

討1 高炉内における鉄鉱石の還元性の評価

東北大学選鉱製錬研究所 工博 ○大 森 康 男 工博 八 木 順一郎
高 橋 礼二郎

1 緒 言：高炉シャフト部における鉄鉱石類の被還元性を論ずる場合，粒子固有の還元性とプロセス特有の還元性の両面より評価する必要がある。前者は主として粒子の化学組成，構成鉱物および組織，形状，気孔率および気孔分布などに支配されるものであり，後者は粒子の粒度および粒度分布，コークスと関連する装入物分布などによつて生ずるガスの通気抵抗ならびに粒子配合およびガスの濃度分布などに支配されるものである。この両者は相互に関連があり，切り離して論じえない場合もあるが，高炉操業技術の進歩と装入物の品質向上は，この両面を考慮して進められなければならない。

2 プロセス特有の還元性：良質な焼結鉱，ペレットなど塊成鉱使用割合の増加とそれら装入物の整粒強化は，高圧操業の採用，羽口よりの燃料吹込みなど操業技術の進歩と相俟つて，シャフト部の通気性の改善やガス利用率の向上に著しい効果を示し，高炉の生産速度の増加とコークス比の低減に大きく寄与している。図1に示すように，整粒強化，自溶性焼結鉱の使用によりガス組成は次第にウスタイトー金属鉄平衡線に近づき，ガス利用率を高める上で顕著な役割を示していることがわかる。¹⁾ 高炉シャフト部の通気性は，装入物粒度および粒度分布ガスの成分，組成，温度などに支配されるが，これはコークスとの対比において考える必要がある。すなわち焼結鉱とペレットを比較する場合に，ペレットの粒度範囲は通常9～16mmで焼結鉱の8～50mmに比べ，平均粒度は小さくかつ粒度範囲も狭い。ペレットの有するこれらの条件は空間率を増大させ，通気性の改善に役立ち，粒子固有の優れた還元性と相俟つてシャフト効率の向上が期待されるが，コークスの共存を考慮すれば，両者の安息角の相違から，炉の半径方向におけるore/cokeの不均一分布をまねき，結果として断面平均のシャフト効率を低下せしめる恐れがある。一方焼結鉱は，粒度分布の広さから密充填を助長し，通気抵抗の増大する恐れがあるが，コークスに近い安息角をもつことからore/cokeの均一性は保障される可能性がある。この

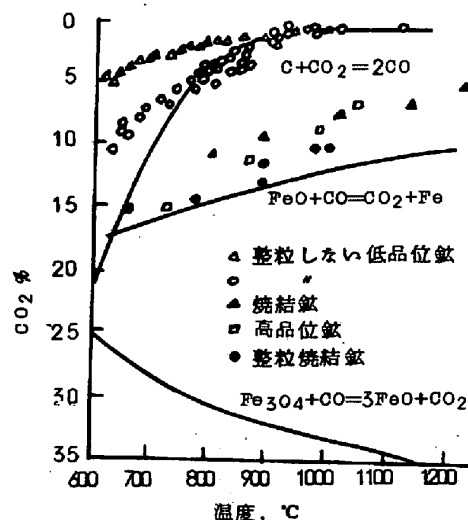


図1 種々の操業法のガス組成と温度の関係¹⁾

比較は何れも装入時の粒度を前提としたものであるが，焼結鉱の場合高炉内で可成り細粒になつているとの報告もあり，実態の把握が望まれる。さらに，高炉シャフト部は装入物の微粒に対して一種の分級装置の役割をはたすため通常の粒度および粒度分布にもとづいて評価される圧損⁴⁾より微粒のはたすマイナス効果は遙かに大きいと考えられ⁵⁾，装入時の下限粒度の管理，炉内における還元粉化その他の微粒の発生をできるだけ防止する対策が重要である。ペレットの場合も還元過程における強度低下などは焼結鉱と同様な悪影響を惹くが，製造工程の管理を十分に行えばその影響は少ない。さらにシャフト効率を高めるにはi) ガスと粒子の接触を十分に行わせる。ii) 鉄鉱石の粒度を小さくする。iii) H₂の利用などの対策が挙げられる。i)には高圧の適用による気固接触時間の増大と圧損の低減の効果 iii)には重油吹込みの効果を挙げることができる。図2は重油吹込みの効果の一例を示すが，重油吹込み量の増加とともにCOによる間接還元率R_{co}は殆んど変わらないが，直接還元率R_cを顕著に低減させている。一方ii)の粒度については，反応速度の促進と通気抵抗の増大の兼ね合いから最適値が存在することになる。この場合でも鉄鉱石の炉内性状が良好であれば，その粒度を細粒側に移しコークスを粗粒側に移つてシャフト効率を高めることも可能である。なおH₂の利用については後述の粒子固有の反応速度を促進するのみでなく，通気抵抗の改善効果も無視できない。

3 粒子固有の還元性：高炉における鉄鉱石類の還元性の評価は2で述べたシャフト効率に及ぼす諸要因に留意しつつ，粒子固有の還元性を支配する諸因子の解明を行う必要がある。著者ら⁷⁻¹¹⁾および著者の一人は嶋村

ら¹²⁾¹³⁾とともに一連の研究を行ってきたが、以下にそれらの結果を述べる。

3.1 還元試験法の検討：わが国および諸外国で提案されまた実施されている代表的な還元試験法を装置の特徴から分類すると図3のようになる。これらのうち等温の固定層が多く用いられている。しかしそれらの試験条件、結果の表示などはまちまちであり、それぞれに高炉操業成績との相関性の良いことを述べている。著者の一人は嶋村らとJIS法に準じた試験条件を検討し¹²⁾現在高炉に使用されている還元性の良好なペレットでは i)軸方向に還元率の分布が生ずるので一次反応や他の速度式より求めた速度パラメータを製錬装置に適用することは困難である。ii)ガス流量の臨界値は得られない。iii)還元の難易の相対値の比較においても、粒径はできるだけ狭い範囲(たとえば $\pm 1\text{mm}$)に選ぶことなどを明かにした。この研究では同時に単一粒子の還元を行なっているが、境界抵抗および収支効果の寄与の少ない実験条件では、粒度(9~15mm)の影響をほとんど有しない反応速度定数が得られた。同じ実験条件における単一粒子と固定層の還元曲線を図4(a)(b)に示した。同図より粒径が小になるにつれ、

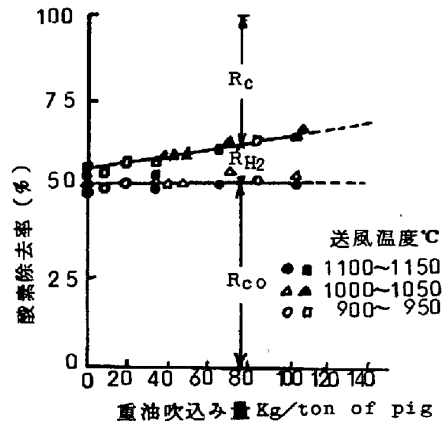


図2 燃料吹込みの効果⁶⁾

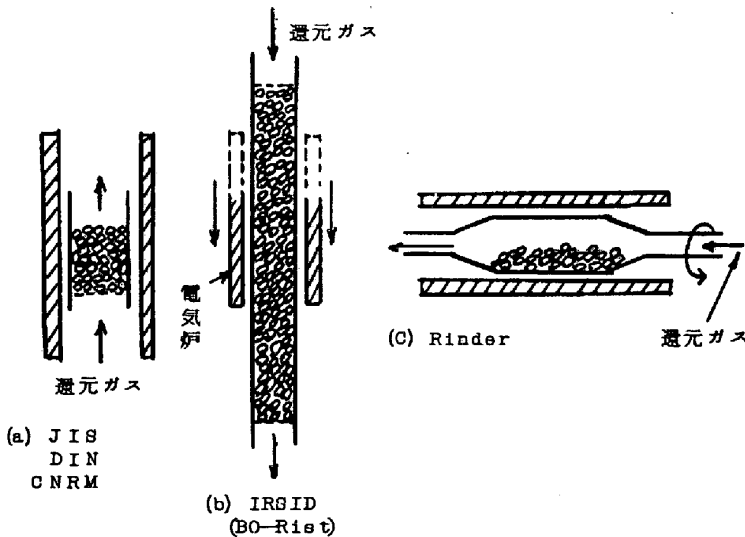


図3 各国における代表的還元試験装置の原理図

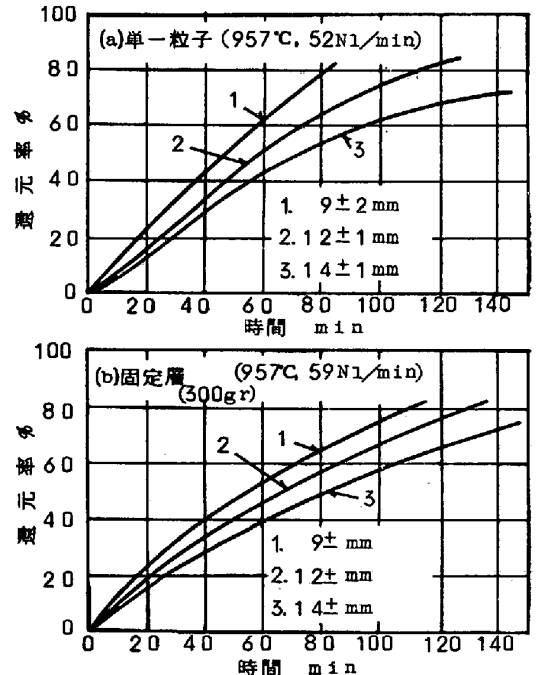


図4 酸化鉄ペレットのCO還元(CO40, N₂60%)

固定層の効果が顕著になつている。著者ら⁹⁾は等温固定層として酸化鉄ペレットのCOおよびH₂還元の数学的シミュレーションを行い、実験結果と比較した。その結果の一部を図5および図6に示す。図5はCO還元の結果であるが、独立に行つた単一粒子の実験より求めた速度パラメータを用いて、固定層の還元曲線をよく説明できる。図6はH₂還元の一例であるが、実験値は計算曲線をやや下廻る。H₂還元は吸熱反応であり、厳密には非等温プロセスの解析を必要とする。¹¹⁾なお層高の高い(試料量1000g)のCO還元においては、粒子のわれ、ふくれなど性状変化が顕著な場合、計算値と実測値のずれは顕著となるが、明らかに層内における軸方向濃度分布に対応して生ずる粒子の高温性状を反映している。以上の結果から、高炉の操業結果、たとえば間接還元率とJIS法などの試験法の還元率は直接関係するのではなく、2に述べたプロセス特有の還元性を支配する諸要因を含めた関係であろう。

3.2 単一粒子の還元：反応装置における還元プロセスを解析する場合、単一粒子の還元速度が正確にしかも比較的簡単な形で記述しうることが必要でありかつその速度パラメータは可能な限り、実験装置の特性を

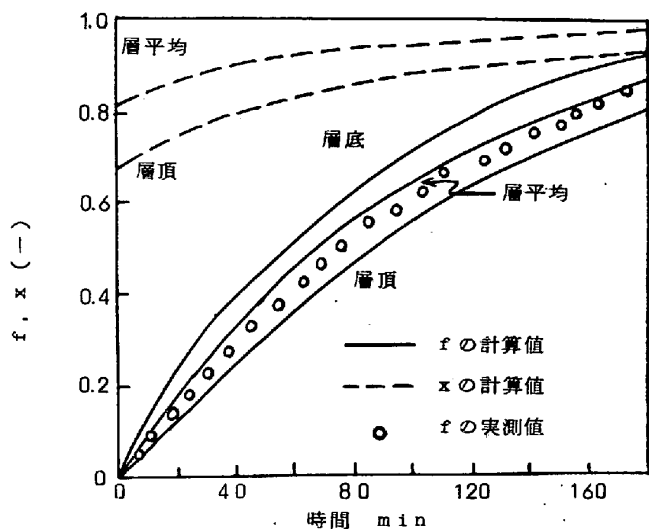


図5 固定層によるCO還元 (f:還元率, x:無次元CO濃度) 実験条件: 温度957°C 試料量500g 粒径1.20cm, ガス流量59Nl/min

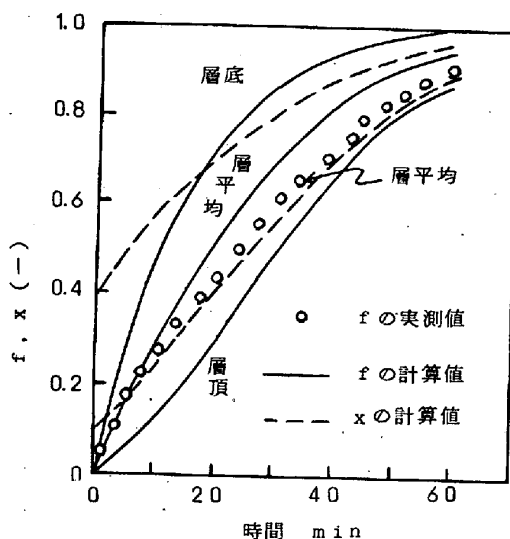


図6 固定層によるH₂還元 (f:還元率, x:無次元CO濃度) 実験条件: 温度960°C, 試料量642g, 粒径1.12cm, ガス流量50Nl/min

含まないものでなければならない。著者ら⁷⁾は800~1150°Cの温度範囲で、上述の固定層還元を用いた酸化鉄ペレットのH₂還元(ヘマタイト還元)を行ない、等温条件下の未反応核モデルに基づきガス境膜内拡散、粒子内拡散および化学反応の3つの過程を考慮した還元速度式を適用してモデルに含まれる速度パラメータをもとめた。速度パラメータのうちガス境膜内物質移動係数、 k_f は理論的に推算し、試料によつて相異があると考えられるガスの粒子内拡散係数、 D_B と化学反応速度定数 k はそれぞれ従来の諸家の実測値を整理した実験式および著者らの実測値より決定した。還元進行に伴う上記3つの過程の抵抗の全抵抗に対する比の推移をみると、とくに高温側では還元初期より中期にかけてガス境膜内拡散抵抗の効果がかなり大きく、 k の値ならびにその活性化エネルギーの値と関連してこの評価が反応装置における還元プロセスを解析する場合の重要なポイントとなる。著者らの求めたこれらのパラメータは粒子径、還元ガス濃度を变化させた種々の条件下の実測値をよく説明するばかりでなく、還元途時に条件の一部を変更した非等温条件下の実測値をよく表現する。図7は粒径の効果の計算値と実測値の比較を示す。このモデルおよび速度パラメータを高炉に適用する場合、昇温過程およびガス組成が粒子に及ぼす影響を検討する必要がある。高炉シャフトの特徴から粒子は中間生成物であるウスタイトまで還元されると考えられるの

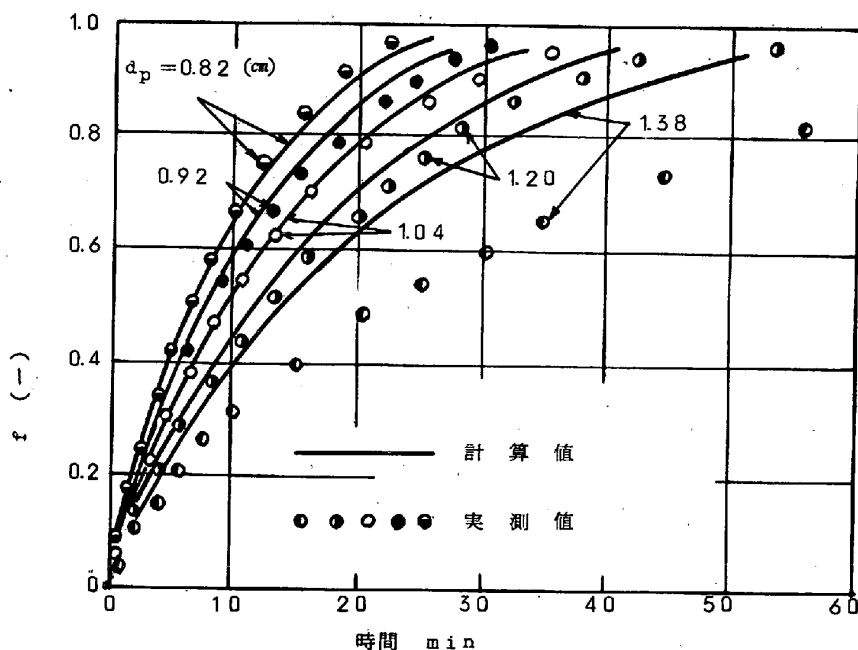


図7 単一粒子のH₂還元における粒径の効果 (f:還元率, d_p :粒径) 実験条件: 温度960°C, ガス組成H₂40, N₂60, ガス流量50Nl/min

で、ウスタイトペレットの還元速度を検討することは有用である。著者らは酸性ペレット、自溶性ペレット（何れも学振54委共同研究用試料）を用いて、等温⁸⁾および昇温¹⁰⁾条件下におけるH₂-H₂OまたはCO-CO₂混合ガスによる予備還元の効果を検討した。酸性ペレットの800~1150°CのH₂還元の結果⁸⁾より

i) 粒子のふくれにより、ウスタイトと金属鉄の境界は反応帯を形成する。ii) 厳密には未反応核モデルの適用が困難であるが、同モデルに基づいてもとめた速度パラメータは十分実測値を表現する。iii) 予備還元した場合としない場合では化学反応速度定数およびその活性化エネルギーに大きな差は認められない。vi) H₂-H₂OとCO-CO₂の予備還元によるウスタイトの気孔径には顕著な相違が認められ、粒子内拡散および高温強度に影響する。一方自溶性ペレットの場合¹⁰⁾は、粒子のふくれも極めて小で、その還元曲線はヘマタイトより直接H₂還元した場合と一致する。

3.3 焼結鉄の還元：著者の一人は嶋村らとともに粒子径の比較的小さな粒度（5~7mm）のH₂還元を行ない、その速度パラメータを求め、粒子径の大なるものへの応用を試み¹⁴⁾ i) 焼結鉄の場合、ある集団粒子に基づく測定が不可避のため、ガス境界拡散抵抗と収支効果の評価に問題は残るが、未反応核モデルに基づく混合律速解析により、妥当な速度パラメータが得られた。各種銘柄の焼結鉄の間の比較では反応速度定数kの値には大差はなく、気孔率および気孔分布を反映しているD₀の値に差が現われる。ii) 粒子径が大となるとペレットの場合と比較して、未反応核モデルに基づく計算値より偏倚し、実測値が計算値より大（図8）となることを明らかにした。これは従来述べられて来た総合的な焼結鉄粒度の影響を諸因子に分けて解明する必要があること示し、高炉内において焼結鉄粒度が細粒になるとすれば、ペレットと焼結鉄の還元性の評価という点においても有力な知見と考える。

文献

- 1) B. I. Kitaev, I. G. Yaroichenko and V. D. Souhkov: "Heat Exchange in Shaft Furnace" (English translation) (1967)
- 2) 城本, 金山, 奥野, 磯山: 鉄と鋼54 (1968), 84; 学振54委-1132, (1969)
- 3) 中沢, 佐々木: 鉄と鋼55 (1969), 112
- 4) 館, 天辰: 学振54委-1087, (1969)
- 5) 桑野, 本田, 岡本: 鉄と鋼55 (1969), 8410
- 6) H. W. Meyer: Iyon Steel Inst., Sp. Report No. 72 (1962), 80; 186
- 7) 高橋, 八木, 大森: 鉄と鋼57 (1971), 1597
- 8) 高橋, 八木, 大森: 選研彙26 (1970), 84
- 9) 八木, 高橋, 大森: 57 (1971), 1453
- 10) 高橋, 八木, 大森: 未発表
- 11) 八木, 高橋, 大森: 本誌
- 12) 嶋村, 照井, 大森, 三本木: 鉄と鋼56 (1970), 1594
- 13) 嶋村, 照井, 大森, 三本木: 学振54委-1172, (1970)

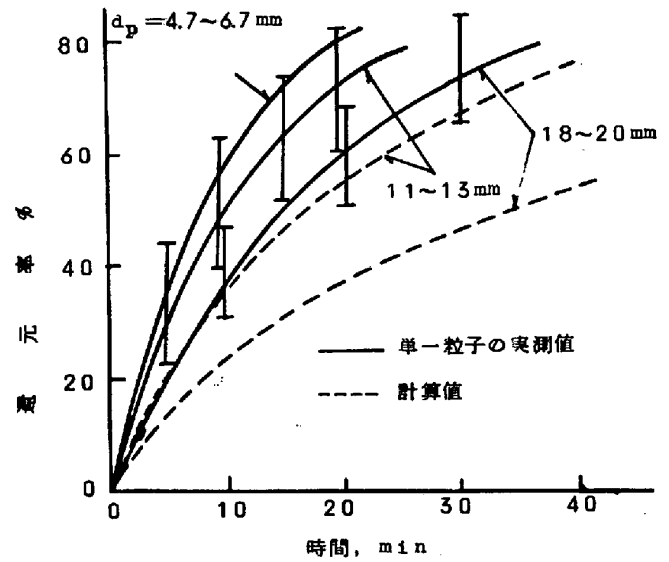


図8 焼結鉄のH₂還元 (d_p: 粒径) 実験条件
 温度960°C, ガス組成H₂20N₂80, ガス流量50Nl/min