

.....  
**論 文**  
 .....

UDC 622.341.1 : 669.181.423 : 669.096.5

## 鉄鉱石の回転流動層における向流還元\*

相 馬 胤 和\*\*

## The Countercurrent Reduction of Iron Ore in a Fluidized Rotary Bed

Tanekazu Sōma

## Synopsis:

In a rotary furnace, an ore bed was fluidized when the centrifugal force acting on ore particles was equal to the force of gravity. In this bed, all cross-sectional area inside the tube was covered with moving ore particles. Therefore contact of gas with ore particles was improved as a conventional fluidized bed. Ore particles could be reduced in a countercurrent gas flow by inclining the rotary tube.

Small sized hematite, magnetite and sintered ore were reduced in the countercurrent fluidized bed. The results were as follows;

- 1) The tendency of ore sintering was lessened by using a reducing tube of larger diameter.
- 2) Effect of gas film on the reduction was small.
- 3) Under the condition of the same quantity of ore in fluidizing zone, the utilization coefficient was constant whether the diameter of reducing tube was large or not.
- 4) The calculation values of reduction were in good agreement with the experimental values.
- 5) As the ore size was smaller, the reducing rate per unit inner volume became larger.

(Received Dec. 17, 1971)

## 1. 緒 言

近来種々の直接製鉄法が提案されているが<sup>1)</sup>、その中で回転炉法と流動法がかなり重要な地位を占めている。著者は回転炉を使用し、回転炉内の周辺部にある鉄石の粒子にかかる遠心力を重力とつり合わせることににより、鉄石粒子が流動することを報告し<sup>2)</sup>、これを回転流動と称している。またこの炉を傾斜させ、上方より鉄石を投入して回転流動層を形成させながら、漸次下方に移動させ、還元ガスは下方より上方に向かって流し、流動法における向流還元を連続的行なわせることにより、炉内容積の有効利用率を 56 t/m<sup>3</sup> day にも高めることができたことを報告した<sup>3)</sup>。

今回はこの向流還元の特質を三界面並列反応モデルによる還元速度の計算とも関連させて実験を行ない、流動状況、滞在量、鉄石降下速度およびガス流量の影響などの研究を行なったのでここに報告する。

## 2. 実験装置および方法

還元ガスとしては H<sub>2</sub> を使用し、前報<sup>4)</sup>と同様に、還元により発生した H<sub>2</sub>O をシリカゲルで吸湿させ、還元

前後の H<sub>2</sub> 流量を乾式ガスメーターで計算し、その流量差よりガス利用率および還元率を計算した。

前回<sup>3)</sup>は反応管に内径 26 mm の 18-8 ステンレス鋼管を使用した。ハマトイト還元では 800°C においても、かなり焼結し、リングが形成された。今回は 26 mm のものも使用したが、将来のスケールアップを考えると、このリングの形成が一番重要な障害になると考え、より太い反応管として内径 47 mm のものをおもに使用した。

この反応管を 5° 傾斜させて実験を行なったところ、内径 26 mm のものと同じ、上側から入れた鉄石は約 2 min で急速に下側から排出され、滞在時間を長くできなかった。外径 47 mm 内径 16 mm のドーナツ型ステンレス鋼板の堰を 3 カ所に設けて、滞在時間の延長を計って実験を行なった。

## 2.1 実験装置

使用した実験装置を Fig. 1 に示す。反応管 (7) は内径 47 mm、長さ 1.5 m の 18-8 ステンレス鋼管にて、

\* 昭和46年10月 本会講演大会にて発表

昭和46年12月17日受付

\*\* 東京大学工学部 工博

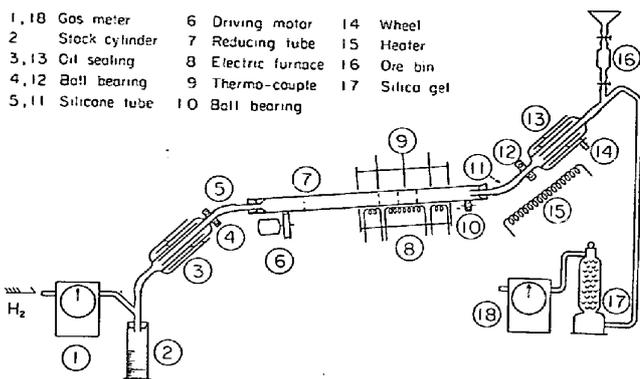


Fig. 1. Experimental apparatus.

内部に外径 47 mm, 内径 16 mm のリング状ステンレス板 3 ケの堰を持つており, 両端はシリコンゴム栓にステンレス管を通してある。この反応管は 5° 傾斜をさせ, 駆動用のモーターに無段変速器を通して連結されたプーリー (6) と中心軸を固定したボールベアリング (10) の上に乗せ, 200 rpm で回転させた。電気炉 (8) は長手方向に 3 つに分割し, おおのニクロム線を均等に巻き, 両端の巻線の内側と, 中央の巻線の中央の熱電対 (9) で所定の温度に温度調節することにより, 300 mm の恒温帯を作ることができた。回転部分と固定部分のつなぎは落下する鉱石がオイルの中に落ちぬように (3) と (13) の 4 重のオイルシールを使用し, その回転部分にはボールベアリング (4) と (12) を使つて回転をスムーズにしている。上方のオイルシール (13) は回転部分の方に油が入り, 重いので上端のへりを滑車 (14) で支えている。反応管とオイルシールはフレキシブルチューブとしてシリコンゴム管 (5) と (11) で結合されている。

鉱石は右上方のホッパーよりピンチコックを開いて, 鉱石溜め (16) に落とし, さらに下方のピンチコックを開いて, オイルシールの中央管内に落ち, したがって, ガスを逃さず所定の鉱石量を正確に装入することができた。

H<sub>2</sub> ガスはいちど温度を上げ, 少量含まれている酸素を H<sub>2</sub>O に反応させ, 脱湿後入口ガスメーター (1) にて計量し, オイルシール (3) を通つて反応管に入り,

鉱石を向流還元後オイルシール (13) を通り, 還元により生じた H<sub>2</sub>O をシリカゲル (17) で脱湿し, 出口メーター (18) にて H<sub>2</sub> のみを計量する。したがって出入口メーターの流量差が還元により発生した H<sub>2</sub>O ガスの容量を示すことになり, これよりガス利用率を計算しうる。

鉱石溜め (16) より装入された鉱石が冷たいと, 還元により発生した H<sub>2</sub>O ガスは凝縮し, 鉱石が反応管に入る前に固結してしまうので, シリコンゴム管 (11) とオイルシール (13) などは 600W のヒーター (15) で水分が凝縮しない程度に加熱をした。それでも鉱石量が多いと, 鉱石が加熱されるまでに凝縮がおこるので, 鉱石溜め (16) に 100W のマントルヒーターをかぶせ, 鉱石を装入前に予熱してから装入するようにした。

装入された鉱石は回転流動しながら右から左に反応管内を移動して, 向流還元を受け, オイルシール (3) を通つて鉱石受けシリンダー (2) 内に落下する。落下した鉱石の容積はシリンダー外側の目盛りにより随時測定を行なつた。

## 2.2 実験方法

標準的な実験方法としては, 反応管に N<sub>2</sub> を流しつつ昇温し, 所定の温度になつたら, 反応管を回転する。反応管の内径は 47 mm であり, 194 rpm のとき遠心力と重力とが釣り合うので, 約 200 rpm となるように回転した。N<sub>2</sub> を H<sub>2</sub> に切換え, 所定の流量 (1, 2, 4 NL/min) に調節し, 実験を開始する。開始後 2 min おきに出入口のガスメーターを同時に読み, 4 min 後より一定時間 (4 min) ごとに精秤した所定重量 (25 g) の鉱石を装入する。

還元を終つて落下した鉱石はシリンダーにつけた一目盛になるたびに時間を記録し, 実験後の落下鉱石の重量および容積と定常還元率より原鉱重量に換算した。鉱石の装入回数は約 12 回で, 最後の装入が終つてから 4 min 目に回転を止め, H<sub>2</sub> を N<sub>2</sub> に切換えた後, 反応管の両端を密閉して放冷した。

翌日, 反応管内の恒温部 (堰の部分) にたまった量と他の部分にたまった量をわけて測定した。

Table 1. Chemical analysis.

Ore	T.Fe	FeO	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CaO	CsO	C.W.	T.O*
Sishen (Africa)	66.81	1.35	2.52	1.16	0.10	0.01	0.64	28.56
Kiruna (Sweden)	69.67	29.37	1.60	0.32	0.09	0.02	—	26.67
Self-fluxing sinter	55.9	8.91	5.20	2.37	11.41	0.02	—	22.80

\* Combined oxygen with Fe

### 2.3 使用鉱石

鉱石としては高品位のヘマタイトであるシセン鉱（アフリカ産）と高品位のマグネタイトであるキルナ鉱（スエーデン産）および自溶性焼結鉱を使用した。その分析値を Table 1 に示す。

## 3. 実験結果

実験結果の一覧表を Table 2 に示す。

### 3.1 800°C におけるシセン鉱の回転流動還元

シセン鉱の粒度 1~2 mm のものを 4 min ごとに 25 g ずつ装入し、H<sub>2</sub> 流量を 1, 2 Nl/min で各 1 回、4 Nl/min で 2 回（a と b）回転流動層による向流還元を行なった（以下それぞれ 1l, 2l, 4l・a, 4l・b と略称する）。

#### 3.1.1 ガス利用率の時間的变化

前述の条件において、ガスメーターを 2 min おきに読み、おのおの 2 min 間の平均ガス利用率を計算し、Fig. 2 に示す。

この 4 本の曲線は全般的に鋸歯状を示す。これは鉱石装入が 4 min ごとであり、測定が 2 min ごとなので、鉱石装入後の 2 min は高いガス利用率を示すが、つぎの 2 min はやや低下する傾向があるためである。また実験開始後 4 min たつてから鉱石の投入を始めたが、4 回くらい装入した、約 20 min 後にほぼ一定のガス利用率を示

すようになる。この定常状態になったときのガス利用率としては、できるだけ安定してからの値がよいので、最後の 10 回のガス利用率の平均をとって定常ガス利用率とし、Fig. 2 に点線で示した。すなわち、1l では 76.7%、2l では 54.8%、4l・a では 41.1%、4l・b では 45.1% となった。最後の a と b は 4l の同一条件でかなり大きな差があるが、これについては 3.1.3 で説明する。

#### 3.1.2 定常ガス還元率

向流還元において、定常状態を考え、単位時間に通過したガスが除去した酸素量は、ガス流量と定常ガス利用率から計算しうる。その酸素が単位時間に通過する鉱石より除去されると考えると、定常還元率を計算しうる。計算式は

$$Q \cdot U_s \cdot \frac{16}{22.4} = W_s \cdot X_o \cdot R_s$$

$$R_s = \frac{Q \cdot U_s}{1.4 W_s \cdot X_o} \dots \dots \dots (1)$$

で計算しうる。

前節の定常ガス利用率より計算すると Table 2 に示すように、定常還元率は 1l では 33.4%、2l では 45.9%、4l・a では 68.3%、4l・b では 73.0% となった。

#### 3.1.3 鉱石滞在量

前節で得た定常ガス利用率と定常還元率は、他の条件

Table 2. Experimental data.

Experimental No	Ore sort	Ore size mm	Reducing temperature °C	Feeding speed of ore g/min	H <sub>2</sub> flow rate Nl/min	Utilization coefficient %	Degree of reduction %	Residual ore weight in the isothermal zone g
SW18	Sishen	1-2	800	25/4	1.09	76.7	33.4	29.7
SW16	"	"	"	"	2.14	54.4	45.9	29.7
SW15	"	"	"	"	4.17	41.1	68.3	53.1
SW23	"	"	"	"	4.10	45.1	73.0	88.9
SW19	"	"	"	25/6	4.18	33.8	83.1	89.5
SW20	"	"	"	12.5/4	4.13	29.9	97.0	68.9
SW21	Sishen	1-2	900	25/6	4.20	39.8	98.0	122.1
SW24	"	"	"	25/4	4.14	42.3	69.1	94.6
SW22	"	0.5-1	"	25/6	4.14	37.8	92.6	96.6
SW25	"	"	"	25/4	4.07	47.0	74.6	105.6
SW26	"	0.25-0.5	"	"	4.12	44.5	71.7	83.1
SW27	Kiruna	1-2	900	25/4	4.02	27.3	47.1	112.6
SW33	"	"	"	"	4.11	21.9	38.7	78.8
SW29	"	"	"	12.5/4	2.10	24.0	43.0	73.3
SW28	"	0.5-1	"	25/4	4.09	30.3	53.2	168.1
SW30	Sinter	1-2	900	25/4	4.17	20.1	39.8	15.6
SW32	"	"	"	"	4.34	30.9	65.1	22.4
SW31	"	0.5-1	"	"	4.19	26.4	53.0	6.2

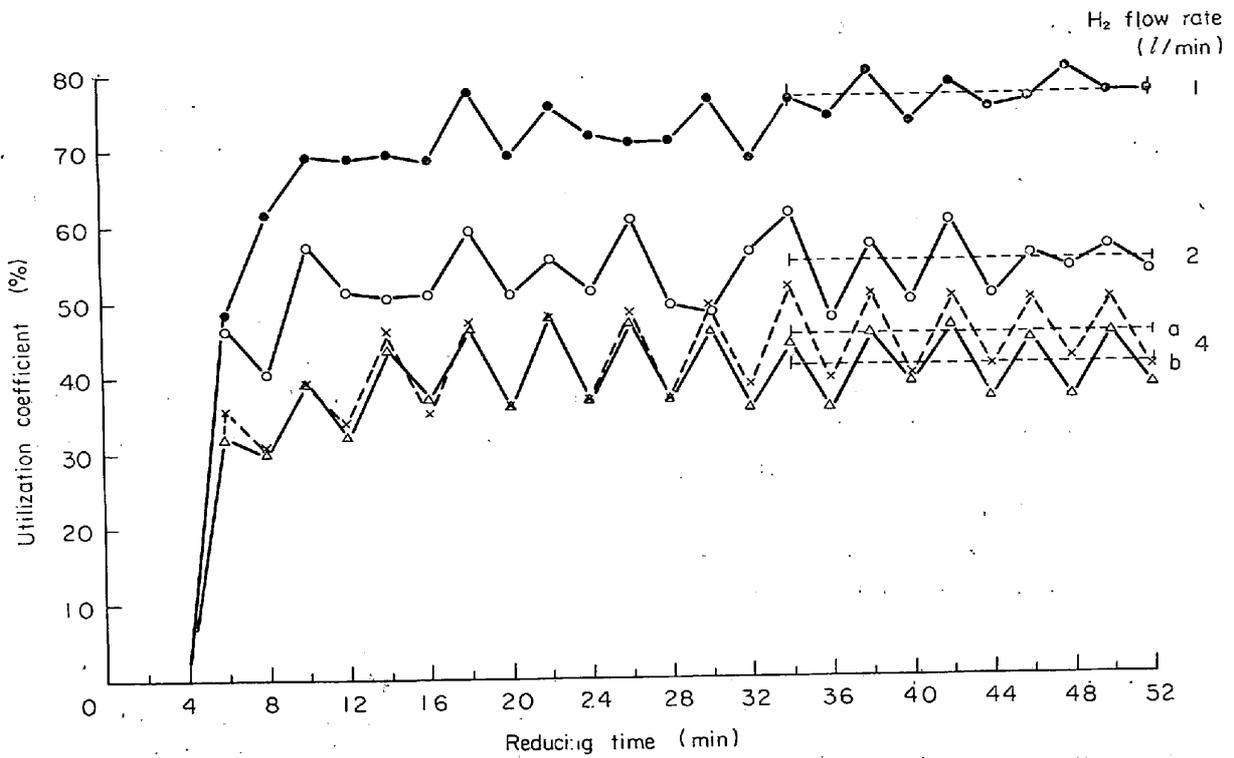


Fig. 2. Effect of gas flow rate.

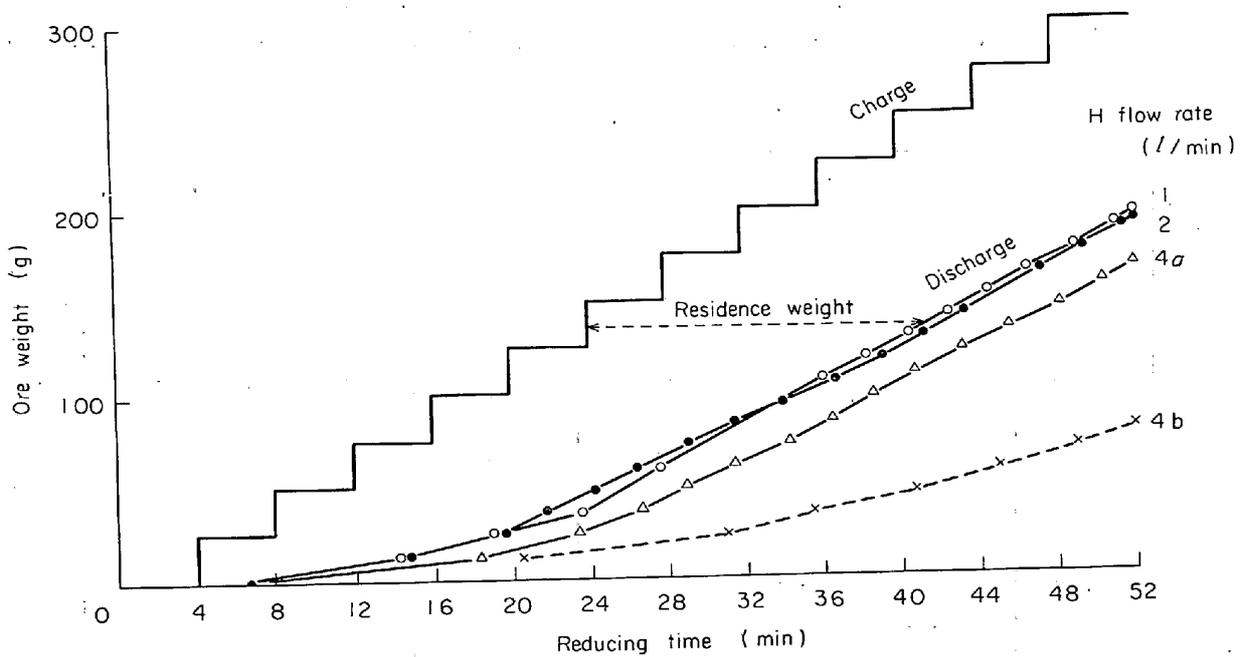


Fig. 3. Residence weight of ore.

が同じで 26 mm φ の反応管を使用した前報<sup>3)</sup>の実験値とほぼ同じ値を得た。両者は鉍石装入量、ガス流量、恒温反応帯の長さ 300 mm は同一だが、内径は 26 mm φ より 47 mm φ になったので、反応帯内容積は約3倍になっている。この内容積の効果を見るため、鉍石滞在量

を測定した。

Fig. 3に鉍石装入量と鉍石排出量を示す。鉍石排出量は還元率より原鉍重量に換算した値を使用した。この差が反応管内に残っている量の原鉍換算値である。しかし反応管の全長は 1500 mm であるが、恒温帯の長さは

300 mm で全長の 1/5 にすぎないが、三つの堰のため、この量の大部分は恒温帯と出口部にあつた。このグラフから滞在量は 1 l が 120 g, 2 l が 120 g, 4 l-a は 140 g, 4 l-b は 230 g であり、約 30 min 後からほぼ定常に達しているのがわかる。これは Fig. 2 のガス利用率曲線の定常に達する時間ともほぼ一致している。

しかし、これでは堰部にたまった量と出口にたまった量の区別ができないので、最後の装入をしてから 4 min 後に回転を停止し、還元も中止した。冷却後重量測定を行ない、恒温帯に残留した量（原鉱に換算しない実重量）を実測した。それは Table 2 に示すように、1 l で 30 g, 2 l で 23 g, 4 l-a で 53 g, 4 l-b で 89 g であつた。これは前報<sup>3)</sup>の 26 mm  $\phi$  反応管における 1 l の 38 g, 2 l の 86 g, 4 l の 66 g であつたことと比較すると、2 l のときをのぞき大差はないことがほぼ同じガス利用率を得たものと思われる。4 l-b のガス利用率が 4 l-a に比して高いのは、滞在量がまだ定常に達せず、しかも最終滞在量が多かつたためであろう。

### 3.2 900°C におけるシセン鉱の回転流動還元

前報<sup>3)</sup>の反応管径 26 mm  $\phi$  の還元においては、シセン鉱は 900°C において著しく焼結し、ガス利用率が一定にならず、定常ガス利用率を決定することができなかつた。反応管径 47 mm  $\phi$  を使用した本実験では 800°C でほとんど焼結しなかつたので、900°C の還元も行なつた。また前報<sup>3)</sup>の発表の際に、W. O. PHILBROOK 教授より、還元率 95% 付近の炉内容積の有効利用率がどのくらいになるかとの質問を受けたことも考え、主として高還元率をねらい、単位時間における装入鉱石中の酸素量とガスの還元しうる酸素量との比を 0.6 と 0.4 にして還元を行なつた。

その結果を Fig. 4 に示す。鉱石サイズは 1~2 mm, 0.5~1 mm, 0.25~0.5 mm の 3 種類を用いたが、流動状態も関連したのか、サイズによる影響はあまりはつき

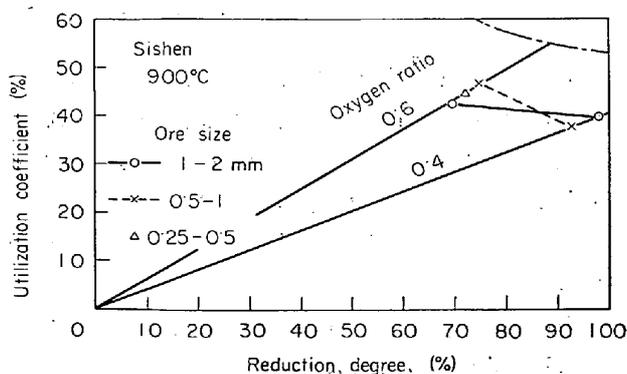


Fig. 4. Countercurrent reduction at high reduction degree.

りしない。鉱石/ガスの酸素比が 0.6 のものは還元率 70~75% でガス利用率は約 45% であり、このときの炉内容積有効利用率は 17.3 t/m<sup>3</sup> day であつた。また酸素比 0.4 のものは還元率 93~98% で、ガス利用率は 37~40% で炉内容積の有効利用率は 11.5 t/m<sup>3</sup> day であつた。これは前報<sup>3)</sup>の 56 t/m<sup>3</sup> day よりかなり低い。今回の実験では前回に比べ、反応管径を大きくしたが、オイルシールのガラス管径は太くしなかつたので、H<sub>2</sub> 流量は前回と同じ 4 Nl/min に制限され、管断面積あたりの流量は 1/3 となつた。したがって装入量も 25 g/4 min 以下に制限され、その結果恒温帯滞在量が 30~80 g で、充填率は 4~10% と低かつた。前回の反応管内径 26 mm  $\phi$  の装置で、H<sub>2</sub> 流量 4 Nl/min にて、鉱石を飛ばすなど輸送層にすることなく、回転流動層として実験が行なえたので、同一線速度まで可能とすると、今回の内径 47 mm  $\phi$  では断面積が約 3 倍なので、流量も 3 倍になしうる。また前回は恒温帯滞在量が 30~80 g で充填率が 12~30% で実験を行なえたので、内容積が 3 倍になつた今回の実験でも、堰、傾斜などを変えて滞在量を 3 倍にしうる。そこでガス流量、鉱石装入量を今回の 3 倍とし、しかも恒温帯滞在量を 3 倍とすれば、定常還元率、定常ガス利用率を同一に保ちつつ、すくなくともこの 3 倍の炉内容積有効利用率 (33 t/m<sup>3</sup> day) が得られる。

### 3.3 鉱石の種類による回転流動還元の比較

マグネタイトは被還元性は悪いが、焼結しにくいという長所を持つており、ヘガネス法などの鉄粉の製造に利用されているので、高品位のマグネタイトとしてスエーデン産のキルナ鉱を使用した。焼結鉱は 5 mm 以上になると、その多孔質のため、ヘマタイトに遜色ない被還元性を有するが、粉になると還元性はあまりよくなる。このキルナ鉱と自溶性焼結鉱とシセン鉱の 1~2 mm のものを、900°C にて向流還元の比較を行なつた。

Fig. 5 にガス利用率の比較を示す。焼結鉱およびキルナ鉱はシセン鉱に比して低いガス利用率を示す。焼結鉱は恒温帯でまったく焼結を起こさず、滞在量も少なく、すぐ通過してしまうので、定常に達する時間も短く、このサイズではキルナ鉱にほぼ等しい難還元性を示している。ただキルナ鉱のガス利用率は実験の終期にもまだ少しずつ増加しつつあるが、これは少量ではあるがやや焼結しつつあることを示すものである。冷却後の測定ではわずかに焼結しているのがみられた。

一般に、10 mm 以上の焼結鉱はヘマタイトと同様に、同一サイズのマグネタイトに比べよい還元性を示すといわれている。しかし 1~2 mm のような細かいサイズになると、上述のように焼結鉱はむしろマグネタイトと同様

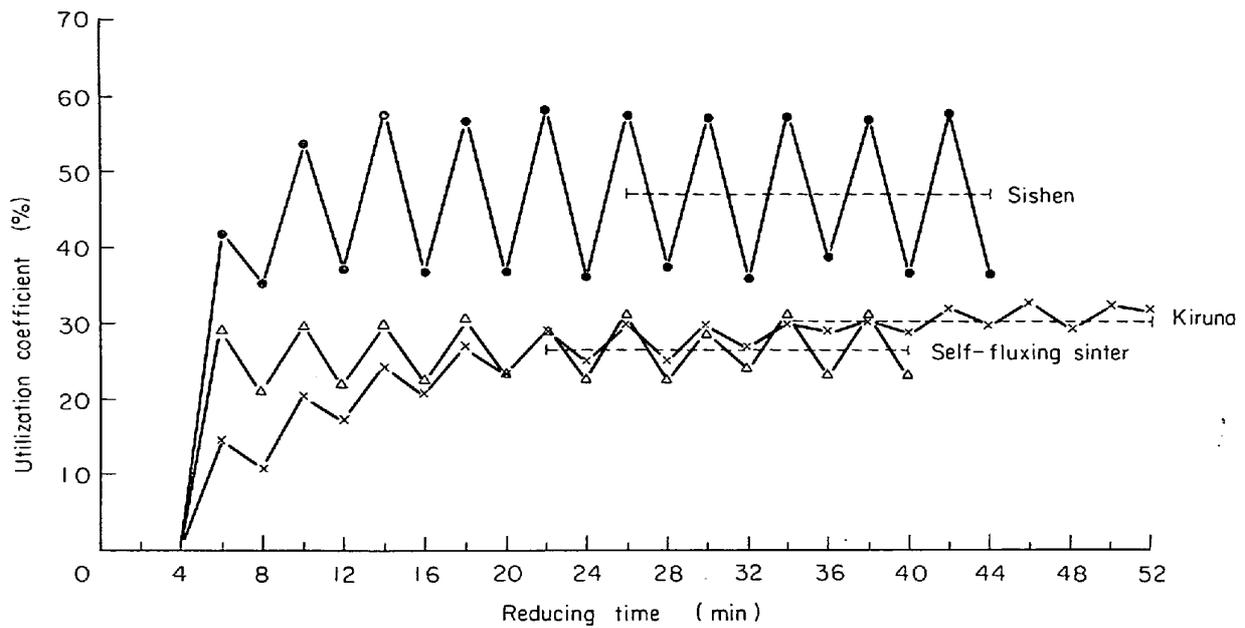


Fig. 5. Comparison of ore sorts.

に難還元性を示している。これは焼結鉱の還元性のよさが主としてその大きな気孔によつてゐるためである。

#### 4. 三界面並列反応モデルによる還元速度の計算

##### 4.1 計算モデル

単位層の還元反応モデルとしては前報<sup>5)</sup>の三界面並列反応モデルを使用した。すなわち、 $Fe_2O_3 \rightarrow Fe_3O_4$ ,  $Fe_3O_4 \rightarrow FeO$ ,  $FeO \rightarrow Fe$  の三界面における還元反応が別々にトポケミカルに進むとして、各段階に化学反応速度と粒内ガス拡散の混合律速の式<sup>6)</sup>を使用した。

$FeO \rightarrow Fe$  の還元については

$$\frac{dR_w}{dt} = \frac{3K_w(C_w^{e,q} - C_w^0)}{r_0 d_0 [(1 - R_w)^{-2/3} + (r_0 K_w / D_w) \{ (1 - R_w)^{-1/3} - 1 \}]} \dots \dots \dots (2)$$

であり、ここで  $(r_0 K_w / D_w)$  はシャーウッド数と同じ形の無次元数であり、界面反応に対する粒内ガス拡散の割合を示している。サフィクスを  $w$  より  $m$ ,  $h$  に変えれば、それぞれ、 $Fe_3O_4 \rightarrow FeO$ ,  $Fe_2O_3 \rightarrow Fe_3O_4$  の各段階の還元速度式ができる。この三界面並列反応モデルはとくにガス利用率が  $FeO \rightarrow Fe$  還元における平衡値をこえるような場合にも計算可能である。

今回の実験では比較的粒径の小さな鉱石を使用し、 $H_2$  還元を行なつたので、 $(r_0 K / D)$  は各段階の還元とも、1 以下で無視できる状態であつたので、今回の計算では

(2) 式右辺の分母の第2項の粒内拡散項は無視して、下記の式

$$\frac{dR_w}{dt} = \frac{3K_w(C_w^{e,q} - C_w^0)}{r_0 d_0} \cdot (1 - R_w)^{2/3} \dots \dots \dots (3)$$

を使い計算を行なつた。

##### 4.2 単位層の計算モデル

(3) 式は1ヶの球の計算モデルであり、1ヶの表面積を  $a$ 、体積  $v$ 、重量を  $w$  とすれば

$$a = 4\pi r_0^2$$

$$v = (4/3)\pi r_0^3$$

$$w = d_0 v = (4/3)\pi r_0^3 d_0$$

となり、単位層を形成する鉱石の個数  $N$ 、鉱石を球と見なしたときの総表面積  $A$ 、全重量を  $W$  とすれば

$$N = \frac{3W}{4\pi r_0^3 d_0}$$

$$A = aN = \frac{3W}{r_0 d_0} \dots \dots \dots (4)$$

となる。多数の球が集合して単位層を形成しても、ガス濃度が同一ならば、同一の還元速度を持つことになり、(3) 式が利用できる。そこで単位層におけるガス利用率の増加は、 $FeO \rightarrow Fe$  の還元については

$$\Delta U_w = 1.4 X_0 W \Delta R_w / Q \Delta t \dots \dots \dots (5)$$

となる。

鉱石サイズが小さくなると、(3) 式において単位時間における還元率の増加  $\Delta R$  は鉱石径に反比例して大となる。これは(4)式でもわかるように、鉱石層の総表面積が単位重量に対して  $r_0$  に反比例して増大するため

である。そこでガス利用率の増加  $\Delta U$  も (5) 式より  $\Delta R$  に比例して ( $r_0$  に反比例して) 増大する。したがって (5) 式の計算を行なうとき、粉鉱に対しては単位重量を小さくするか、単位時間  $\Delta t$  を小さくして計算し、 $\Delta U$  が平衡値との濃度差 ( $C^{eq} - C^0$ ) に比し十分小さくなるように計算する必要がある。

#### 4.3 ヘマタイトにおける向流還元パターン

シセン鉱の 1~2 mm のもの 50 g を内径 37 mm  $\phi$  の堅型の反応管に入れて固定層を作り、800°C、 $H_2$  流量を 1, 2, 4 Nl/min で還元を行ない、それぞれのガス利用率曲線を Fig. 6 に示す。

Fig. 6 のガス利用率曲線の初期と還元率 60% におけるガス利用率から前報<sup>5)</sup> の方法により、三界面の反応速度定数を電子計算機で計算し、Table 3 に示す。

ガス利用率曲線が流量を変えてもあまり変わらなかったことから、反応速度定数は一定にならず、ほぼ流量に比例して増大している。4 Nl/min のときの値

$$K_w = 0.063 \text{ g/cm}^2 \cdot \text{min}$$

$$K_m = K_h = 0.0333 \text{ g/cm}^2 \cdot \text{min}$$

は今まで多くのヘマタイト還元と同温度で得られた値のうち、かなり高い部類に属しているの、サイズの小さいにもかかわらず、鉱石表面とガスとの接触はかなり良

かつたものと思われる。

つぎにこの数値を使用し、800°C の回転流動層における向流還元についての計算を行なった。800°C 恒温帯に 50 g の鉱石が滞在するとし、この 50 g を 12.5 g の 4 層に分割し、 $H_2$  ガスは第 1 層の還元を終わったものが、第 2, 3, 4 層と順次に還元を行なっていくとし、鉱石は逆にまず第 4 層で還元されたものが、第 3, 2, 1 層と順次に還元されるとして計算を行なった。また回転流動層においては全表面積が各層において一様に反応にあずかるとして計算した。その結果を Fig. 7 に示す。

Fig. 7 において、単位時間に鉱石の持込む還元さるべき酸素量 (g/min) と、 $H_2$  ガスが還元しうる酸素量 (g/min) との比 (以後酸素比という) が一定の線は原点を通る放射状の直線群となる。これは (1) 式よりも自明である。たとえば、 $H_2$  4 Nl/min、鉱石装入量が 4 min ごとに 25 g の場合は、酸素比が 0.63 となり、還元率が 100% でガス利用率が 63% の点と原点を結ぶ直線上にある。したがって、向流還元の条件 (鉱石降下速度とガス流量) が決まれば酸素比の計算は可能であり、高炉における鉱石比と同様に還元の際の荷の重さを示している。

つぎに水素流量一定におけるガス利用率曲線は実線で示してあるが、図の右下の還元率 100% でガス利用率 0% の点を通る曲線群を示す。ガス流量が 1, 2, 4 Nl/min と増大するにしたがい、低い曲線となっている。その場合ガスの接触時間は流量に反比例して短くなる。これらの曲線と縦軸との交点は、向流還元層全体に新しい鉱石をつめてから  $H_2$  を流し始めたときの初期のガス利用率を示す。

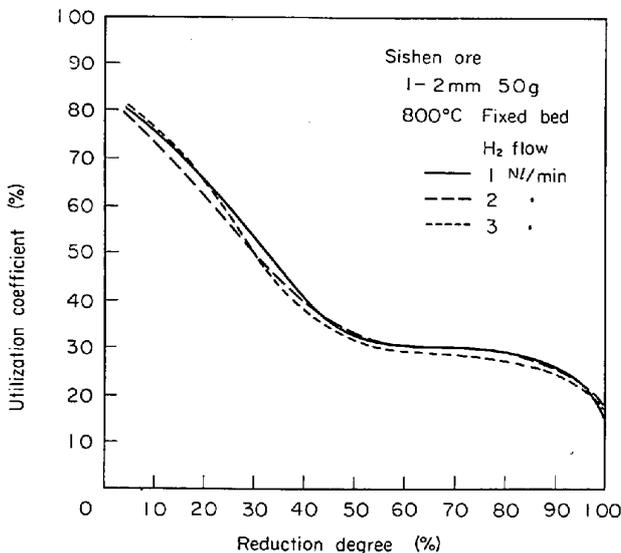


Fig. 6. Effect of flow rate on the gas utilization curve.

Table 3. Calculated rate constant.

$H_2$ flow rate Nl/min	$K_w$ g/cm <sup>2</sup> min	$K_m = K_h$ g/cm <sup>2</sup> min
1	0.020	0.0081
2	0.038	0.0154
4	0.063	0.0333

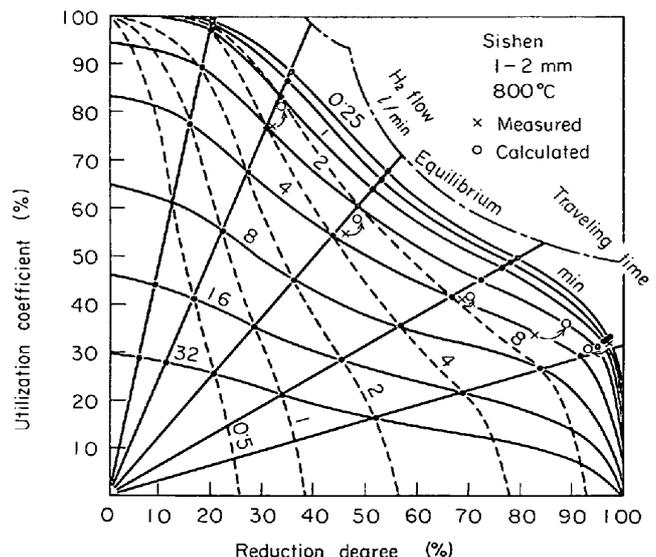


Fig. 7. Calculated pattern of a counter-current reduction.

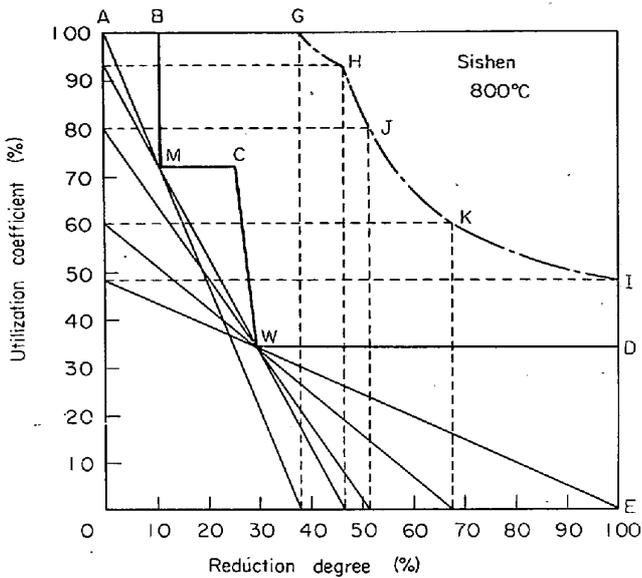


Fig. 8. Drawing of the equilibrium curve.

ガス流量はガスの接触時間と反比例の関係があり、接触時間が無限大（平衡）の場合のガス利用率曲線は作図より求めることができる。Fig. 8 において、A B M C W D E は化学量論的な平衡段階<sup>7)</sup>を示す。すなわち、B M はシセン鉱を  $Fe_3O_4$  まで還元する還元率 (10.6%) を示し、M C は  $Fe_3O_4$  還元の際の  $H_2O$  の平衡値 (72.0%) を示し、C W はそれぞれのガス濃度と平衡するウスタイト組成まで還元する際の還元率 (25.4~29.6%) を示し、W D はウスタイト還元の際の  $H_2O$  の平衡値 (34.0%) を示す。

平衡ガス利用率曲線の作図としては、まず A M を延長し横軸との交点 (38%) より垂線を引き G 点を求める。これはガス利用率を 100% に保つたときの最大還元率を示す。これは酸素バランスより証明できる<sup>7)10)</sup>。つぎに M W を両側に延長し、縦横軸との交点よりおのおの垂線を立てると、その交点が H 点となる。E W を延長し、縦軸との交点に垂線を立て I 点が決まる。途中は任意の%、Fig. 8 ではガス利用率 80% と 60% の点より W を通る線を引き、両軸との交点に垂線を立て、その交点を J, K とすると、図に一点鎖線で示す平衡の際のガス利用率曲線ができ、現実の還元において、このガス利用率をこえることはできない。また W 点では Chemical reserve zone ができている前提であるので、かなりおそい還元でも、Chemical reserve zone ができなければ、W 点より低いところを通るので、同一還元率に対しては低いガス利用率になる。

鉱石降下時間（恒温帯を通過する時間で、降下速度と逆比例する）一定のガス利用率曲線は左上のガス利用率が 100% で還元率が 0% の点を通る曲線群となり、Fig.

7 では点線で示してある。この曲線と横軸との交点はガス流量を十分早くしたときに、その降下時間内に到達しうる最大の還元率を示している。

これらの三つの条件は自由度が 2 であり、2 つが決まれば点は決定され、したがってその際の定常還元率と定常ガス利用率は決定される。

4.4 鉱石降下時間とガス接触時間

Fig. 7 には実測値を × 点で示した。しかしこれと計算値との比較には滞在量の評価が必要となる。そこで鉱石表面  $1\text{ cm}^2$  当たりの反応の物質収支を Fig. 9 に示し、鉱石降下時間 (Traveling time)  $T_t$  とガスの接触時間 (Contact time)  $T_c$  との関係を考える。

鉱石側では反応速度定数  $K(\text{g}/\text{cm}^2 \text{ min})$  は W. M. McKEWAN<sup>9)</sup> が式の誘導に使ったように、反応界面の移動速度に換算しうる。それを  $K' \text{ cm}/\text{min}$  とすると、Fig. 8 のように  $K'$  と粒子半径  $r_0$  との比較となり、ガス濃度などのガス側の条件はあるが、完全還元をするためには鉱石降下時間  $T_t$  は  $r_0/K'$  より少なくとも大でなければならない。 $T_t \gg r_0/K'$  となれば、もはやガス側の条件のみで還元速度は定まる。

反応速度定数  $K(\text{g}/\text{cm}^2 \text{ min})$  が定まると、還元により発生する酸化性ガス ( $H_2O$ ) の量は  $1.4 K X_0$  となる。ある層において鉱石の総表面積が均一に反応にあずかるとすれば、ガス流量の単位表面積への分配は  $Q/A$  となる。そこで  $1.4 K X_0$  と  $Q/A$  を比較して、 $1.4 K X_0 \ll Q/A$  ならば、ガス側は平衡に十分遠いので、還元速度は鉱石側の反応速度定数のみにより決定される。

つぎに流量一定で鉱石層厚が厚くなると、ガスの接触時間  $t_c$  は層厚に比例して長くなる。したがって鉱石重量  $W$  や総表面積  $A$  は層厚に比例して大きくなるので、 $Q/A$  は逆比例して小さくなる。接触時間が著しく大となり、 $1.4 K X_0 \gg Q/A$  になると、平衡に近くなり、ガス側の条件で還元速度が測定されることになる。

また鉱石重量一定で粒径が小になると、表面積  $A$  は粒

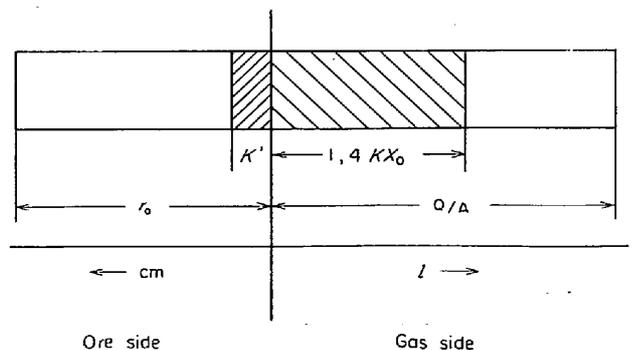


Fig. 9. Schematic relation on a unit surface area.

径に反比例して大となるので、 $Q/A$  は粒径に比例して小となり、接触時間が大となるのと同じ効果を持つている。

前報<sup>9)</sup>において、サイズ一定の場合、接触時間が一定のときガス利用率曲線が同一になると述べたが、サイズを変化させた場合、 $Q/A$  一定の場合に同一のガス利用率曲線が得られると拡張して考えることができる。

そこで実測値の鉱石滞在量として、Table 2 に表示した実験後堰部に残留した鉱石量に、一回の装入量の 1/2 (12.5 g) を加えて、4 min 間における平均滞在量とし、実測の流量を  $Q/A$  一定として、50 g のときの流量に換算し、計算パターン上に白丸で表示した。この白丸とそれに相当する実測値×点を矢印で結んだ。これら実測値と計算値は多少のバラツキはあるが、かなりよい一致をみている。

#### 4.5 鉱石粒子とガスとの接触

以上の計算の基礎となつた反応速度定数は 4.3 で述べたように、内径 37 mm  $\phi$  の固定層反応管で水素流量 4 NI/min において測定されたものである。その際の空塔速度は 24.3 cm/sec である。

回転流動層の実験では内径 47 mm  $\phi$  の反応管を 200 rpm で回転しつつ、ガス流量を 1~4 NI/min で実験を行なつた。その軸方向の空塔速度は 3.8~15.0 cm/sec であつた。したがつて固定層の空塔速度は回転流動層のその 1.6~6.4 倍であるが、回転流動層の実測値と、固定層データからの計算値がほぼ一致することは、回転流動層では粒子が円周方向に運動するので、かなり早い線速度で鉱石粒子とガスの接触が行なわれると解釈することができる。

反応管内壁の回転の際の線速度は 47 cm/sec であり、鉱石はそれに近い速度で回転している。とくに落下する際はそれより早いと考えられ、それに粒子の自転も考えられるので、ガス境膜拡散抵抗は軸方向の流速のいかににかかわらず無視しても大きな影響はないものと思う。

### 結 言

- 1) 反応管径を大きくすると、回転流動層における焼結性を低下させることができる。
- 2) 鉱石滞在量が一定なら、管径によらず定常ガス利用率は一定になる。
- 3) 回転流動層における粒子とガスの接触は、固定層におけるガス流速のかなり速いもののそれに対応する。
- 4) ガスと鉱石表面の接触がよければ、電子計算機による還元速度の計算と実測値が一致する。
- 5) したがつて、粒径を小にすれば炉内容積有効利用

係数を大にすることができる。

6) 1~2 mm のヘマタイトを 900°C において、90~95% 還元する際に、ガス利用率を 40% にしてなお炉内容積有効利用係数を少なくとも 33 t/m<sup>3</sup>day 以上になしうる。

### 記 号

- $A$  : 鉱石層の総表面積 (cm<sup>2</sup>)  
 $a$  : 鉱石一ケの表面積 (cm<sup>2</sup>)  
 $C^{eq}$  : 平衡 H<sub>2</sub>O 濃度 (-)  
 $C^o$  : 入口ガス中 H<sub>2</sub>O 濃度 (-)  
 $D$  : 粒内ガス有効拡散係数 (g/cm min)  
 $d_o$  : 鉱石初期密度 (g/cm<sup>3</sup>)  
 $K$  : 化学反応速度定数 (g/cm<sup>2</sup> min)  
 $K'$  : 反応界面進行速度 (cm/min)  
 $N$  : 鉱石層の総個数 (-)  
 $Q$  : 単位時間の H<sub>2</sub> 流量 (NI/min)  
 $R$  : 還元率 (-)  
 $R_s$  : 定常還元率 (-)  
 $\Delta R$  : 還元率の増加 (-)  
 $R$  : 各段階における還元率 (-)  
 $r_o$  : 鉱石半径 (cm)  
 $t$  : 還元時間 (min)  
 $U_s$  : 定常ガス利用率 (-)  
 $\Delta U$  : ガス利用率の増加 (-)  
 $v$  : 鉱石 1 ケの体積 (cm<sup>3</sup>)  
 $W$  : 鉱石層の重量 (g)  
 $W_s$  : 単位時間の鉱石装入量 (g/min)  
 $w$  : 鉱石 1 ケの重量 (g)  
 $X_o$  : 鉱石中 Fe と結合した酸素分率 (-)  
 サフィクス  
 $w$  : FeO (ヴェスタイト) → Fe 還元  
 $m$  : Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> → FeO 還元  
 $h$  : Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> → Fe<sub>3</sub>O<sub>4</sub> 還元

### 文 献

- 1) 遠藤, 松下: 鉄と鋼, 46 (1960), p. 64
- 2) 相馬: 鉄と鋼, 52 (1966), p. 1320
- 3) T. SŌMA: Proceedings of International Conference on the Science and Technology of Iron and Steel, (1971), p. 480
- 4) 相馬: 鉄と鋼, 51 (1965), p. 1753
- 5) 相馬: 鉄と鋼, 54 (1968), p. 1431
- 6) 森: 鉄と鋼, 50 (1964), p. 2259
- 7) 相馬: 鉄と鋼, 51 (1965), p. 1753
- 8) 相馬: 鉄と鋼, 49 (1963), p. 1645
- 9) W. M. MCKEWAN: Trans. AIME, 212 (1958), p. 791
- 10) A. RIST and N. MEYSON: Ironmaking Proceed-

ing, 25 (1966), p. 88

### 討 論

【質問】 東大生研 大蔵明光

1. 炉内の温度分布について
2. 温度分布がことなると反応もことなるのではないか.

【回答】

1. 温度は 300 mm 恒温帯の中央と左右の 3 点で制御し測定の結果  $\pm 10^{\circ}\text{C}$  以内で制御されていた.

2. 炉は定温に制御されたが, 装入鉍石は  $100^{\circ}\text{C}$  以上には予熱をしないので, 装入されてから温度が上がるまでに多少の時間を要するだろう. しかしパイプの熱容

量が大いことと, 粒子が流動しているので, かなり早く温度が上がるものと思う.

【質問】 北大工 吉井周雄

ステンレスパイプと鉍石粒との流動が完全であつたか

【回答】

ステンレスパイプと鉍石粒の間にはスペリがあり, 10% 以下の充填率では, 常温においてはあまりよい流動は得られないが,  $800^{\circ}\text{C}$  以上にするとスペリがたくなるとみえ, よい流動層が得られることを確めた. しかし還元の途中で確めることはできないので, 逆によりガス利用率が得られるときによい流動をしていると判断した.