

塊成化技術の最近の進歩

稲角 忠弘*

Recent Progress of Iron Ore Agglomeration Technology

Tadahiro INAZUMI

Synopsis : Sintering technology has evolved steadily in the last decade by upgrading specifications of apparatus around the sinter strand and by the sophisticated process control methods. In order to use much difficult-to-sinter raw material without decreases of productivity and product yield and also deterioration of quality, new types of granulation systems for control of mineral constitution formation, such as HPS (Hybrid Pelletized Sinter) Process, CaO Selective Pregranulation Process and Self-Densification and High-Melting-Point Liquid-Phase Sintering Process, have been developed and installed successfully. Increased productivity has been achieved through improving product yield and permeability in sintering bed by the development of new types of raw mixture feeder, such as ISF (Intensified Sifting Feeder) etc., and by the technology of homogeneous sintering both horizontally and vertically in the bed, such as SECOS (Sintering Energy Control System) etc. In addition, older and less efficient sintering machines are closed, converging on large-scale and small number machines which in turn renewed process control system based on artificial intelligence and introduced high-efficient and compact environmental systems as replace of old ones.

Eventually, the major improvements have been achieved in four items:

- (1) Increase use of cheap raw materials such as limonite ore and pellet feed.
- (2) Reduce production costs by productivity increase with high product-yield and by man power saving.
- (3) Upgrade sinter quality in slag volume and reducibility for acceleration of PCI injection to blast furnace.
- (4) Reduce environmental impact with use of high efficient apparatus.

Key words : agglomeration ; sintering process ; productivity ; product yield ; quality ; environmental system.

1. 序

鉄鉱石焼結では、近年、資源対応力の強化、生産性の向上および焼成の安定化による品質、歩留の改善を目的とした技術開発が活発に進められ、焼結設備仕様の向上、操業のシステム化が積極的に進められた¹⁻³⁾。

原料研究では、生産率、品質に悪影響を及ぼす高結晶水鉱石、高品位微粉鉱石の使用の改良技術として、鉱石特性に基づいた焼結反応制御技術が実用化^{4,5)}、難焼結性のため廉価である両原料の多量使用を可能にし、原料コストの低減に寄与した。焼結機の製造コストの改善では、大型機への生産集約による生産性の向上とともに、高通気・高歩留技術の開発やAI(Artificial Intelligence)システムの導入により、焼結層の焼成の均一化・安定化が進み、生産率が向上とともに歩留が改善した。さらに、この原料使用技術や焼成技術の進歩で焼結鉱の品質が安定化して、低スラグ化、被還元性向上の面の改善が進み、高炉の操業安定化とPCI多量吹き込みの促進に寄与した。

省エネルギー・省資源の取り組みでは、オイルショック後に達成した「高位の省エネルギーレベル」を維持しつつ

熱源のコスト低減が推進され、廉価原料の無煙炭使用が定着し、リサイクル原料の利用研究が進められた。環境対策技術では、設備老朽更新期を迎え、高性能高効率でコンパクトな設備の開発と導入による更新が進んだ。

2. 焼結鉱生産の推移と最近の鉱石事情

2・1 高炉原料構成の推移

日本の焼結鉱総生産量は、若干の生産減傾向にあるが、この10年間、9千万tから1億tの範囲内で推移している^{6,7)}。高炉原料の構成では焼結鉱比率が75~77%、ペレット比率が7%、塊鉱石比率は15~16%でほぼ一定している^{6,7)}。この間、世界の焼結鉱生産量は5億3千万~9千万tで、欧州では環境問題等からこの10年で約1千万t余り減産したほか経済体制転換により旧ソ連圏での生産の落ち込みがあったが、逆にアジア地区ではこの10年で5千万tを上回る増産があり、全体で5億t台でほぼ一定して推移している⁸⁾。世界のペレット生産量は1億9千万tから2億3千万tの範囲にあり、最近では直接還元鉄の需要増で増産傾向にある。日本国内では3百数十万t生産され、5百万t弱輸入されている。直

接還元鉄はペレットのみならず、鉱山の塊鉱比率が低下傾向にある塊鉱石の供給タイト化に拍車をかけている。この10年高炉原料の量的構成の変化は小さかったが、原料のソースは徐々に変化しつつある^{7,9,10}。鉄鉱石の2大ソースである豪州、ブラジルの高品位ヘマタイト鉱石の大規模鉱山の増産余力がなくなりつつあり、周辺の衛星中型鉱床の採掘が増し、豪州では高結晶水鉱石、ブラジル鉄四角地帯ではソフトイタビライトの採掘比率が増している。この変化につれて鉱石の塊鉱比率が減少し、粉鉱が細粒化し、豪州では鉱石中結晶水の増加、ブラジルでは原鉱石中シリカが上昇傾向にある。

2・2 焼成ペレットとペレット・フィード

(1) 焼成ペレット

焼成ペレットの高炉での使用比率は、オイルショック時のペレット価格の高騰を契機として、10%台から7~8%まで漸減してきている⁷。ペレットのコストは燃料の石炭系への部分転換、排熱回収率の向上等により改善されてきた。さらに、高炉での低スラグ評価が高まり、また高炉でのコークス中心装入技術の開発などのペレット安定使用技術の進展があった。しかし、一般的には割高なことと、直接還元鉄への需要増で供給がタイトなこともあり、高炉での使用比率が従来以上に増す方向にはない。今後、直接還元鉄の成長見通しが強いことと、また資源の劣化進行により選鉱を強化しなければならない鉱山事情があることも含めて、鉱山元としては付加価値の高いペレットの生産に意欲的であり、世界的にペレット工場は増設の機運にある。1994年にヴェネズエラに、1995年にスウェーデンで新工場が稼働し、各地で建設、新設計画が進められている¹¹。

(2) 高品位微粉鉱石

高品位微粉鉱石であるペレット・フィード(PF)、微粉コンцентレート(微粉精鉱)は本来ペレット用原料ではあるが、資源供給国内において、鉱山からの供給量とペレット生産量とのアンバランスから発生した余剰分、もしくは鉱山元でペレット生産の立地化ができないものが国際マーケットに出され、高炉メーカー立地のペレット工場用や焼結用原料として比較的low価格で取り引きされている。焼結原料として使用するには一般に微粉で造粒し難く、従来は生産率低下、品質悪化などの弊害がでていたため廉価であり、しかも成分的には高品位なため、そのメリットを活用する目的の研究が積極的に進められた。その結果、日本では焼結用、ペレット製造用を併せて年間約1千万tが購入され、安定して使用されている。なかでもHPS(Hybrid Pelletized Sinter)⁴⁴の技術開発は、高品位微粉鉱石の多量使用を可能にした¹²。今後も、ペレット需要とのバランスで弾力的に使用されていくものと考えられる。

2・3 焼結用粉鉱石原料の変化

焼結原料は、量的にはその需給はほぼバランスがとれている。これを反映して、需給がタイトな傾向にあるペレ

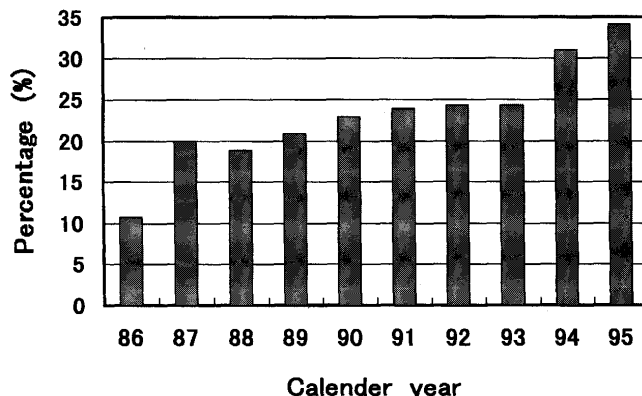


Fig. 1 Ratio of limonitic ores by imported fine ores (Pisolite type ore + Marra Mamba type ore) to Japan. (Courtesy of Japan Iron and Steel Federation)

ト、塊鉱石と粉鉱石との値差(プレミアム)は近年拡大の傾向にあり¹¹、粉鉱石は相対的に割安となっている。さらにここ数年の焼結原料の変化の特徴として、高結晶水鉱石使用比率が増大し、また低スラグ化指向として高品位微粉鉱石が安定使用され、砂鉄使用比率も低下した。特に、高結晶水鉱石の使用比率の増大は顕著である(Fig. 1)。鉄鉱石価格に占める輸送コストの比重が大きいため、近距離の豪州鉱石の使用が経済的であり、中でも難焼結のため廉価な高結晶水鉱石の使用拡大が有利であり、その使用比率の増加に成功してきていることを示す。

2・4 鉄鉱床の生成プロセスと今後の使用対象鉱石

現在、世界の鉄鉱石供給量の9割以上が³、シリカと酸化鉄の互層からなる縞状鉄鉱層由来の鉱石であり、鉄鉱石中の鉄品位、結晶水(%), アルミナ(%)の違いは原岩および鉱石富化過程の差による。豪州、インド・ゴア鉱石が一般的に他の地区より結晶水、アルミナ成分が高いのは、縞状鉄鉱層中に難透水性で高アルミナの頁岩層が挟み層として存在するためと考えられている¹³。縞状鉄鉱層原岩が鉱石になるための鉄分の濃集は、原岩中のシリカが天水富化作用(化学作用)により溶脱し、入れ替わって褐鉄鉱が沈積しヘマタイトが再結晶することによる。その際頁岩層は天水による鉄溶解液を保持して褐鉄鉱の沈積、ヘマタイトの再結晶の環境を整える効果があると考えられている¹³。褐鉄鉱はさらに変成作用(加熱、加圧作用)を受けるとヘマタイト化および脱磷が進み結晶水3%以下の緻密質高品位ヘマタイト鉱石となる¹³。これが低磷のブロックマン層鉱石で、今まで採掘の主体となってきた。ヘマタイト化が途中まで褐鉄鉱の抽出が止まると褐鉄鉱比率が高くなり、結晶水が3~5%とやや高めで、脱磷も進み方が少なくなる。これが高磷ブロックマン鉱石で、現在未利用で膨大な資源がある。また原岩の磷が低いため磷は低いが、ヘマタイト化が少なく結晶水は5~7%とさらに高いのがマラマンバ鉱石で今後開発対象となっていく鉱石である。さらに、上記成

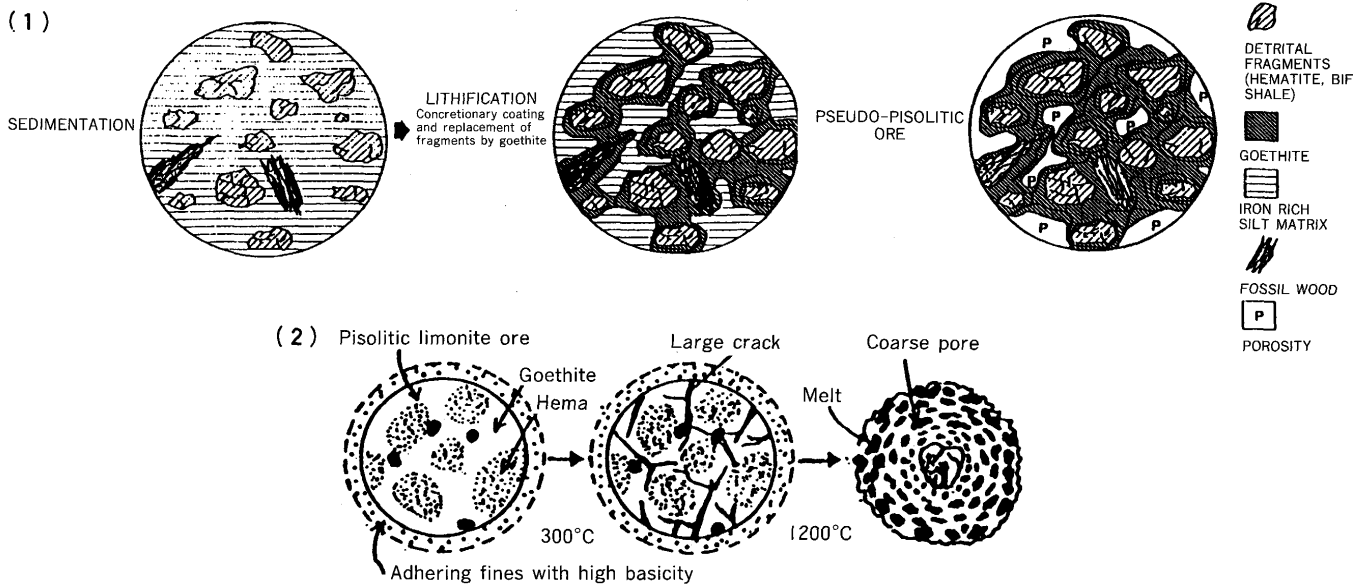


Fig. 2. Schematic illustration about genesis of Pisolite type ore and its constitutional changes during sintering. (1) Geological formation of pseudo-pisolitic limonite (Courtesy of C.E. Loo)¹⁴⁾ (2) Assimilation behavior of pisolitic ore (Courtesy of Y.Hida)¹⁴⁾

因とは異なり、縞状鉄鉱層原岩の碎屑片あるいは溶解鉄分が谷底に流下し、再沈積して鉱石となったピソライト・タイプの鉱石がある。褐鉄鉱が主成分(結晶水>7%)の鉱石で、少量のヘマタイト等の核の周囲に褐鉄鉱が凝集、結晶成長した特徴的な組織を示す(Fig. 2)。褐鉄鉱100%の結晶水含有量は、鉱物がゲーサイトだと10.1%であり、高品位鉱では5%がヘマタイト主体の鉱石か褐鉄鉱主体かの分かれ目となり、一般に5%以上が高結晶水鉱石もしくは高褐鉄鉱鉱石と呼ばれている¹⁴⁾。近年その使用拡大に成功してきている(Fig. 1)が、低磷鉱石(P<0.08%)の残存鉱量は高結晶水鉱石が過半数を占め¹³⁾、今後採掘は増加していくと予想される^{9,10)}。

因みに、ブラジルの縞状鉄鉱層には頁岩層の挟みが非常に少なく、鉱石中の褐鉄鉱は酸化鉄の地表近くの風化による生成が主体で結晶水<3%と含有量が少なく、アルミナも低い。また褐鉄鉱沈積も抽出作用の方が強くてほとんど残らず、強い動力変成とか表層の風化で塊化した層を除いて一般に塊鉱比率は低い。天水富化作用は鉱床の深部ほど弱くなり、粗鉱の粉が増加しシリカが高くなる傾向にあり、選鉱を必要とする鉱石の比率も増加傾向にある^{9,10)}。

3. 焼結生産技術の最近の進歩

3.1 焼結生産性の向上

日本の焼結鉄総生産量は、上述のようにここ10年間大きな変化がないが、その生産構造は著しく変化した。焼結機数は小型老朽機の休止により1985年の41機から現在は28機まで減少し、また3機は機長を延長し、大型機への生産集

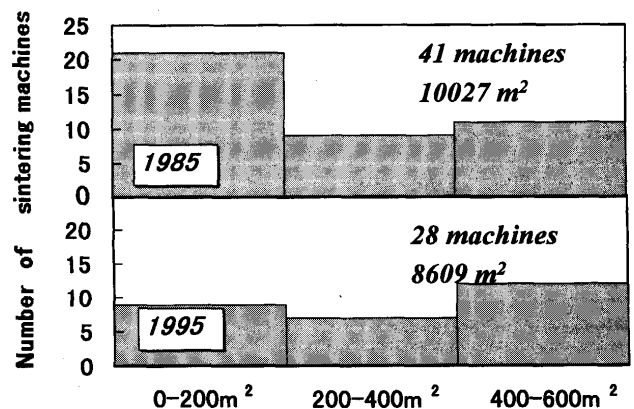


Fig. 3. Trend of sizes of sintering machines for the last decade.

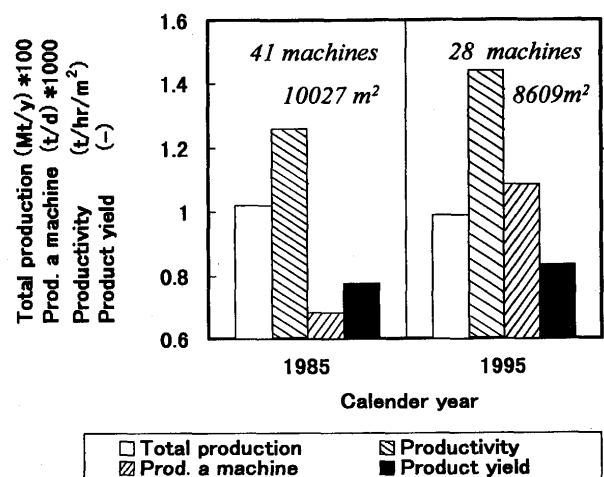


Fig. 4. Productivity improvement of sintering plant for the last decade.

約が進んだ (Fig. 3¹⁵⁾)。その結果、総有効焼結面積は1985年の10027m²から8609m²まで14%減少した。しかし、生産技術の進歩により、生産速度の向上および歩留の改善 (成品歩留+5.9%)で、生産率は1.26t/h/m²から1.44t/h/m²へ14%向上し、総生産能力は低下することなくほぼ維持された (Fig. 4)。生産性の変化を焼結機1機あたりの1日生産量の全国平均値の変化でみると、1985年6816t/dであったものが1995年には10815t/dとなり約6割向上した (Fig. 4)。運転制御室の統合、システムの更新による焼結機運転の効率化・部分自動化等で省力化も進められ、機数集約と併せて、労働生産性の改善は飛躍的に進んだ。NKK福山製鉄所では複数焼結機の並行運転で1機の無人運転が達成された¹⁶⁾。また、焼結機周辺の原料ヤード機器および、サンプリング装置・試験機器の自動化、設備管理のシステム化も一段と進み、省力効果とともに、原料水分・成分の変動減少による焼成安定化効果もたらされた。なお、焼成エネルギーはオイルショック後に達成した高位の省エネルギーレベルを維持しつつ、高生産率下においても着実に1600MJ/t台で推移している。

3・2 焼結鉱品質の改善¹⁵⁾

高結晶水鉱石および微粉鉱石の使用増加、生産率向上のいずれの条件も、従来は焼結鉱の品質を悪化させる要因であったが、最近はこのような条件下にもかかわらず技術力が向上し、改善された。高炉操業を安定させながらPCI吹き込みを促進するために必要な焼結鉱品質として、高炉下部での熱バランスおよび通気を改良するスラグ量低減と被還元性向上が必要であり、その面での改善が進んだ (Fig. 5)。焼結鉱粒度および強度、RDIを維持させながら、これらの品質が改善されたのがもうひとつの特徴である。被還元性は、実績としてJIS・RIで65%から67.7%へ着実に向上した。焼結鉱シリカは全国平均値で10年前5.5%台であったものが現在5.2%台まで低下した。中でも、最近、NKK福山5号焼結機においてはシリカ3.9%の日本新記録操業が達成された¹⁷⁾。低減されたスラグ成分はシリカ、マグネシア、チタニ

ア成分であり、アルミナ濃度は約1.8%とほぼ横這いで変化がない。なお、FeO成分が低スラグ化とともに若干上昇した (Fig. 5)。アルミナ、結晶水の悪影響をFeOで安定化する研究^{18,19)}もあり、また、最近スウェーデンで開発されたシリカ1.5%のOPT焼結鉱は高FeOでも細孔分散型組織にすることにより高被還元性にでき²⁰⁾、実際に北欧では高炉効果が確認され、実機化が推進されている²¹⁾。

4. 焼結基礎研究の進展

4・1 焼結構造の理解 (不均一構造の解析)

焼結技術の最近の進歩は、主として焼結鉱の構造についての理解に負うところが大きい。焼結反応は、鉱石粒子間の鉱物組織形成に関わるマイクロ構造変化であると同時に、焼結層全体の通気・伝熱・コークス燃焼を維持継続させるマクロ構造変化とが一体化したもので、両変化をバランスよく進める必要がある。葛西、大森⁴⁾は「焼結プロセスの重要な特徴点は層内の不均一性であり、ガス流れおよびコークス粒子・原料粒子配置の不均一に由来するものであるが、部分熔融による原料粒子の結合と再配列で焼結構造が形成される通常の焼結温度では構造粘性が高くて不均一構造が残り、また過剰に熔融すると焼結構造が維持できずに融着塊ができ、いずれの場合も不均一焼結になり易い」と解説し、さらにこの不均一特質の観点から焼結最適化課題や改善案「2層ペレット法」を提案した。また、この間、原料特性評価のための鉱物組織形成シミュレーション手法も高度化され、X線CT等によるマクロ焼結構造の解析技術も開発され、複雑で不均一な焼結構造の解明に進展がみられた。

4・2 鉱石特性と焼結鉱組織形成

4・2・1 鉱石特性研究の進展

焼結反応での鉱物組織形成には、早くから知られている鉱石の溶融性難易度²²⁾や同化性²³⁾の影響に加え、さらに融液の流動性の影響についての理解が深まった^{14,24)}。また鉱石単体の特性把握から、焼結鉱の実際条件を想定した異種原料粒子間の反応特性の解析が進んだ¹⁴⁾。石灰石、蛇紋岩などの副原料の特性解析も進んだ²⁵⁾。

4・2・2 高結晶水鉱石について

(1) 高結晶水鉱石多量配合の影響

高結晶水鉱石の多量配合の実機試験が行われ、その影響が詳細に解析された¹⁴⁾。高結晶水鉱石は単純多量配合では生産率低下、歩留悪化が顕著になる。品質では強度が低下するが、被還元性は改善する。RDIの影響には機差がある。高結晶水鉱石の影響は、焼結反応への影響と鉱石およびケーキのかさ密度の低下にあり (Fig. 6)¹⁴⁾、また通常高アルミナの影響が重なっている。結晶水の焼結反応への影響は、結晶水の分解に関わる分解熱、水蒸気凝縮の影響と結晶水の加熱分解で生成する大亀裂の影響とに大別される。褐鉄鉱の分解は300°C付近で急速に起こり、分解熱は225J/g-褐鉄

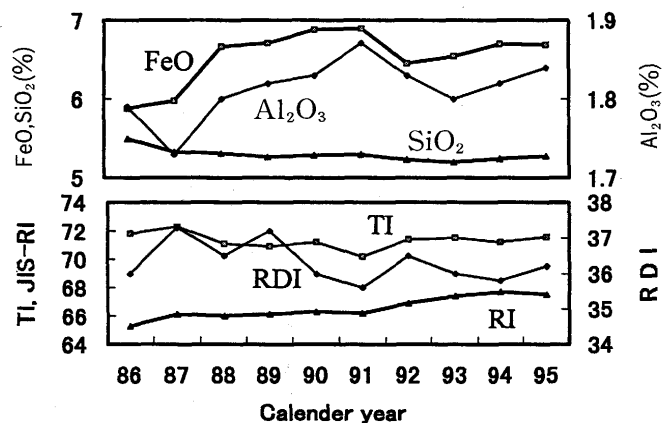


Fig. 5. Trend of sinter quality for the last decade.

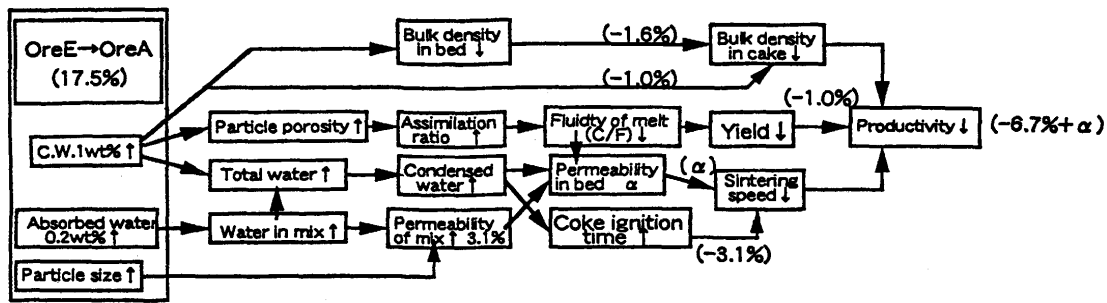


Fig. 6. Flow diagram of influence of limonitic ore on sinter productivity. (T.Kawaguchi¹⁴⁾)

石である。必要熱量は、自由水の蒸発熱とほぼ等しく、川口ら¹⁴⁾はあたかもヘマタイトに水が付着しているに等しいと考察した。また水蒸気の伝熱改善のプラス効果も考慮したヒートパターンの影響の解析をした。発生水蒸気の湿潤層への水分凝縮量は焼結層内のガスの露点温度と配合原料温度差から決まり焼結機で影響に差がある。

褐鉄鉱中の結晶水が加熱分解すると気孔が生成され、さらに500~900°Cになると大亀裂が発生する鉱石がある。特にピソライト鉱石では核鉱物とその周りの褐鉄鉱物 (Fig. 2) との加熱変形の差から大亀裂が発生する^{14,26)}。この亀裂も1300°C以上の高温に保持されると、褐鉄鉱から分解生成したヘマタイトの再結晶作用により消滅する (Fig. 2)^{14,26)}。褐鉄鉱も成因的に多様で、熱分解による亀裂、気孔のできかたなどに差があることが明らかにされつつあり、鉱石を使用技術の観点からの確に定義、分類し、細分類することの必要性が指摘されている¹⁴⁾。

通気性への気孔の影響については、一般には気孔の増加が通気改善に連なるが、ピソライト鉱石使用時にはよくなる¹⁴⁾。この原因は亀裂、気孔形態が通気に適していない閉塞構造になっているためと考察された¹⁴⁾。さらに閉塞構造形成については以下の原因が考察された。すなわち、焼結反応初期に、結晶水の分解で生成した亀裂・気孔があると周囲の融液が急速に浸透し同化が進むが、その時酸化鉄濃度が上昇して融点が高くなるとともに、同時に粘土鉱物成分が溶解して融液の粘性が上昇し、急激に融液が流動し難くなり、気孔の再配置・統合が阻害され、閉塞的な通気構造となる¹⁴⁾。また、過溶融した場合にも、多孔性の核鉱石は骨組が維持できずに岩盤状融着塊を形成して通気を阻害する構造になることが松村らのシンターケーキの解析で明らかにされた¹⁴⁾。結晶水分解で生成される亀裂、気孔の強度への影響では、強度欠陥である気孔率の増加により低下すると一般に理解されているが、さらに大山ら¹⁴⁾は気孔径の影響が強いことを解析した。また、同化で生成されるガラス質基質の影響があることが肥田らにより指摘されている¹⁴⁾。被還元性の改善は多孔質化に由来する。RDIの悪化は多孔質、脆弱基質からくる強度の弱さと還元容易なヘマタイトの生成が重なった結果と考えられる。

(2) 亀裂、粗大気孔の生成メカニズムとその抑制法の研究
亀裂は、融液と接触させないで塊状石単体の加熱実験では1300°C以上で消滅するが、ピソライト鉱石を核とした周囲の融液との同化の過程では粗大気孔となり⁵⁾、一度形成すると容易に変化し難く、粗大気孔が消滅しないメカニズムが存在することが大友らにより解明された²⁷⁾ (Fig. 2)。亀裂、気孔の消滅を左右する因子として重要なのは融液の流動性で、融液との接触同化を抑制して自己緻密化を促進することが有効なことが解明され^{5,14)}、これをシーズとしてピソライト鉱石多量使用技術の開発が多面的に展開された。肥田⁵⁾はそれらの技術を解説し下記の分類をした。

- 1) 緻密質(または低結晶水)微粉(PF)との配合法
- 2) ミルスケール添加法(工場実験)
- 3) 保護層形成法(蛇紋岩, 転炉滓, PF)(鍋, 工場)
- 4) 自己緻密化焼結法(実機化)
- 5) 微粉コークスとの予備造粒法(鍋)
- 6) 事前加熱法(鍋)
- 7) 塊ピソライト鉱石床敷法(工場実験)

4.2.3 アルミナの影響の解析

アルミナの焼結、高炉への影響の実機実験結果例²⁸⁾を Table 1 に示す。先に欧州で明らかにされたアルミナ低減効果の解析結果²⁹⁾とよく一致し、アルミナが増加すると強度が低下し、低温還元粉化、高温還元率、軟化溶融性状が悪化し、生産率が低下する。この原因は劣質のアルミナ含有ヘマタイトやカルシウムフェライトが生成するためと理解されているが、加えてアルミナによる融液の流動性低下がシンターケーキの通気網構造やボンド形成を阻害することも原因となることが解析された³⁰⁾。融液の流動性低下は、アル

Table 1. Changes of sintering operation performance and sinter quality with the change of alumina content in sinter²⁸⁾.

	Al ₂ O ₃ %	SiO ₂ %	FeO %	JIS-RI %	RDI %	SI %	Pt. t/d/m ²	Yield %	Coke kg/t	Quick- lime%
Base	1.82	5.15	7.51	61.6	31.5	89.8	34.4	83.0	52.2	1.20
Step-1	1.61	5.32	6.25	67.8	32.9	89.8	36.7	83.3	45.9	1.17
Step-2	1.55	5.04	7.32	65.2	34.4	90.0	36.1	81.8	48.3	1.46

ミナ濃度が0.3%程度のわずかな上昇でもカルシウムフェライトの融点を上昇させ融液が減少することによる²⁹⁾。アルミナ成分の融点上昇は状態図で明らかにされているが、最近、鉍石同化実験で脈石のアルミナ成分が融点を上昇させることが解析された³¹⁾。他方SiO₂5%以下の低スラグ焼結ではアルミナの鉍物への固溶度が減少し、影響が異なるとの指摘がある¹⁴⁾。

4・3 焼結層構造の解明

4・3・1 シンターケーキ構造の解析技術

シンターケーキは焼結鉍の母体であり、焼結構造を総合して観察、解析できる試料である。シンターケーキ断面の肉眼観察定性評価が主体であった従来の解析法に加えて、研磨面の画像解析による気孔率分布、クラスターサイズ測定などの定量化が進められた³²⁾。また新たにCTの画像解析システムが開発され、非破壊3次元可視化観察、焼結構造のキャラクタライゼーションの研究が進められた³³⁾。焼結層内の複雑な空隙・気孔、ボンドの構造をはじめ、焼成の不均一性などについての詳細な構造情報が増し、通気や歩留との関係についてのケーキ構造の意味についての理解が深められた。

4・3・2 シンターケーキ構造の形成メカニズム

焼結反応の気孔生成については、国分ら³⁴⁾は焼結過程での気孔率変化の要因解析から溶融率の上昇に伴って空隙の粗大化が進み、シンターケーキの破碎時に空隙が解放され消滅すると解析した。また結晶水含有率の高い鉍石からの気孔は焼結溶融部内に残存し、ケーキの破碎工程を経てもほとんど粒子内にとどまると解析した。葛西、大森³²⁾はシンターケーキ断面の画像解析から空隙率(気孔率)が層高方向に約15mmを周期とする規則的変化を有することから、ある部分の緻密化は同時にその周辺で空隙率が増大すると考察した。著者らは³³⁾CTによるシンターケーキ構造解析で、焼結反応での固体ボンド(クラスター)形成と気孔構造の変化は

同時に並行して進行することをブランチの指標を用いて定量化した。すなわち、焼結が進行し、原料粒子、原料粒子間の空隙気孔の結合が進むとブランチ密度³³⁾(クラスター個数、気孔本数)が低下し、ブランチ径³³⁾(クラスターサイズ、気孔径)が大きくなり、さらに過剰に焼結すると巨大サイズと微小サイズとに二極化することを解析した³³⁾。

さらに、シンターケーキ構造の幾何学的特徴はフラクタルであることを見いだした。フラクタル理論によると、焼結反応で同時に並行して進行する塊状化・緻密化・気孔構造変化はパーコレーション理論に則った変化であり、その構造変化は原料粒子間の結合の確率に左右され、それに基づいた数学モデルを開発した³⁵⁾。また、実際の操業因子、原料要因がシンターケーキ構造形成へ及ぼす影響を解析した³³⁾。

4・3・3 気孔構造と通気の関係

葛西ら³²⁾はシンターケーキの気孔率、気孔径を実測し、ERUGUNの式で計算した圧力損失値は実測の圧力損失値との差が大きいことを解析し、ケーキ中の空隙の形状は不規則で多くのチャンネルを有しているため、粒子充填構造の通気とは異なることを考察した。また過剰溶融の融着塊は通気が横流れの偏流構造を惹起することを指摘した。笠間ら³⁶⁾はCT画像から、通気に有効でない閉気孔および端末気孔を画像上でカットし、通気に有効な貫通気孔のみをとりだして、気孔のブランチ密度、ブランチ径を測定し通気性を評価した。このブランチ指標が気孔率よりも通気抵抗への影響が強いことを見だし(Fig. 7)、従来の気孔率増加手段と異なる通気改善シーズを呈示した。さらに、貫通気孔で構成する通気網にキルヒホッフの法則を適用し、焼結層内におけるガス流れ分布をシミュレーションする方法を開発した。

4・3・4 シンターケーキ構造と歩留・強度との関係

八嶋ら³⁷⁾は焼結鉍球形試験片の圧縮破碎実験を行い、開気孔の気孔率が強度に支配的な役割を果たすことを見だし

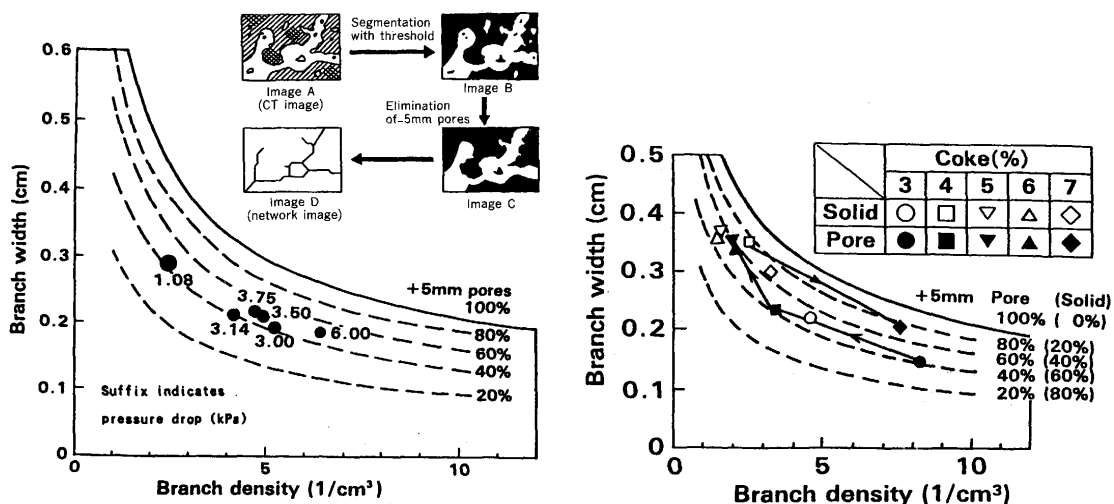


Fig. 7. Characterization of permeable pore in sinter cake with branch indices.

た。また破碎エネルギーの評価から、焼結鉱は脆性材料に近いと考察した。著者らは³³⁾CTを用いて、未焼結部分の定量化法を開発し、歩留との関係や未焼結粉の焼結層内の発生位置を解析した。またシンターケーキの歩留、強度と粒子間の結合の大きさ(クラスターサイズ)との関係を解析し、クラスター径が平均値として最大化するところが最大歩留、最大強度になることを示した。また平均値が最大になる時は、クラスターサイズ分布がフラクタル分布であることを示した。焼結反応ではクラスターサイズと気孔径とが同時に並行して変化し、上記結果は気孔の粗大化も影響しているとの解釈ができ、ボンド、気孔両者の不即不離の変化が反映された結果と考えた。また、学振WG活動として焼結・コークスの破壊力学的検討³⁸⁾が進められ、セラミック、コンクリート、岩石の専門家間の研究交流があり、焼結体のような脆性体強度は材質強度よりも亀裂、気孔などの欠陥の影響が大きく、鉱物単体強度の荷重平均で強度を推定するのは難しいことなどが議論された。さらに、大山ら³⁹⁾はシンターケーキの強度に及ぼす基質強度と気孔構造の影響について要因解析をして構造式を明らかにし、気孔径分布指数の影響がそれらの中でも大きいことを解析した。

4・4 焼結鉱品質の基礎研究

焼結鉱品質は、鉱物組成(構成鉱物の種類と量)に左右されるが、気孔、結晶形態を含めた鉱物組織(テクスチャー)の分類が決定要素になるとの認識が進み²⁶⁾、坂本ら⁴⁰⁾は合成実験でこれを確証した。なかでも針状カルシウムフェライトを特徴としたヘマタイトと微細気孔で形成する鉱物組織が被還元性、RDIを満足させ、高温性状も満足する良好な組織である。同組織は昇温するとヘマタイトと融液に溶融分解し、さらに高温になるとマグネタイトと融液になり、融液の凝固時には被還元性が劣る柱状カルシウムフェライトとして再結晶化する。原料特性との関係では、高品位微粉鉱石は同組織の形成を促進することが知られている。この、品質への影響の大きいカルシウムフェライトの還元とその生成メカニズムについての基礎研究がこの10年大きく進展した。従来、純粋カルシウムフェライトの状態図しかなかったが、実際成分に該当する4元系カルシウムフェライトの還元平衡状態図および還元速度が解明された⁴¹⁾。また高炉内でのカルシウムフェライトの還元メカニズムの解析も進んだ⁴²⁾。純粋カルシウムフェライトの還元過程と異なり、CaOなどのスラグ成分を放出しながらマグネタイト、ウスタイトのかたちで金属鉄に還元することが解明され、アルミナ含有カルシウムフェライトは、ガス還元主体の1000℃以下では還元性はいいが、融液が発生すると急激に低下する理由が明らかにされた⁴¹⁾。また、生成メカニズムについては、レーザーフラッシュ法により温度・雰囲気・化学成分パターンの鉱物組織マップが明らかにされ⁴³⁾、DTA法によりカルシウムフェライト生成溶解の基礎が解析された¹⁴⁾。これらの基礎研究は鉱物組織制御研究の大きな支えとなっている。

5. 焼結機の機能改善

近年、原料特性や焼結構造の研究成果を活用して設備改造やシステムの更新が進められ、焼結機の機能が着実に向上した。

5・1 造粒機能の向上

造粒工程では、ドラム運転の最適化検討とともに、一部の焼結機では新造粒機の導入を含めて、反応制御を目的と

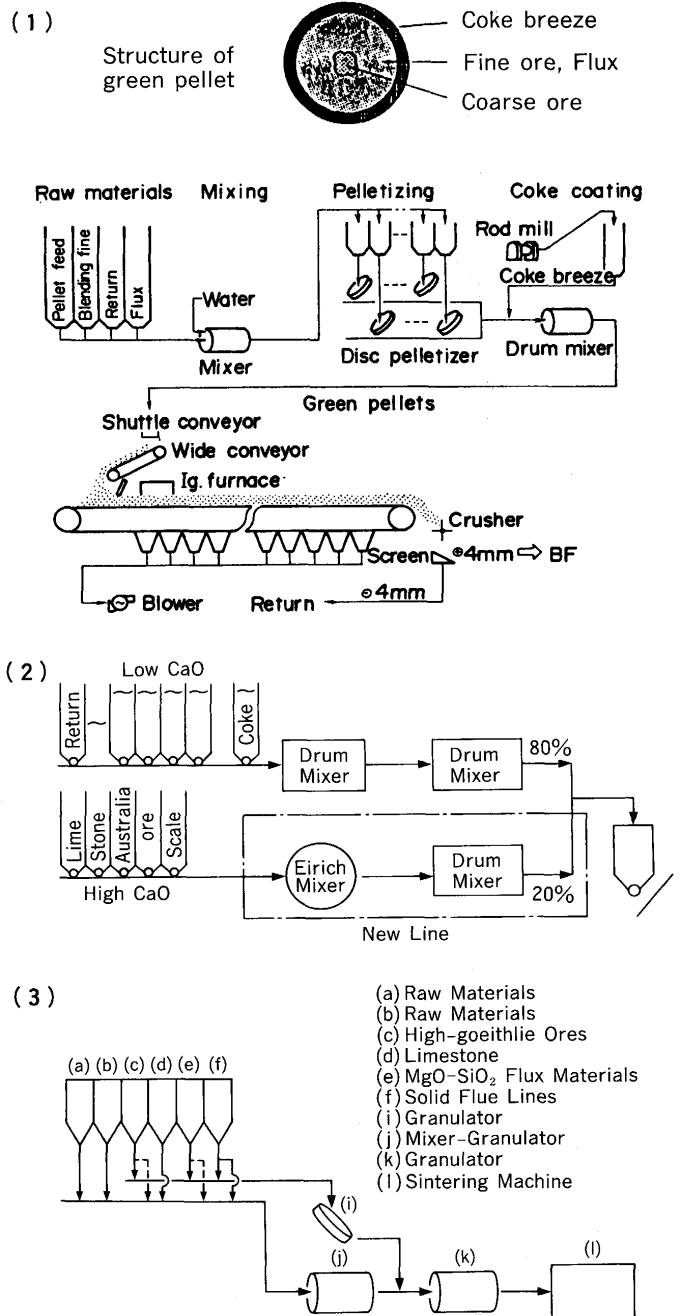


Fig. 8. Advanced granulation technologies newly developed.
 (1) HPS Process¹²⁾
 (2) CaO Selective Pregranulation Process⁴⁵⁾
 (3) Self-Densification and High-Melting-Point Liquid-Phase Sintering Process⁴⁶⁾

した疑似粒子の造粒機能が付加された。このような造粒機能の向上とともに、生石灰添加量も数kg/tから10kg/t台へと増加されて造粒が促進され、配合原料の疑似粒子中の0.25mm以下の微粉量は20%近くから17%へと減少し、造粒は着実に強化された。低コスト生石灰製造法として焼結機表層や床敷層で焼く方法や軽焼法が研究されている。

反応制御を目的とした、下記の疑似粒子造粒技術が実機化された(Fig. 8)。

1) HPS法⁴⁴⁾：皿形造粒機と生石灰添加による造粒強化、および粉コークス添加ラインを増設しコークス外装型疑似粒子を形成。

2) CaO分割添加焼結法⁴⁵⁾：原料供給用ラインを分割し塩基度、銘柄の選択造粒を可能にし、分割ラインには高速攪拌造粒機を増設して造粒強化。

3) 自己緻密化高融点相焼結法⁴⁶⁾：3次ミキサーを分割し、+3mmのピソライト鉱石に蛇紋岩・石灰石・炭材の高融点相被覆型疑似粒子を選択造粒。

HPS法は1988年NKK福山第5焼結機で実機化され、PF配合率50~55%で、高生産率(1.45~1.65t/h/m²)で、4.6%シリカ・1.5%アルミナの低スラグ、高被還元性(JIS-RI 70%台)の焼結鉱を製造した⁴⁷⁾。HPS法の最適装入方法は粒度無偏析であるが、現状の原料条件での造粒では層高方向の粒度偏析があったほうが焼成が均一化することから、スリットワイヤ式装入装置により偏析強化した結果、返鉱が減少し造粒が安定し歩留が向上した¹⁷⁾。この安定化をベースに高品位原料を増使用しシリカ3.9%の低スラグ日本新記録を達成した¹⁷⁾。CaO分割添加焼結法は高CaO原料と低CaO原料に分割造粒し、RDIを安定化し歩留を改善した⁴⁵⁾。また本技術で導入した高速攪拌造粒装置を従来ラインにも適用し、微粉鉱石多量使用工場で通気・歩留改善の効果をあげた。自己緻密化高融点相焼結法は大分第1焼結機に1992年に設置され、配合率20%のピソライト鉱石を処理し、歩留上昇、コークス原単位低減の効果をあげた⁴⁶⁾。他に新造粒法として振動造粒法、遠心転動造粒法の実験が進められ、後者は焼結用コークス粉の造粒に適用され低NO_xの効果をあげた⁴⁸⁾。

5・2 装入技術の進歩

焼結原料は大きな粒度分布幅を持っているため原料装入時の激しい運動でベッド内の原料粒度分布、充填密度が不均一になり、これを通して通気、伝熱、コークス燃焼と溶解に変動を与えている。層内の均一焼結化を目指して、熱不足の表層に熱源のコークスを濃集偏在させる原料の装入技術はオイルショックを契機にして2段装入法が開発され、またシュート方式で原料の装入落下運動時の粒度パーコレイションによる焼結層層高方向の偏析形成について解析され、設備の最適化がなされた。同時に、この自然流下式の装入では焼結層層高方向の偏析形成に限界があることが判明し、篩機能を付加したSF式、スリットバー式⁴⁹⁾、スリットワイヤ式¹⁷⁾が開発され、歩留が向上した。さらに、装入

研究でナダレが層内に粗粒と細粒のサンドイッチ型粒度偏析構造を形成し、層高方向の粒度偏析を阻害し、不均一焼成の一因になっていることが解析された。改善技術として層方向の偏析強化と同時にナダレの解消とを併せて行う整粒分散式装入装置(ISF)⁵⁰⁾が開発され、歩留2%改善とともに圧損1kPa相当の通気が改善された。ISFは現在中国攀枝花製鉄所、ブラジルCTSツパロン製鉄所に輸出され稼働している。既設の装入装置を活用したナダレ防止策として、フラッファーバー、2段ロールも研究された。

5・3 焼成の安定化

5・3・1 焼成管理

検出端の増強とAIシステムの導入によるオペレーターへの情報提供が充実し、焼成状態の判定・アクションの標準化、迅速化が促進されるとともに、アクションの自動化率が向上し、焼成の変動幅が減少した。直近実績データ群の短期間・長期間変動情報からオペレーターの知識、経験に基づいた知識ベースのルールで変動原因が解析され、アクション起動の要否が判定される。特に短期変動抑制の自動化効果が大きく、原料の通気抵抗指数と主排ガス吸引圧力の変動との相関関係を応用した制御システム⁵¹⁾や、中間部の排ガス温度から焼成完了点を予測し制御するシステム⁵²⁾が開発された。AIのシステム構成は、ニューラルネット方式と2次元階層型方式があり、前者は高度な総合解析ができ⁵³⁾、後者はアクションの因果関係が明快なところに特徴があり⁵⁴⁾、工場の実態に応じて選択されている。また、焼結層内の焼成状態をより緻密に把握するため、排ガス温度計の増加、排鉱部赤熱帯測定装置の設置などの温度情報が充実され⁵⁵⁾、実効燃焼熱の把握のための燃焼カーボン量管理システム(SECOS:Sintering Energy Control System)やストランド方向の燃焼帯幅管理システム⁵⁶⁾やケーキ赤熱帯幅のオンライン計算システムが開発された⁵¹⁾。さらに、生産計画に見合った最適有効風量管理システムが開発され⁵¹⁾、漏風対策には音波式漏風検知技術、サイドウォールの一体化、スイング型スライディングベッドなど風量管理技術が向上した。また、焼結層表層の通気改善には点火炉通過前後の焼結表層に窄孔をする技術が開発された。また、焼成安定効果の応用操業として、北海製鉄では350mm低層厚で歩留維持して電力低減し⁵⁷⁾、日新製鋼では700mm高層厚で熱量・FeO低減効果を発揮した⁵⁸⁾。

5・3・2 焼結層通気改善技術

焼結層の通気性は焼結の生産速度、焼成の均一性を左右する重要因子である。湿潤層の水分凝縮による通気抵抗増対策として先に開発された予熱焼結法が普及し、さらに最近では長尺式通気バーなどによる通気改善が研究された。燃焼溶解帯の通気は燃焼帯幅の肥大化を抑制することが効果があることが知られ、管理システムが開発された⁵⁹⁾。一方、通気網解析の観点からシンターケーキの荷重が特に下層の通気気孔構造に強い影響を及ぼしていることがスタンド支

持⁵⁹⁾、磁気浮揚法⁶⁰⁾の実験で解明され、歩留低下なく生産率が改善する結果が得られた。

5・4 成品処理技術の検討

増産対策として、冷却能力向上に効果のあるクーラーへの粒度偏析装入を促進することを目的とした設備改善改良がされ、欧州では粒度傾斜型偏析を可能とする新装入装置がルルギー社で開発された。焼成後の成品処理で過粉碎防止を目的とした1次破碎機の刃の構造、回転数制御が研究され歩留が改善した。シンターケーキの外形状と粉化との関

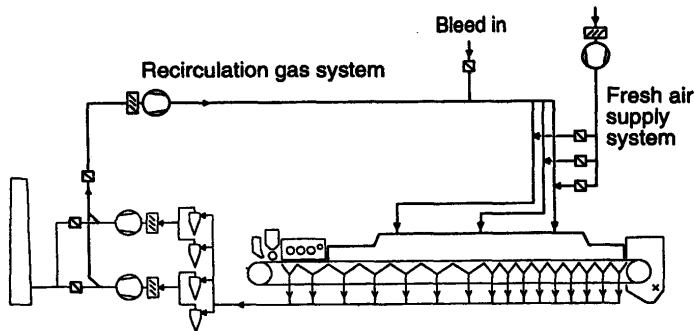


Fig. 9. EOS system for Ijmuiden sintering strand 31. (Courtesy of Lurgi GmbH⁶²⁾.)

Table 2. The experimental results of EOS in Ijmuiden sintering strand 31 (Courtesy of Lurgi GmbH⁶²⁾.)

Sinter figures	EOS operation low-basidity sinter	high-basidity sinter
Composition		
Fe	100%	100%
FeO	126%	115%
Quality		
cold strength	81%	94%
mean diameter	89%	94%
HOSIM	79%	88%
Production		
coke breeze	100%	100%
	87%	89%

Off-gas composition

gas components	low-basidity sinter		high-basidity sinter	
	convent.	EOS	convent.	EOS
CO ₂	4.5%	8.5%	6.8%	9.6%
H ₂ O	9.4%	15.3%	10.0%	15.8%
O ₂	14.6%	10.1%	13.1%	9.7%

Emissions mass flow (referred to values of 100% each achieved with the conventionally operated strand).

Sinter emissions	EOS operation	
	low-basidity sinter	high-basidity sinter
CO	49%	40%
dust	45%	38%
SO ₂	68%	66%
NO _x	57%	52%
dioxins	30%	40%

係の基礎的な解析もなされた。一方高炉では最高3mmまでの細粒焼結鉱の使用技術が向上し、篩分け技術としてモーゲンセンサイザー、フリップフロースクリーンなどの新方式の篩が導入された。

6. 環境改善への取り組み

集塵機の集塵効率の向上に間欠荷電法、移動電極型電気集塵機などの新技術の導入とともに、煙の透視化を含めたダストの基礎研究とその効率的な処理法としてのバグ法などが研究された。脱硫脱硝技術では、水酸化マグネシア方式、活性炭法、電子線照射法など効率化、低コスト化を目標に研究および実用化が進み、NO_x抑制にカルシウムフェライト、還元鉄の存在が大きく影響することが解析された。また、環境美化対策に乗り継ぎを最小化した落鉱防止コンベヤや落鉱処理機械が導入された。

排ガス循環技術は従来の省エネ技術と異なった観点から実用化されている。新日鐵戸畑焼結機では集塵機更新時に、循環率25%の排ガス循環装置を新設し⁶¹⁾、排ガス処理の負荷を低減して集塵機をコンパクト化し、NO_x低減、脱硫効率向上の効果をあげた。欧州のアイムイデン製鉄所ではルルギー社の開発した循環率50%のEOS(Emission Optimised Sintering Process)が1994年に実機化され、酸素15%で焼結し、生産率一定で品質変化の影響なく実稼働している(Fig. 9, Table 2)⁶²⁾。本年、同所全焼結機に拡張設置中である。

低環境負荷の粉コークス代替廉価原料として低S低Nの無煙炭使用が定着した。鉄粉⁶³⁾やスケールによるノンブリーズ焼結実験も行われた。またスチール缶チップのリサイクル利用研究がされ、コークス原単位、NO_x・SO₂が低減し、実機使用可能なことを実証した⁶⁴⁾。また転炉スラグをはじめ所内発生ダスト類のリサイクル研究、都市ゴミ・プラスチック類の焼結利用研究が進んだ。他方、転炉ダスト、高炉2次灰を対象に、高炉スラグ加工したバインダーによるセメントレス・コールドペレット工場が君津製鉄所に平成元年に新設された⁶⁵⁾。コールドペレットの研究は未来指向技術として大学を中心に広汎に研究されている⁶⁶⁾。

7. 結言

焼結技術の最近の進歩は顕著で、資源対応力・生産技術力が着実に向上してきている。しかし、今後、さらに焼結を取り巻く生産環境は厳しくなる一方であり、生産性の向上、省力化・自動化、廉価原料・リサイクル原料の利用開発、環境対応力の強化に向けて一層の改善が要請される方向にある。また、近年の改善成果の原動力のひとつは基礎研究の進展に負うところが大きく、今後の発展にはますます研究が重要になると考える。

文 献

- 1) 吉永真弓：第116・117回西山記念技術講座，日本鉄鋼協会編，(1987)，87.
- 2) 稲角忠弘：第146・147回西山記念技術講座，日本鉄鋼協会編，(1993)，89.
- 3) P.R.Dawson: Ironmaking and Steelmaking, **20** (1993), 135.
- 4) 葛西栄輝，大森康男：鉄と鋼，**79** (1993)，1217.
- 5) 肥田行博：鉄と鋼，**81** (1995)，263.
- 6) 鉄鋼統計要覧1995，日本鉄鋼連盟鉄鋼統計委員会，(1995)，122.
- 7) 高橋啓悟：鉄鋼界，(1991)8，43.
- 8) Steel Statistical Year Book 1994, IISI, 70.
- 9) 肥田行博，野坂庸二：鉄と鋼，**78** (1992)，1021.
- 10) 熊谷研一，谷中秀臣：魅力ある製鉄技術を求めてII.3.1，日本鉄鋼協会 (1993)，7.
- 11) 輸入鉄鉱石年鑑1995，(株)テックスレポート，東京，(1995)，25, 35.
- 12) 坂本 登，野田英俊，岩田嘉人，斉藤 汎，宮下恒雄：鉄と鋼，**73** (1987)，1504；丹羽康夫，坂本 登，小松 修，野田英俊，熊坂 晃：鉄と鋼，**78** (1992)，1029.
- 13) R.C.Morris: Handbook of Strata-Bound and Stratiform Ore Deposits part IV, Elsevier Science Publ., Amsterdam, Vol.13 (1985)，73.
- 14) 葛西栄輝：材料とプロセス，**8** (1995)，841；大山伸幸他：材料とプロセス，**8** (1995)，845；大友崇穂他：材料とプロセス，**8** (1995)，849；肥田行博他：材料とプロセス，**8** (1995)，852；明石孝也他：材料とプロセス，**8** (1995)，856；松村俊英他：材料とプロセス，**8** (1995)，860；川口尊三他：材料とプロセス，**8** (1995)，864.
- 15) 私信
- 16) 鉄鋼界報，1996年3月1日，11号，7.
- 17) 鉄鋼新聞，1996年2月27日号.
- 18) 岩月鋼冶，細谷陽三，楠木秀信，加太茂久，川西秀明：材料とプロセス，**4** (1991)，1126.
- 19) 滝平憲治，藤井紀文，大山伸幸：材料とプロセス，**7** (1994)，133.
- 20) J.O.Edstom: Journ. of Iron and Steel Institute, **175** (1953)，289.
- 21) E.A.Pisila, S.Kallo and K.Heinanen: Proceeding of McMaster Symposium, **23** (1995)，108.
- 22) 野坂庸二，磯崎成一，菅原欣一：鉄と鋼，**67** (1981)，S655.
- 23) 肥田行博，伊藤 薫，岡崎潤一，佐々木稔，梅津善徳：鉄と鋼，**68** (1982)，2166.
- 24) 呉 勝利，葛西栄輝，大森康男：材料とプロセス，**2** (1982)，46, 961.
- 25) 樋口謙一，細谷陽三，肥田行博：材料とプロセス，**8** (1995)，1086.
- 26) Y.Ishikawa, Y.Shimomura, M.Sasaki, Y.Hida and H. Toda: Proceeding of the 42nd Ironmaking Conference of AIME, **42** (1983)，17.
- 27) 大友崇穂，田口 昇，葛西栄輝，大森康男，川口尊三：鉄と鋼，**79** (1993)，1145.
- 28) 中安 勤，天野 繁，中山正章，松永伸一，辻井剛嗣，山田祐文，川口卓也，稲角忠弘：材料とプロセス，**6** (1993)，71,72.
- 29) F.Cappel and E. Pfaff: Proc. of The 5th Intern. Iron and Steel Congress, Nagoya, (1990)，23.
- 30) 川口卓也，笠間俊次，稲角忠弘：鉄と鋼，**78** (1992)，1053.
- 31) 小園琢磨高，笠間俊次，芳賀徹三，大塩昭義：材料とプロセス，**8** (1995)，1084.
- 32) 葛西栄輝，大森康男：鉄と鋼，**75** (1989)，228.
- 33) 稲角忠弘，中野正則，笠間俊次：資源と素材，**111** (1995)，821.
- 34) 国分春生，児玉琢磨，小口征男，板谷 宏：学振第54委研究報告，No.1747 (1985).
- 35) 中野正則，稲角忠弘，笠間俊次，金田裕恵，貞岡久里，高安秀樹：鉄と鋼，**82** (1996)，111.
- 36) 笠間俊次，中安 勤，稲角忠弘：鉄と鋼，**78** (1992)，1069.
- 37) 八嶋三郎，橋本 等：材料とプロセス，**3** (1990)，948.
- 38) 八木順一郎：学振第54委研究報告，第140回研究会資料1-1，(1992).
- 39) 大山伸幸，小西行雄，井川勝利，反町健一：学振第54委研究報告，平成6年2月
- 40) 坂本 登，福与 寛，岩田嘉人，宮下恒雄：鉄と鋼，**70** (1984)，32.
- 41) 村山武昭，前田敬之，小野陽一：材料とプロセス，**5** (1992)，1058.
- 42) 碓井健夫，森田善一郎：材料とプロセス，**5** (1992)，1054.
- 43) LI.-H.Hsieh and J.A.Whiteman: ISIJ Int., **29** (1989)，24, 625.
- 44) 坂本 登，野田英俊，岩田嘉人，斉藤 汎，宮下恒雄：鉄と鋼，**73** (1987)，62.
- 45) T.Kawaguchi, K.Kuriyama, S.Sato, K.Takata and T.Miyake: Proc. of 6th Int. Iron. and Steel Cong., ISIJ, Nagoya, Japan, (1990)，31.
- 46) 肥田行博，岡崎 潤，右田光伸，出野 正：まてりあ，**34** (1995)，647.
- 47) 佐藤秀明，岸本純幸，小松 修，野田英俊，高井 力：鉄と鋼，**80** (1994)，T1.
- 48) 細谷陽三，今野乃光，柴田充蔵，佐藤 正，鈴木治久：鉄と鋼，**81** (1995)，34.
- 49) 新日鐵広畑：日本鉄鋼協会共同研究会，第67回製鉄部会資料.
- 50) 稲角忠弘，藤本政美，笠間俊次，佐藤勝彦，下沢栄一，具島 昭：材料とプロセス，**1** (1988)，970.
- 51) 小幡天志，高橋博保，中村 勝，夏見敏彦，田辺仁志：材料とプロセス，**1** (1988)，958.
- 52) 奥山雅美，藤井紀文，深川卓美，井山俊司：材料とプロセス，**3** (1990)，1062.
- 53) 井山俊司，深川卓美，三浦進一，兵藤輝彦：材料とプロセス，**2** (1989)，974.
- 54) 長根利弘，山本 博，山口 晃：材料とプロセス，**9** (1995)，106.
- 55) 中島龍一，黒沢信一，田原 勉，岸本純幸，福与 寛：材料とプロセス，**2** (1989)，79.
- 56) 中安 勤，小林政徳，松永伸一，山田祐文，土岐正弘：材料とプロセス，**7** (1994)，1043.
- 57) 田中 毅，高松信彦，佐藤武彦，東野郁夫，杉崎与一：材料とプロセス，**7** (1994)，145.
- 58) 弘田 昇，藤井邦彦，中嶋充弘，佐々 豊，布村征司郎：材料とプロセス，**7** (1994)，1040.
- 59) 藤本政美，稲角忠弘：材料とプロセス，**4** (1991)，1128.
- 60) T.Inazumi, M.Fujimoto, S.Sato and K.Sato: ISIJ Int., **35** (1995)，372.
- 61) 馬場政光，持田順二，桜木準一，大山浩一，松岡純一：材料とプロセス，**6** (1993)，911.
- 62) H.J.Werz, J.Otto and J.pengersem: Stahl und Eisen, **115** (1995)，37.
- 63) 山川卓司，早川直樹，永瀬盛夫，中野正則：材料とプロセス，**9** (1996)，101.
- 64) 藤本政美，稲角忠弘，奥野嘉雄：材料とプロセス，**7** (1994)，143；赤木一志，天野 繁，松永伸一，中安 勤，稲角忠弘，藤本政美：材料とプロセス，**7** (1994).
- 65) 天野 繁，阿部幸弘，山口一成，松岡裕直，高野正市，相田実生，守田和之：鉄と鋼，**75** (1989)，767.
- 66) 稲角忠弘：魅力ある製鉄技術を求めて-III. 2.1，日本鉄鋼協会，(1993)，44.