

早稲田大学大学院 創造理工学研究科

博士論文審査報告書

論 文 題 目

Gigatonne-scale reduction of CO₂ emissions
via mineralization using iron and steel slags

鉄鋼スラグを用いた鉱化によるギガトン
スケールの CO₂ 排出削減に関する研究

申 請 者

Corey Adam	MYERS
マイヤズ	コーリ アダム

総合機械工学専攻 エクセルギー工学研究

2019 年 7 月

(1) 審査経緯

当該博士論文審査は、以下の通り実施された。

- 2019年3月7日 副査に事前説明，予備審査開催通知申請書提出
- 2019年3月28日 予備審査会
- 2019年4月18日 教室受理決定
- 2019年5月14日 博士論文審査第一回目
- 2019年5月23日 創造理工学研究科運営委員会受理決定
- 2019年5月28日 博士論文審査第二回目
- 2019年6月7日 公聴会
- 2019年7月4日 審査分科会
- 2019年7月25日 創造理工学研究科運営委員会合否判定

(2) 論文の背景，内容および評価

パリ協定の気温上昇抑制目標への実質的な寄与のためには，人為起源 CO_2 の大気放散の大量削減，望むらくはギガトンの規模で早期に実現できる低コストな技術が必要である．大規模な CO_2 分離回収と地下貯留技術（CCS）が社会的・経済的な理由から加速的な展開において足踏みする中，利用あるいは固定化（CCUS）にも注目が集まっている．一方，産業分野で主要な CO_2 排出源である鉄鋼業は，世界的なコスト競争の中でさらなる削減を強いられる状況にあって，新たな技術の登場が期待されている．高炉，転炉および電炉からは鉄鋼生産とともにスラグが大量に副生しているが，その中には Ca や Mg などアルカリ土類金属の酸化物が多く含まれており， CO_2 と炭酸塩の形成によって副原料として再利用，あるいは建設骨材として上市可能となる．前者は石灰石の脱炭酸に起因する CO_2 の排出抑制，後者は CO_2 鉱化による安定的な固定化をもたらす，既存の鉄鋼生産工程に影響を与えることなく大幅な CO_2 削減が可能である．鉄鋼スラグを用いた炭酸塩化において，最終的な廃水処理を不要とする乾式プロセスの既往研究では，鉱化速度が遅く実現に至っていない．本論文ではその原因をスラグ中に存在する様々な鉱物種ごとの CO_2 拡散・反応速度の大きな差異に起因する閉塞（Mineral Locking）であることを突き止め，鉱化に適した鉱物を低エネルギーで分離する二つの方法を考案している．その第一の方法は，熔融状態のスラグの超徐冷によるそれぞれの鉱物種の粒成長と固化後の急冷による熱衝撃で粒界に微小亀裂を発生させ，粉砕エネルギーを劇的に低減する MYNA プロセスであり，第二の方法は回転コンテナ中で熔融スラグを層状に高速分離する遠心分離の適用である．いずれの方法においても，サブプロセスとして熔融状態での処理，固化したスラグの室温での粉砕・研削による微粉化処理および CO_2 との乾式鉱化処理の三つがあり，本論文ではそれぞれ独立した章として構成している．まず，熔融状態での処理において，徐冷あるいは遠心分離に伴う局所の鉱物組

成の変化が融点，核生成遅延時間，密度，粘性係数および熱伝導率などの物性値に与える影響は大きく，その確度の高い予測はプロセス設計に必要不可欠である．しかしながら，既往文献のデータは限定的な範囲に留まる上，複合組成の全てについて網羅的な実験は現実的ではなく，高コストな第一原理や熱力学的な状態図計算でも高精度な予測は困難である．本論文では深層ニューラルネットワークを用いた機械学習を適用し，組成や温度に依存する複雑な挙動を示す溶融状態の物性値についてプロセス設計に適用できるレベルの予測が可能であることを示している．高炉，転炉および電炉スラグそれぞれについて組成を考慮し，機械学習で予測した物性値を用いて遠心分離操作における力学的モデルによって回転円筒容器内での半径方向の非定常な密度，粘度および過冷却度分布を求め，内側から主にケイ酸カルシウム，アルカリ土類酸化物，アルミナおよび鉄系の各層に数分以内に分離可能であることを示している．また，MYNAプロセスでも融点，粘度および核生成遅延時間に同予測値を用いた固化における鉍物粒子径を算出し，超徐冷によって100倍以上の径に成長することを明らかにしている．この結果は，冷却固化操作に続く微粉化処理での消費エネルギー削減とMineral Lockingの解消に大きく寄与することになる．半無限体のスラブを仮定し，熱衝撃によるスラグ粒界の微小亀裂の断熱効果を考慮したモデルで，水中での急冷時における非定常な温度と熱応力分布の変化とともに，熱応力破壊の過程について予測し，40%程度の鉍物がスラグ塊から容易に解放されることを見出している．さらに全粒度分布を与え，表面粗さと鉍物種ごとの表面エネルギーを考慮して粉砕に必要な全エネルギーを計算することで，MYNAプロセスが従来の徐冷スラグに対して粉砕エネルギーを大きく下げうることを示している．CO₂鉍化速度は鉍物種によって10⁸以上異なるため，スラグに含まれる主要な鉍物を人工的に合成し，最終排気を模擬した環境下での鉍化試験によって得た拡散係数と全粒度分布を考慮した未反応核モデルにてMineral Locking回避条件を明らかにしている．これらの結果を基に，カバー付きコンベヤでの実装を想定したMYNAプロセスで完全鉍化時間と粉砕粒径で整理するとともに，粉砕および遠心分離の電源のCO₂排出係数を考慮した正味の固定量を算出している．最後に，全世界の鉄鋼業への本技術の普及シナリオに基づくCO₂削減ポテンシャルがギガトンオーダーであり，分離成分の有効利用によって収益も見込めることを示している．

以上要するに，本論文はスラグを溶融状態で遠心分離，あるいは超徐冷と急冷のMYNAプロセスによって有用な鉍物に低エネルギーで分離することで，鉄鋼生産工程に影響を与えず，経済的にギガトンオーダーのCO₂を削除する実効的な方法を提案し，地球温暖化防止に貢献するものである．よって本論文は博士（工学）早稲田大学の学位論文として価値あるものと認める．

2019年7月

審査員

主査 早稲田大学教授 博士（工学）早稲田大学 中垣 隆雄

早稲田大学教授 工学博士（早稲田大学） 勝田 正文

早稲田大学教授 博士（工学）早稲田大学 草鹿 仁

早稲田大学教授 博士（工学）早稲田大学 吉田 誠
