

水素プラズマによる直接還元の基本研究

広島大学大学院先進理工系科学研究科 機械工学プログラム 教授 鈴木 康浩

1. 緒言

2050年カーボンニュートラルを目指すうえで、製鉄分野においても二酸化炭素（CO₂）の排出を削減する試みが求められている。製鉄において鉄鉱石を還元するにはコークス（炭素）を用いて酸素を還元する方法が一般的であり、この還元過程でCO₂が発生する。現在は、この還元過程で発生するCO₂をいかに削減し、回収するか技術開発が注力されている。一方、還元過程において原理的にCO₂を発生しない手法として、水素を用いる水素製鉄がある[1]。水素を用いて酸化鉄を還元すれば、生成されるのは水分子（H₂O）のみとなり、CO₂は排出されない。水素製鉄は、製鉄分野におけるカーボンニュートラル実現の切り札として期待されている。

水素製鉄の開発はいくつかの手法があり、それぞれ研究開発が行われている。もっとも一般的な方法が、還元方法としてはこれまで通りコークスを用いた還元であるものの、高温水素ガスも吹き込み一部を水素による還元置き換えることでCO₂の排出量を削減するものである[2]。また、この還元過程ではメタンガスも発生するため、回収したメタンガスから水素を分離することでカーボンの回収と水素生成を両立させている。この方法は、いわば水素還元によるCO₂削減とカーボンの回収を組み合わせた、カーボンリサイクルを志向した手法といえる[2]。より水素還元の利点を押し出した手法として、水素による直接還元を用いる水素直接還元法がある。この場合、生成されるのはH₂Oのみであるのでカーボンニュートラルを実現できる。しかし、高炉による間接還元法に比べ効率で劣る点が問題であり、不純物の多い原料を還元するのに難点があるなど、実用化にはさらなる研究開発が必要である[2]。

水素による直接還元製鉄は、現在のところ高温コークスガスの代わりに高温水素ガスを注入する方式が検討されている。ところで、高温の還元ガスを注入する直接還元法ではなく、還元元素をプラズマ化し粉体鉄鉱石を直接還元させるプラズマ炉がある[3]。プラズマは原子がイオンと電子に分離しているために高い反応性を持つため、より効率が良い直接還元が期待できる。利点の多いプラズマ炉であるが、プラズマを生成するために大電力を必要とするため、エネルギー収支が他の方式に比べ大きく劣る。現在のところ、電気代の安い北欧などで多く使われるプロセスであるが[4]、我が国の深刻なエネルギー事情を考慮すると、採用できないのが実情である。しかし、反応性の高いプラズマを利用するプラズマ炉において高温水素プラズマによる直接還元ができれば、製鉄分野におけるカーボンニュートラル実現に大きく近づく。そのために、エネルギー効率を重視した水素プラズマによる水素直接還元法を実現する必要がある。そこで、本提案では、将来の製鉄分野におけるカーボンニュートラルを実現するために高温水素プラズマを用いた水素直接還元法の基

礎研究を行う。

現在のプラズマ炉の欠点は、プラズマジェットを直流もしくは交流の大電力アーク放電によりプラズマを生成するために、エネルギー収支が著しく劣ることである。そこで、本課題では、深宇宙用探査用の推進方法として大きな期待が寄せられているプラズマロケット[5]を応用し、低電力でも高密度プラズマの生成が期待できるマイクロ波によるプラズマ生成[6]と、永久磁石による磁気ノズル[7], [8]を組み合わせた新しい方式のプラズマジェットを試作する。製作したプラズマジェットを粉体の鉄鉱石に噴射し、鉄の還元過程を調べる。その際に、プラズマの温度・密度に対する酸化鉄の還元率を評価指数とし評価する。

2. 新しい方式のプラズマジェット推進器の設計・製作

2.1. より低電力化を目指したプラズマジェット推進器の概要

前述のように、これまでのプラズマ炉の欠点は、大電力アーク放電によるエネルギー収支の悪さであった。いわゆるプラズマ炉では、大気圧もしくは高圧であるためにプラズマ化の効率が悪く、直流もしくは交流大電力により原子・分子を強制的に電離（プラズマ化）させる方法がとられてきた。一方、プラズマジェットは宇宙空間での利用を前提としているために、リアクタ内の圧力が真空に近く、より効率的なプラズマ化が期待できる。

一方、プラズマ生成に大電力を使用しない効率的なプラズマ生成法として、マイクロ波を用いる方法がある。波長がマイクロメートルの電磁波を気体に照射することで、原子や分子がプラズマ化する。さらに、リアクタ内に磁場を重畳し、電子のサイクロトロン周波数と同じ周波数のマイクロ波を投入することで、共鳴によりプラズマを生成・加熱できる電子サイクロトロン共鳴加熱[9]を用いることで、より効率的なプラズマが生成可能となる。よって、今回、設計・製作する新しいプラズマジェット推進器は、この電子サイクロトロン共鳴加熱を採用した物とする。磁場による電子サイクロトロン周波数 Ω_e は、以下の式によって求めることができる。

$$\Omega_e = \frac{eB}{m_e} = 1.76 \times 10^{11} B \text{ [Hz]} \quad (1)$$

磁場の強さ B が 875 ガウスならば、電子サイクロトロン周波数 Ω_e は 2.45GHz となる。電子サイクロトロン周波数 Ω_e が 2.45GHz のマイクロ波発生器は規格化されており、家庭用電子レンジなど、多くの産業機器にて実用化されている。

2.2. 半導体ベースマイクロ波発生装置

マイクロ波を発生する電子機器は、ジャイロトロンと呼ばれる真空管である。中でも 2.45GHz のマイクロ波を発生させる真空管は別名マグネトロンと呼ばれる[10]。マグネトロンの基本的な仕組みは以下の通りである。真空管に陰極と陽極を設置し、陰極を加熱すると熱電子が放出される。そこに、高電圧で電場を加えると、電場により熱電子は加速する。一方、真空管内には磁石が設置されており、磁場の力によってローレンツ力を受け、

周回運動（サイクロトロン運動）を始める。このサイクロトロン運動と、真空管内の空洞（キャビティ）が共振するとマイクロ波が放出される。マグネトロンは、陽極で熱電子を加速させるため、それなりの電力を必要とする。従って、本課題で提案する方法で直接還元を行う場合、これまでの方法と同様に、電力消費量がコストの面で問題となる可能性がある。そこで、低電力でマイクロ波発振を可能とするために、本課題では半導体ベース（ソリッドステート）マイクロ波発信器[11]を採用し、低電力と高効率を両立したマイクロ波プラズマを生成することを目指す。

ソリッドステートマイクロ波発信器は、水晶で初期信号の周波数を設定し、その電力を一連のトランジスタステージで大幅に増幅する仕組みになっている。数 kW の出力を得るためには、目的の出力が得られるまで、複数の半導体増幅器を組み合わせることが可能である。しかも、マグネトロンのように高電圧を必要とせず、マイクロ波を発生させることができ、実際、必要な電圧は 30～50 ボルトの範囲内であればよく、機器の設計や作業者の安全性を高めることができる。

2.3.本課題で製作するマイクロ波生成プラズマジェット推進器の概要

本課題で設計製作する新しいプラズマジェット推進器は、ECR プラズマスラスタに分類される。ECR プラズマスラスタとは、導波管によるマイクロ波供給と永久磁石による磁場形成で電子サイクロトロン共鳴(ECR, Electron Cyclotron Resonance)を発生させ、生成・加熱・加速したプラズマを放出するものである。ECR プラズマスラスタは、次の 2 つの部分により構成される。

1. 導波管によるマイクロ波供給
 - (a). 導波管内をマイクロ波が伝搬することでエネルギーを供給
 - (b). 本実験装置で、周波数は 2.45GHz
 - (c). マイクロ波の生成はマグネトロンを用いず、ソリッドステートマイクロ波発信器を採用
2. 永久磁石による磁場は以下の役割を持つ
 - (a). プラズマの閉じ込め
 - (b). 磁気ノズル
 - (c). 電子サイクロトロン共鳴加熱
 - (d). 磁場強度は 875 ガウス

ECR プラズマスラスタの概要を図 1 に示す。

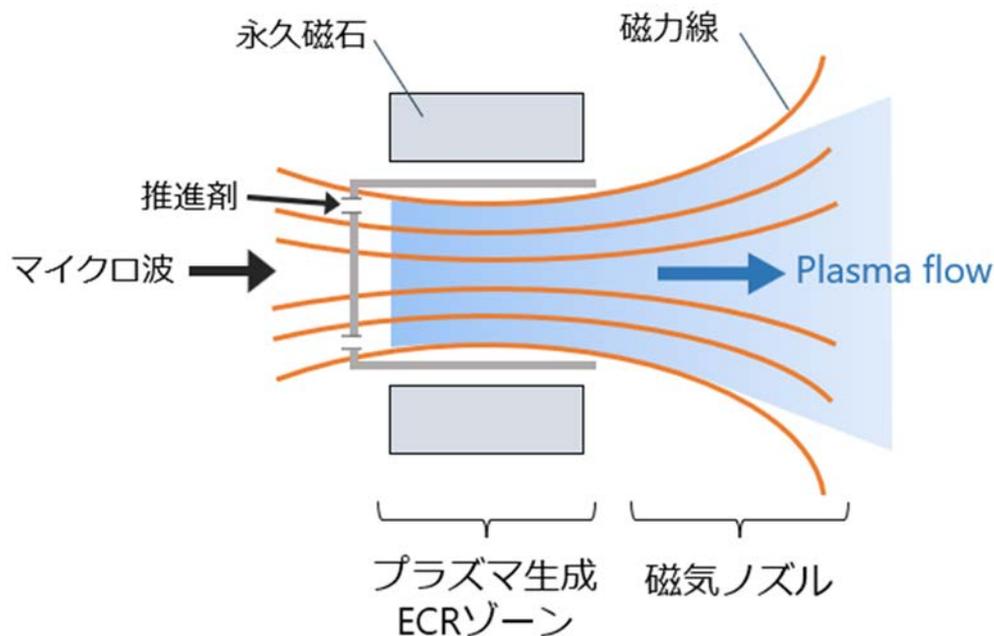


図1 ECR プラズマスラストの構成（プラズマ生成部と磁気ノズルからなる）

プラズマ生成ゾーンには、永久磁石により 0.1 テスラ（875 ガウス）の磁場が印可されている。そして、導波管によりソリッドステートマイクロ波発信器で発信されたマイクロ波がプラズマ生成ゾーンに入射され、同時に推進剤となる水素ガスが混入される。水素ガスは、電子サイクロトロン共鳴加熱によりプラズマ化され、磁気ノズル部にプラズマが流れる。磁気ノズル部では、末広がりになった磁力線に沿ってプラズマが加速されることで、高速の水素プラズマジェットが生まれる。

この水素プラズマジェットの下流部に鉄鉱石を当てることで、直接還元を行うのが本課題の基本的なアイデアである。

2.4. マイクロ波生成プラズマジェット推進器の製作

電子サイクロトロン共鳴加熱によりマイクロ波プラズマを生成し、かつ磁気ノズルにより水素プラズマジェットを加速するには、適切な磁場強度と磁場の分布を持った磁気ノズルの製作が重要である。磁場は 8 個のネオジウム磁石により生成する。磁石の配置と、有限要素法により磁場の解析を行った結果を図 2 と 3 に示す。

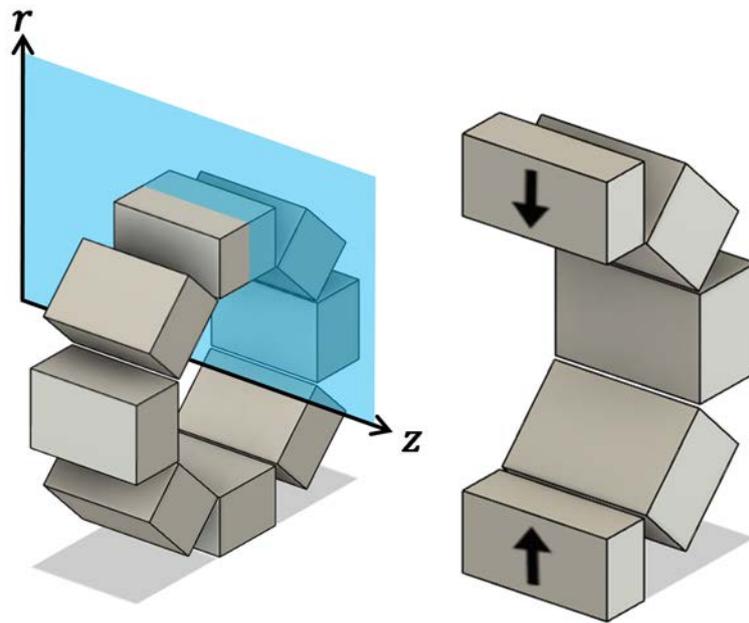


図2 ネオジウム磁石8個で構成される磁場生成部（左図は全体像、右図は左図の r に沿った断面図、矢印は磁場の方向を示す）

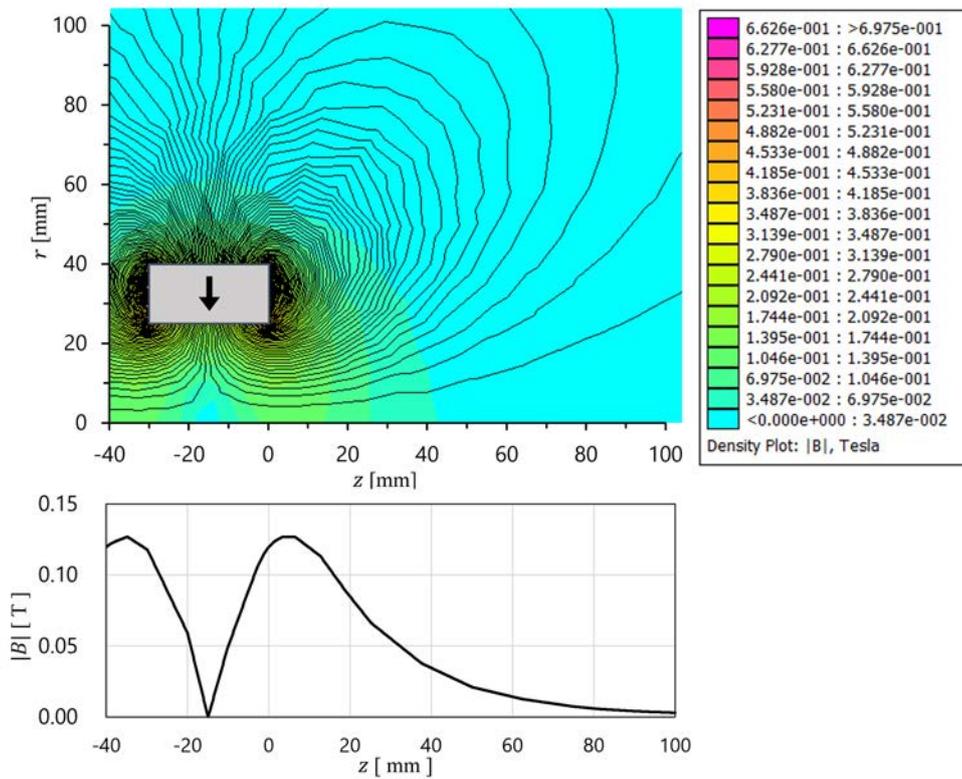


図3 有限要素法による磁場解析結果
（上図は磁場強度の等高線、下図は z 軸に沿った磁場強度の分布）

図2に示すように、ネオジウム磁石による磁気ノズルは、方形の永久磁石を8個、円環状に並べた構造をしている。図2右に示すように、磁場は円管の中心に向かうように並べられ、円環の両側へ磁力線が向かうようになっている。図2左に示すように、磁石を並べた円管の中心に z 軸、 z 軸を中心に円環方向に半径 r 軸を取ると、 (r,z) 平面を水色で示した面として取ることが出来る。磁場の構造は円環に沿って対称性があると仮定できるので、水色で示した (r,z) 平面上で有限要素法による磁場解析を行った。結果を図3に示す。図3上は有限要素法による磁場解析の結果である。磁場の強さを等高線として示した。図3下は、 z 軸に沿った磁場強度の変化を示す。円環の中心で、すべての磁石が作る磁場をキャンセルすることにより磁場の強さが0になるが、円環の出口付近で電子サイクロトロン共鳴加熱に必要な875 Gaussの磁場が出来ていることが解る。

図4と5に、実際にネオジウム磁石を格納するケースの作成と真空チャンバーに設置し、ソリッドステートマイクロ波発信器で接続した完成形を示す。図4に示されているネオジウム磁石の格納ケースは、素材としてガラスファイバーを採用し3Dプリンティングにより製作されている。方形のネオジウム磁石を格納し、かつ計量に真空容器中に浮かす形で設置できるようになっている。図4の写真にあるように、4本のねじ棒で真空フランジに固定されており、ねじを回すことで z 軸方向に磁気ノズルの位置を移動することも出来る。

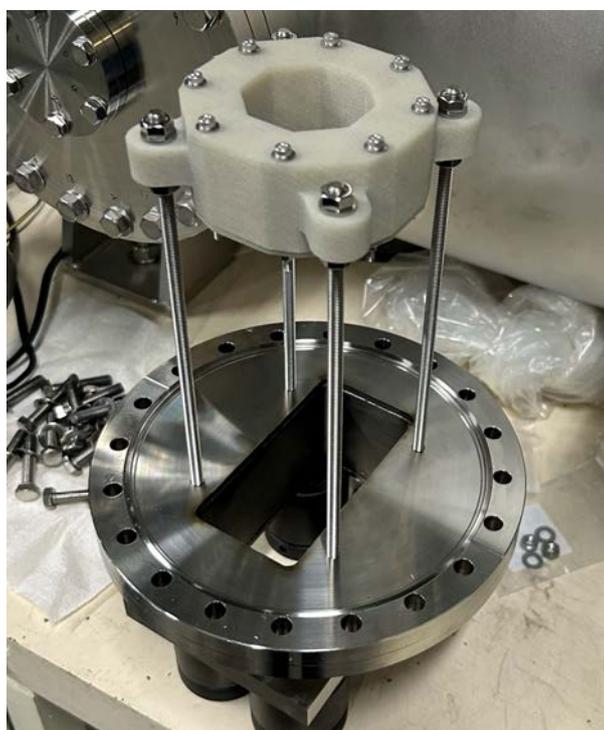


図4 3Dプリンティングにより製作されたネオジウム磁石格納ケースと真空フランジに設置したもの

図5は、真空容器に磁気ノズルを設置し導波管を接続後、ソリッドステートマイクロ波発信器を接続した完成形を示す。

本課題で製作した新型プラズマジェット推進器は、本課題が採択後、直ちに設計と製作に取りかかったが、世界的な半導体不足によりソリッドステートマイクロ波発信器の調達に時間を要した。そのため新型プラズマジェットの実験の実験は2024年から開始する予定である。

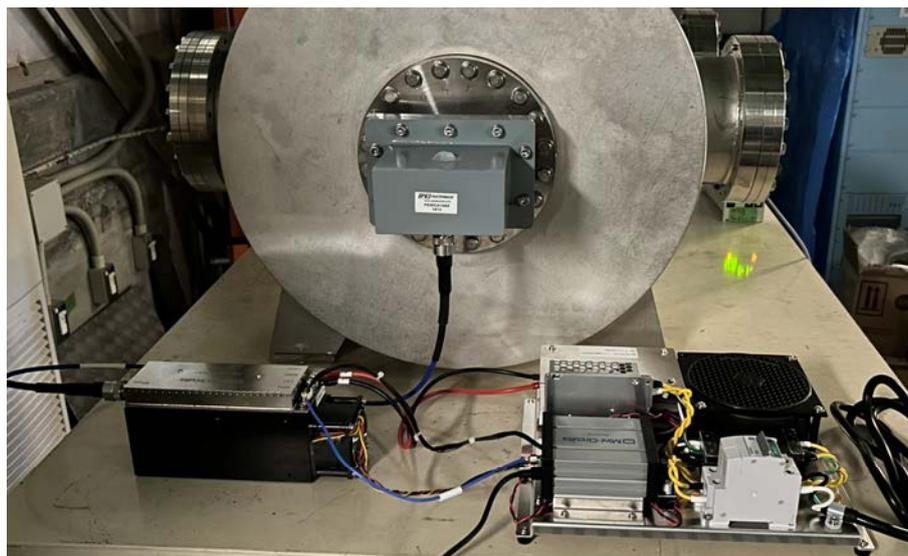


図5 真空容器に導波管を接続し、ソリッドステートマイクロ波発信器を接続した完成形

3. 水素直接還元の評価に使う材料片の作成

本課題の目的は、新型プラズマジェットを用いた水素による鉄の直接還元の研究である。本来であれば実際の製錬過程においてコークスを水素に置換した実験を行うことが理想である。しかし、そのような実験は簡単ではないために、本課題では純鉄の試験片を作成し、リアクタ中で水素と反応させることで腐食をおこし、その過程を顕微鏡で観察することで、直接還元の効率について考察することとした。

図6に、本課題のために製作した純鉄の試験片を示す。純鉄の板材の表面を研磨処理し、水素との反応を調べやすくした。水素による腐食を考察するためには、二次イオン質量分析法（SIMS : Secondary Ion Mass Spectrometry）を用いる。この方法は、材料の深さ方向に対して、どの程度水素が侵入するかを計測することが出来、プラズマジェットと鉱石の反応を評価するのに有効な情報が得られると考えられる。



図6 水素プラズマジェットによる直接還元検証のために製作した純鉄の試験片（表面を研磨し密封処理を施した）

4. 結言

本課題では、宇宙推進で活用されるプラズマジェットを活用し、水素プラズマを活用した鉄の直接還元を考察した。まず、低電力で水素プラズマジェットを作るために、半導体ベースのソリッドステートマイクロ波発信器を用いた ECR プラズマジェットを開発した。次に、水素による直接還元を考察するために、純鉄の試験片を作成し、プラズマジェットと反応させることで、水素の材料に対する侵入を評価することを計画した。しかし、世界的な半導体不足によるソリッドステートマイクロ波発信器の導入の遅れにより、2023 年度中の実験は叶わなかった。そこで、2024 年に直ちに実験を開始し、本課題に対する結論を得る予定である。本課題で提案する方法は、鉬石と水素の反応をより詳細に考察することにつながり、これまでになかった結論を得ることができると期待している。

謝辞

本研究は 2022 年度の公益財団法人 JFE21 世紀財団の技術研究助成により行われました。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- [1] 磯原豊司雄, “水素を利用した製鉄の技術,” 化学と教育, vol. 70, no. 9, pp. 422-425, 2022.
- [2] “水素を活用した製鉄技術、今どこまで進んでる?,” 経済産業省 資源エネルギー庁. [Online]. Available: https://www.enecho.meti.go.jp/about/special/johoteikyo/suiso_seitetu.html. [Accessed: 21-Jan-2024].
- [3] 中村正和 and 徳光直樹, “熔融還元に関する技術開発の現状,” 鉄と鋼, vol. 67, no. 3, pp. 480-489, 1981.
- [4] 有山達郎, “鉄鋼における二酸化炭素削減長期目標達成に向けた技術展望,” 鉄と鋼, vol. 105, no. 6, pp. 567-586, 2019.
- [5] M. Keidar and I. I. Beilis, “Chapter 5 - Plasma in Space Propulsion,” in *Plasma Engineering*, M. Keidar and I. I. Beilis, Eds. Boston: Academic Press, 2013, pp. 173–285.
- [6] 河合良信, “マイクロ波を用いた大口径プラズマ源の開発,” 応用物理, vol. 66, no. 6, pp. 584-588, 1997.
- [7] F. Boni, V. Désangles, and J. Jarrige, “Experimental characterization of thrust production mechanisms in a magnetic nozzle ECR thruster,” *Journal of Electric Propulsion*, vol. 1, no. 1, p. 33, Dec. 2022.
- [8] K. Takahashi, C. Charles, R. Boswell, and A. Ando, “Performance improvement of a permanent magnet helicon plasma thruster,” *J. Phys. D Appl. Phys.*, vol. 46, no. 35, p. 352001, Aug. 2013.
- [9] F. Jaeger, A. J. Lichtenberg, and M. A. Lieberman, “Theory of electron cyclotron resonance heating. I. Short time and adiabatic effects,” *Plasma Phys.*, vol. 14, no. 12, p. 1073, Dec. 1972.
- [10] Wikipedia contributors, “マグネトロン,” *Wikipedia, The Free Encyclopedia*, 09-Nov-2023. [Online]. Available: <https://ja.wikipedia.org/w/index.php?title=%E3%83%9E%E3%82%B0%E3%83%8D%E3%83%88%E3%83%AD%E3%83%B3&oldid=97813200>.
- [11] “なぜ半導体がマイクロ波発電機の未来を担うのか?,” *SAIREM*, 17-Sep-2020. [Online]. Available: <https://www.sairem.com/ja/why-semiconductors-are-the-future-of-industrial-microwave-generators/>. [Accessed: 21-Jan-2024].