

討 1

鉄鉱石類の高温性状研究のアプローチについて

東北大連鉱業研究所

大森康男

1. 緒言

我が国の製錬技術の進歩は極めて目ざましく、その成果は生銑量、生銑比の増大、コークス比の低減に如実に現められている。種々の要因のうち、装入原料の堅粒強化、塊成鉱使用割合の増加等装入炉の事前処理技術の向上が果した役割は大きい。高炉操業の安定化、生産性の向上などにはコークス比の低減がさうに要求されるとともに、装入原料に占める輸入ペレットの割合が増加しつゝある現在、鉄鉱石の品質に課せられる要求は一段と厳しくなることが予想される。筆者はこれまで鉄鉱石類の高温性状に関する研究に従事したことないが、二、数年 学術製錬第54委員会 鉄鉱石物理測定小委員会に関係して、この分野の研究の推移を眺めてきており、また現在 处理鉱石に対する並行反応の反応工学的研究に従事している。から筆者の立場から高炉炉内反応の解明に必要な高温性状研究のアプローチについて見解を述べてみたい。

2. 高温性状研究の経緯

学術製錬第54委員会における昭和20年代後半より30年初頭の活潑な研究と討議が実り、昭和33年12月 塊状鉄鉱石の標準試験法¹⁾が制定された。世界に先駆けて鉄鉱石の品質評価方法の主要な一つである被還元性の評価法がつくられたことは極めて価値の高い業績といつてよい。しかしではその後 急速な鉄鋼生産の伸びに対応する海外鉄鉱石資源の確保が必要となり、また良質の塊成鉱として自溶性焼結鉱の使用に重きがおかれるようになつた。当社はこれら装入原料の品質評価も従来行われていた鉄分品位、脈石および不純物の成量および代量、落下強度試験、還元試験などのほか、いわゆる高炉の物理的挙動すなわち通気性や流動現象に密接に関係する熱間性状の検討が叫ばれるようになった。さらに昭和38年頃には輸入ペレットの高炉における使用が問題となり ペレットの性状に関する研究が盛んに行われた。輸入ペレットの増加につれて、その性状に因してメーカーに要望する面で我が国においてこれを使用する際の基準とするため、性状の標準試験法の制定が要望された。製錬第54委員会ではこれに応えて 昭和39年鉄鉱石物理測定小委員会を発足させ、暫定的にペレットの標準試験方法を制定した。これは大別して脈石の特性値（真比重、見かけ比重、気孔率）の測定方法と常温強度および還元後強度の決定方法より成る。二、三還元後強度は一種の高温性状を常温で測定しようとするもので塊状還元試験後の試料を常温で回転強度試験に供するものである。その後ある種のペレットの還元過程における異常、くずれや焼結鉱の低温還元劣化の対策が研究の中心となり、高炉操業成績とこれら高温性状試験との関係性を確実にするために小型シャフト炉を用いての性状調査が熱心に行われた。この時期に本協会で焼結鉱、ペレットの性状に関するシンポジウムが行われるようになり、筆者らも從来本誌および学術第54委に提出された資料を中心として還元劣化、荷重還元下における膨脹、収縮、軟化現象について論じた。残念ながら從来の結果からは問題点の抽出がまだにとどまり、統一的理解を得るに至らなかつた。その主な理由は各研究者の用いた試料、試験装置および試験条件の相違にあつた。そこで学術第54委員会では共通試料を用いて高温性状に関する共同研究を計画し、大学、官公庁研究所、民間各社の協力を得て広範囲の研究を実施した。ねらいとしては(1)共通試料それ自体 (2)従来の試験方法、試験条件の見直し (3)統一試験法の摸索 (4)焼結鉱とペレットの高温性状の比較と広範囲にわたるものであつた。このうち(1)は堤社では高温性状のアプローチがある方向で継り得る段階ではなく他方面から攻める必要があり、共通試料を各研究者がそれぞれの立場から進めている研究に使用し、そこで得られた知見が高温性状の解明に連がるかうである。これらの結果は逐次 物理測定小委に提出され終局も報告³⁾⁽⁴⁾されていいるが高炉の炉内調査、試験高炉

いろいろな小型シャフト炉試験と相俟つて炉外試験法としての高温性状の把握と従来の試験方法、試験条件の問題点が明らかにされて来て、これまでより段階進んだ立場を得たといつて過言でない。一方世界各國においても、最近還元試験法を含め、高温性状試験方法およびその結果について多くの研究が報告されるようになり、ISO鉄鉱石委員会 物理試験専門委員会でも生産者、消費者の双方が納得するような試験法の開発を目指して、各國試験方法の情報交換がなされつつある現状である。

3. 高温性状に関する共同実験の成果

今回共同実験を通じて得られた成果のうち特徴的なものを二三挙げ上げて論じてみたい。

1) 試料³⁾ 用いた試料の種類とその化学組成を

1.5, 2.0付近のもので、おのおのコーカス配合割合を若干変えて250kg試験鍋で製造（八幡製鉄（株）（現新日本製鉄（株））八幡製鉄所技術研究所にて製造）した6種。ペレットについては、表1のペレット1, 2はそれぞれ20t/dayの試験プラントで製造（（株）神戸製鋼所中央研究所にて製造）した酸性および自溶性（塩基度1.35）のもの、ペレット3は輸入ペレット（住友金属工業（株）中央技術研究所より提供）である。

2) 試料の常温特性値およびその分布の測定⁵⁾ 天然鉱石の場合同一鉱石においても成り性状の異なるタブが混在することが知られているが、処理鉱石においてもその製造履歴、工程管理の適正度によって特性値に分布を生ずる。図1は3種のペレットの見掛け密度のヒストグラムの比較でペレット3は1, 2に比べて成り分布が広い。これは焼成履歴を反映していると考えられ、その影響は圧縮強度、被還元性、顯微鏡組織、ふくれ指数などに明瞭に現われることが明らかにされた。このことは、常温の試験ができるだけ特性値を把握するのが頗るであること。試料の平均値とともに分布に留意すべきことを示唆している。したがって天然鉱石や製造履歴を詳細に把握しない輸入ペレットの場合には、常温試験をタブの仕分け手段として用い、各分布毎の高温性状を知る必要があらう。

3) 還元後強度と昇温回転還元 この両者の特徴を比較すれば

還元後強度試験

- (1) 等温
- (2) 中性ガスによる昇温
- (3) JIS還元装置、還元後試料を利用しやすので簡便
- (4) 測定条件に制限がある

昇温回転還元試験

- 昇温
- 還元ガスによる予備還元
- 特別の装置を必要とし、操作や複雑
- 測定条件可変

となる。筆者らは学術法を基礎としたJIS還元試験方法の検討⁶⁾を行い、それが還元過程の強度指標または粉率をもとめるための試験条件に用いられるべきの問題点を

共同実験結果の詳細は別報⁴⁾を参照されたいが、

表1に示す。すなわち焼結鉱は塩基度1.0

表1 試料の化学組成（単位%）

試料	T.Fe	FeO	SiO	備考	
				MgO	氯化率(%)
ペレット1	65.1	0.9	3.7	0.37	14~17
" 2	62.5	1.1	3.7	0.48	17~19
" 3	64.6	1.4	3.8	2.81	20~23
試料	T.Fe	FeO	SiO	CaO/SiO	
焼結鉱1	59.6	9.4	6.1	1.04	
" 2	59.0	12.7	6.5	1.07	
" 3	58.4	6.5	5.6	1.55	
" 4	57.8	11.4	5.8	1.59	
" 5	55.7	6.2	6.2	1.88	
" 6	55.7	7.6	5.9	2.04	

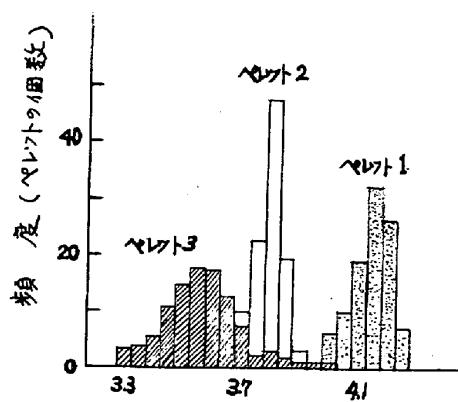


図1. 3種類のペレットの見かけ密度のヒストグラム

指摘した。筆者らは還元プロセスの解析に必要なパラメータをもとめる反応装置としてヒューリスティカルに、高炉における高温性状を把握する目的にこの試験条件を用いようとするならば、さうに次のような検討が必要であろう。すなはち中性ガス導入気で昇温したのち、比較的還元力の強いガスによる等温還元に切换る試験条件がどの程度高炉内で装入物が経る還元履歴を表わしうるかの検討が必要であろう。この予備的検討なしにJISの還元試験条件を使用することは、高炉内における現象の解明に結びつかなくなる恐れしか生ずる。この英著者の判断によれば、比較的還元性に高い試験条件が得られると思われる昇温回転還元試験との還元後強度試験の結果の対比は興味があつたが、後者についての各社の指標に聞きが大きすぎるなど、鉱石、組成による傾向の不一致などの理由で両者の比較は困難であつた。還元後強度試験に関する調査結果の精度を考慮する必要がある。一方として各社に配布された供試料の均一性が指摘されているが、操作条件が複雑な昇温回転還元の結果では各社概ね一致した傾向を示しているので、その他の原因としてJIS還元試験操作あるいは同装置の不一致に基づくようと思われる。さらに焼結鉱とペレットというように異なった種類間の比較や同一種類間でも大型鉱石やペレットのようにその還元性の難易によって最終還元率の違う状態で強度を比較することも問題である。最終還元率が種類、鉱石間でどの程度差があるかを示したのが、図2であり、これは最近の各社の還元試験調査結果⁷⁾によつてものであるが、天然鉱石、ペレットは最終還元率の広かりが大きく、一方焼結鉱は比較的狭い範囲の最終還元率に入ることがわかる。たゞ之還元後強度試験を併用しても、還元率は一定の条件で比較する必要があらう。

一方昇温回転還元では分担各段の併用して試験条件が甚だ異なついたにも拘らず、種類の特徴、同一種類では組成の影響が明瞭に現われ、各社の結果の傾向も一致している。(図省略)このことは昇温回転還元試験は高温性状試験方法として考慮する価値があるようになる。この方法の目的について高炉の直接還元率と密接な関聯性を見出すため、他は還元過程の強度を評価するために二つの意見がある。しかし還元過程の強度と被還元性を分離することは不可能である。高炉における装入物の下限に際しての運動と昇温回転還元の運動の相違は別にして、高炉内で装入物は複数の原因による強度低下を昇温還元過程に生じ、強制的運動がこれに加われば持続的粒子破壊を起こし持続的粒度分布を生じ、この細粒化によつて還元が促進されるので強度と被還元性を論ずることは意味がない。

4) 軟化および溶け落ち現象 従来の荷重軟化試験では昇温過程の粉化や細粒化の影響や充填層内の荷重分布や軸方向の還元率分布の効果が膨脹、収縮曲線あるいはガス圧変化に複雑に絡み、軟化現象のみを取り出し得ぬ場合があつた。²⁾今回の共同実験でも従来法では図3(2)に示したように、焼結鉱の場合2段の収縮が現われている。2段の収縮のうち低温で起る収縮の原因は不規則の形状をもち、粒子径の大きい焼結鉱が初期の充填状態から密な充填構造に移る際の再配列に基づくことが明らかにされた。⁸⁾このことは荷重軟化試験に充填層を用いる場合には層高と粒子径を適切な値に選ばねばならないことを示唆している。今回の共同実験ではさらに層内の還元率分布を避けることと、各鉱石の共存組織

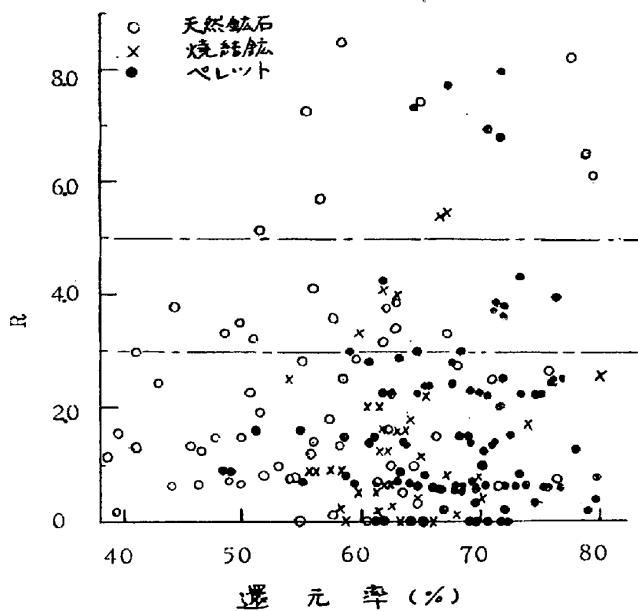


図2. JIS還元試験に関する調査結果

における試験自体の精度を考慮する必要がある。一方として各社に配布された供試料の均一性が指摘されているが、操作条件が複雑な昇温回転還元の結果では各社概ね一致した傾向を示しているので、その他の原因としてJIS還元試験操作あるいは同装置の不一致に基づくようと思われる。さらに焼結鉱とペレットというように異なった種類間の比較や同一種類間でも大型鉱石やペレットのようにその還元性の難易によって最終還元率の違う状態で強度を比較することも問題である。最終還元率が種類、鉱石間でどの程度差があるかを示したのが、図2であり、これは最近の各社の還元試験調査結果⁷⁾によつてものであるが、天然鉱石、ペレットは最終還元率の広かりが大きく、一方焼結鉱は比較的狭い範囲の最終還元率に入ることがわかる。たゞ之還元後強度試験を併用しても、還元率は一定の条件で比較する必要があらう。

一方昇温回転還元では分担各段の併用して試験条件が甚だ異なついたにも拘らず、種類の特徴、同一種類では組成の影響が明瞭に現われ、各社の結果の傾向も一致している。(図省略)このことは昇温回転還元試験は高温性状試験方法として考慮する価値があるようになる。この方法の目的について高炉の直接還元率と密接な関聯性を見出すため、他は還元過程の強度を評価するために二つの意見がある。しかし還元過程の強度と被還元性を分離することは不可能である。高炉における装入物の下限に際しての運動と昇温回転還元の運動の相違は別にして、高炉内で装入物は複数の原因による強度低下を昇温還元過程に生じ、強制的運動がこれに加われば持続的粒子破壊を起こし持続的粒度分布を生じ、この細粒化によつて還元が促進されるので強度と被還元性を論ずることは意味がない。

4) 軟化および溶け落ち現象 従来の荷重軟化試験では昇温過程の粉化や細粒化の影響や充填層内の荷重分布や軸方向の還元率分布の効果が膨脹、収縮曲線あるいはガス圧変化に複雑に絡み、軟化現象のみを取り出し得ぬ場合があつた。²⁾今回の共同実験でも従来法では図3(2)に示したように、焼結鉱の場合2段の収縮が現われている。2段の収縮のうち低温で起る収縮の原因は不規則の形状をもち、粒子径の大きい焼結鉱が初期の充填状態から密な充填構造に移る際の再配列に基づくことが明らかにされた。⁸⁾このことは荷重軟化試験に充填層を用いる場合には層高と粒子径を適切な値に選ばねばならないことを示唆している。今回の共同実験ではさらに層内の還元率分布を避けることと、各鉱石の共存組織

が異なる場合の効果を知るために2相共存法を試みた。焼結鉄についての結果の一例を図3(b)に示す。すなわちウスタイト-マグネタイト共存相およびヘマタイト-マグネット共存相に比しウスタイト-金属鉄共存相の軟化性は大で通気抵抗も大きい。さらに従来法について認められた2段软化は2相共存法では認められなかった。ウスタイト-金属鉄の軟化性が大きいことはペレットの場合にも認められた。

一方、高炉内における装入物の溶け落ちの挙動は、高炉下部の溶解帶の中や溶解帶での通気性を支配する。溶融温度、還元状態、スラグ組成などは鉄鉱石の種類によって固有の状態を示すもので、最近の試験高炉の解析⁹⁾や実炉の炉内調査結果¹⁰⁾はこれら溶解帶における装入物の挙動について貴重な情報を提供するとともに、試験高炉の効果がこの目的のために大きいことを示した。この現象を炉外の試験によりアプローチすることは成り困難であるが、興味ある調査方法も試みられている¹¹⁾。すなわち所要還元率まで予備還元した試料を急速な昇温条件下で溶融状態まで加熱し、溶け落ちするスラグおよびメタルの量および組成を決定する方法である。図4は主として焼結鉄の実験例を示したが、天然鉱石、ペレットと比し焼結鉄の場合(1)予備還元率にあまり依存せず(2)溶け落ちはスラグ固有の温度であり、溶け落ちスラグの組成の変動は少ないと。同図には天然鉱石およびペレットの傾向も同時に示し、自溶性ペレット(表1ペレット2)の結果も図示したが、自溶性ペレットは溶け落ち時にFeOが少ないので溶け落ち温度は酸性ペレットに比し高く、溶け落ち温度範囲が狭く焼結鉄と類似した性質を有することが明らかにされた。このような実験方法は還元条件下の鉄鉱石類の高温における物理化学的性状、溶け落ち成分、溶け落ち温度などを知る上に有力な試験方法となる可能性がある。

4. 結語 鉄鉱石類の高温性状に関する学振報第54委員会の共同実験結果を中心として常温における調査方法、装入物の還元過程の強度試験、軟化、溶け落ち現象に対するアプローチにつき論じた。

文献

- 1) 日本学術振興会報第54委員会；金沢工業会議(1960)No.7, p.802.
- 2) 三木木、大森、浅田、安達、高橋；鉄と鋼 54 (1968), S.295.
- 3) 三木木、大森、鳴村；学振資料 54巻-1143 (昭和44年1月25日)
- 4) 三木木、大森；学振資料 54巻-1173 (昭和45年1月25日)
- 5) 近藤、佐々木、中沢、伊藤；鉄と鋼 56 (1970), S.366.
- 6) 鳴村、根井、大森、三木木；鉄と鋼 56 (1970), P.1594.
- 7) 日本鉄鋼連盟 ISO物理試験専門委員会年会；資料 ISO 物質 720 (昭和45年12月22日)
- 8) 神原、萩原、石崎；鉄と鋼 54 (1969), S.417.
- 9) 福島；鉄と鋼 56 (1970) No.11, S.350.
- 10) K. Kodama and S. Hashimoto ; International Conference on the Science and Technology of Iron and Steel (1970) Conference Preprints P.57.
- 11) S. Kondo, M. Sugata and T. Sugiyama ; Ibid., P.17.

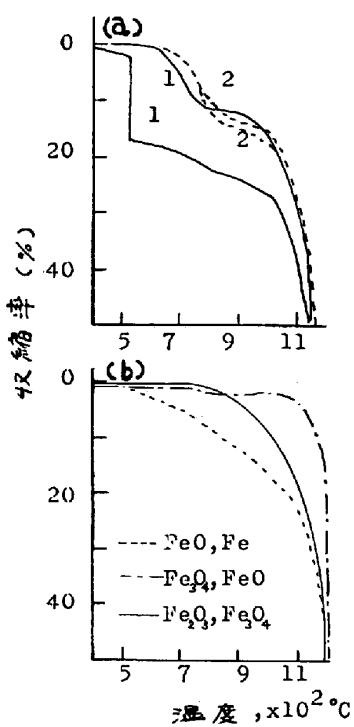


図3. 焼結鉄の荷重軟化試験における4段縮曲线の一例(試料 焼結鉄1)
(a) 従来法 (b) 2相共存法

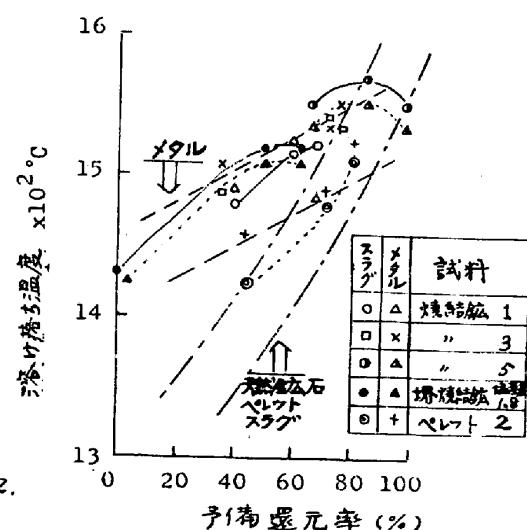


図4. 各種焼結鉄およびペレットの溶け落ち温度に及ぼす予備還元率の影響