

## 論 文

UDC 669.181.24 : 669.181.423 : 622.341.1-188

# 数学的モデルによる鉄鉱石還元用シャフト炉の 操業条件の検討\*

原 行明\*\*・坂輪 光弘\*\*・近藤 真一\*\*\*

## Analysis of Operating Conditions of Shaft Furnace for Reduction of Iron-Ore Pellet by Using a Mathematical Model

Yukiaki HARA, Mitsuhiro SAKAWA, and Shin-ichi KONDO

## Synopsis:

A mathematical model having the multi-interface model for the reduction of single pellet is employed for the theoretical analysis of the commercial operating conditions of shaft furnace and the following results are obtained.

(1) The required bed height for the reduction is linear to the productivity of iron per cross sectional area of furnace under the same composition and utilization of reducing gas.

(2) The temperature of injection reducing gas greatly affects the required bed height. Under the each operating condition, the critical temperature exists and it correlates to the equilibrium point from  $\text{Fe}_3\text{O}_4$  to  $\text{FeO}$  reduction by hydrogen on the operational line chart of oxygen exchange in shaft furnace.

(3) The reduction by the gas contained carbon-monoxide is more effective than that by only hydrogen because of the magnitude of the reaction heat.

(4) Being below 10%, the  $\text{H}_2\text{O}$  and  $\text{CO}_2$  in reducing gas do not bring a large shortcoming on the process.

(5) The increasing of gas pressure until about 5 atm has a marked effect to the reduction rate and the productivity becomes larger, the higher the pressure goes, then the shaft furnace having the pressure over several atmospheres is desirable.

## 1. 緒 言

著者らは前報<sup>1)</sup>で鉄鉱石ペレットの還元が多界面未反応核モデルで進行するとしてシャフト炉還元の数学的モデルを作成し、これを小型シャフト炉の実験データに適用した結果、炉内状況をよくシミュレートできることを報告した。本報では本数学的モデルを使つた諸計算から実用的シャフト炉を想定した場合の還元ガスの温度、圧力、組成などの操業能率に及ぼす影響について検討した結果を報告する。

## 2. 数学的モデルと計算方法

## 2.1 数学的モデル

数学的モデルは速度パラメータも含めて前報<sup>1)</sup>で得ら

れたものを採用する。すなわち、シャフト炉を鉱石、ガスともに完全なピストン流れの向流移動層とし、一箇粒子の還元が多界面未反応核モデルに基づく速度式を使用したものである。ただし前報では計算対象が小型実験炉であるので、熱移動とガス圧力の変化についての計算を省略していた。本報は実用炉の操業条件を想定しているので、これらの計算を行なうように数学的モデルを一部改良した。

熱移動については反応熱に基づく鉱石の顕熱変化、鉱石・ガス間の伝熱およびガス・炉壁間の熱損失を考慮した。ただし、鉱石粒子内の温度は均一とし、シャフト炉の半径方向の温度分布も無視できるとした。ガスの圧力変化は炉頂圧を与えて、炉底部における圧力を算出することにした。なお、本数学的モデルは前報同様、炭素析

\* 昭和 50 年 4 月本会講演大会にて発表 昭和 50 年 7 月 25 日受付 (Received July 25, 1975)

\*\* 新日本製鉄(株)基礎研究所 工博 (Fundamental Research Laboratories Nippon Steel Corp. 1618 Ida Nakahara-ku Kawasaki 211)

\*\*\* 新日本製鉄(株)基礎研究所 理博 (Fundamental Research Laboratories Nippon Steel Corp.)

Table 1. Equations for the calculation of reaction heats (cal/mol-Gas).

Reaction	Range of $T$ ( $^{\circ}K$ )	$H_2$ -reduction	CO-reduction
$Fe_2O_3 \rightarrow Fe_3O_4$	273~1023 >1023	-3000 -3000-3.18(T-1023)	-13000+2.31(T-273) -11270-0.87(T-1023)
$Fe_3O_4 \rightarrow FeO$	273~1123 >1123	24000-12.34(T-273) 13500	14000-10.03(T-273) 5465+2.31(T-1123)
$FeO \rightarrow Fe$	273~673 >673	6200-5.56(T-273) 3975-0.98(T-673)	-3800-3.25(T-273) -5100+1.33(T-673)
$Fe_3O_4 \rightarrow Fe$	273~673 675~1123 >1123	9940-6.98(T-273) 7150-3.37(T-673) 5630-0.78(T-1123)	-60-4.67(T-273) -1930-1.05(T-673) -2400+1.44(T-1123)
$H_2O+CO \rightarrow H_2+CO_2$	>273	-10000+2.31(T-273)	

出反応と  $CH_4$  の生成反応は含まないので、計算範囲は還元ガス中の CO 濃度を 30% 以下とし、炉頂圧を高圧にした計算は  $H_2$  還元に限定した。

使用した熱関係のパラメータは次のようである。

鉄石とガスの比熱：既存文献<sup>2)3)</sup>より次のようにする。

$$C_P = C_{P,H} + C_{P,M} + C_{P,W} + C_{P,F} \dots\dots\dots (1)$$

ただし、

$$C_{P,H} = (1.0 - R_M) \cdot (0.155 + 0.100 \times 10^{-3} \cdot T_S - 0.0265 \times 10^5 \cdot T_S^{-2})$$

$$C_{P,M} = 0.9667(R_M - R_W) \cdot (0.178 + 0.0813 \times 10^{-3} \cdot T_S - 0.0433 \times 10^5 \cdot T_S^{-2})$$

$$C_{P,W} = 0.91(R_W - R_F) \cdot (0.162 + 0.0278 \times 10^{-3} \cdot T_S - 0.0093 \times 10^5 \cdot T_S^{-2})$$

$$C_{P,F} = 0.70R_F(0.0603 + 0.127 \times 10^{-3} \cdot T_S - 0.0077 \times 10^5 \cdot T_S^{-2})$$

$$C_G = C_{H_2} \cdot Y_{H_2} + C_{H_2O} + C_{CO} \cdot Y_{CO} + C_{CO_2} \cdot Y_{CO_2} + C_{N_2} \cdot Y_{N_2} \dots\dots\dots (2)$$

ただし、

$$C_{H_2} = 6.947 - 0.200 \times 10^{-3} \cdot T_G + 0.481 \times 10^{-6} \cdot T_G^2$$

$$C_{H_2O} = 7.256 + 2.298 \times 10^{-3} \cdot T_G + 0.283 \times 10^{-6} \cdot T_G^2$$

$$C_{CO} = 6.420 + 1.665 \times 10^{-3} \cdot T_G - 0.196 \times 10^{-6} \cdot T_G^2$$

$$C_{CO_2} = 6.214 + 10.396 \times 10^{-3} \cdot T_G - 3.545 \times 10^{-6} \cdot T_G^2$$

$$C_{N_2} = 6.524 + 1.250 \times 10^{-3} \cdot T_G - 0.001 \times 10^{-6} \cdot T_G^2$$

反応熱：反応熱は比熱の積分計算を省略するため、既存の計算値<sup>4)</sup>から Table 1 に示すように各温度域ごとに温度の 1 次式とした近似式を使つた(発熱を負としてある)。

ガスの粘度：SUTHERLAND の式および WILKE の式で計算する<sup>5)</sup>。

ガスの熱伝導度：気体の Pr 数 ( $C_G \cdot \mu_G / k_G$ ) は低圧力下では一定とみなせるので<sup>6)</sup>、比熱と粘度から次式で計算する。

$$k_G = 1.40 C_G \cdot \mu_G / \bar{M} \dots\dots\dots (3)$$

鉄石・ガス間の伝熱係数：次の白井の式<sup>7)</sup>による。

$$h_P = (2.0 + 0.75Pr^{1/3} \cdot Re_P^{1/2}) k_G / (D_P \cdot \epsilon_B) \dots\dots (4)$$

ただし、 $Pr^{1/3} = 0.90$  と仮定する。

炉壁熱損失：炉壁レンガ、鉄皮を総合した総括伝熱係数  $U$  を仮定し、還元ガスと外気 ( $25^{\circ}C$  と仮定) の間に熱移動があるとする。熱損失を無視する場合は  $U = 0$  とする。

次にガスの圧力損失の計算には ERGUM の式<sup>8)</sup>を使用し、また参考値として鉄石に対する最小流動化速度を白井の式<sup>9)</sup>で計算した。

$$\Delta P = F \cdot \frac{u^2 \cdot \rho_G}{g_C \cdot D_P} \cdot \frac{1 - \epsilon_B}{\epsilon_B^3} \cdot \frac{\Delta Z}{1.033 \times 10^4} \dots (5)$$

ただし、 $F = 150(1 - \epsilon_B) / Re_P + 1.75$

$$u_{mf} = 0.0164 \frac{D_P^{0.929} \cdot \rho_S^{0.643}}{\rho_G^{0.357} \cdot \mu_G^{0.285}} \dots\dots\dots (6)$$

ただし、 $D_P$ 、 $\rho_S$ 、 $\rho_G$ 、 $\mu_G$  は(6)式の場合のみ c. g. s. 単位使用。

伝熱および圧力損失を考慮した数学的モデルの構成は前報<sup>1)</sup> Fig. 2 から、物質収支、熱収支、圧力変化の式を立てればよい。計算プログラムとしては、前報<sup>1)</sup> Fig. 3 に示したフローチャートによる還元反応と水性ガス変成反応の計算の後に、ガス・鉄石間の熱移動、反応熱による熱蓄積(反応熱は全量鉄石側に吸収されると仮定)、ガス圧力の変化などを計算するプログラムを付加したものとした。

## 2.2 計算方法

鉄鉱石ペレットの特性値としては前報<sup>1)</sup>を参考にして次の値を選定した。

$$T.Fe = 0.700, d_0 = 0.300, D_P = 0.012m, \epsilon_P = 0.250, \epsilon_B = 0.400$$

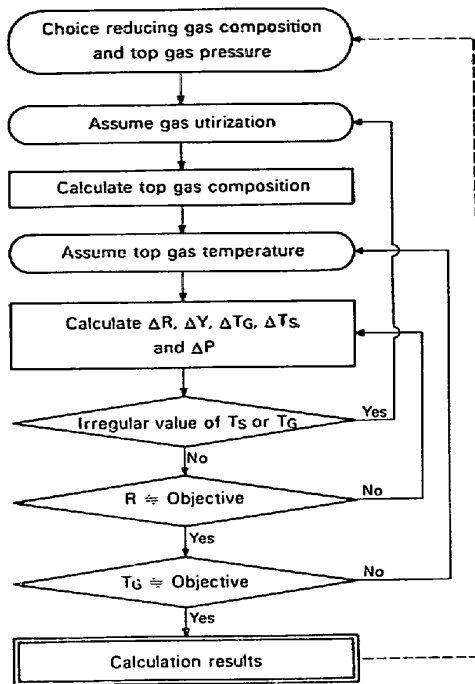


Fig. 1. Procedure of calculation.

計算手順は還元ガス組成（炉底におけるガス組成）と炉頂圧力を選定し、ガス利用率を仮定して、鉱石に対するガス流量比を決め、炉頂ガス組成を求める。この場合、 $H_2$ -CO系では水性ガス変成反応の進行があるので、前報<sup>1)</sup>同様炉頂ガス組成は  $700^\circ C$  における平衡組成に相当しているとして計算した。

次に炉底ガス温度を仮定した仮の総括熱収支から炉頂ガス温度を決め、炉頂より微小高さ区間についての反応

と伝熱の計算を逐次繰り返す。反応量の計算には Runge-Kutta 法を採用した。計算の刻み  $\Delta Z$  は熱移動の激しいところでは小さくしないと、鉱石・ガス間の温度の反転や、異常高温などになり、正常解が得られない。実際には鉱石・ガス間の熱交換の激しい炉頂部の区間では  $\Delta Z=0.0005m$ 、他は  $\Delta Z=0.005m$  とすることで正常解を得ることができた。

ガスの利用率を過大に仮定した場合は、ガス・鉱石の熱流比の過小により、途中で計算が異常になるので、その場合は利用率を変更して再計算する。そして目標還元率（本計算では還元率 100% とした）に達した点でのガスの温度が最初の予定した温度に一致した場合を正解とする。不一致の場合は炉頂ガス温度を変更して再計算を行なう。この間の手順を Fig. 1 に示した。

### 3. 計算結果と考察

#### 3.1 計算例

##### 計算例その1

$H_2$  還元の場合の一例を Fig. 2 に示した。ガス利用率は 28% で、炉壁熱損失は無視してあり、Fe 基準の生産性を  $100 t\text{-Fe}/m^2\text{-day}$  とし、ガス温度は炉頂で  $381^\circ C$ 、炉底で  $898^\circ C$ 、炉頂圧は  $1.0 atm$  の場合である。なお粒子温度の変化は図示していないが、これは常温 ( $25^\circ C$ ) で炉頂に装入され、炉頂部の  $0.1m$  程度の区間で急激にガス温度近くまで加熱される。それ以下では粒子温度とガス温度の差は  $1^\circ C$  程度で推移するので特別に表示しな

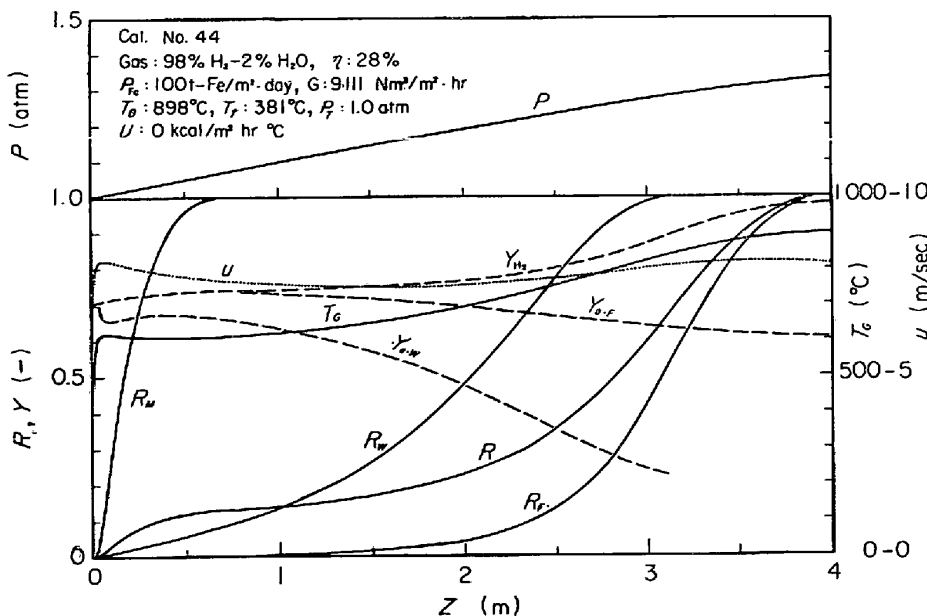


Fig. 2. Calculation example of  $H_2$  reduction.

つた。

還元率の変化は前報<sup>1)</sup>の場合と同じように  $\text{Fe}_2\text{O}_3 \rightarrow \text{Fe}_3\text{O}_4 \rightarrow \text{FeO} \rightarrow \text{Fe}$  と進行しており、総括還元率の変化はこれらの各段階の還元率を総合した形になっている。この例では層高 4.0m で還元率 100% に達している。したがってこの操業条件の場合、有効な反応層高が 4.0m あれば完全還元できることを示している。

$\text{H}_2$  還元の特徴的なことを述べると、 $\text{H}_2$  濃度が高いために  $h_P$  が大きく、炉頂部でのガスと鉱石の熱交換は非常に短い区間で行なわれ、まだ還元のほとんど進行しない状態で、 $600^\circ\text{C}$  前後の温度で両者の温度差は  $1^\circ\text{C}$  以内となり、ほぼ熱平衡に達する。以後は反応の進行に従って、反応熱に見合った温度変化をたどる。 $\text{Fe}_2\text{O}_3 \rightarrow \text{Fe}_3\text{O}_4$  還元が弱発熱反応であるので、この反応の進行に伴って鉱石およびガスの温度に最低点が現われる。またこの反応の平衡  $\text{H}_2$  濃度は非常に小さいので常に進行し得るが後段の  $\text{Fe}_3\text{O}_4 \rightarrow \text{FeO}$ ,  $\text{FeO} \rightarrow \text{Fe}$  反応は  $\text{H}_2$  濃度が各反応の平衡値を越えないと開始されない ( $Y_{\text{H}_2} > Y_{e,w}$ ,  $Y_{e,F}$ )。ガス圧力の変化は図の上欄に示したが、層高 4.0 m 区間の圧力損失は 0.34 atm である。ガスの空塔基準の線速度  $u$  は温度と圧力の影響によつて変化しているが大体 8m/sec 程度である。

計算例その 2

$\text{H}_2$ -CO 還元の例として、70% $\text{H}_2$ -30%CO ガスによる還元の一例を Fig. 3 に示した。ただし、ガス利用率 36%、炉壁熱損失無視、Fe 基準の生産性は 100 t-Fe/ $\text{m}^2 \cdot \text{day}$ 、ガス温度は炉頂で  $380^\circ\text{C}$ 、炉底で  $871^\circ\text{C}$ 、炉頂圧 1.0 atm の場合である。

還元率の変化などは前例とほぼ同様の傾向を示しているが、CO が混入したため、炉頂部での熱交換がやや遅れている。また、熱交換の平衡温度が  $700^\circ\text{C}$  近くになっているにもかかわらず、炉底でのガス温度は  $871^\circ\text{C}$  で前例より低い値を示している。これは CO 還元の寄与による発熱反応の効果によるものである。還元率曲線では炉頂部での温度が高いために、 $\text{Fe}_3\text{O}_4 \rightarrow \text{FeO}$  反応がやや早く始まっている。なお、この場合水性ガス変成反応があるので、この反応の平衡定数  $K_S$  と、この反応の分圧比  $K_S'$  とを同図中に示してあるが、炉頂の一部で両者はずれるが、他は一致しており大部分平衡状態で推移することになっている。圧力損失も CO 混入のため、前例に比較するとガス流量が約 30% も減っているのに、前例より増加している。

計算例その 3

Fig. 4 は  $\text{H}_2$  還元で、計算例 1 と同じガス組成、利用率であるが、炉頂ガス温度をやや下げた場合である。炉頂温度を下げると  $\text{Fe}_2\text{O}_3 \rightarrow \text{Fe}_3\text{O}_4$  反応は進行するが、この反応は終了しても、ガス組成が次の  $\text{Fe}_3\text{O}_4 \rightarrow \text{FeO}$  反応および  $\text{FeO} \rightarrow \text{Fe}$  反応を進行させる還元能力を持たない。したがって熱損失を無視して計算する場合は、それ以上計算を続けても変化がなく無意味である。Fig. 4 ではシャフト炉の直径を 1.0m として、炉壁の総括伝熱係数を  $10 \text{ kcal}/\text{m}^2 \cdot \text{hr} \cdot ^\circ\text{C}$  として計算している。この場合は  $\text{Fe}_2\text{O}_3 \rightarrow \text{Fe}_3\text{O}_4$  反応後、熱損失量に従ってガス温度に変化が起こり、やがて  $\text{Fe}_3\text{O}_4 \rightarrow \text{FeO}$  反応を進める能力を持つようになる。以後の還元進行は前の計算例と同様の傾向をたどる。ただし、炉底でのガス温度は熱損失量に

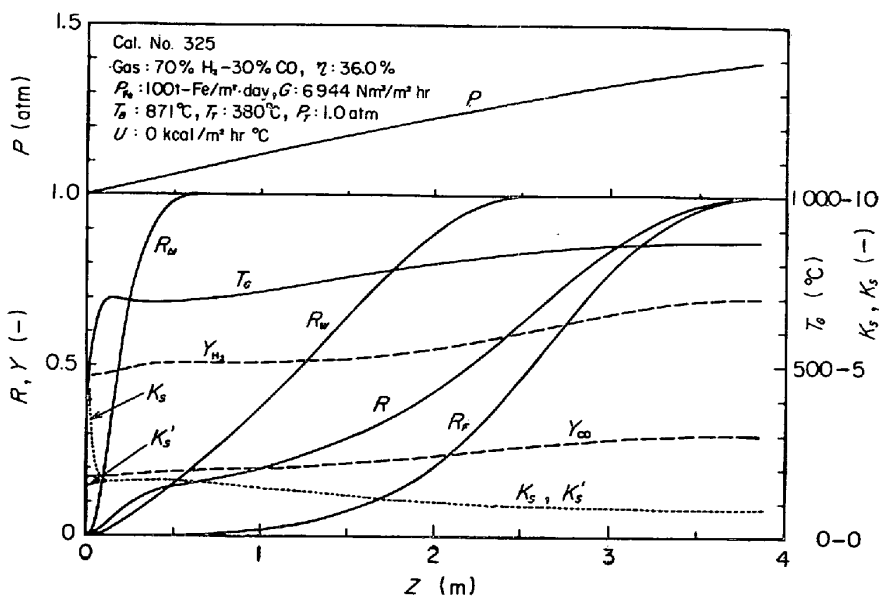


Fig. 3. Calculation example of  $\text{H}_2$ -CO reduction.

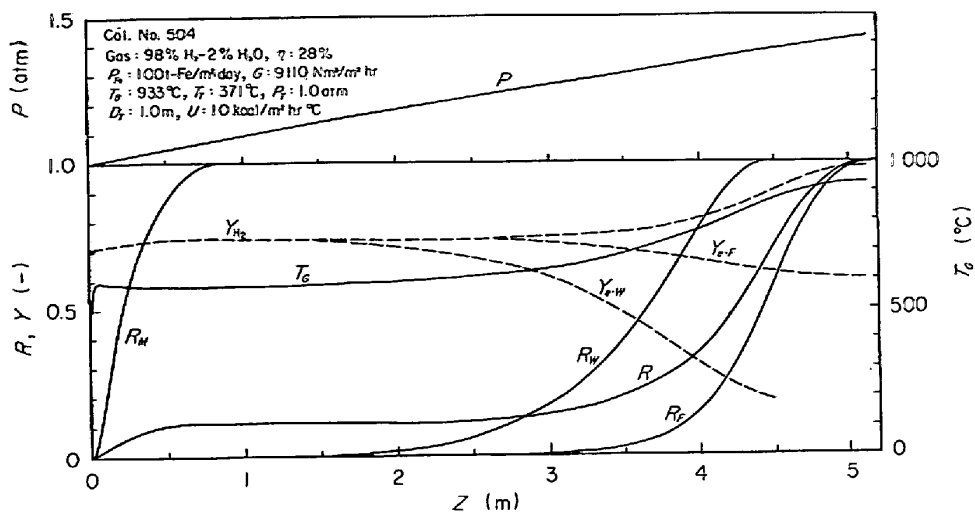


Fig. 4. Calculation example of  $H_2$  reduction in the case top gas temperature is slightly law.

相当するだけ高くなる。

この例は平衡論的にみると, RIST and MEYSSON<sup>10)</sup>の提唱しているシャフト炉還元の酸素交換の操作線図において, 操作線が  $Fe_3O_4 \rightarrow FeO$  還元の平衡点である M 点に接触している場合に相当する。  $H_2$  還元の平衡関係から当然推定されることであるが,  $H_2$  還元の場合, この操作線のピンチポイントは M 点になる。  $H_2$ -CO 混合ガス還元の場合は, CO はその平衡関係から容易に M 点には接触しないが  $H_2$  還元が M 点に接触すると CO 還元の反応速度が非常に遅いので (この数学的モデルでは  $H_2$  還元の 1/5 としている), 結果的にそこで還元の進行に遅滞が起こる。 したがって, 一般に還元ガス組成として  $H_2$  が主体になるシャフト炉還元では,  $H_2$  還元の M 点がピンチポイントであり, 操作線がこの点に接触するような操作条件を選定するのは適切でないといえる。

### 3.2 生産性と必要層高の関係

同一ガス組成と利用率で, シャフト炉の断面積当たりの Fe 基準の生産性を変えた場合の計算例を Fig. 5 に示した。 この種の計算から完全還元に必要な炉高と生産性の関係を示すと Fig. 6 のようになり, 両者はほぼ直線関係を示す。 したがって生産性に対して必要層高は比例的に増大するといえる。 ただし Fig. 6 で炉頂圧が 1 atm の場合, 原点付近を通らないのは, 炉高の変化によって炉内の平均圧力が変わることによるものであろう。

### 3.3 還元ガス吹込み温度と必要層高

還元ガス吹込み温度, すなわち炉底でのガス温度と完全還元に必要な層高との関係を Fig. 7, Fig. 8 に示した。 Fig. 7 は還元ガスが 100%  $H_2$  の場合であり, ガス利用率をパラメータにとつてある。 一定ガス利用率では

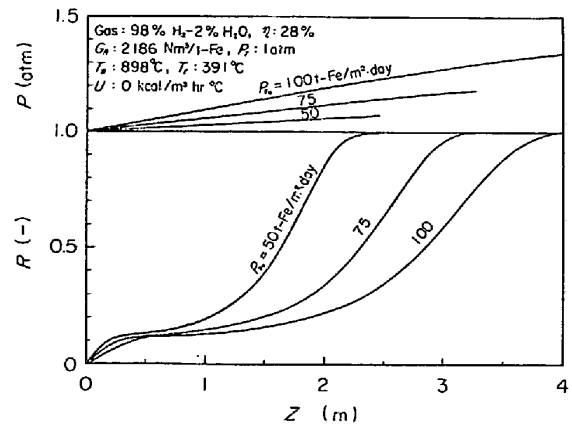


Fig. 5. Calculated results when the productivity is varied.

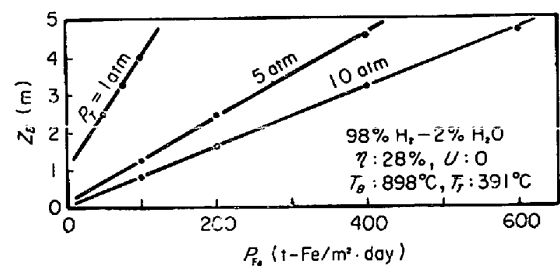


Fig. 6. Productivity vs. required bed height for perfect reduction.

炉高を高くすれば還元ガス吹込み温度は低くても還元が可能になる傾向にあるが, しかし平衡面から下限があることを示している。 あるガス利用率を達成するためには一定の温度以上の還元ガスが必要である。 これは先の計算例における操作線がピンチポイントで平衡点に接触する条件に関係している。

Fig. 8 は還元ガスが 70%  $H_2$ -30% CO の場合である。

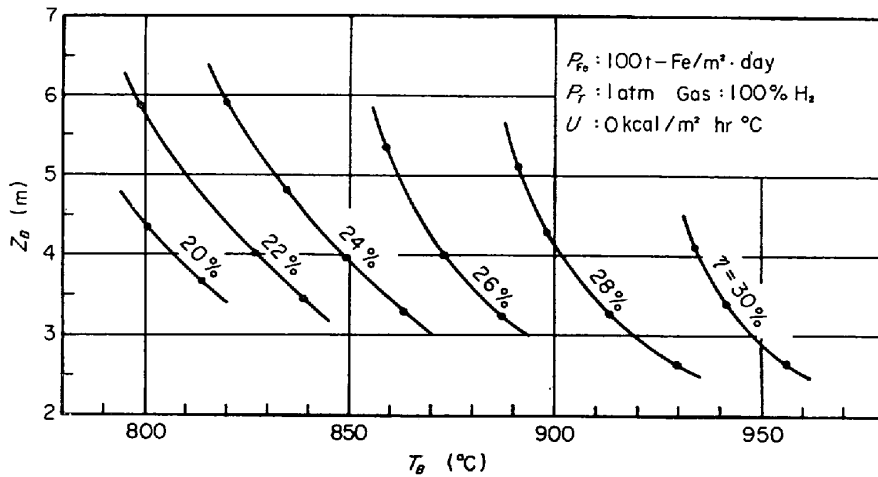


Fig. 7. Bottom gas temperature vs. required bed height (100%  $H_2$ ).

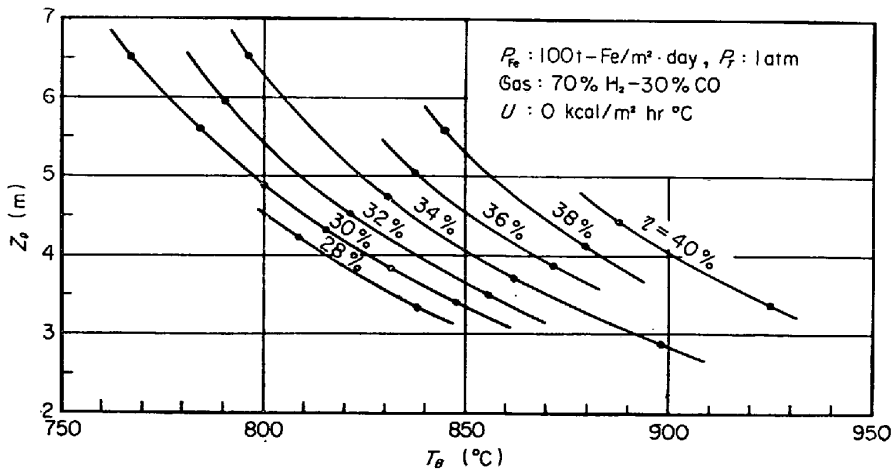


Fig. 8. Bottom gas temperature vs. required bed height (70%  $H_2$ -30% CO).

$H_2$  還元の Fig. 7 に比較して、CO が入ると同じ温度でも高ガス利用率が得られる。またパラメータのガス利用率の刻みが同じであるのに曲線が密であることは還元ガス吹込み温度のわずかな上昇で利用率が大きく変わることを示している。

### 3.4 CO 濃度とガス利用率の関係

先の Fig. 7, 8 などの計算から、炉高を 4.0m 一定値とした場合の還元ガス吹込み温度とガス利用率の関係を、CO 濃度をパラメータにして Fig. 9 に示した。還元ガス温度が 900°C の場合 100%  $H_2$  では 28% 程度のガス利用率が 30% CO が入ると利用率は 40% 程度となり、ガス温度が 850°C の場合は 100%  $H_2$  で 24% 程度の利用率が 34% 程度に向上する。このように CO 添加によってガス利用率が向上するのは、CO の還元速度は  $H_2$  に比較して非常に遅いわけであるが、水性ガス変成反応の進行によって総括の CO 還元の比率が大きくなり、CO 還元の発熱反応によって炉内温度が上昇

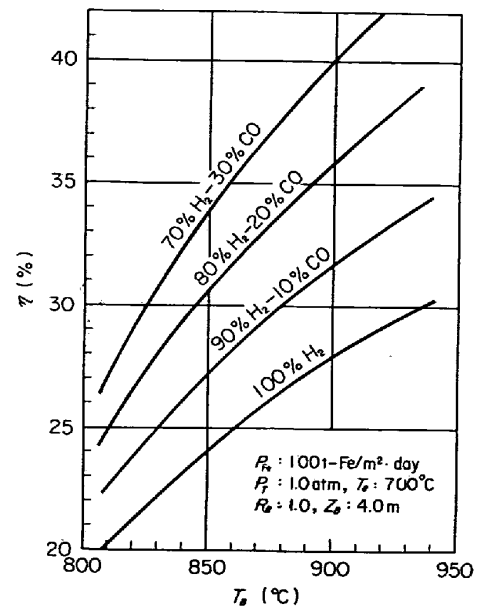


Fig. 9. Relations between the bottom gas temperature and gas utilization.

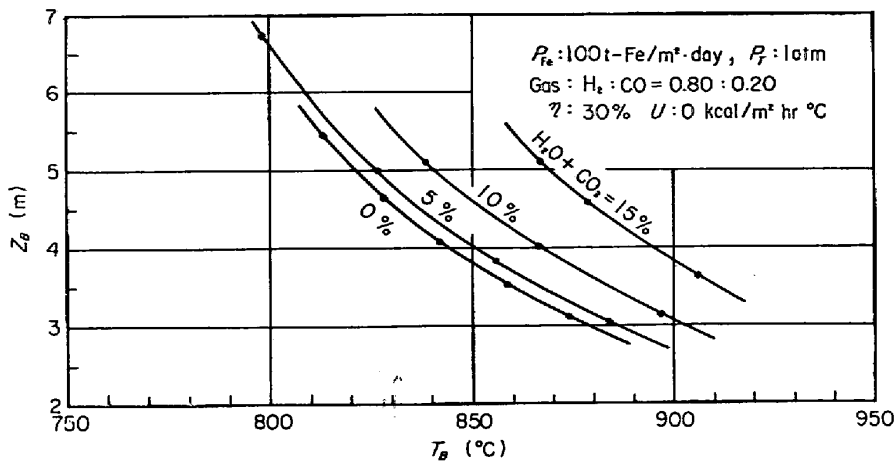
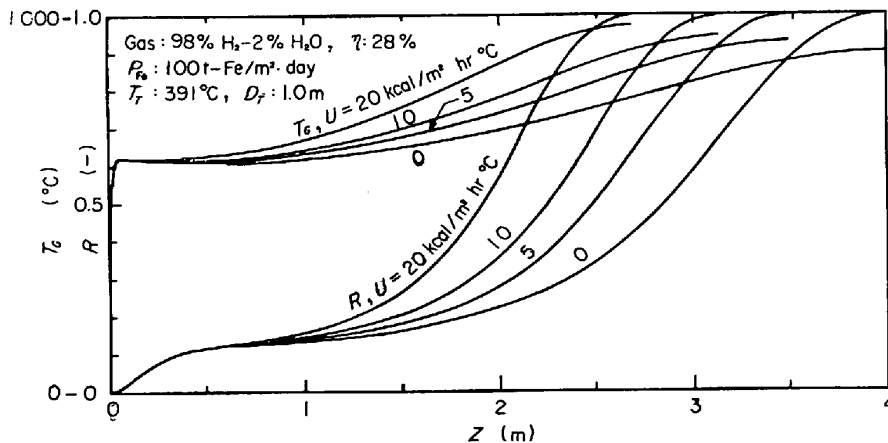
Fig. 10. Effect of the content of H<sub>2</sub>O and CO<sub>2</sub>.

Fig. 11. Calculation results when the heat loss through the wall is taken into account.

することによるものである。なお水性ガス変成反応の平衡定数を 2.0 (700°C 相当) とすると、CO 還元と H<sub>2</sub> 還元の利用率の比  $\eta_{CO}/\eta_{H_2}$  はガス利用率 30~40% の場合で 1.4~1.6 程度となり、CO 利用率の方が常に大きくなる。

Fig. 9 から一般的には還元ガス吹込み温度を 10°C 上昇させることでガス利用率を 1.0~1.5% 程度、CO を 10% 添加することで 3~4% 向上することができるといえよう。ただし、CO 濃度を大きくすることは、平衡的に本数学的モデルでは考慮していない炭素析出反応を促進させる側に動くので、実用プロセスにおける CO 濃度の選定には注意を要する。

### 3.5 還元ガスの純度の問題

還元ガスが H<sub>2</sub>O, CO<sub>2</sub> を含む場合は、ガスの還元能力が下がるから当然シャフト炉の能率は低下する。Fig. 10 は還元ガス中の H<sub>2</sub>:CO 比を 80:20 に固定して、H<sub>2</sub>O+CO<sub>2</sub> 濃度を変えた場合の計算結果である。これから H<sub>2</sub>O+CO<sub>2</sub> が 5% 程度ではその影響は小さいが、

10% を越えると大きくなっている。他の H<sub>2</sub>:CO 比の場合も大体同様の傾向である。したがって実用プロセスを考えると還元ガスの還元能力は、いわゆる R 値<sup>11)</sup>(H<sub>2</sub>+CO/H<sub>2</sub>O+CO<sub>2</sub>) を 10 以上にするのが望ましいといえる。

上の結果より、還元ガスの R 値についての制限は必ずしも厳しいとはいえないことから、H<sub>2</sub> 還元を考えると反応熱の供給がより重要因子になっていると考えられる。この観点からすると還元ガスに N<sub>2</sub> などの不活性ガスを含ませて、熱媒体としての効果を期待することが想像される。しかし種々のケースについて計算を行なってみた結果では、同一還元ガス温度の場合に N<sub>2</sub> 添加によって還元ガス原単位が低下する例は見つからなかった。したがって還元ガス中の不活性分は少ない方がよいといえよう。

### 3.6 炉壁熱損失の影響

前項までの諸計算は主として炉壁熱損失を無視した場合であつたので、Fig. 11 に熱損失を考慮した場合の計

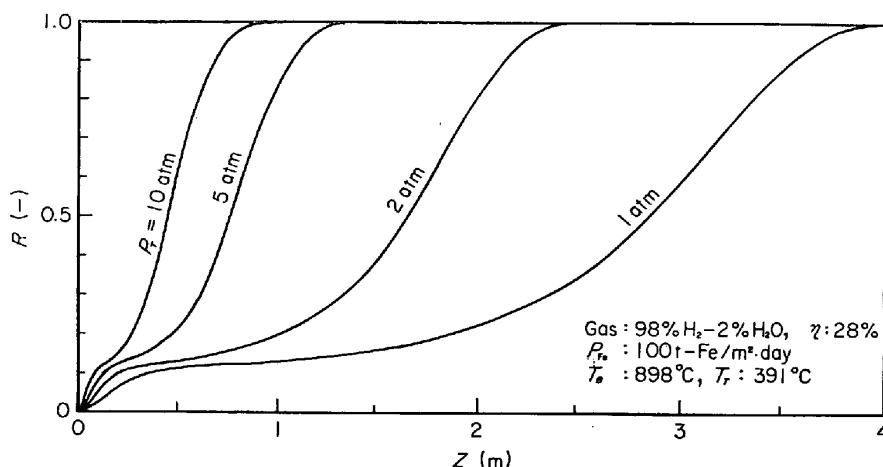


Fig. 12. Calculated results when the top gas pressure is varied.

算例を示した。シャフト炉の径を1.0mとし、炉壁の総括伝熱係数を  $U=0\sim 20 \text{ kcal/m}^2 \cdot \text{hr} \cdot ^\circ\text{C}$  の範囲で変えてある。

炉頂ガス温度を同一とした計算のため、 $U$ の大きい場合の方が熱損失分だけ炉底温度は高温になり、結果的に必要炉高が短くなっている。しかしこの計算から $U$ を変数にして、必要熱量（反応熱、鉱石昇温顕熱、炉壁損失熱の和）に対する炉壁熱損失の比率をみると、 $U=10 \text{ kcal/m}^2 \cdot \text{hr} \cdot ^\circ\text{C}$  の場合でも6%程度であり、 $U$ がそれ以下では比例的である。熱損失量の相対値はシャフト炉の塔径、炉壁レンガの厚みと熱伝導度によっても変わるわけであるが、これから実用炉の場合を想定すると熱損失が2~3%以上になることはないと考えられる。この点からシャフト炉の一般的特性を検討する上では既述のように熱損失を無視した計算で十分であるといえる。

### 3.6 ガス圧力の影響

既に Fig. 6 に結果の一部を示したが、ガス圧力を変えた場合の計算例を Fig. 12 に示した。この例の場合、炉頂圧が1 atm では必要層高が4mであるが、10atmにすると1m以下でよいことになる。この種の計算から得られた炉頂ガス圧力と必要層高の関係を Fig. 13 に示した。一定生産性の場合、圧力と層高は双曲線的な関係にあるが、5 atm 位までが加圧効果が著しく、10 atm 以上に加圧してもその効果は余り増大しない。この数学的モデルでは、還元の化学反応に吸着項<sup>12)</sup>などは考慮していないので、加圧に対してはガス拡散抵抗の相対値が増大する計算になっているが、上の傾向は一箇粒子に対する加圧下での還元実験<sup>12)13)</sup>の傾向とよく一致しているといえる。

ところで、シャフト炉還元の生産性上限が鉱石の流動化開始による降下不良にあるとすると、塔内ガス流速と

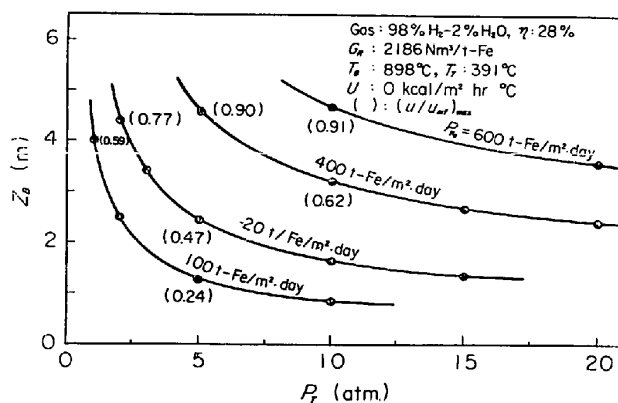


Fig. 13. Relations between the top gas pressure and the required bed height for perfect reduction.

最小流動化速度の比  $u/u_{mf}$  の値が重要になる。Fig. 13 中の一部の計算値にはこの値の炉内における最高値を示した。もつとも  $u_{mf}$  の計算に使った(6)式は十分な汎用性のある式ではなく、直径10mm以上の鉄鉱石ペレットに  $\text{H}_2$  ガスを流すときに精度よく適用できる保証は十分でないし、また仮に  $u_{mf}$  が正確だとしても  $u/u_{mf}$  が1.0までは良好に操業できると断定もできないので、これらの値は参考値に過ぎない。しかし  $u_{mf}$  に対する物性値の関係が(6)式に従うとすると、同一条件で加圧炉にすると  $u/u_{mf}$  の値は小さくなり、逆に生産性限界は加圧により大きくなる傾向を持つ。(6)式で圧力による  $\rho c$  の変化のみを考えるとガスの質量速度での最小流動化速度は圧力の0.643乗に比例して増大するから、実用炉では少なくとも還元反応に加速効果のある数 atm 以上に加圧するのが望ましいといえよう。

### 3.7 従来に関連研究との比較

鉄鉱石還元ないし一般的に非触媒固気反応を向流移動



層で行なわせる場合の数学的モデルによる理論解析は従来から数多く試みられており、それらの代表的なものとの比較を以下に行なう。

八木ら<sup>14)</sup>は酸化鉄ペレットの還元反応を1段反応とし、1界面未反応核モデルによる混合律速式を採用して、移動層内の温度を一定とした場合について理論解析をしている。特にガス流れに逆混合がある場合について検討しているが、通常の固気系固定層のように混合の程度を  $P_{ep}=1\sim 2$  であるとすると、ほとんどピストン流れとして扱った場合に一致するとしている。反応が1段で等温で扱っている点で、本研究との直接的な比較はできない。

ISHIDA and WEN<sup>15)</sup>は同様の反応式を使い、一般的に非触媒固気反応を対象として、熱移動も考慮して、並流の場合も含めた非等温移動層の解析をしている。反応が発熱である場合の温度的な安定性について詳細に検討しているが  $H_2$  を主体としたガスによる鉄鉱石の還元の場合は吸熱反応になるので、この種の問題は生じないと考えてよい。

EVANS and SONG<sup>16)</sup>は1箇粒子の反応において、ペレットは微小粒子の集合体であるとするグレインモデル<sup>17)</sup>に基づく速度式を使った場合の、固定層、移動層、流動層の理論解析をしている。ただし層内を等温としているので流動層以外の場合は結果の実用性に問題がある。

SPITZER ら<sup>18)</sup>は酸化鉄還元の等温向流移動層であるが1箇粒子の反応に3界面未反応核モデルを採用している点で本研究に最も近い解析をしている。ただし反応速度式の複雑化を避けるために反応は各段とも疑似的に化学反応律速で進むと仮定して、粒子内の拡散抵抗は無視した形になっている。この疑似化学反応律速の仮定は1箇粒子の等温還元において、ガス境膜、粒内拡散、化学反応の3抵抗の混合律速では還元曲線の形状が、化学反応律速に類似してくるに基づいている。しかし混合律速で還元曲線が反応律速型になるのは境膜抵抗が比較的大きい場合で、実用炉では一般にガス流速を大きくして、境膜抵抗を極力小さくする人が多いと考えられるから、この仮定は必ずしも適切とはいえない。

しかしながら、3段反応として扱っている点で、ガス濃度分布の形状などは本報の Fig. 2, ~4 と同様の傾向を示しており、酸素交換操作線図<sup>10)</sup>におけるピンチポイントの検討も可能になっている。900°C、常圧下での  $H_2$  還元についての計算結果を示しているが、ガスと鉱石の流量比によつて必要反応層高が大きく変ることを示している。例えば  $D_p=0.01$  m として、ガス・鉱石比が

0.376 mol-Fe/ mol- $H_2$  ( $G=1066$  Nm<sup>3</sup>/t-Fe,  $\eta=54.4\%$ ) では反応層高 2.0m で還元率 94.6% であるが、0.345 mol-Fe/ mol- $H_2$  ( $G=1162$  Nm<sup>3</sup>/t-Fe,  $\eta=52.5\%$ ) では層高 1 m 弱で完全還元している。使用している速度パラメータは疑似反応律速で扱っているもので、前報<sup>1)</sup> Fig. 8 に示した彼らの値<sup>19)</sup>より小さい化学反応速度定数 ( $k_{c-M}$ ,  $k_{c-W}$  が約 80%,  $k_{c-F}$  が約 46% の値) を使用しているが、900°C の等温移動層であることを考慮すると必要反応層高の程度は本研究に類似していると思われることができる。

先のピンチポイントについては等温移動層を仮定している点から、FeO→Fe 平衡のW点にあるとしており、この辺に等温で扱っているための限界があると考えられる。やはり本研究のように非等温で扱わないと、実際の運転条件の影響を評価することはできないと考えられる。もつとも本研究のモデルでも炭素析出と  $CH_4$  生成反応は無視しており、これらの反応が問題になる場合、特に  $H_2$ -CO 系で高圧化した場合には前項までの結論はやや異つてこよう。さらにガスと鉱石が理想的に向流接触しているシャフト炉を想定しているが、実用炉の大塔径炉ではガスの偏流や混合も起こり得るので、それらの影響の考慮が必要なことも当然である。これらは今後の研究課題であるが、一応、理想的なシャフト炉を想定した場合の操業条件の影響については本研究の結果のように考えることができよう。

#### 4. 結 言

鉄鉱石の還元が多界面未反応核モデルを使ったシャフト炉の数学的モデルによる種々の計算から次のことがわかった。

(1) 同じガス組成、利用率で炉断面当りの生産性が変わつた場合の必要な還元層高は、ほぼ生産性に比例した値となる。

(2) 還元ガス吹込み温度の必要層高への影響は大きく、低温度でも層高を高くすると還元が可能な傾向にあるが、平衡的に限界があり、あるガス利用率を達成するには一定温度以上の還元ガスが必要である。この限界はシャフト炉における酸素交換の操作線図において、 $H_2$  還元の  $Fe_3O_4 \rightarrow FeO$  平衡点によつて規制されるものである。

(3) 還元ガスは  $H_2$  のみでもシャフト炉還元が可能であるが CO を含むガスの方が反応熱の点から高能率となる。一定反応層高の場合、還元ガス温度は 10°C の上昇でガス利用率を 1.0~1.5% 程度上昇し、CO 濃度は 10% の増加でガス利用率を 3~4% 程度向上させる。

(4) 還元ガス中の  $H_2O$  および  $CO_2$  濃度は 10% 以下が望ましく、これ以上になるとシャフト炉の能率低下が大きくなる。また  $N_2$  などの不活性ガスの濃度は低いほうがよい。

(5) シャフト炉における炉壁熱損失は小さくなく、実用的には必要な総熱量の 3% 以下であると考えられる。この点からシャフト炉の一般的特性を知る上では炉壁熱損失を無視して検討してもよい。

(6) シャフト炉のガス圧力を高くすると、鉄鉱石の還元速度が加速され能率化する。しかし加圧効果の著しいのは 5 atm 程度までで、10atm を越えるとその効果は余り増大しない。一方シャフト炉の生産性限界を流動化開始にあるとすると、高圧化した方がその限界は増大するので、実用シャフト炉では数 atm 以上に加圧するのが望ましい。

以上は炭素析出反応と  $CH_4$  生成反応を無視して計算した結果であり、これらを考慮する必要がある場合は別途に検討を要する。

記号

- $C_P, C_G$ : 鉱石およびガスの比熱, kcal/kg-Ore $\cdot$ °C, kcal/kg-mol Gas $\cdot$ °C
- $D_P$ : 鉱石粒径, m
- $d_0$ : 鉱石中の被還元酸素濃度, kg-O/kg-Ore
- $E_Z$ : シャフト炉内のガスの高さ方向混合拡散係数,  $m^2/sec$
- $G$ : ガス流量,  $Nm^3/m^2\cdot hr$
- $g_C$ : 重力換算係数,  $kg\cdot m/kg\cdot sec^2$
- $\Delta H$ : 反応熱, kcal/kg-mol Gas
- $h_P$ : 粒子表面伝熱係数,  $kcal/m^2\cdot hr\cdot ^\circ C$
- $K_S, K_S'$ : 水性ガス変成反応の平衡定数と同反応の分圧比, -
- $k_G$ : ガスの熱伝導度:  $kcal/m\cdot hr\cdot ^\circ C$
- $k_{C-M}, k_{C-W}, k_{C-F}$ :  $Fe_2O_3 \rightarrow Fe_3O_4, Fe_3O_4 \rightarrow FeO, FeO \rightarrow Fe$  の各反応の化学反応速度定数,  $m/hr$
- $\bar{M}$ : 平均分子量, -
- $P$ : ガス圧力, atm
- $\Delta P$ : 圧力損失, atm
- $P_{Fe}$ : シャフト炉断面積当たりの Fe 基準の生産性,  $t-Fe/m^2\cdot day$
- $Pe_p$ : 粒子基準のペクレ数 =  $D_P u / E_Z$ , -
- $R$ : 還元率, -
- $T_G, T_S$ : ガス温度と鉱石温度,  $^\circ K$  or  $^\circ C$
- $U$ : 炉壁総括伝熱係数,  $kcal/m^2\cdot hr\cdot ^\circ C$
- $u$ : 空塔基準のガス流速,  $m/sec$

- $u_{mf}$ : 鉱石に対する最小流動化速度,  $m/sec$
- $Y, Y_e$ : ガスのモル分率と同平衡値, -
- $Z$ : シャフト炉の炉頂からの距離, m
- $\Delta Z$ : シャフト炉の微小高さ, m
- $\epsilon_P, \epsilon_B$ : 鉱石の気孔率, 充填状態空隙率, -
- $\eta$ : ガスの利用率, %
- $\mu_G$ : ガスの粘度,  $kg/m\cdot hr$
- $\rho_G, \rho_S$ : ガスと鉱石の密度,  $kg/m^3$
- 添字
- $H, M, W, F$ :  $Fe_2O_3, Fe_3O_4, FeO, Fe$
- $H_2, H_2O, CO, CO_2, N_2$ : ガス成分  $H_2, H_2O, CO, CO_2, N_2$
- $T, B$ : 炉頂, 炉底

文 献

- 1) 原, 坂輪, 近藤: 鉄と鋼, 62 (1976), p. 315
- 2) 鉄鋼協会: 鉄鋼熱計算用数値, (1966), p. 30 [日刊工業]
- 3) 佐藤: 物性定数推算法, (1954), p. 59 [丸善]
- 4) L. BOGDANDY and H.-J. ENGELL: The Reduction of Iron Ore, (1971), p. 3 [Verlag Stahleisen m.b.H., Düsseldorf]
- 5) 佐藤: 物性定数推算法, (1954), p. 84, 96 [丸善]
- 6) 佐藤: 物性定数推算法, (1954), p. 113 [丸善]
- 7) 白井: 流動層, (1958), p. 204 [科学技術社]
- 8) S. ERGUN: Chem. Eng. Prog., 48(1952), p. 89
- 9) 白井: 流動層, (1958), p. 76 [科学技術社]
- 10) A. RIST and N. MEYSSON: Rev. Metall., 18 (1965), p. 995
- 11) 八塚, 中山, 大森, 原, 井田: 鉄と鋼, 58(1972), p. 624
- 12) W. M. McKEWAN: Trans. Met. Soc. AIME, 224(1962), p. 387
- 13) W. M. McKEWAN: Reactivity of Solids, ed. by G.-M. Schwab (1965), p. 623 [Elsevier Pub. Co.]
- 14) 八木, 森山, 鞆: 日本金属学会誌, 32(1968), p. 209
- 15) M. ISHIDA and C. Y. WEN: IEC Process Des. and Dev., 10(1971), p. 164
- 16) J. W. EVANS and S. SONG: IEC Process Des. and Dev., 13(1974), p. 146
- 17) J. SZEKELY and J. EVANS: Chem. Eng. Sci., 26 (1971), p. 1901
- 18) R. H. SPITZER, F. S. MANNING, and W. O. PHILBROOK: Trans. Met. Soc. AIME, 242 (1968), p. 618
- 19) R. H. SPITZER, F. S. MANNING, and W. O. PHILBROOK: Trans. Met. Soc. AIME, 236 (1966), p. 1715