

令和 5 年 5 月 12 日現在

機関番号：82108

研究種目：挑戦的研究（萌芽）

研究期間：2019～2022

課題番号：19K21904

研究課題名（和文）月面レゴリスからの構造材料用粗鋼生産を目的とした電子線励起アシスト製鉄技術の開発

研究課題名（英文）Development of Iron Manufacture Process Assisted by Electron-Beam Excitation from Moon Surface Regolith for Structural Materials

研究代表者

三井 正（Mitsui, Tadashi）

国立研究開発法人物質・材料研究機構・先端材料解析研究拠点・主任研究員

研究者番号：90343863

交付決定額（研究期間全体）：（直接経費） 5,000,000円

研究成果の概要（和文）：真空化した加熱炉中で電子線を照射する装置を開発し、模擬月面レゴリス試料を電子線励起の援用により比較的低い温度で熱分解法を用いて還元し、鉄鋼材料を得る基礎技術の検討を行った。電子線照射を行うことで、マグネタイト(Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>)からウスタイト(FeO)までの還元反応は促進されることが明らかになったが、FeOから純鉄(Fe)への還元反応にはあまり促進されなかった。シミュレーションを行ったところ、本研究で開発した装置では電荷の漏出がかなり大きかったことが判明し、「電子線励起アシスト還元製鉄反応においては還元反応の起こる領域に一定量以上の電荷が滞留していることが重要である」という知見が得られた。

研究成果の学術的意義や社会的意義

月へ1kgの物資を運ぶコストは約1000万円とされており、将来の月面基地の建設のためには「現地資源利用(In-Situ Resource Utilization: ISRU)」は必要不可欠である。本研究は月面を覆う砂(レゴリス)から、構造材料用の鉄と生命維持のための酸素を得るため、電子線励起アシスト還元製鉄技術の基礎研究を行った。その結果、対象となる試料中に電荷を滞留・蓄積すること、電子線強度の抜本的向上(電荷が流出するよりも速く、大量の電子を局所領域に投入する)を行う必要があることが判明した。ISRUのためには電子ビーム溶接機相当の電子線発生装置を月面に持ち込む必要があることがわかった。

研究成果の概要（英文）：I have developed the electron-beam (EB) irradiation system combined with vacuum furnace, and have tried to performed the reduction of lunar regolith simulants by thermal decomposition method under relative low temperature with assist of EB-irradiation. The goal of this research is iron manufacture on the moon surface.

It is found that the reduction reaction from Magnetite (Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub>) to Wustite (FeO) is accelerated by EB-irradiation. However, the reduction reaction from FeO to Iron (Fe) is not so accelerated. The results of simulation indicate that leakage of charge in our apparatus is rather large, and suggest that the charge-concentration is most important factor for the reduction reaction in iron manufacture process assisted by electron-beam excitation.

研究分野：材料科学

キーワード：月面レゴリス 月資源 製鉄 電子線励起 熱分解

## 1. 研究開始当初の背景

近年、世界各国で月資源への注目が再び高まっており、多くの探査計画が進められている(月周回ステーション計画、等)。特に米国には、大型のロケットを有する公的機関(NASA)や、打ち上げロケットの再利用により大幅なコスト削減を図った民間企業(スペースX社)があり、非常に優位な立場にある。一方、日本には大重量を運搬する輸送手段を有しておらず、不利な立場にあり、通常の開発プロジェクトを続けている限り、米国との差は開く一方である。このことは本研究の開始当初の時点で広く認識されており、開発の方向性を大きく変革・転換し、現状を打開する手段・技術が求められていた。その一つとして、月面において物資を現地調達すること、すなわち「現地資源利用(In-Situ Resource Utilization: ISRU)」が注目されていた。

現在、利用価値が高い月面の資源として、月の極地域の「永久影」にあるとされる「水」が注目されている。水は宇宙飛行士の生命維持活動だけでなく、電気分解することで推進剤(プロペラント)としても使用できるため、利用価値は高い。しかしながら、それは「水を電気分解して推進剤を製造する装置」を月に持ち込んだ後、具体的には月面基地の建設が完了した後の話であって、現在の日本の宇宙開発の現状を考えれば、そこにたどり着くまでのハードルは非常に高いと考えられる。

コストという観点から考えれば、地球から月へ物資を運ぶ、ということがもっともコストがかかっているのであるから、月面基地の建設という点では運搬する物資の重量を削減することが最も効果的である。電子機器や作業用ロボット、気密区画などは信頼性の観点から地球から持ち込む必要があるが、ソーラーパネルやアンテナの支柱、デブリ除けの鉄板等の構造材料は運搬する重量の多くを占める割には、そこまでの信頼性は要求されない。具体的には、小型ソーラー電力セル実証機で使われた厚さ  $7.5\ \mu\text{m}$  のポリイミド樹脂製太陽電池フィルムを掛け軸のように吊るしておくだけの支柱ならば、強度や信頼性に多少劣っていても問題はないと考えられる(月面に風は吹かないし、重力は  $1/6$  しかない。常に太陽光が届く月の両極に建設するのであれば、ソーラーパネルは垂直に吊るすだけでよい。さらに、酸素も海水もないので、鉄やアルミニウムが錆びることもない)。そこで本研究では、「水」ではなく、より重量の大きい「鉄」を、ウスタイト( $\text{FeO}$ )を  $15\%$  含むとされる月面のレゴリスから入手し、鉄鋼材料を得る基礎技術の開発・確立を行うことが「月面基地建設においては」より効果的である、と着想した。

研究開始当初の段階で、研究分担者である石川は、透過型電子顕微鏡(TEM)中での「その場観察」において、 $\text{SiO}_2$  が電子線照射により活性化し、 $\text{SiO}_2$  の近傍に配置した鉄鉱石の主成分である  $\text{Fe}_2\text{O}_3$  を還元・分解する効果があることを発見していた(国際顕微鏡学会、Proceedings of 18th International Microscopy Congress, 18, pp.2957 (2014))。この「電子線励起アシスト製鉄プロセス」は元々、「炭素を使わず、ゆえに二酸化炭素ガスを排出しない製鉄法」として基礎研究を行っていたものである。しかしながら、大気のある地球上で製鉄を行う限り、石炭を使う方法がコスト面から最も優れていることは、これまでの歴史から明らかである。ただし、実際に製鉄炉などで起きている反応は、炭素そのものが酸化鉄に反応しているのではなく、大量の炭素に酸素を送り込んで高温で燃焼させ、一方で酸素が不足することで起きる不完全燃焼の際に生じた一酸化炭素( $\text{CO}$ )ガスを作用させて酸化鉄から酸素を奪うことで還元現象が起きている。それならば、ある程度高温と無酸素状態が得られるのであれば、 $\text{SiO}_2$  を電子線で励起して一部の酸素を脱離・分解して生成した  $\text{SiO}_{2-x}$  を直接、酸化鉄に作用させれば還元することが可能ではないか、という構想に至った。実際、ギブスの自由エネルギーを考慮すると『真空中であれば』 $\text{SiO}_2$  を用いて酸化鉄の還元反応が可能であることが理論的に説明されている。

「電子線励起アシスト製鉄プロセス」が優位性を発揮するのは、高温を得るための太陽エネルギー(太陽炉)、真空環境、そして原料となる酸化鉄が豊富にあり、一方で石炭などの炭化水素資源がまったく存在しない環境である。そのような環境というのは、すなわち「月面」である。さらに、月面基地建設の初期段階では、地球上の製鉄炉のように数万トン単位で粗鋼を生産する必要はなく、目的の部品を一品生産できればよいので、真空3Dプリンタ用の純鉄の粉末だけを生産できればよい。月面のレゴリスはもともと非常に細かい粉末であるから、これを直接還元して純鉄の粉末を得ることができるのならば、「生産調整が容易」であり、なによりも「持ち込む製造装置を小型・軽量化することが可能」という利点がある。

「電子線励起アシスト製鉄プロセス」では、月面でセメントやコンクリートを生産する場合のように月に水を持ち込む必要もなく、二酸化炭素が排出されるのではなく酸素が排出される。この酸素はそのまま月面基地の生命維持装置に回すことが可能であるため、「月の資源を活用した月面基地の建設」についての学術・技術体系を大きく変革・転換させる潜在性を有する挑戦的研究として意義があると考えられた。

海外に目を向けると、欧米での月面のレゴリスの資源利用の研究では、太陽炉を用いて超高温( $>2000$ )に加熱することで、水や  $\text{He}_3$  を絞り出し、さらに熱分解して酸素を得る、ということに主眼が置かれていた。ところが、これまであまり開発が進んでいなかったのは、実は蒸発した  $\text{Fe}$  や  $\text{Si}$  がガラス管の内面に蒸着されて太陽炉が機能しなくなる、という問題があったためとされる。そのため、当時から欧米で主流の方法は、地球から水素を持ち込み、レゴリス中のイルメ

ナイトを還元して水を得て、その水を再度、電気分解することで酸素を取り出し、水素のプロセスのサイクルを回す、というものであった。(H.M. Sargeant et al., Planetary and Space Science Vol.180 (2020) art.104751。)電子線励起アシスト製鉄プロセスにより熱分解温度を抑制することができるようになったことは、単に水や酸素以外に鉄が得られるようになったということだけでなく、太陽炉を実用的に運用できるようになる、ということを実証できると考えられた。

## 2. 研究の目的

本研究では、月面に建設する観測基地の構造材料(薄膜太陽電池パネルの支柱)用の鋼材を生産するために、月面を覆う砂(レゴリス)を電子線励起の援用により温度を抑制した(~600℃)直接熱分解法で還元して、真空3Dプリンタ用の純鉄粉を得るための技術開発を行うことを目的とした。具体的には人工的に作製した模擬月面レゴリスから、鉄鋼材料を得る基礎技術の開発・確立を行うことを目的とした。なお、本研究は、宇宙機の開発ではなく、「地球外物質」である月面のレゴリスについての物質科学の基礎研究に主眼をおいた研究である。

## 3. 研究の方法

本研究は、月面において製鉄を行うことを想定しているため、試料の加熱には太陽光を集光して加熱する「太陽炉」を模した装置を使って実験を行う必要がある。そこで、「光を透過する透明な」熔融石英ガラス管を管状加熱炉中に設置し、その内部をターボ分子ポンプ(TMP)で真空にすることで、月面の環境を再現した。(図1、図2)

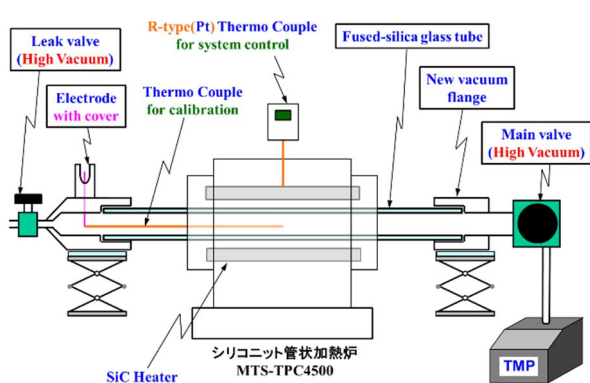


図1 実験装置 模式図

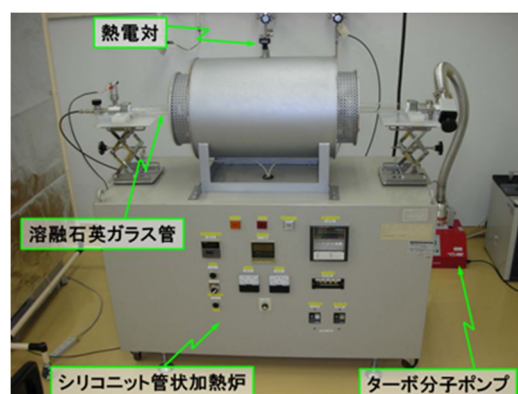


図2 実験装置外観 全景

通常、管状加熱炉中で熔融石英ガラス管を用いた実験では、融点と強度耐久性の問題から1200℃程度が上限である。しかしながら、電子線励起を援用した反応を用いると鉄の融点1535℃よりはるかに低い600℃でも反応が起きることが明らかになっているので、このような構成を採用した。電子線励起を援用することが、炉壁材料の選択を大きく広げることを示す良い例である。

電子線は、電流導入端子付きフランジ(図3、図4)内部の小型平板電極(図5)と、ターボ分子ポンプ側フランジの間に高電圧を印加することで、陰極側に設定した小型平板電極から電子線を放射させ、熔融石英ガラス管内の試料に照射する。電流導入端子は温度校正時に用いる熱電対(白金-ロジウム製 R-type)のための電極も兼ねており、電極は2本設置されている。高電圧印加時は一方のみを使用する。なお、熔融石英ガラス管は十分な絶縁性があるが、ステンレス製のフランジはリーク電流が発生する可能性があるため、シリコンゴム製のシートを用いて十分な絶縁性を確保してある。

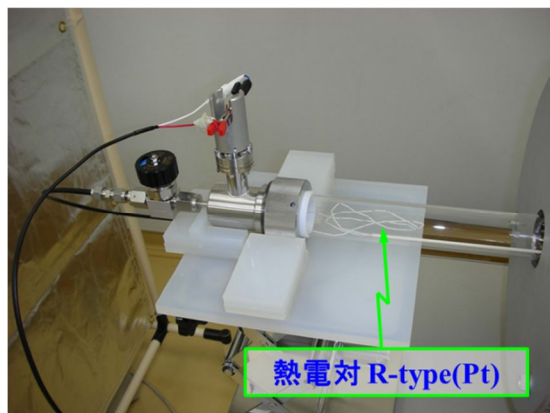


図3 電流導入端子付きフランジ  
熱電対は温度校正時のみ、使用する。

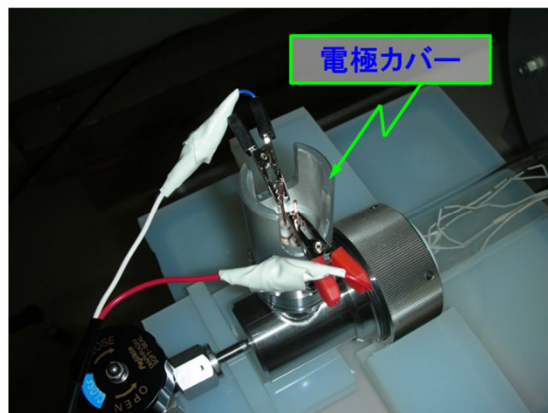


図4 電流導入端子部分 拡大図  
絶縁碍子を保護するため、カバーが付いている。

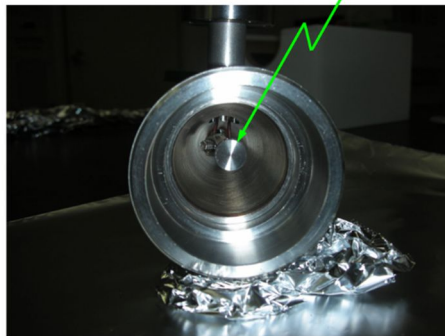
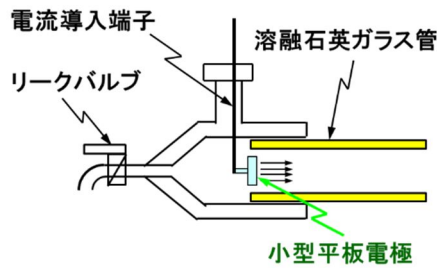


図5 電流導入端子付きフランジ内部と小型平板電極

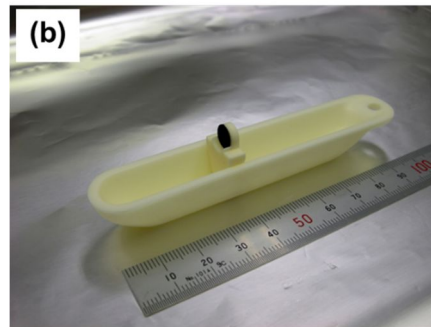
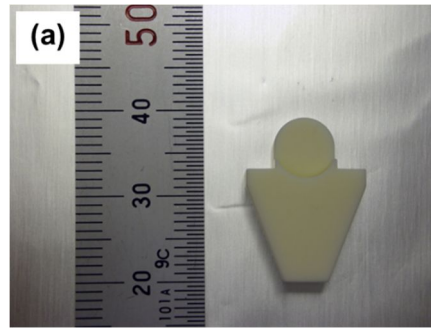


図6 (a) 試料ステージ、(b) 汎用のアルミナ製試料ポートにセット。

本実験で使用した試料の原料は、酸化鉄としてマグネタイト ( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ 、磁鉄鉱)、二酸化ケイ素 ( $\text{SiO}_2$ ) として水をほとんど含まない石英型、を用いた。当初は、ウスタイト ( $\text{FeO}$ ) を 15% 混合した  $\text{SiO}_2$  を模擬月面レゴリスとして使用する予定であったが、酸素がある地球大気中ではウスタイトはあまり化学的に安定しておらず、粉末にすると発火する場合もあるとのことなので、やや酸化数の大きいマグネタイトを用いることにした。マグネタイト  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  は、組成的には  $\text{FeO}:\text{Fe}_2\text{O}_3$  とも表記される。なお、 $\text{Fe}_2\text{O}_3$  は製鉄産業で用いられる鉄鉱石の主成分であるヘマタイト、赤鉄鉱である。

実験で用いた試料は、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$  と  $\text{SiO}_2$  を粉砕・混合した後、小型油圧プレス機で圧縮して作製し、ペレット状にしたものを用いた。ペレットの直径は 7 mm、厚さは 0.7~0.9 mm である。この形状及び大きさの試料を用いた理由は、組成分析に用いる粉末 X 線回折 (XRD) 実験装置 (MiniFlex-Cr : Rigaku 製) の標準的な試料形状に合わせるためである。

このペレット試料を熔融石英ガラス管内で垂直に保持し、電子線を照射するために、図6のような試料ステージ(a)を作製した。材質はアルミナセラミックスで出来ており、管状加熱炉内での加熱実験で一般的に用いられるアルミナ製試料ポートにセットして使用する(b)。試料は試料ステージ(a)の上部に立てかける形でセットし、垂直に保持する。試料ポートにセットして熔融石英ガラス管内に挿入するため重心が安定しており、また、試料が還元反応等で分解し、粉末状になって仮に落下しても試料ポートで回収される設計になっている。

#### 4. 研究成果

##### [1] $\text{SiO}_2$ の存在による還元促進効果

はじめに、 $\text{SiO}_2$  の存在が酸化鉄の還元に与える影響について調べた。研究分担者の石川が TEM 中で行った研究では、ヘマタイトが電子線照射により還元・分解される際、 $\text{SiO}_2$  が近傍に存在することが不可欠であるということが明らかになっていた。

そこでまずは、研究を行う試料そのものの真空・加熱条件下での特性について明らかにするため、電子線照射の効果を除いた状態での実験を行った。

試料は、

[1] 体積比 1:1 試料 :

重量混合比  $\text{SiO}_2 : \text{Fe}_3\text{O}_4 = 1 : 2.3542$  ( $\text{SiO}_2$ : 2.196 g /  $\text{cm}^3$ 、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ : 5.170 g /  $\text{cm}^3$ )

[2] 比較参照用試料 :

マグネタイト  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  100 %

を作製し、これらをそれぞれ真空中で、500、700、900 に 1.5 時間加熱処理した試料につ

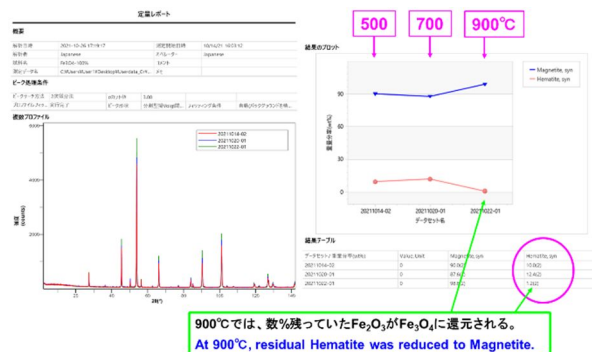


図7 マグネタイト 100%試料の XRD 測定結果

いて、XRD 測定を行い、組成分析を行った。その結果を、図7と図8に示す。

図7は、比較参照用のマグネタイト( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )100%で作製した試料である。この図から500と700においては、真空中においてもマグネタイトの数%が酸化されてヘマタイト( $\text{Fe}_2\text{O}_3$ )に変化することがわかるが、900まで加熱すると、ヘマタイトは還元されて(あるいは酸化を免れて)98.8%のマグネタイトとなることわかる。

一方、 $\text{SiO}_2$ が50%含まれている場合(図8)、700においても、ほぼ100%マグネタイトで構成されており、 $\text{SiO}_2$ の存在が還元反応においてプラスに作用していることがわかる。

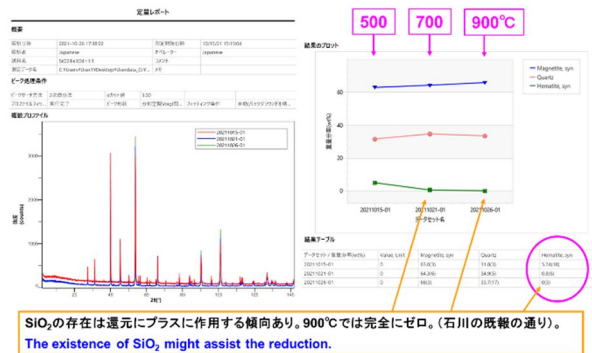


図8  $\text{Fe}_3\text{O}_4$ : $\text{SiO}_2$ の体積比1:1試料のXRD測定結果

## [2] 電子線照射によるマグネタイト( $\text{Fe}_3\text{O}_4$ )からウスタイト( $\text{FeO}$ )への還元促進効果

次に、 $\text{Fe}_3\text{O}_4$ : $\text{SiO}_2$ の体積比1:1試料に対して、電子線照射を行いながら、加熱・還元実験を行った。電子線の加速電圧は35kV、照射電流量は100 $\mu\text{A}$ で行った。

XRD測定を行ったところ、電子線照射を行うことで、ごく微量のウスタイト( $\text{FeO}$ )が生成されていることが明らかになり、スタート材料のマグネタイトからウスタイトまでの還元反応は促進されることは証明されたが、 $\text{FeO}$ から純鉄( $\text{Fe}$ )への還元反応には、ほとんど効果がなく、反応速度も非常に遅いことがわかった(約40時間、加熱温度条件1000)。

地上で行われている高炉内で起きている製鉄反応でも、同様に長時間の反応を必要とすることから、ウスタイトから最後の酸素を取り除く反応は、真空中で電子線を照射している条件であっても反応障壁が非常に大きいものであることがわかった。

また、最終年度に計算機シミュレーションを含む理論的考察を行ったところ、絶縁性のアルミナセラミックス製の試料ステージ上に保持した状態でも、管状加熱炉中では試料ホルダー全体からの熱電子放出による電荷の流出が想定より大きく、「電子線励起アシスト製鉄プロセス」が十分機能していないことが明らかになった。石川がTEM中で行った実験の場合、電子線が透過する、かなり薄い薄膜試料であったため、保持している試料ホルダーとの接触面積はかなり小さかった。そして、すぐ近くに絶縁体でチャージアップしやすい $\text{SiO}_2$ が存在していたこともあり、そもそも電荷がたまりやすい状態であったが、本研究の装置では、スケールアップしたことでアースとなる部分が増え、電荷が抜けてしまったものと考えられる。

このことから、「電子線励起アシスト製鉄プロセス」においては、還元反応の起こる領域に、一定時間、一定量以上の電荷が滞留していることが重要な要素であることが強く示唆されることがわかった。研究計画で想定された通り、月面であればレゴリスを真空中で落下させ、慣性閉じ込めをすることで、電荷が流出することを抑制する可能性はあるが、地球上の管状加熱炉中での実験では月面の状態を再現することは、やや困難であると思われる。

## [3] 今後の方針

本研究は本報告書の提出で一旦、区切りをつけるが、今後も研究は継続する予定である。

試料からの電荷の流出の抑制が困難であることから、対策としては「注入する電荷量」を「流出する電荷量」より上回ることで還元反応を促進させることを検討している。今回の実験では、100 $\mu\text{A}$ までの電子線照射電流量では還元反応が進展しなかったことから、それ以上の電流にする必要があると考えられる。

具体的には、電子ビーム溶接機レベル(例:70kV、500mA)の電子線の照射を試みる予定である。電子ビーム溶接機は、当機構のマシン工場(技術開発・共用部門 材料創製・評価プラットフォーム)が保有しているので、この装置を用いた実験を行う予定である。

## 5. 主な発表論文等

〔雑誌論文〕 計3件（うち査読付論文 2件 / うち国際共著 0件 / うちオープンアクセス 0件）

1. 著者名 Yagyu Shinjiro, Mitsui Tadashi, Chikyow Toyohiro, Nagata Takahiro	4. 巻 1
2. 論文標題 Kerr effect microscope combined with a pulse magnet to observe high-entropy alloys fabricated using combinatorial technology	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Science and Technology of Advanced Materials: Methods	6. 最初と最後の頁 192 ~ 199
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1080/27660400.2021.1983883	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Mitsui Tadashi, Ishikawa Nobuhiro, Takeguchi Masaki	4. 巻 92
2. 論文標題 Photovoltaic distribution on an amorphous-silicon solar cell in near-band-edge excitation observed by conductive-probe atomic force microscopy combined with a fine-wavelength-tunable light source	5. 発行年 2021年
3. 雑誌名 Review of Scientific Instruments	6. 最初と最後の頁 095103 ~ 095103
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1063/5.0056644	査読の有無 有
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

1. 著者名 Nobuhiro Ishikawa, Tadashi Mitsui, Masaki Takeguchi, Kazutaka Mitsuishi	4. 巻 26
2. 論文標題 In-situ observation of the interaction silicon and hematite	5. 発行年 2020年
3. 雑誌名 Journal of Surface Analysis	6. 最初と最後の頁 144--145
掲載論文のDOI (デジタルオブジェクト識別子) 10.1384/jsa.26.144	査読の有無 無
オープンアクセス オープンアクセスではない、又はオープンアクセスが困難	国際共著 -

〔学会発表〕 計6件（うち招待講演 0件 / うち国際学会 1件）

1. 発表者名 三井正、石川信博、竹口雅樹
2. 発表標題 電子線励起アシスト製鉄技術の開発
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第77回学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石川信博、三井正、木村隆、竹口雅樹、三石和貴
2. 発表標題 窒化ホウ素とヘマタイトを使って鉄を析出させる反応のその場観察
3. 学会等名 日本顕微鏡学会 第77回学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石川信博、三井正、木村隆、竹口雅樹、三石和貴
2. 発表標題 窒化物セラミックスを使った酸化鉄還元反応その場観察
3. 学会等名 第82回応用物理学会秋期学術講演会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石川信博、三井正、木村隆、竹口雅樹、三石和貴
2. 発表標題 In-situ analysis of the iron solid state smelting without using carbon
3. 学会等名 INTERNATIONAL CONFERENCE ON PROCESSING & MANUFACTURING OF ADVANCED MATERIALS (THERME'2021) (国際学会)
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石川信博、三井正、三石和貴、竹口雅樹、木村隆
2. 発表標題 窒化物によるヘマタイトからの鉄析出現象の解析
3. 学会等名 日本鉄鋼協会 第182回秋季講演大会
4. 発表年 2021年

1. 発表者名 石川信博、三井正、木村隆、三石和貴
2. 発表標題 窒化ホウ素を還元剤代わりに使用したヘマタイトからの鉄析出
3. 学会等名 日本鉄鋼協会 第181回春期講演大会
4. 発表年 2021年

〔図書〕 計0件

〔産業財産権〕

〔その他〕

-

6. 研究組織

	氏名 (ローマ字氏名) (研究者番号)	所属研究機関・部局・職 (機関番号)	備考
研究分担者	石川 信博  (Ishikawa Nobuhiro)  (00370312)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・先端材料解析研究拠点・主任研究員   (82108)	
研究分担者	竹口 雅樹  (Takeguchi Masaki)  (30354327)	国立研究開発法人物質・材料研究機構・技術開発・共用部門・グループリーダー   (82108)	

7. 科研費を使用して開催した国際研究集会

〔国際研究集会〕 計0件

8. 本研究に関連して実施した国際共同研究の実施状況

共同研究相手国	相手方研究機関
---------	---------