIUS が、熔融還元反応を利用したるつば鋼の製造法を發明しているが、熔融酸化鉄または熔融炭素を利用する鉄鉱石の還元反応を、十分に認識して直接製鋼法に挑戦したのが SIEMENS であったといえる。

##### 4.2.1 UCHATIUS の鉄鋼法<sup>7)</sup>

鉄鉄と脱炭量に応じた鉄鉱石をるつばで溶解すれば、加炭材が節約されるとの発想から UCHATIUS の鉄鋼法がオーストリアで生まれた。1856 年に実用化されたが、良質の鉄鉱石がないと良質の鋼が得られないことから結局は普及することなく終わった。しかし少量ではあれ鉄鉱石が、熔融炭素によって還元される熔融還元反応が利用されたという点では非常に意味深い發明であった。

##### 4.2.2 SIEMENS の鉄鋼法と平炉法の発展

UCHATIUS がるつばによる鉄鋼法を發明したのに対し、SIEMENS は 1866 年に英国で蓄熱室付の平炉で鉄鋼法を実施する特許を取得している。この方法は、製鋼作業における冷却材の必要性からその後鉄石法として定

着する。

しかし SIEMENS は、平炉鉄石法は不合理で鉄石が脇役の技術と考え、あくまでも鉄石から直接に鉄または鋼を製造する直接製鉄法を追及した。

##### 4.2.3 SIEMENS の沈殿法

SIEMENS の直接法の初期の試みは、鉄鉱石を固体状態で還元し、平炉式の反射炉で溶解するもので、1867 年にシャフト炉を蓄熱式平炉の上に設置したもの、1868 年にはシャフト炉をロータリーキルンに代えた方法の特許が取られた<sup>3)</sup>。キルンは外部加熱され、それに鉄石と炭材が装入されるとともに、キルンの出口側から高温の還元ガスを送るように考えている。この方法はあまり進展しなかったが、アイデアは、クルップ・レン法や SLRN 法などの直接還元法につながってきたものと言える。

このような実験の中で、より高温で溶けた状態での還元が有利だとする着想から SIEMENS の沈殿法が生まれた<sup>8)</sup>。すなわち酸化鉄を溶剤とともに溶かして鉄分のリッチなスラグとし、これに炭素を加えて還元し、緻密な形で沈殿した鉄がルッベとして回収される。沈殿法は図 5<sup>8)</sup> のようなトロンメルで実施された。

この方法は SIEMENS の直接製鉄法として、1878 年に英国で、その 2 年後米国で実用化された。米国ピッツバーグのシーメンス・アンダーソン工場での操業結果が 1883 年に学会で報告されている<sup>9)</sup>。討論の中でこの方法は鉄歩留りが悪いこと、燃料比や設備費が高いことから他の製鉄法に比べてコストが高いのではないかとの議論や、ルッベはさらに精練されねばならないため直接法とは呼べないのではないかとの意見も述べられている。

1880 年代には、トーマス転炉法の發明で高 P 鉄が使用できるようになったこともあって、SIEMENS の沈殿法はほとんど発展せず消えていった。しかし彼の残した技

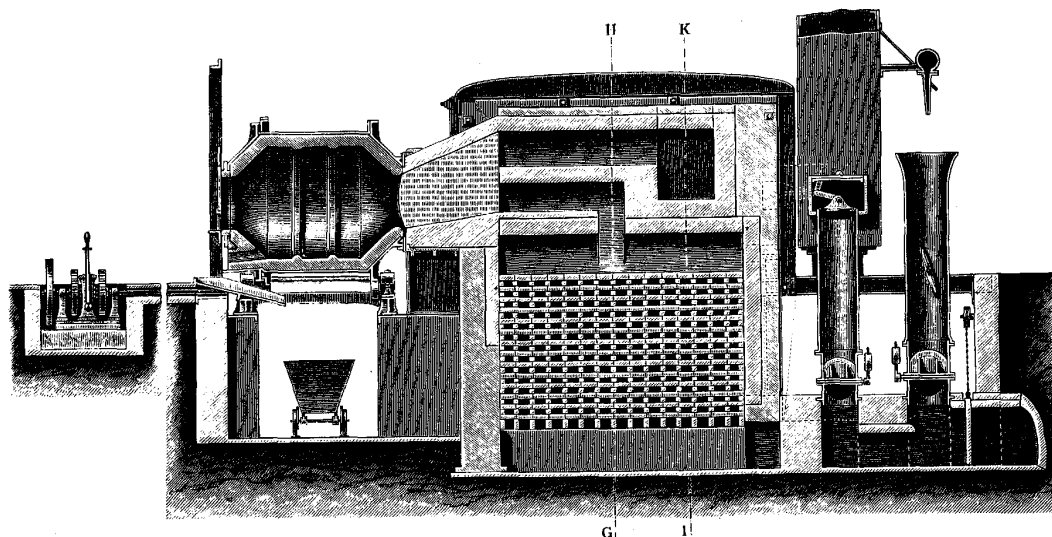


図 5 沈殿法のための SIEMENS の回転炉

術としては、溶融酸化鉄スラグの炭素による還元、トロンメル利用などがあり、20世紀になって再度これらの技術が試みられたわけである。

#### 4.2.4 Talbot法にみる溶融還元

19世紀末に間接製鉄法の技術確立は決定的になったが、平・転炉法の操業改善が盛んに試みられ、その一つが1899年に実施されたTalbot法<sup>10)</sup>であった。これは溶銑の酸化をすべて鉄鉱石の酸素で行うもので、平炉の鉱石法の変形と言えるが、それとの違いは、トロンメルを使い発生COガスを燃やして浴を加熱すること、熱の活用のため湯を残して次の操業を続けることにあった。通常の鉱石法では10%弱の鉱石使用に対し、この方法では25%くらいまで使用可能としている。あまり普及しなかったが、溶融還元反応を脱炭反応に使うことははっきりと示した点で意義があったと考えられる。

### 5. 20世紀の直接製鉄法

20世紀に入ってから、スクラップを利用する電気炉製鋼法が発展し始めたこともあって、このための還元鉄製造を目的とした直接製鉄法(直接還元法と呼ばれることもある)と、高・転炉による間接製鉄法を不合理なものとして、それに対抗する直接製鉄法(直接製鋼法と呼ぶほうがよいかも知れないが)が試みられ、はっきりと目的の違う直接製鉄法の研究が行われてきた。

#### 5.1 直接還元製鉄法の発達

すでに述べたように、直接還元法に関する研究、試験、特許は数多くあったが、いずれも実用化されず消えていった。その中で工業化に成功し操業されてきたのが、スウェーデンで発明されたヘガネス法<sup>11)</sup>とウーベルグ法<sup>12)13)</sup>である。そこでは良質の鉄鉱石は産出するが、良質の石炭がないため高炉によらない製鉄法が発達した。

直接還元法はしばらく低調であったが、第2次世界大戦後天然ガスが大量に発見されるや、これを利用するプロセスがしだいに工業化され現在に至った。

#### 5.2 間接法への直接製鋼法の挑戦とその変化

SIEMENSの直接製鋼法に続くものとしては、緒言で紹介したEhrenwerth法がある。これは非常に早い時期に溶融還元反応に着目した方法であったが、どのような研究が行われたのか不明である。1920年頃まで間接法が優位のため注目すべき直接製鋼法の研究が見られない。

WUESTが、このような状況を1921年<sup>14)</sup>と1927年<sup>15)</sup>に直接製鉄法に関する展望で次のように述べている。高炉で加炭し、次の工程で脱炭する間接製鉄法は一見して不合理である。この解決が直接製鉄法であるが、まだ実用的な方法が開発されていない。直接法は、一つの設備でよい、高温を必要としない、どんな性状の原料でも使用できるなどの利点があり、欠点は技術的なものよりは経済性である。高コストの原因は、燃料消費が大なるこ

とと、低炭にしようとして鉄歩留りが悪くなることである。

#### 5.2.1 Basset法とStuerzelberg法

Basset法の開発初期には溶融還元反応も利用しつつ鋼を製造する直接製鋼法が試みられた。研究は1920年より前からフランスのBASSETによって開始された<sup>16)~18)</sup>。出口側に拡大部を設けたロータリーキルンで鉄鉱石の予備還元と溶融還元が行われた。しかし低燃料比、高鉄歩留りのためには、どうしても銑鉄にせねばならなかった。

それならばということで目標が変わり、貧鉄石から鉄を回収し、残りのスラグ分はセメントとして活用する、すなわち銑鉄とセメントクリンカーの両者を生産する複合法<sup>17)19)</sup>として確立された。我が国でも<sup>18)</sup>1940年に同法がセメントキルンを改良してしばらく工業化された。溶銑は転炉などで精錬されるため、いわゆる高炉によらない間接製鉄法に変化したわけである。

Basset法とはほぼ同じ1930年代にドイツで開発されたStuerzelberg法<sup>20)21)</sup>が、今日の溶融還元法に直接につながってきたものと見なされる。研究の目的は、多量に貯蔵されていた未利用の硫酸滓から連続操業のできるトロンメルで鉄、亜鉛を回収することであった。原料、石炭、溶剤を炉に投入し、ガス加熱で溶解させ還元を行う。主反応は溶融酸化鉄の固体炭素による還元であろう。最初は低炭の鋼も狙ったようで、炭素の制御によって何回目かの試験で0.6% Cの溶鉄が得られている。しかし鉄歩留りを高め、既存の転炉を精錬に使うため溶銑の方が望ましいとして、最終的には今日の溶融還元法と同じように、高炉によらない鉄源をつくる間接製鉄法として完成された。1932年から実用化されたが、1952年に1基の商業炉が操業されたのみだった。高炉に比べ設備費は少ないが、操業コストは高いと評価されていた。

#### 5.2.2 SIEMENSの流れを汲むクルップ・レン法

レン法は直接製鉄法であり、鉄鉱石より直接に低炭の可鍛鉄が得られるが、当時のレン法は低歩留り、高燃料消費、炭素含有量のばらつき大などの欠点があった。

そこでドイツのクルップ社は、レン作業の歩留りと効率を高めることを目的に、ロータリーキルンによる連続作業法を開発した<sup>22)</sup>。従来のレン法が、パドル炉用のルッペを狙ったのに対し本法では、高炉で直接使用できない貧鉄石、粉鉄石をロータリーキルンでルッペにし、高炉で溶解すれば安く溶銑が得られるとし、間接法の鉄源供給を目的とした。したがってルッペの炭素含有量も0.5~1.5%と高めにし鉄歩留りを上げることができ、高炉法より安く銑鉄を製造することができた。

キルンでの還元溶解の技術はその後試みられていないが、この技術は、高品位鉄石から海綿鉄を製造する直接還元法の一つとして、その後SLRN, Krupp-Cordier, DRCなどのプロセスに引き継がれてきている。

### 5.3 溶融還元のお考え方の発展と経緯

溶融還元のお考え方が、どのような経緯でもって現在のようにならされてきたのかの概略を図1の最下段にまとめた。溶銑の炭素を還元剤として使ったり、酸化鉄を溶けたスラグ状態で還元するいわゆる直接還元反応が実施されたのは、UCHATIUS, SIEMENS, TALBOT, STUERZELBERG などの方法に見られるとおりである。しかしこれが直接製鋼法や高炉に代わるプロセスを生む原動力になるとの強い認識は、DURRER, EKETORP, ENGEL などの人々に負うところが大きいと思われる。

#### 5.3.1 DURRER 博士と溶融還元

オーストリア出身の DURRER 博士は、LD 法の発明者として有名であるが、溶融還元分野でもその反応の重要性を早くから認識していた一人であった。直接製鉄法に関し 1934 年に DURRER は次のような意見を述べている<sup>23)</sup>。直接法の目的は、鉬石から 1 工程で可鍛鉄（錬鉄と鋼）を得ること、得られた鉄はそのまま利用できること、広義にはヘガネス法のような特別なスクラップを得ることも含まれるとし、技術的には加炭を避けつつ還元を行う方法だが、まだ経済的に成立する方法がない。直接法の将来は、間接法の経済性の今後に依存する。固体炭素による還元は、“銑鉄-鉬石法”が反応速度も速いし、鉬石を過剰に添加して低炭にしるので最も将来性ある方法である。しかしこれは還元を利用する銑鉄を製造する方法でもあるので、直接・間接の複合法で純粋の直接法とは言えないと述べ、加炭によって操業を連続化することには触れていない。

DURRER は上述から 5 年後に再び直接法の展望をしている<sup>24)</sup>。直接製鋼法の一つは融点以下の温度での還元であるが、不純物を含むために精錬する必要があるれば、これは間接法以上に間接的になる。もう一つの可能性は、上述の銑鉄-鉬石法や、デンマークの ENGEL が 1938 年の文献で紹介している溶融銑鉄反応などであるが、一つの炉で溶銑を製造し、もう一つの炉で鉬石で脱炭することになり、これは決して直接法ではなく、高炉によらない間接法ではないかと評している。

さらに DURRER は、1954 年出版の“鉄の製錬”<sup>25)</sup>の中で、高炉はますます高シャフト、高品質原料という矛盾を大にしつつあり、このため高炉によらない製鉄法が待望されていると述べている。その方法として銑鉄-鉬石法を高く評価し、平炉では補助的にこの反応が利用されているが、これを主目的にした製鉄法に発展させることは原理的に可能であると考えた。

溶融銑鉄反応は、液状の炭素とその上に浮かぶ鉄鉬石の界面で行われる。精錬と再加炭を交互にやる代わりに、この両反応が同時に行われるようにすることも考えられる。おそらく酸化鉄の炭素による還元と純酸素による精錬とを、二つの反応の熱バランスを取りつつ組み合わせることで、将来の新しいプロセスが期待できる。

このように DURRER は、まことに示唆に富む意見を述べており、加炭を進めないで鉄歩留りを高めるのは困難との認識を持ちながらも、溶融還元は間接法につながるの考えよりは、この時点ではむしろ再び、溶融還元反応による直接製鋼法の可能性を強く考えていたようである。

#### 5.3.2 EKETORP 教授と溶融還元

DURRER 博士と同じように、スウェーデンの EKETORP 教授も、溶融還元反応を利用する製鉄法概念を述べている<sup>26)</sup>。カルド製鋼法で発生する CO を CO<sub>2</sub> まで燃やし、その発生熱を鉄鉬石の還元を利用すれば、約 10% 余分の鋼が冷却材としての鉬石から得られる。鉬石が消費されると同じ速度で、浴に炭素を連続的に加えることができれば鉬石から還元される量には限界がなくなり、精錬プロセスは鉬石の還元プロセスに変わる。直接法か間接法かには触れていないが、溶融還元を利用したプロセスの発展性をはっきりと示唆したものである。

さて溶融還元なる言葉がいつ頃から使われ出したのか明確ではない。製鉄プロセスを構成する一つ概念として、はっきり認識されて記述されてきたのは、DURRER や EKETORP などによって 1940 年代の終わりから 1950 年代の初めにかけてであろうと思われる。Smelting reduction なる語がはっきりと見られるのは、1962 年に EKETORP が Chipman コンフェレンス<sup>27)</sup>に文書の形で参加した討論の中である。原文では、「このようなプロセスは、溶融還元または還元溶融と呼ばれることができる。これは高い炭素含有量の浴の中の鉬石の還元によって特長づけられる。このようなプロセスを DURRER 教授は溶融炭素による還元と呼んでいる。溶融還元は新しい考えではなく、鉄鉬石が酸素源および冷却材として使われている平炉、電気炉、転炉で実施されている。またはむしろ同時に加炭が行われていないので、プロセスの一部が用いられていると言ったほうがよいかもしれない。」と述べている。

少し後になるが、EKETORP の考えを基に、1966 年にスウェーデンのストラ社でエケトープ・バラック法<sup>26)</sup>と称し、図6のような 1.5 m 径、1.0 m 高さの反応装置で溶融還元の試験が行われた。熱効率を高めつつ溶融還元反応を持続できるリアクターの開発が主目的で、現在の溶融還元法の原形とも考えられる。重油吹込みによる浴の攪拌と加炭、スラグ上での CO ガスの燃焼が一つのリアクター内で行われた。

### 5.4 溶融還元による製鉄法の開発

溶融還元反応が注目されるようになって、これを利用したプロセス開発が 1950 年代に再開された。一つの流れは直接製鋼法を目的とし、もう一つの流れは間接製鋼法における、高炉に代わる製銑法を目標にしたものだった。

#### 5.4.1 直接製鋼法の試み

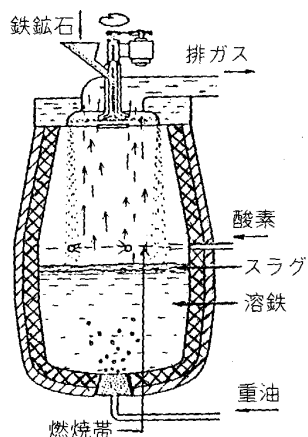


図6 エケトープ・バラック法の試験炉

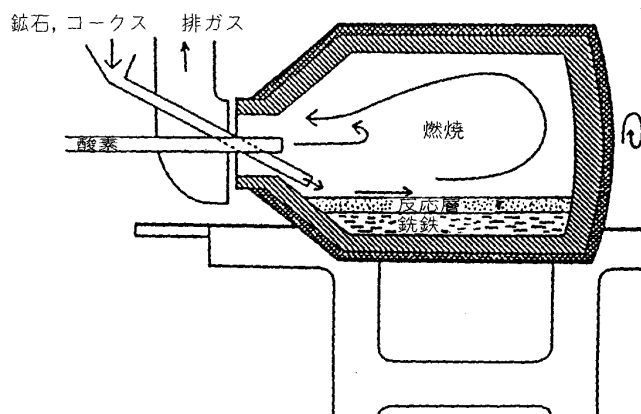


図7 DORED法の試験設備

De-Sy法<sup>28)</sup>はベルギーの大学教授 De-Sy によって研究された方法で、粉原料と電気エネルギーを使っての直接製鋼法が目的だった。2個の平炉型の誘導炉が底部でつながっており、一方の炉は鉄への加炭を、もう一方の炉は加炭された鉄へ鉱石を投入し脱炭を行うようになっている。後者では溶融還元が行われ、試験では4.0%~0.8% C までの鉄が製造されたことが報告されている。結局は実用化されなかったが、早い時期の溶融還元による直接製鋼法として技術史の中では評価される。

スウェーデンのストラ・コッパーベルグ社によって開発されたカルド製鋼法は、1956年に同社のドムナルベト工場に建設されて以後、1960年代の初めには世界で数基が稼動する状況にあった。カルド法は酸素製鋼時に発生するCOガスを炉内で燃やして、その熱でより多くの鉄鉱石を使うことを目的に開発されたもので、反応内容から見て、溶融還元プロセスの遂行にも適した装置と考えられたのは当然のことだった。

英国のコンセット製鉄会社では、このカルド炉を導入し1962年に操業を開始しているが、同じ時期にこのプロセスを直接製鋼法の開発のために応用した<sup>29)</sup>。直接製鋼法は非常に挑戦的な研究で、経済的にも意義を持つと述べられている。

実験には約250kg容量のカルド型リアクターが用いられた。加炭材としては炭素ブロックと石炭が使用された。最終的には5minごとに鉱石と炭材を供給し、これを25回繰り返す連続操業が行われた。脱炭は瞬間的だが、加炭が律速で、連続操業中浴の炭素は4%から徐々に低下し1.5%くらいになっている。最後に浴を酸素精錬し鋼とした。大きい炉ではさらに安定操業が可能で、この概念の実行が期待できるとしているが、その後の報告はなかった。

#### 5.4.2 製鉄法の試み

研究として興味あるものにルパチ法<sup>30)</sup>とベンチェル法とがある。前者はイタリアのLUBATTIによって試みられたもので、高炉で使用困難な粉原料を利用する製鉄法

として開発された。電極で加熱される溶融酸化鉄スラグが、その下の溶鉄浴との界面で溶解炭素で還元され、得られた鉄は1.5~2.5% Cの鉄鉄であった。実用化されることなく研究は終わった。ベンチェル法<sup>31)</sup>もドイツで研究された製鉄プロセスである。流動還元と溶融還元とを一つのリアクターの中で行おうとしたもので、スラグ層を電気加熱し、鉄浴での直接還元で発生するCOガスで、スラグ中またはスラグ上に流動状態を作り粉鉱石を予備還元するものであった。試験のみで発展しなかった。

先述のカルド法を発明したストラ・コッパーベルグ社が、1957年頃からカルド型リアクターを用いて、DORED法<sup>32)33)</sup>と呼ばれた高炉によらない製鉄法を開発した。カルド法では普通18%の鉄鉱石が使えることから、この溶融還元反応が続けられれば、鉱石から鉄鉄を製造できるとの考えから研究が始まった。溶融酸化鉄スラグ中に浮く固体コークスによって還元反応が行われるのが、最も有利であるとしてプロセスが開発されたといわれる。

製鉄所ですでにある製鋼炉を利用できる製鉄法を最初から狙っており、Si, Mn, Pを含まぬ溶鉄を高い鉄鉱石から製造できるところに大きなメリットがあると述べている。3t試験炉および30tパイロット・プラントが操業されたが、耐火物の損耗が大であること、回転炉設備が高価であることなどから、しばらく試験が続いたが実用化されなかった。しかしこの方法は、現在の溶融還元法につながってきた技術であると高く評価できる。図7に30t試験炉の概要を示す。

## 6. 溶融還元の課題

### 6.1 高炉によらざる製鉄法の発展

ここで改めて述べる必要もないが、高炉・転炉による間接製鉄法は、第2次世界大戦後の鉄鋼需要に支えられて著しく発展した。特に1950年代に開発された純酸素転炉は、製鋼技術のあらゆる可能性を持つもので、今日



の上底吹き転炉ではほぼ完成の域に達している。高炉も今や内容積 6000 m<sup>3</sup> 近いものも建設されるようになり、操業技術の向上もあって、安定な溶銑供給設備の役割を十分に果たせる状況にあるが、その大型化は極限に近くなっているものと考えられる。

しかしこのような間接製鉄法の一貫製鉄所は、巨大な投資を必要とし、生産変動に対する弾力性の低下、良質な石炭を必要とすることなどから、小規模な製鉄所のための新しいプロセスが待望されていることも確かである。

転炉製鋼技術は確立されているが、高炉の問題点は、投資が大、強粘結炭が必要、コークス炉の環境対策などである。このため設備投資の少ない、生産性の高い、どんな原料でもつかえるプロセスが望まれるわけである。

これを可能とするものとして、反応速度が速く、粉鉱石、一般炭の使える溶融還元技術が注目された。これに拍車をかけたのが転炉製鋼技術の発展である。転炉の酸化吹錬と酸化鉄の溶融還元とは逆の反応ではあるが、技術操作は類似しており、転炉の上底吹きの特製技術がそのまま利用できるわけである。

現在の溶融還元法は、必ずしも全部が上述の目的に沿って研究に着手されたわけではないが、今日では高炉によらざる製鉄法として期待されながら開発が進められている。なお 1970 年代以降の溶融還元法の発達については、多くの総説<sup>34)~36)</sup>があるのでそれらを参照してもらいたい。図 1 にいくつかのプロセス開発を示しているが、この中で COREX 法のみ実用化されている<sup>37)</sup>。

## 6.2 溶融還元法の課題

### 6.2.1 総括

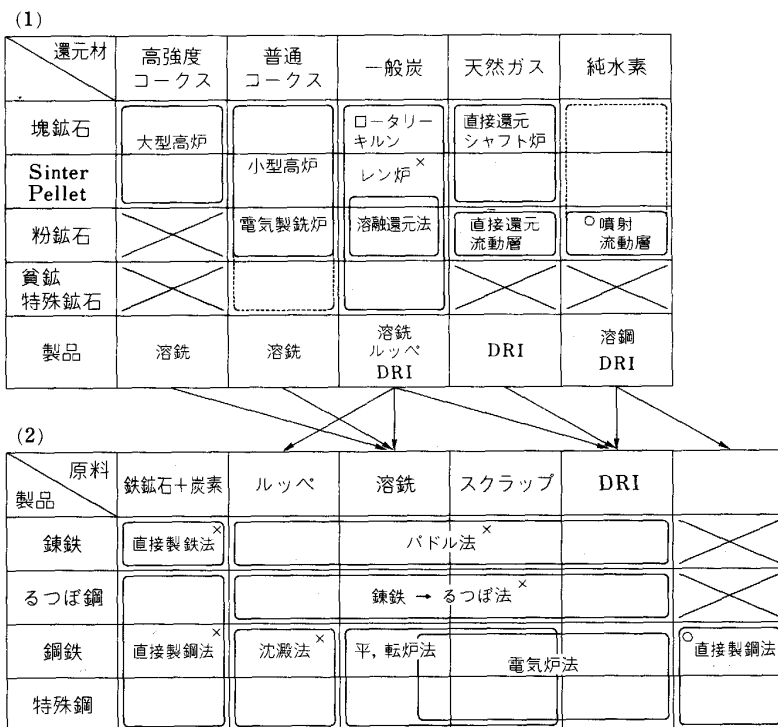
SIEMENS を最初とし、現在の溶融還元製鉄法の開発に至る技術史を概観した。多くの技術者の夢であった直接製鋼法は実現していないが、直接製鉄法は、ある意味では、電気炉のための還元鉄を製造する直接還元法の形で実現している。

図 8 に製鉄法の全体を、原燃料と製品との組合せの関係で整理してみた。図で上図は、主に鉄鉱石と還元材の組合せによる銑鉄と還元鉄の製法を、下図は原料と製品の組合せによる製鉄法を示している。図の中の枠が製法を示し、×印は組合せが無意味か、成立しないことを示している。また上表の製品が、下図で鋼を製造するためにどのようにつながっていくかも示している。小さい×印は、現在使用されていない方法を、○印は将来の方法を示す。図で示されるように、直接製鉄法の目標は錬鉄から鋼に変わり、今日では広義には還元鉄になっている。直接製鋼法はまだ成功したものはなく、溶融還元技術の目標は、高炉によらない間接製鉄法の銑鉄製造法として実用化されようとしている。これまでほとんどの組合せが試みられ、図のように埋められてしまった。この中でまだ完成されていないのが、溶融還元法と水素還元による直接製鋼法である。もちろんそれぞれの枠内での既存の方法は、より経済的なものに改善される可能性は残されているが。

### 6.2.2 技術的課題

現在開発中の溶融還元法は次のような課題を持つ。

1)特にエネルギー経済性の観点から、溶融還元炉で



の直接還元と発生ガスによる間接還元との割合をどうするかということである。後者が多くなると還元鉄を電気炉で溶解する製鉄法に近づく。問題点は直接還元反応熱の供給方法である。

2) 多くの方法では転炉型のリアクターが用いられている。酸素、粉炭などの吹込みで浴の攪拌は良好であるが、浴の表面積は小さいため、COガスの燃焼熱の伝達効率はあまり大きくならない。

3) 溶融還元の反応速度は、そのメカニズムによってかなりの差がある。各プロセスとも2~3のメカニズムが共存した形で反応が進んでいるようだが、速い反応を目指したプロセスの設計が必要である。

4) 反応機構に最適なリアクターの選択ということも重要な側面と言える。DORED法では回転炉が用いられたが、設備技術上、耐火物の損耗などから再度採用されることはなさそうである。現在は転炉型が主流だが、横型リアクターの例として銅の精錬におけるNoranda法<sup>38)</sup>がある。連続精錬を目指しカナダで1970年に実用化された。銅と鉄の精錬反応は異なるが、リアクターの設計、操業方法など参考になろう。もう一つの例はHIsmelt法<sup>39)</sup>で、横型リアクターに粉鉱石と粉炭が吹き込まれ、浴内で溶融還元が行われる。

5) 溶融還元ではスラグ層の利用が重要である。これは反応、伝熱に関与し、酸化・還元雰囲気分離帯として役立っている。またある程度の泡立ち現象を起こすが、この解析も重要である。高FeOのスラグを循環させて反応に関与させれば直接製鋼の一つの方法となるかもしれない。

### 6.3 直接製鋼法は可能か

当面間接製鉄法の技術が脅かされることはないが、それが技術的に不合理だということではなく、現在の間接製鉄法を持つ矛盾を解決するため、直接製鋼法に関心もたれている。理由は何であれ、SIEMENS以来の夢である直接製鋼法は本当に可能なのか少し考えてみたい。

最近の文献<sup>40)41)</sup>によると、米国のAISIによって直接製鋼プロセスの共同開発が進んでいる。基本的考え方は、溶融還元炉と脱炭炉を組み合わせて、前者でできるだけ低炭のセミスチールを製造し、これを後者で連続して脱炭することである。この意味では直接製鋼法と少し異なるが、従来の溶銑を連続精錬する連続製鋼法とは違うプロセスを狙っている。現在も研究が進められておりその進展が期待される。

先に溶融還元の命名者として紹介したEKETORP<sup>42)</sup>が、将来の製鉄への希望と題し、加炭・脱炭の問題を解消するものとして水素還元による直接製鋼法について述べている。電力の安いところでは、酸素で飽和した鉄を沈殿させて作った酸化鉄溶液中に、水素を吹き込んで還元すれば、炭素の関与なしに鉄が製造できるとしている。

流動層での粉鉱石の水素還元は工業化されたし、鋼へ

の少量の水素吹込みによる脱酸も試みられたが、溶融状態での水素による直接製鋼法の研究はまだ報告されていない。

## 7. 結 言

UCHATIUS, SIEMENSの時代から現在までの150年にわたる、間接製鉄法に対する直接製鉄法の挑戦の歴史を眺めると共に、将来の課題についても少し検討した。そうしてこの歴史の中で、直接製鉄法の技術として考えられた溶融還元法が、間接法の1工程である高炉に代わる製鉄法として変貌し、現在研究されつつある状況について述べてきた。

技術の成熟過程を眺めると、個々の反応の制御のためには工程が分割されて、莫大な投資を必要とする設備群になっていく。そうしていつかは巨大設備の矛盾が出てきて、全部の反応を一つに集約したプロセスが待望されるようになる。現在は製鉄工程が集約化を目指し、製鋼工程は分割化の頂点に達しようとしている。

これがいつの日か、SIEMENSの夢が実現して、直接製鋼として一つの製鉄法になるかどうか今のところは予想がつかない。しかし高・転炉による間接製鉄法は、新しい技術の挑戦を今後とも受け続けるに違いない。

## 文 献

- 1) J. V. EHRENWERTH: *Stahl Eisen*, **10** (1891), p. 978
- 2) S. EKETORP: *J. Iron Steel Inst.*, **204** (1966), p. 944
- 3) K. C. BARRACLOUGH: *ISI Proc.*, Alternate route to steel (1971年5月), p. 1
- 4) L. BECK 著, 中沢護人訳: 鉄の歴史, IV (1972) No. 3, p. 116 [たたら書房]
- 5) 同上, p. 121
- 6) H. LOEBNER: *J. Iron Steel Inst.*, **57** (1900), p. 365
- 7) 文献4), p. 122
- 8) 文献4), p. 8
- 9) *Stahl Eisen*, **3** (1883), p. 253
- 10) B. TALBOT: *J. Iron Steel Inst.*, **57** (1900), p. 33
- 11) *Stahl Eisen*, **31** (1911), p. 1391 (Umshau)
- 12) *Stahl Eisen*, **47** (1927), p. 1913 (Aus Fachverein)
- 13) *Stahl Eisen*, **61** (1941), p. 141 (Umshau)
- 14) F. WUEST: *Stahl Eisen*, **41** (1921), p. 241
- 15) F. WUEST: *Stahl Eisen*, **47** (1927), p. 115, p. 955
- 16) R. DURRER: *Stahl Eisen*, **56** (1936), p. 268 (Umshau)
- 17) K. E. JENSEN: *Stahl Eisen*, **72** (1952), p. 1466 (Umshau)
- 18) 大原久之: 鉄と鋼, **25** (1939), p. 1
- 19) P. P. CALLADO: *Tonid-Ztg.*, **60** (1936), p. 123
- 20) F. EULENSTEIN and A. KRUS: *Stahl Eisen*, **57** (1937), p. 7
- 21) H. REINFELD: *Giesserei*, **38** (1951), p. 517
- 22) F. JOHANNSEN: *Stahl Eisen*, **54** (1934), p. 966
- 23) R. DURRER: *VDI Zeit.*, **78** (1938), p. 513
- 24) R. DURRER: *Stahl Eisen*, **50** (1939), p. 431
- 25) DURRER 著, 金森九郎, 浅井一彦訳: 鉄の製錬 (1951) [丸善]
- 26) S. EKETORP: *Ironmaking Proc.*, **27** (1968), p. 36
- 27) S. EKETORP: *Steelmaking (The Chipman Conference)* (1962) June, p. 269
- 28) A. de Sy: *J. Met.*, **11** (1959) 4, p. 265
- 29) T. F. PEARSON, C. G. ARMSTRONG and D. R. CARTRIGHT: *J.*

- 
- Iron Steel Inst., **197** (1961), p. 1
- 30) C. RESCHKE: *Stahl Eisen*, **74** (1954), p. 291 (Umshau)
- 31) W. WENCHEL: *Stahl Eisen*, **79** (1959), p. 1183
- 32) A. JOSEPHSON, E. BENGTSOON and K. ALMGQUIST:  
*Ironmaking Proc.*, **23** (1964), p. 275
- 33) A. JOSEPHSON, E. BENGTSOON, K. ALMQVIST and A.  
JOSEFSSON: *J. Met.*, **16** (1964) 4, p. 337
- 34) E. STEINMETZ, R. STEFFER and R. THIELMANN: *Stahl  
Eisen*, **106** (1986), p. 421
- 35) R. B. SMITH and M. J. CORBETT: 1988 Process Tech. Conf.  
*Proc.*, **7** (1988), p. 147
- 36) F. OETERS and R. STEFFER: *Stahl Eisen*, **109** (1989),  
p. 728
- 37) *Steel Times Int.*, **13** (1989), p. 12
- 38) P. TARASSOFF: *Metall. Trans. B*, **15** (1984), p. 411
- 39) *Steel Times Int.*, **13** (1989), p. 26
- 40) P. J. KOROS: *Steel Res.*, **60** (1989), p. 125
- 41) W. HUSKONEN: *33 Metal Producing*, **28** (1990), p. 42
- 42) S. EKETORP: 1988 Process Tech. Conf. *Proc.*, **7** (1988),  
p. 219
-