

討1 高温加圧流動還元パイロットプラントの操業

金属材料技術研究所 田中 稔 ○尾澤正史・神谷昂司
森中 功 櫻谷和之・北原宣泰

1. 緒 言

高温加圧流動還元法はシャフト炉法とともに将来有望な直接還元法と考えられているが、現状ではその実用化はシャフト炉法に比べて遅れている。これはシャフト炉法が高炉法と共通の技術的基礎を持っているのに対し、流動法は製鉄法として技術的に未解決の問題が残されているためである。著者らはその問題点を検討するために内径25cmの高温加圧流動還元パイロットプラントを用いて昭和49年から53年にかけて実験を行った。その特徴は(1)高温加圧による還元速度及びガス利用率の向上、(2)鉱石粒子の焼結トラブル防止のための粗粒鉱の使用、(3)多段多室化による製品還元率の向上である。本報告はこの実験において検討された多段多室流動法構成上の問題点である溢流管内鉱石流下の安定化、分割板による多室化、高温加圧時における鉱石粒子の流動化と操業の開始、高温加圧流動還元パイロットプラントの操業結果と其の解析に関するものである。

2. 溢流管内鉱石流下の安定化条件¹⁾

多段流動層においては通常溢流管を用いて上段の鉱石を下段に流下させるが、適正な条件を選ばないと溢流管の肉壁や管内鉱石の吹抜けが起る。この条件を探る目的で直径20cm、高さ80cmのガラス製円筒、内径4.1cmのアクリル樹脂製溢流管より成る実験装置を用い、32~60 meshに整粒したHamersley 鉱石を空気で流動化し、ガス排出口に約0.1 kg/cm²の圧力抵抗を加えながら溢流管内へ鉱石を流下させ、溢流管内へのガス流入量と鉱石流下について検討した。その結果図1のようには溢流管先端に装着したオリフィスの径d'をパラメータとした溢流管内へのガス流入量g_cと給鉱速度Fとの関係は直線的で、g_cはFの増加とともに減少する。d'=3.5cmの場合F=4000 g/minでもg_c > g_{mf}、すなわち最小流動化流速を得るためのガス量以上が導入されるため管内鉱石流下は良好であったが、d'=3.0cmではF=1000 g/minでg_c < g_{mf}となり、鉱石流下が不安定となった。連続実験における溢流管内流入ガス量g_cは(1)式で示される。

$$g_c = Q_p (d'/D)^2 \varphi_c - F/\rho_s (1 - \epsilon_f) \cdot 10^2 \quad \dots (1) \quad \text{ただし } l > l' > 7.5 \quad g_c \geq g_{mf}$$

溢流管内鉱石流下を安定化させるための条件としては、g_cが過大になるとスラッキングにより肉壁がやぶくなるため、g_cはg_{mf}に近い値に保持することが重要である。

3. 分割板を用いた多室化

流動層のある段に分割板を用いることにより、炉高はそのままに簡単に多室化して鉱石流れを押し出し流れに近づけ、反応率の向上を期待することが出来る。著者らは粒子の供給量が変わり多室化の効果の期待できる分割板について検討し、図2のようないくつかの開口部に部分的に移動層が形成されるよう工夫した分割板を用いて、2室化の満足すべき効果の得られることを示した。図2にはトレーサーの残留濃度曲線が示してあるが、ここに示した2種類の開口部については何れも2室の理論曲線上にのっている。これに対し単なる長方形や楕円形の開口部では十分な効果が得られなかった。なお、後述のパイロットプラントにおいては図2の上を示した直方体型の開口部をもつ分割板を使用した。

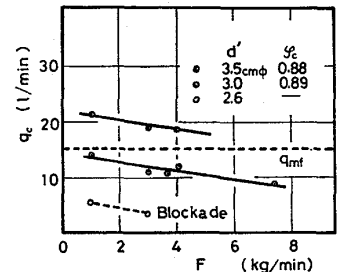


図1. Relation between flow rate of gas q_c and feed rate of ore F in overflow pipe.

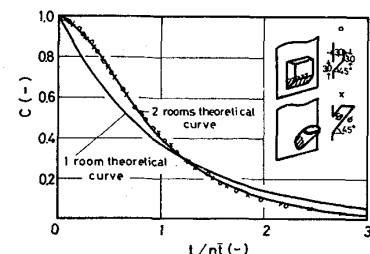


図2. Effect of number of vessels and type 2 partition plates on tracer concentration curves. ($F=2 \times 10^3$)

4. 高温加圧時における鉱石粒子の流動化

鉄鉱石の流動還元において安定な操業を行うには、鉱石粒子をその条件下において常に良好な流動化状態に保持する必要がある。実際操業においては常温から昇温過程の非定常状態を経て高温の定常状態に移行するので、流動炉の各段において温度、圧力、ガス組成、還元率が時間とともに変化し、これらの値に対応した制御を行わねばならない。このためまず常温においてガス円筒型の二段から成る流動層モデルを用いた実験を行い、かなり広い粒度分布を持つ鉄石粒子の流動化流速について検討した。この結果 $u_0/u_t = 0.27$ において連続操業の可能な良好な流動化状態を保持することができたのでこれを操業基準として採用した。

運転は定常操作圧よりも低い圧力で開始し、所定のプログラムに従って昇温、昇圧を行い、高温加圧流動状態へ移行させた。このためガスに因りては還元反応と酸素吹込みによる水蒸気濃度の増加及び昇温による密度と粘度の変化、鉄石粒子に因りては還元率の上昇による密度の変化を考慮して各段の流動化を適正に保ち得るような炉内圧力、ガス流量を算出した。このような計算に基づく制御例を図3において破線で示す。またかような制御によるパイロットプラントの操業結果の一例を図4に示す。(a)は各段の温度、(b)ガス流量、(c)炉内圧、(d)各段の還元率、(e)水蒸気濃度、(f)給鉄速度で(h)はこれらの値から算出された u_0/u_t を示している。経過の前半においてR-3の u_0/u_t が計算の基準となる 0.27 よりも小さくなってきているがこれは還元率の捕捉が瞬時に行われ得ないことに起因する。しかしこれと対照的に u_0/u_t がかなり大きい場合も安定な操業が可能で、 u_0/u_t をかなり広い中 ($0.2 \sim 0.6$ 程度) に変化させてもよいことがわかった。(u_t : 粒子終端流速)

5. 高温加圧流動還元パイロットプラントの操業

上記のような基礎的な実験と検討に基づいて径25cmの高温加圧流動還元パイロットプラントの操業を行い、ガス利用率、製品還元率、生産性と操業条件との関係について検討し、また連続流動層における鉄石粒子の還元率分布を求め、これに基づき操業の解析を行った。

5.1 試料 : 実験に用いた鉄鉱石はHamersley 燐結鉄用原料で、これをローラーミルで粉砕整粒して得られた16~15 meshの粒度範囲のものである。この試料の化学分析値を表1に示す。微物の少量の鉄を用い、流動化流速を大きくすることにより、還元温度900℃においても燐結トラブルは起らなかった。

5.2 実験装置及び方法 : 装置の概略を図5に示す。粉砕整粒された鉄石は貯鉄槽16よりホッパー13、14を経てロータリーバルブ15により還元炉上段に連続的に給鉄される。流動還元炉は上よりR-1、R-2、R-3の3段より成り、R-3には前述の分割板を備えている。R-3の還元鉄は流動層冷却器9を経て製品ホッパー10に貯えられ、一定量に達した後系外へ排出、秤量される。還元ガスは加熱炉5により900℃まで加熱され、更に部分燃焼炉6において酸素吹込みにより最高1200℃まで加熱され、R-3に供給される。R-1から排出された排ガスはスラッパを経て補給ガスと混合、循環される。運転の開始

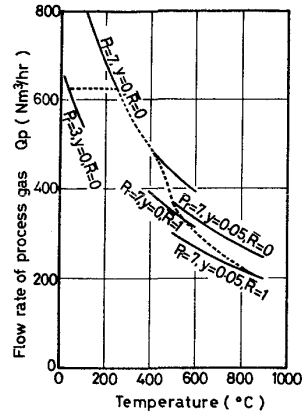


図3. Operation chart of pilot plant during increasing temperature.

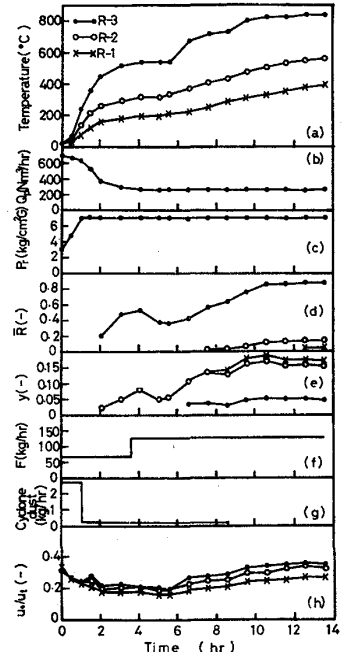


図4. Operating conditions and results of pilot plant. (example 1)

表1.

Chemical composition (wt%) of Hamersley iron ore used for the pilot plant operation.

T. Fe	FeO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	P	S
65.07	0.64	3.42	2.04	0.056	0.008

及び流速条件の設定は前述の方法に従い、1回の作業時間は約20~40
 分で、実験終了後は炉を解体して炉内状況を観察した。

5.3 実験結果と考察

5.3.1 操作条件と結果 : 製品還元率, ガス利用率, 生産性の
 向上のための諸因子を考慮し, (1)焼結トラブルを避け, かつ還元速度,
 平衡の面から有利な温度範囲としてR-3温度850~900°Cを選ぶ。(2)
 R-3に分割板を用いた2室とし, 鉱石流れを押し出し流れに近づけ, 製品
 の平均還元率の向上を図る。という基本条件に(3)送入ガスに最大15%
 までの窒素を混入し, 水素流量の減少による層内への入射の減少をこれ
 で補って反応温度を確保し, 給鉱速度/水素流量比の増大を図るとい
 う条件を加え, 給鉱速度に応じて送

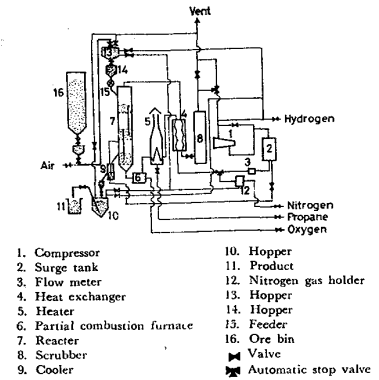


図5. Schematic diagram of pilot plant.

表2. Results obtained from the pilot plant.

入ガス流量, 酸素未反応量を変化さ
 せて一連の実験を行った。その操作
 条件と結果を表2に示す。

実験No.4で得られた結果はガス
 利用率を除き本パイロットプラント
 における操作目標をほぼ満足するも
 のであった。この結果を本パイロッ
 トプラントと同程度の規模の他のプ
 ロセスと比較したものを表3に示す。
 著者らの方法の特徴は圧力, 還元温
 度, 生産性の高いこと, さらに鉱石
 の平均滞留時間の短いことである。
 ガス利用率は17.3%であるが, 部分
 燃焼による転換率を考慮すると全転
 換率23%となった。

5.3.2 連続流動層における炉
 内鉱石層の還元率分布と還元速度:

連続流動層においては粒子は完全
 混合と考えられ, 滞留時間に分布が

あるため炉内鉱石層中に還元率分布を生ずる。著者らは特殊な磁選機を用いて還元鉱中の粒子を還元率
 の大小によって分離し還元鉱の還元率分布を調べ, これにより層内における鉱石粒子の還元速度を求め
 りこれに基づいて操作の解析を行った。すなわち単段流動層における粒子の滞留時間分布関数 $E(t) =$
 $(1/\bar{t})e^{-t/\bar{t}}$... (2)の積分値と前述の還元率分布の積分値を対応させることにより図6に示すよ
 うな鉱石粒子の還元曲線を求めることができる。この図より(1)還元率約0.3までは比較的短時間に還元
 される。(2)還元率0.3~0.9までは還元が速く, 1次反応として取扱うことができる。(3)還元率
 0.9以上では還元が(2)に比べてかなり遅いことがわかる。これより(2),(3)の段階を1次反応と
 して取扱うと, $R = R_0 \sim R_a : 1 - R = (1 - R_0)e^{-K't}$, $R = R_a \sim 1 : 1 - R = (1 - R_a)e^{-K''(t-t_0)}$... (3)

ここで $K' = k'(y_e - \bar{y})$, $K'' = k''(y_e - \bar{y})$... (4)

単段流動層からの製品の平均還元率 \bar{R} について, $1 - \bar{R} = \int_0^{\infty} (1 - R) E(t) dt$... (5)

$R_0 \sim R_A$ 間の鉄石粒子の平均還元率を \bar{R} ,
 R_A 以上の鉄石粒子の平均還元率を \bar{R}' ,

γ の全鉄石粒子に対する割合を X とすると
 $X = e^{-t/\bar{\tau}} = \left(\frac{1-R_0}{1-R_A}\right)^{1/K''} \dots (6)$

$$1-\bar{R} = (1-\bar{R}')(1-X) + (1-\bar{R}')X \dots (7)$$

$$(1-\bar{R}')(1-X) = \int_0^{t_A} (1-R_0) e^{-K''t/\bar{\tau}} e^{-t/\bar{\tau}} dt$$

$$= \frac{1-R_0}{1+K''\bar{\tau}} - \frac{1-R_A}{1+K''\bar{\tau}} X \dots (8)$$

$$(1-\bar{R}')X = \int_{t_A}^{\infty} (1-R_A) e^{-K''(t-t_A)/\bar{\tau}} \frac{1}{\bar{\tau}} e^{-t/\bar{\tau}} dt$$

$$= \frac{1-R_A}{1+K''\bar{\tau}} X \dots (9)$$

よって流動層内のガス流れに押し出され
 れる仮定して高さ方向の微分部分につ
 きガス側の物質収支をとり、

$$\frac{d\gamma}{dz} = \frac{1.5F^*(R_0-R_T)}{Q^*} + \frac{1.5M^*}{Q^*} \{k'(1-\bar{R}')(1-X) + k''(1-\bar{R}')X\} (\gamma_e - \gamma)$$

$$= \lambda + \{\beta'(1-X) + \beta''X\} (\gamma_e - \gamma) \dots (10)$$

$$z=0 \quad \gamma = \gamma_{in}, \quad z=1 \quad \gamma = \gamma_{out} \quad \text{と} \quad \int$$

$$\frac{\lambda + \{\beta'(1-X) + \beta''X\} (\gamma_e - \gamma_{out})}{\lambda + \{\beta'(1-X) + \beta''X\} (\gamma_e - \gamma_{in})} = e^{-\{\beta'(1-X) + \beta''X\}}$$

$$\dots (11)$$

また層全体の物質収支より、 $\gamma_{out} - \gamma_{in} = 1.5 F^* (\bar{R} - R_T) / Q^* \dots (12)$

これらの式に操作条件と実験により求めた k', k'' と代入すれば λ, β' が
 求められ、また逆に $\lambda, \beta', R_0, R_A$ が既知であれば与えられた操作条件で
 の k', k'' も同様に求められ、 \bar{R}, γ_{out} が算出できる。このパイロットプラ
 ントにおける実験結果より求めた k' の温度依存性を図7に示す。この解析
 法を拡張してR-3第2室に適用し、製品還元率の計算値と実験値ととも
 に表4に示した。両者の値は比較的よく一致しており、以上の解析法を
 用いることによりある操作条件における製品の還元率をおだりの精度で
 推定することが可能である。

7. 結 言

多段連続流動層の溢流管内の安定化条件と単段連続流動層を多室化す
 る分割板の構造、高温加圧下の流動化条件につき検討し、内径25cmの
 高温加圧流動還元パイロットプラント実験を行い、製品還元率95%、ガ
 ス利用率約17%、生産性約55t/m²dayを得た。また、還元率による還元
 鉄の還元率分布を求め、これに基づき
 操業解析を行った。

- 記号
- D: 流動層径 [cm]
 - F*: Feモル数に換算した給鉄速度 (Fe-mol/h)
 - l: 流動層高 [cm]
 - l': ガス分散板とオリフィス間距離 [cm]
 - M*: Feモル数に換算した層内鉄石量 (Fe-mol)
 - Q*, Q_{H₂}: 水素流量 (mol/h), (Nm³/h)
 - R₀: 第2室の平均還元率 (-)
 - R_A: 高温できわめて短時間に到達する還元率 (-)
 - R_T: 還元速度が急速に低下するところの還元率 (-)
 - t, \bar{t} : 鉄石粒子の層内滞留時間, 同平均値 (min)
 - t₀: R₀までの到達所要時間 (min)
 - \gamma: 水蒸気モル分率 (-)
 - \gamma_e: FeO+H₂=Fe+H₂Oの平衡水蒸気モル分率

- R_T: 給鉄の還元率 (-)
- \rho_s: 鉄石の真密度 [g/cm³]
- \gamma_c: 連続のときの溢流管へのガス流入効率 [-]
- \epsilon_f: 流動層の空隙率 [-]
- Z: R₀以上の鉄石粒子の存在割合 (-)

表3. Comparison of operation results of NRIM Process and others.

		NRIM Process	Nu-IRON Process	Yawata Token Process
Feed rate	kg/h	153	113	30~60
Flow rate of process gas	Nm ³ /h	341	177	150~250
Concentration of H ₂	%	97.1	85.0	80~97.5
Temp. of entering gas	°C	1180	870	600~650
Pressure in reactor	kg/cm ² G	7.0	0.1~0.2	2~3
Temp. of reduction	°C	890	704	550
No. of stage for reduction	-	3	2	3
Degree of reduction	%	95.7	90.0	90.0~95.0
Utilization of H ₂	%	17	30	11~12
Total mean residence time	h	0.52	17	3.2~4.5
Production	t/d	2.7	2.0	1.1~1.4
Productivity	t/m ² d	55.1	14.5	15.6~19.8

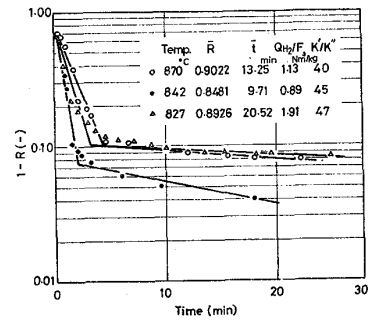


図6. Relation between residence time and fractional reduction.

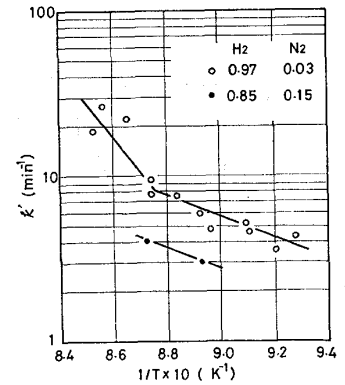


図7. Arrhenius-type plots for Hammersley ore in fluidized bed reduction with H₂-N₂.

表4.

Comparison of the experimental results with the calculated values.

Temp. (°C)	k' (min ⁻¹)	Feed rate (kg/h)	Flow rate (m ³ /h)	R ₂	
				calc.	exp.
859	7.5	155	139	0.933	0.910
876	11.0	121	162	0.958	0.955
880	12.5	113	136	0.955	0.934
890	17.5	113	126	0.964	0.951

文 献

- 1) 神谷昂司, 櫻谷和之, 森中 功, 北原宣泰, 尾澤正也, 田中 稔: 鉄と鋼, 65 (1979), p. 169
- 2) 櫻谷和之, 北原宣泰, 森中 功, 神谷昂司, 尾澤正也, 田中 稔: 鉄と鋼, 65 (1979) p. 176
- 3) 森中 功, 神谷昂司, 櫻谷和之, 北原宣泰, 尾澤正也, 田中 稔: 鉄と鋼, 65 (1979), p. 185