

# 強磁場を利用した製鋼スラグからのリンの分離回収

横山 一代\*・久保 裕也\*・森 一広\*<sup>2</sup>・岡田 秀彦\*<sup>3</sup>・竹内 秀次\*<sup>4</sup>・長坂 徹也\*

Separation and Recovery of Phosphorus from Steelmaking Slags with the Aid of Strong Magnetic Field

Kazuho YOKOYAMA, Hironari KUBO, Kazuhiro MORI, Hidehiko OKADA, Shuji TAKEUCHI and Tetsuya NAGASAKA

**Synopsis :** In order to make sure the great potential of steelmaking slag as a new phosphorus resource, domestic phosphorus material flow in Japan including iron and steel industry has been investigated based on the statistical data on 2002. It has been demonstrated that phosphorus in the steelmaking slag is almost equivalent with that in the imported phosphate rock in the view points of the amount and the concentration. Phosphorus exists mainly in the form of calcium-phosphate or its solid solution with calcium-silicate rather than the  $Fe_2O_3$  rich liquid phase in the slag and exhibits remarkable segregation in the solidified slag. If the strong magnetic field is applied to the crushed slag, precipitated calcium-phosphate solution phase can be separated from  $Fe_2O_3$  matrix phase due to the large difference of each magnetic property. It has also been indicated by the Waste Input-Output model that the phosphorus recovery from steelmaking slag by the new process proposed in the present work has great environmental and economical benefits.

**Key words :** steelmaking slag; phosphorus resource; calcium phosphate; dephosphorization; material flow analysis; fertilizer; input-output analysis.

## 1. 緒言

リンは動植物の成長に必須の栄養元素であり、窒素、カリウムとともに肥料の3大要素と呼ばれる肥料製造には欠かせない物質である。工業的なリンの原料は主にリン鉱石であり、その採掘量は2000年において全世界で約4140万トンに上り、そのうちの27%が米国、17.4%がモロッコである。我が国へのリンの投入の大部分はリン鉱石・肥料ルートであり、その内訳はリン鉱石、リン酸アンモニウム(リン肥)、重過リン酸石灰に大別される。97年に米国が自国の資源保護のためにリン鉱石輸出を停止したことか

ら、Fig. 1に示すように、鉱石価格は上昇傾向、我が国のリン輸入量は減少傾向にある<sup>1)</sup>。

このような戦略的資源としての性格とは対照的に、リンは鉄鋼材料の低温靱性を阻害するなど、鋼にとって最も有害な不純物のひとつである。そのため、溶銑予備処理、製鋼工程では徹底的な脱リン処理がなされており、溶銑中のリンは大部分が製鋼スラグ中に分配除去されている。すなわち、脱リンプロセスは、鉄鉱石やコークス等の原料中に微量に存在するリンを製鋼スラグ中に濃縮するプロセスでもある。例えばトーマス滓のように、製鋼スラグをリン酸肥料としての利用することは古くからなされており、我が

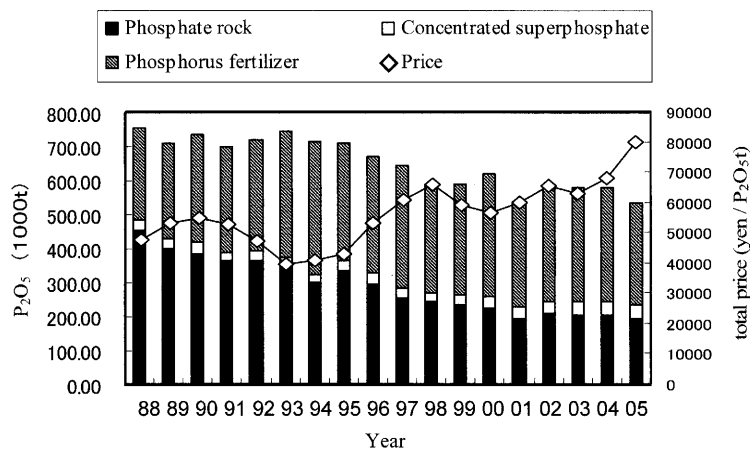


Fig. 1. Trend of the amount and the price of phosphorous resources imported to Japan.

平成 18 年 5 月 16 日 受付 平成 18 年 7 月 6 日 受理 (Received May 16, 2006; Accepted July 6, 2006)

\* 東北大学大学院環境科学研究科 (Graduate School of Environmental Studies, Tohoku University, 6-6-11-1006 Aoba-yama Aoba-ku Sendai 980-8579)

\* 2 東北大学大学院生 (現: 住友金属鉱山東予工場) (Graduate Student, Tohoku University, now Toyo Smelter & Refinery, Sumitomo Metal Mining Co., Ltd.)

\* 3 独立行政法人物質材料研究機構ナノセラミックスセンター (Nano Ceramics Center, National Institute for Materials Science)

\* 4 JFE スチールスチール研究所 (故人) (Steel Research Laboratory, JFE Steel Corp., (deceased))

国においてもスラグ中のリンの濃化や分離回収の試みが過去に報告されている<sup>2-5)</sup>。しかしながら、脱リンスラグからのリンの分離回収については、その意義は強く認識されているものの、未だ有効な手段は確立されていない。現状では、脱リンスラグは主に鉄分回収を目指した焼結工程へのリサイクル、あるいは路盤材や埋設材等としての利用に供されているのみである。仮に、脱リンスラグからのリンの分離回収が技術的に可能になれば、後述するように、新たなリン資源の確保とリン鉱石に随伴する微量放射性元素の問題の軽減<sup>6)</sup>、リン回収後の残分の有効利用とスラグ発生量の大幅削減等、波及効果は極めて大きいと予想される。

以上のような背景から、本研究では製鋼スラグ中に存在する結晶相の磁気的性質の違いに着目し、強磁場を利用したスラグからのリンを含む結晶相の分離回収法を提案すると共に、本法が及ぼす経済影響、環境負荷低減効果について、廃棄物産業連関分析の視点から検討した。

## 2. 我が国におけるリンのマテリアルフロー

一般に、目的製品以外の副生物の有効利用法を開発するにあたり重要なことは、現状の経済システム内の需給関係あるいは物質フローを定量的に把握しておくことである。しかしながらリンの国内マテリアルフローに関する先行研究<sup>7-9)</sup>は、鉄鋼原料に起因したリンのフローに対する考察が不十分である。そこで本研究では、まず2002年度における各種統計データを用いて国内のリンのマテリアルフローを分析し、我が国のリンのマテリアルフローにおける製鋼スラグの位置づけを明らかにした。

リンは元素単体ではほとんど存在せず、濃度が比較的薄い状態で社会を流通するため、供給ルートは多岐にわたり、拡散性も強い元素である<sup>10)</sup>。本研究では、その供給ルートを、リン鉱石・肥料ルート、食飼料ルート、鉄鋼ルートの3つに分類した。これらの3つのルートのうち、リン鉱石・肥料ルートについては財務省の輸出入統計データ<sup>1)</sup>、総務省の産業連関表<sup>11)</sup>を基にしてマテリアルフローの整備を行った。食飼料ルートについては、水谷<sup>7)</sup>による分析結果を基に、農水省、国土交通省、環境省等の統計データ<sup>12-23)</sup>を用いて修正を行った。鉄鋼ルートについては、日本スラグ協会公表データ<sup>24)</sup>、各種鉄鋼・資源統計データ<sup>25-30)</sup>および鉄鋼各社の操業データに基づいてフローを導出した。3つのルートに関して、本研究ではTable 1に示すような19部門を考慮した。

3ルートのうちの鉄鋼ルートについて、製鋼スラグの分類およびその平均リン濃度をTable 2に示す。リンの投入経路として鉄鉱石、回収スクラップ、石灰石、コークスをはじめとする石炭類、および加工工程で行われる表面処理に用いられる化学薬品を調査対象とした。コークス炉での

Table 1. Sectors for phosphorus material flow analysis.

Farm/Ranch	Soil accumulation	Chemical industry	Miscellaneous drainage
Food&Feed	Fertilizer	Steelmaking industry	River/coast area
Livestock	Products/by-products	Other industry	Sludge
Human	Phosphate ore	Steel	Waste
Nature	Other mineral resources	Steelmaking Slag	

Table 2. Classification of steelmaking slags.

Total 93.4 kt-P				
BOF slag		EHF slag	Hot metal pretreatment slag	
Slag A	Slag B	Slag C	Slag D	Slag E
without HM de-P	with HM de-P		de-Si/de-S slag	de-P slag
24.9 kt-P	29.0 kt-P	2.9 kt-P	2.7 kt-P	33.9 kt-P
(ave P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> =3.0%)				(ave P <sub>2</sub> O <sub>5</sub> =5.0%)

乾留過程においては、原料炭中のリンは全量コークスに残留するとみなした。鉄鋼業への投入分のうち、石炭類、石灰石、鉄鉱石については、それぞれ鉱石・肥料ルートにおける計算結果を使用、鉄スクラップの投入量は鉄鋼統計要覧より、表面処理剤による投入量はメーカーへのヒアリング結果から算出した。鉄鋼業からのリン排出経路としては、スラグ、粗鋼のみを考慮した。鋼に付随する排出は、鉄鋼統計要覧より得られる粗鋼生産量に、鋼材中平均リン濃度を0.01%と仮定して算出した。

鉄鋼スラグは高炉スラグと製鋼スラグに大別でき、製鋼スラグはさらに溶銑予備処理スラグ、転炉スラグ、電気炉スラグに分類できる。本研究では、高炉スラグにはリンは分配されないとみなし、スラグによるリンの排出は製鋼スラグについてのみ考慮した。一方、製鋼スラグの組成、原単位は操業条件等のローカルコンディションに強く依存するが、高炉メーカー数社に対するフィールド調査結果を行い、スラグ協会の統計データ等<sup>24,25)</sup>を組み合わせて、製鋼スラグを介したリンフローをTable 3のように推定した。

以上のような結果を基に、我が国におけるリンのマテリアルフロー図をFig. 2のようにまとめた。最も大きなリン資源の需要先は化学工業の肥料製造業セクターであり、海外からの輸入分14万トンと国内化学工業からの投入22.5万トンを経て、農地や牧場に約40万トンのリンを供給している。また、飼料や家畜系バイオマスを通じて農業・畜産業セクターで一部のリンが循環しているが、大部分のリンは土壌、河川等の環境、および廃棄物に向かって流れていることがわかる。リンのマテリアルフローにおけるこれら最下流では、リン濃度は極めて低く、ppmオーダーである。工業原料としての鉱石中のリン濃度が約15%強であることを考えると、肥料としての用途が主であるリンは、極めて拡散性が強い元素であることが改めて認識される。

Table 3. Calculated condition for phosphorus material flow.

coal/coke		Iron ore		Lime	
consumption	62210 kt	consumption	113858 kt	consumption	22419 kt
%P in mass	0.05	%P in mass	0.06	%P in mass	0.01
steel scrap		EAF slag		crude steel	
input	38000 kt	emission	3467 kt	production	107745 kt
%P in mass	0.01	%P in mass	0.17	%P in mass	0.004

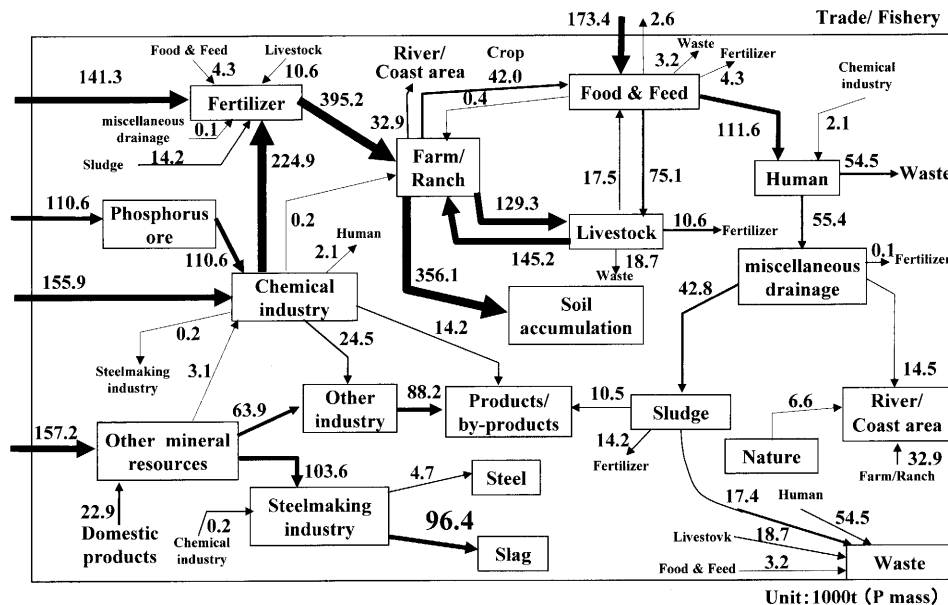


Fig. 2. Domestic material flow of phosphorus in Japan (2002).

一方、鉄鋼業へのリンのインプット量は10.4万トンと推定され、このうちのほぼ9割である約9.7万トンが製鋼スラグに濃縮されると見積もられた。また、下水汚泥に濃縮されるリンは約4.3万トンと計算され、製鋼スラグと合わせると、その量は輸入リン鉱石中のリンの総量を上回ることになる。

以上のように、産業分野におけるリン流通の起源は、鉱石など原料の輸入であり、その終着は河川、土壌等の環境、製品、副産物、および廃棄物である。このうち、その他の鉱物資源に起因するリンのフローについてはこれまで十分考慮されておらず、製品中及び製品生産過程において発生する副産物に含まれるリンのフローは、ほとんど注目されてこなかった。しかし本研究における推定結果より、リン鉱石の輸入に伴うリンの国内インプットと量的にほぼ同等のフローであることがわかった。多くの場合、リンは製品、副産物において希薄に存在し、最終的に環境中へ拡散する傾向が強いが、鉄鋼業に投入されるリンについてはスラグへの濃縮が保証されており、リンの所在を明確にすることが可能である。下水汚泥についてもほぼ同じことが言えるが、水分含有量、排出される時の顕熱の点、すなわち、リン資源化するために新たに投入すべきエネルギーの視点からは、製鋼スラグの方が下水汚泥に比較して圧倒的に有

利であり、リンのフロー量も製鋼スラグの方が2倍以上大きい。従って、製鋼スラグはリン資源としての高い潜在的資質があると言える。

### 3. 製鋼スラグからのリン分離・回収法の開発

#### 3.1 製鋼スラグ中のリンの存在形態

Futatsukaら<sup>31)</sup>は、凝固後における製鋼スラグ中のリンの存在形態について調査することを目的に、国内高炉メーカー各社から提供された製鋼スラグ（溶銑予備処理スラグ）をEPMAによって組成分析した。これらの結果を、CaO-SiO<sub>2</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>系状態図を基にして検討し、リンが存在する相の平衡関係について考察した。その結果、スラグ中に存在する相を

- Phase A: リンが10%以上に濃縮され、鉄をほとんど含まない相,
- Phase B: Ca, Siが主成分でリンを数%程度含み、鉄をほとんど含まない相,
- Phase C: ほとんど純粋なFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>に近い組成の相,
- Phase D: CaO-SiO<sub>2</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>系の相

の4つに大別できることを示した。Phase AとBは、リン酸カルシウム (4CaO·P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>:C<sub>4</sub>P, または3CaO·P<sub>2</sub>O<sub>5</sub>:C<sub>3</sub>P)

あるいはこれらの珪酸カルシウム (2CaO·SiO<sub>2</sub>:C<sub>2</sub>S) との固溶体と考えられ、これらのリン含有結晶相が酸化鉄に富んだ Phase C と D の CaO-SiO<sub>2</sub>-Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> 系マトリックス相上に分散した組織を持つことが示された。また、リン含有相とマトリックス相の結晶粒は、スラグを徐冷するほど粗大化する傾向にあったが、スラグを構成する結晶相は基本的に同じであることを報告している。

Futatsuka らの報告から、溶銑予備処理スラグは、更に (1) リンを含むが鉄を含まない結晶相 (Phase A と B)、(2) 鉄を含むがリンを含まない相 (Phase C と D)、に大別できる。すなわち、(1) と (2) の結晶相群は、鉄とリンの含有状態が全く逆になっていることから、強磁場を利用することによって、両者を磁氣的に分離できる可能性が高いと予想された。

### 3.2 製鋼スラグ構成相の磁氣的性質

スラグからのリン濃縮相の磁気分離について、その可能性を定量的に検討するために、振動試料型磁力計 (VSM, Vibrating Sample Magnetometer) を用いて C<sub>3</sub>P, C<sub>2</sub>S および Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>-CaO-SiO<sub>2</sub> 系スラグの磁気特性を測定した。結果を磁場と磁化の関係として Fig. 3 に示す。Fig. 3(a) の 2 つの試料はスラグのマトリックス相を構成する Phase D に相当する組成を持った相である。また、Fig. 3(b) は市販の C<sub>3</sub>P および炭酸カルシウムと二酸化珪素の市販品 (いずれも関東化学社製、試薬特級) から合成した C<sub>2</sub>S の化合物粉末であり、それぞれ Phase A および Phase B に近い結晶相である。磁氣的には、リンを含有しない Fig. 3(a) の相は常磁性または強磁性を示し、リンを含有する C<sub>3</sub>P およびこれと固溶体を形成する C<sub>2</sub>S である Fig. 3(b) の相は反磁性を示している。また、磁化の絶対値もリンを含有する相は含有しない相の 1/100 程度と非常に小さい。したがって、製鋼スラグ中でリンを含まないマトリックス相である Fig. 3(a) の相と、リンを含有する Fig. 3(b) の相は磁場中では全く異なる挙動を

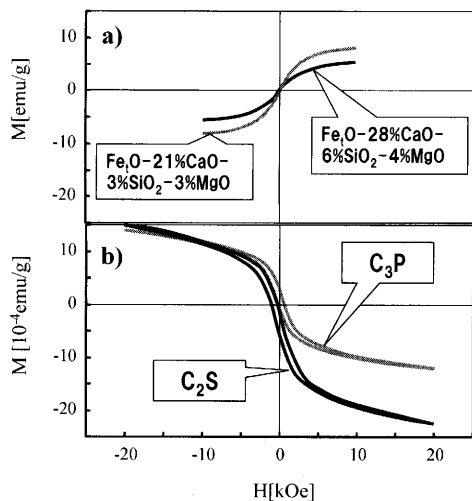


Fig. 3. The magnetization curves of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> based matrix phase (Phases D), calcium-phosphate (Phase A) and calcium-silicate (Phase B).

示し、磁場を用いた分離が可能であると考えられる。

Fig. 3(a) の 2 つの結晶相のうち、P<sub>2</sub>O<sub>5</sub> を 4% 含む結晶相の磁化は 10 kOe で、約 5 emu/g 程度であり、ほぼ飽和しているとみなすことができる。これを水平横向きで 3 T の磁気強度、横方向の磁場勾配、約 35 T/m の条件の磁場中で 10 cm 落下させた場合の横方向への移動の大きさを予測した<sup>32)</sup>。

磁気力は一般的にベクトルで書くと次のように書ける。

$$\vec{F} = \nabla(\vec{M} \cdot \vec{H}) \dots \dots \dots (1)$$

ここで  $F$  は磁気力、 $M$  (Wb/m<sup>2</sup>) は磁化、 $H$  (A/m) は磁界である。簡略化のために、横方向にしか磁場が作用していないと仮定して (1) 式を 1 次元に書き改めると、(2) 式が得られる。

$$F = \frac{M(\text{Wb/m}^2)}{\mu_0} \times \frac{\partial B}{\partial x} \dots \dots \dots (2)$$

ここで  $B$  は磁束密度 ( $B = \mu_0 H$ )、 $\mu_0$  は真空の透磁率である。また  $M$  は飽和しているとみなして磁場依存性はないと仮定した。磁場の値  $B$  は、計算条件として  $B = 3.0 \text{ Wb/m}^2 = 3.0 \text{ T}$  とする。磁場勾配 ( $\partial B/\partial x$ ) は、市販されている 13 T 超電導マグネットの外部磁場分布から求められている値、( $\partial B/\partial x = 35 \text{ T/m}$  とおいた<sup>33)</sup>)。以上の値を上式に代入すると、試料に作用する磁気力は約 175 N/kg と計算される。

一方、物質の自由落下の式、

$$x = 1/2gt^2 \dots \dots \dots (3)$$

から、物体が 10 cm 自由落下するのに必要な時間を計算すると、0.143 s と見積もられる。ここで、 $g$  は重力加速度  $9.8 \text{ m/s}^2$ 、 $t$  は時間である。横方向の磁気力による加速度は  $175 \text{ m/s}^2$  であるので、(3) 式によって 0.143 s の時間間隔内における横方向への移動距離を計算すると、この結晶相は磁気力によって横方向に  $175 \text{ N/kg}$  の加速度で磁石側に引き付けられ、10 cm 落下する間に約 175 cm 磁石の側に移動することになる。一方、Fig. 3(b) の C<sub>2</sub>S 相の場合、磁化を 3 T (30 kOe) まで外挿して飽和値を  $-0.0025 \text{ emu/g}$  と仮定し、同じ条件で落下させた場合の磁気力を同様の手順で計算したところ、 $0.9 \text{ m/s}^2$  の加速度で磁石から反発されるとの結果を得た。したがって、リンを含むこの結晶相は、10 cm 落下する間に磁石とは反対の側に約 0.9 cm、落下ベクトルが水平方向にシフトすることになる。

以上より、リンを含む結晶相は、横方向の強磁場中で、ほぼ垂直に落下し、リンを含まないスラグマトリックス相は、磁石の方向に大きく曲がる、又は磁石に付着することが予想され、Fig. 3(a) と Fig. 3(b) の 2 つの物質は、原理的に数テスラ程度の強磁場により、容易に分離可能であると考えられる。

### 3.3 製鋼スラグからのリンの磁気分離

前節で検討したスラグからのリン回収プロセスが実際に可能かどうかを検証するために、Fig. 4に示す超伝導バルク磁石式強磁場発生装置<sup>33)</sup>を用い、磁気分離実験を行った。バルク磁石表面での磁場強度は2.2Tであり、ガウスメーターを用いて測定した磁場勾配は約1.1 T/cmであった。後述する模擬スラグ約1gをポリエチレン製のセル（高さ10 cm×幅7 cm×厚さ1 cm）に入れ、バルク磁石表面で水平方向に振幅3 cm、振動数毎分30サイクルで3分間振動させた。こうすることによって、磁気力と重力の間で力学的な定常状態に達すると考えた。実験終了後、容器底部の非磁着物を回収し、磁着物と共にそれぞれ分析に供した。

まず最初に、試薬のFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>とC<sub>3</sub>Pの混合粉末試料を用いて実験を行った。これらの平均粒径はそれぞれFe<sub>2</sub>O<sub>3</sub>が26 μm、C<sub>3</sub>Pが50 μmである。なお、粒子の凝集を避け、磁場の影響のみを観測するために、混合試料中にSiO<sub>2</sub>微粉末（粒度90 nm）を1%添加した。結果をFig. 5に示す。2T程度の磁場においても、混合物中のC<sub>3</sub>Pは90%以上が非磁着物として回収されており、本法が十分実用化可能であることが示唆された。

次にTable 4に示す組成の脱リンスラグを用いて実験を行った。本スラグは試薬を所定組成に調合した後、リン濃縮相の結晶粒径を粗大化するために鉄るつぼ中Ar雰囲気下で1400°Cに昇温後、1°C/minで室温まで徐冷して作成し

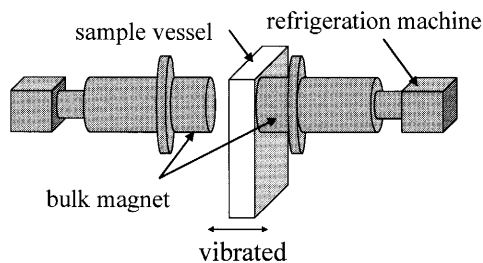


Fig. 4. Schematic diagram of the experimental apparatus for the magnetic separation.

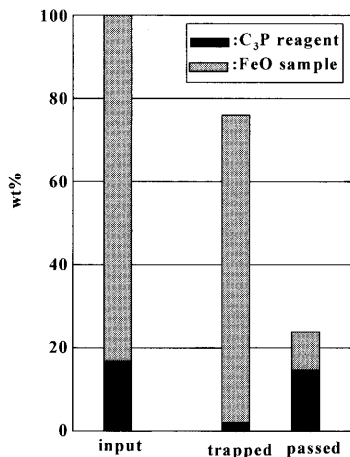


Fig. 5. The results of the magnetic separation for the mixture of Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and 3CaO·P<sub>2</sub>O<sub>3</sub>.

た。その結果、Fig. 6に組織観察結果を示すように、熱処理後のPhase AまたはPhase Bの平均粒径は約70 μmであった。このスラグをメノウ乳鉢で破碎して実験に供した。試料は粒径に応じて<30 μmと50~70 μmの2種類を用意した。<30 μm以下の場合には著しい凝集が起り、効率的な磁気分離が困難であったため、試料1gを約20 ccの蒸留水に懸濁させ、同様の条件で実験を行った。50~70 μmの場合は顕著な凝集は見られなかったため、蒸留水は用いずに乾式のままで実験を行った。結果をFig. 7に示す。ここでは非磁着物へのリンの濃縮の指標として、分析試料中のリンと鉄の質量比を用いて表した。Fig. 7の結果より、リンは3~4倍に濃縮していることが示され、初期スラグ中のリンの約50%を回収することができた。

Table 4. Composition of slag supplied for the magnetic separation (in mass%).

T. Fe	CaO	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MnO	P <sub>2</sub> O <sub>5</sub>
23.4	25.6	13.5	4.1	8.3	14.3

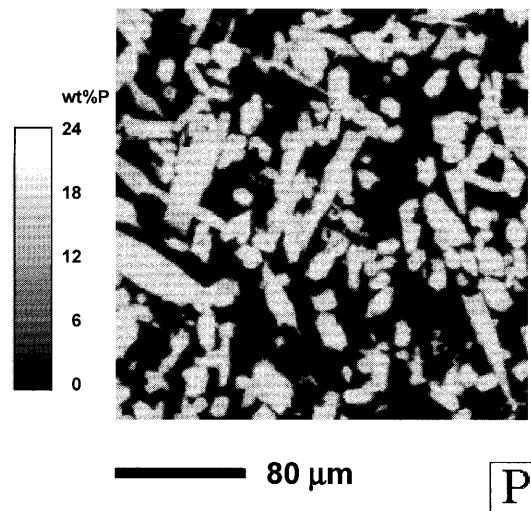


Fig. 6. Phosphorus mapping image of the slag used for the magnetic separation.

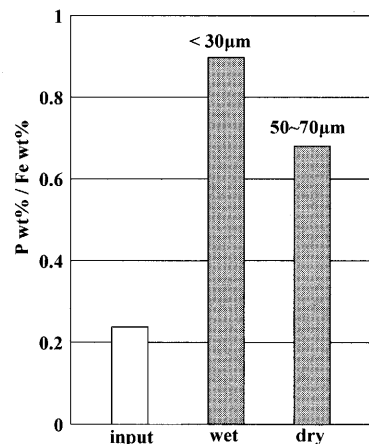


Fig. 7. The results of the magnetic separation for the dephosphorization slag.

以上の結果より、本法の基本原理は確立できたと結論づけられる。本法を実用化レベルに到達せしめるための最大の課題は、スラグ中のリン濃縮相とマトリックス相をいかに粗大化させ、かつ独立の粒子にするかであり、スラグ粒子の粒径分布に及ぼす冷却条件の影響、また磁場勾配、磁場強度などの影響を詳細に調査する必要がある。

#### 4. 脱リンスラグ中のリン資源活用の環境及び経済への影響

本法によって製鋼スラグからのリンの回収が実際に行われると仮定し、その場合の経済波及効果と環境負荷低減効果について、廃棄物産業連関表(Waste Input Output Table: WIO)を用いてシナリオ分析を行った<sup>34,35)</sup>。Fig. 8は分析対象として設定した製鋼スラグからのリン回収シナリオの概要を示したものである。従来はリンに関して独立のフローであった鉄鋼業と化学工業の間に、新たに鉄鋼業から化学工業に向かうリン肥料原料としてのスラグ回収物のフローを設けた。このことによる波及効果を分析するために、リンの回収シナリオとして、以下の6点を仮定した。

1. Fig. 8のような新たなフローが生じたことによる我が国全体の物質フローの変化を主に定量化するために、第一近似としてスラグの熱処理、粉碎、磁気分離装置の建設および運転に必要な負荷は今回の検討対象外とする。
2. 製鋼スラグのうち比較的リン濃度の高い溶銑予備処理

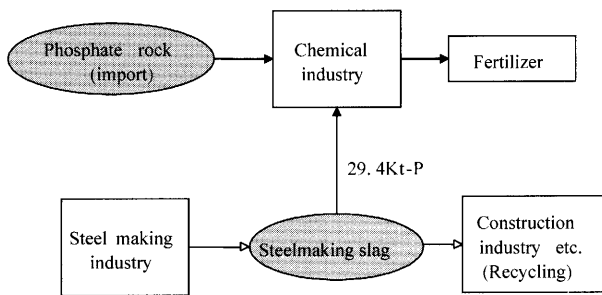


Fig. 8. Material flow between chemical and steelmaking industries based on the scenario.

脱リンスラグおよび転炉脱リンスラグをリンの回収対象スラグとし、それらに含まれるリン量の50%を回収する。したがって、製鋼スラグ排出量のうち2.9万トン(総排出量の約0.5%)が元素Pとして回収される。スラグの排出量はその回収分だけ削減され、その分の負荷が軽減される。

3. スラグから回収されたリンは肥料等の原料として化学工業へと投入され、その投入量に相当するリン鉱石の輸入量が削減される。鉄鋼業-化学工業間でのスラグリン1tの取引価格は、P換算1トン分の鉱石価格と同じとする。
4. リン回収後のスラグ残渣は、従来通り全て路盤材等として建設資材部門に投入される。
5. リン回収に付随して新たに発生する、スラグヤード-化学工場間の輸送による負荷は、リン鉱石の輸送量削減がこれを相殺し、無視できる。
6. 原料のリン鉱石を一部スラグに代替することによるリン肥料製造プロセスの変化、負荷の増減は無視できる。

スラグからのリン回収に伴う、国内生産額および環境負荷発生の変化のモデル計算結果を要約してTable 5に示す。国内の産業間相互依存を記述する産業連関モデルの当然の特徴ではあるが、スラグからリンを回収することによる波及効果は、ほぼ全ての産業部門に及んだ。すなわち、スラグからのリン回収は、80の産業部門に影響を及ぼすと分析されたが、0.1%以上の変化率が認められたのは窯業原料部門、化学肥料部門をはじめとする13部門であった。Table 5の結果より、化学工業-鉄鋼業間でのスラグからのリン回収部門取引の影響が反映され、窯業原料鉱物部門および化学肥料部門での生産活動が大幅に減少していることがわかる。また、リン鉱石のかなりの部分を製鋼スラグからの回収物で代替することにより、製鋼、化学工業、石炭製品、一般機械器具製造業等に大きな影響が認められる。一方、Table 5の下段に示されるように、炭酸ガス発生量および埋め立て処分量の削減効果はかなり大きいことが示されており、スラグからのリン回収物によるリン鉱石代替化

Table 5. The environmental and economic effects of phosphorus recovery from steelmaking slag estimated by the Waste Input-Output model.

Industrial Sector (unit:one million yen)	Output (without P recovery)	Output (with P recovery)	Change rate (%)
Materials for ceramics	215,699	179,282	-16.883
Fertilizer	421,542	418,560	-0.707
Chemical products	25,396,046	25,342,342	-0.211
Coal products	856,933	855,529	-0.164
Steel making	20,138,980	20,116,761	-0.110
General machinery and equipment	28,735,191	28,641,034	-0.328
Electricity	16,847,969	16,823,987	-0.142
Water supply	2,894,636	2,888,204	-0.222

Environmental effects and others	Emissions and others (without P recovery)	Emissions and others (with P recovery)	Change rate (%)
Carbon dioxide emissions (t-C)	345,123,313	335,929,461	-2.664
Landfill consumption (m <sup>3</sup> )	190,313,886	184,583,080	-3.011

は、環境負荷を大幅に減少させることが明らかとなった。

なお、上記6項目のうち、仮定1では実際には装置の建設や運転に伴う環境負荷が発生するが、仮定4ではリンの回収率に応じて残渣は製鉄、製鋼工程へのリサイクルが可能であり、環境負荷低減の潜在力があると考えられる。

設定シナリオは限定された、単純なものであるが、WIOモデルを用いて、製鋼スラグからのリンの回収がもたらす経済効果、環境負荷低減効果を試算し、本法がいずれにも有効であることが示された。本法によってリンを回収された後の残物の焼結工程へのリサイクル、更には安価で埋蔵量が豊富な高リン鉄鉱石も使用可能になると考えられ、経済効果および環境負荷低減効果はより優れた結果が期待されると思われる。

## 5. 結言

強磁場を用いた製鋼スラグからのリンの分離回収法の開発を目的として研究を行い、以下の結論を得た。

国内におけるリンのマテリアルフローを明らかにし、従来考慮されてこなかった鉄鉱石や石炭中のリンによるフロー量が、リン鉱石によるリンの輸入量とほぼ同量であることを示した。特に、製鋼スラグに濃縮されるリン量は肥料原料としてのリン消費量の約30%に相当し、リンの回収ターゲットとして注目すべきである。

製鋼スラグ中のリンの濃縮相とマトリックス相における磁気特性の違いを利用した、スラグからのリンの磁気分離を提案し、その分離原理に従って実証実験を行った。その結果、2T程度の磁場勾配中において、スラグからのリン濃縮相の分離が確認でき、原理的には磁気分離が可能であることを証明した。

廃棄物産業連関モデルを用いて、本法による経済効果、環境負荷低減効果を定量的に評価し、本法が有効であることを示した。

有益な御助言、御協力を賜った千田 晋博士（東北経済連合会）、加藤 賢氏（現東北大学大学院環境科学研究科修士課程）、日本鉄鋼協会マルチフェーズフラックスを利用した新精錬プロセス技術研究会および交流強磁場利用環境・材料プロセス研究会委員各位に深く感謝申し上げます。本研究の一部は（独）科学技術新興機構、戦略的創造研究推進事業・社会技術研究（公募型プログラム「循環型社会」）および文部科学省科学研究費補助金（基盤研究B）の御援助を受けた。また、本研究で用いたバルク磁石装置は、岩手県地域結集型共同研究事業（H11-H15, JST事業、主管：いわて産業振興センター）で開発した装置を共同利用させて頂いたものである。付記して謝意を表する。

## 文 献

- 1) Trade Statistics of Japan, Ministry of Finance, (2004), <http://www.customs.go.jp/toukei/info/index.htm>
- 2) H.Ono, A.Inagaki, T.Masui, Y.Narita, T.Mitsuo, S.Nosaka and S.Aida: *Tetsu-to-Hagané*, **66** (1980), 1317.
- 3) 藤田豊久, 岩崎 巖: 秋田大学鉱山学部研究報告, **10** (1989), 15.
- 4) S.Shiomi, Y.Muraki and N.Sano: *Tetsu-to-Hagané*, **71** (1985), 1504.
- 5) H.Suito and M.Tokuda: *ISIJ Int.*, **35** (1995), 1079.
- 6) M.S.Al-Masri, S.Mamish and Y.Budeir: *J. Environ. Radioactivity*, **58** (2002), 35.
- 7) J.Mizutani: *J. Jpn. Soc. Civ. Eng.*, **556** (1997), 103.
- 8) S.Ando and H.Obata: *Saisei-to-Riyou*, **14** (1991), 40.
- 9) F.Mishina and T.Shinpo: *Saisei-to-Riyou*, **26** (2003), 13.
- 10) V.Smil: *Annu. Rev. Energy Environ.*, **25** (2000), 53.
- 11) 2000 Input Output Tables, Ministry of Internal Affairs and Communications, Japan, (2004).
- 12) 農林水産省総合食料局食料企画課計画班: 食料需給表, (2002), <http://www.kanbou.maff.go.jp/www/fbs/fbs-top.htm>
- 13) 科学技術庁資源調査会編: 五訂 日本食品標準成分表 (日本食品標準成分表の改訂に関する調査報告), (2000), <http://food.tokyo.jst.go.jp/>
- 14) 農林水産省生産局生産資材課監修, (財) 農林統計協会: ポケット肥料要覧, (2002/2003).
- 15) 農林水産省生産局畜産部飼料課監修, (財) 農林統計協会: 飼料流通便覧, (2002).
- 16) 農林水産省統計部編, (財) 農林統計協会: ポケット畜産統計, (2002), <http://www.tdb.maff.go.jp/toukei/a02smenu?TouID=F009>
- 17) 農水省生産局畜産部畜産企画課畜産環境対策室HP: 畜産環境をめぐる情勢, <http://www.maff.go.jp/chikukan/>
- 18) 国土交通省 都市・地域整備局下水道部: 汚泥有効利用に関するデータベース, <http://www.mlit.go.jp/crd/city/sewerage/info/odeidb/031224db.html>
- 19) 国土交通省河川局HP内統計データ: 一級水系の性状流量, 一級水系の流況, (2000), <http://www.mlit.go.jp/river/jiten/toukei/index.html>
- 20) 国土交通省河川局編 (社) 日本河川協会: 流量年表, (2001).
- 21) 国土交通省水文水質データベースHP: ダム統計情報, <http://www2.river.go.jp/dam/>
- 22) 環境省大臣官房廃棄物・リサイクル対策部廃棄物対策課: 日本の廃棄物処理, (2004), [http://www.env.go.jp/recycle/waste\\_tech/ippan/h13/data/disposal.doc](http://www.env.go.jp/recycle/waste_tech/ippan/h13/data/disposal.doc)
- 23) Web site of Statistic Bureau, Ministry of Internal Affairs and Communications, <http://www.stat.go.jp/english/index.htm>
- 24) Web site of Nippon Slag Association (Statistic data), <http://www.slg.jp/e/statistics-e.htm>
- 25) Handbook of Iron and Steel Statistics, The Iron and Steel Federation of Japan, (2003).
- 26) 石灰石鉱業協会HP内統計資料: 石灰石生産量および用途別出荷量推移, <http://www.limestone.gr.jp/>
- 27) Yearbook of Mineral Resources and Petroleum Products Statistics, Ministry of Economy, Trade and Industry, (2002), <http://www.meti.go.jp/statistics/index.html>
- 28) Coke Note 2004, The Japan Institute of Energy Edit, (2004).
- 29) Web site of Japan Coal Energy Center, <http://www.ccej.or.jp/jcis/index.htm>
- 30) Web site of Nation. Inst. Env. Studies, Database on Chemical Substances, <http://www.nies.go.jp/db/index.html#kenko>
- 31) T.Futatsuka, K.Shitogiden, T.Miki, T.Nagasaka and M.Hino: *ISIJ Int.*, **44** (2004), 753.
- 32) K.Obara and H.Okada: *Bull. Iron Steel Inst. Jpn.*, **10** (2005), 402.
- 33) T.Oka, K.Yokoyama, Y.Ito, Y.Yanagi, M.Yoshikawa, H.Ikuta, U.Mizutani, H.Okada and K.Noto: *Physica C*, **392-396** (2003), 709.
- 34) S.Nakamura and Y.Kondo: *J. Ind. Ecol.*, **6** (2002), 39.
- 35) K.Yokoyama, T.Nagasaka, S.Nakamura: *Bull. Iron Steel Inst. Jpn.*, **10** (2005), 862.