

討 2 非外熱式小型移動層による酸化鉄ペレットの水素還元に関する研究

東北大学選鉱製錬研究所 ○高橋愛知, 高橋礼二郎, 大森康男
八木順一郎, 柳谷敏夫

1 緒 言 直接製鉄用シャフト炉プロセスを解明するための基礎として, 非外熱式の小型移動層による酸化鉄ペレットの水素還元について理論的および実験的に検討した. 実験には壁効果を小さくするためペレットの約10倍の直径をもつ反応管を使用して, 温度, 圧力等の異なる条件下で実験を行い, 温度, 圧力, ガス組成等のプロセス変数の分布を測定した. また, 本反応装置の総括伝熱係数を実験的に求めて数式モデルに適用した. 一方, 理論的には原ら⁽²⁾と同様に熱と物質の移動を考慮した一次元数式モデルを作成し, モデル中の単一粒子の還元速度は3界面未反応核モデルに基づいて表示した. 還元速度式の数値パラメータは移動層による実験とは独立に, 単一粒子の段階還元実験から求め, 数式モデルに適用した. 本研究の目的は還元鉄製造プロセスとしてのシャフト炉の操業特性を明確にすることであるが, シャフト炉のトータルシステム開発における本研究の位置づけは図・1の2重枠で示される.

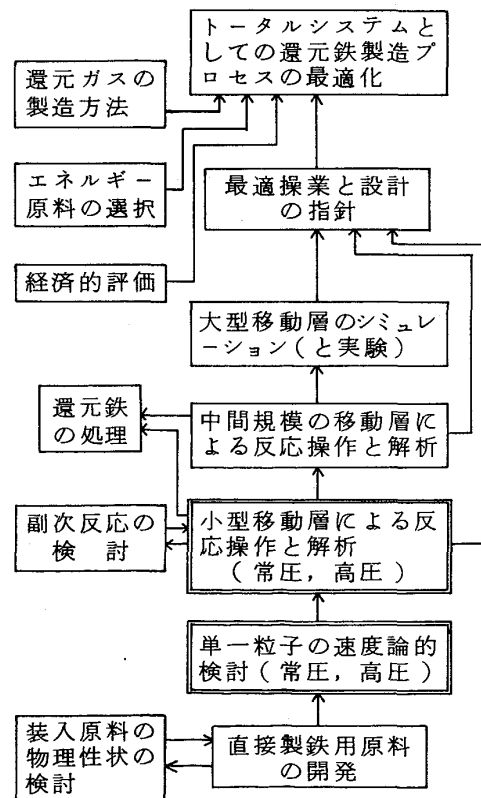
2 実 験

2・1 実験装置: 著者らは数年来, No. 1からNo. 3までの小型移動層反応装置を試作して研究を進めてきたがその特徴を表・1に示す. ここではNo. 3装置(図・2)について述べる. 管壁からの熱損失を減少させるため, 反応管の周囲は断熱剤で厚さ100 mm被覆した. 管軸方向に温度, 圧力, ガス組成測定用計測管が7本取り付けられている. ペレットはテーブルフィーダにより排出される. 一方, 還元ガスは所定の流量およびガス組成に調整したのち, 加熱して反応管内に供給され, 出口ガスはガスクーラ, 圧力制御弁を通して系外に排出される. なお, 常圧の実験においては熱電対を動かして半径方向の温度分布を測定することができる.

2・2 試料および実験方法: 実験には表・2に示すペレットを±1 mmの範囲に整粒して使用した. 実験操作はつぎの手順で行った; ペレットの装入→N₂ガス流通下で加熱

表・1 小型移動層反応装置の特徴

項 目	No. 1	No. 2	No. 3
製 作 年 月	1971. 10	1976. 10	1978. 11
管 内 径, mm	125	125	129
有 効 長, mm	1800	1800	2000
最大温度, ℃	1000	1000	1100
最大流量, Nm ³ /H	30	60	180
最大圧力, kg/cm ² G	0.5	0.5	8
反 応 管 材 質	SUS 310	SUS 310	SUPER 22H
ガ ス 加 熱 方 式	間 接	直接+間接	間 接
反 応 管 加 熱	外部加熱	非 外 熱 カオウール	非 外 熱 カオウール ゾフライト
試 料 の 装 入	回 分 式	密閉連続式	密閉連続式
ガ ス 吹 込 方 法	一 方 向	一 方 向	円周方向
使 用 ガ ス	H ₂	H ₂	H ₂ , CO
試 料 採 取	テーブルフィーダ	テーブルフィーダ	吸 上 げ



図・1 還元鉄製造プロセスの開発における本研究の位置づけ

表・2 酸化鉄ペレットの化学分析値 (wt %)

成分	T・Fe	FeO	CaO	SiO ₂	MnO	MgO	Al ₂ O ₃
塩基性ペレット	60.13	0.50	5.54	4.25	0.40	0.62	—
ワイヤラペレット	64.60	0.26	0.26	3.71	0.66	0.14	2.18

管と反応管の同時昇温 → ペレットの降下 → 反応開始 → 昇圧操作 → 定常状態で温度、圧力、ガス組成などの測定 → N₂ガスによる冷却 → 固体試料採取、以上の操作において、昇温開始から冷却開始までの所要時間は約13hr(昇温約6hr, 反応操作約5hr, 測定約2hr)要する。採取試料の還元率は還元法で測定した。

3 移動層の数式モデル

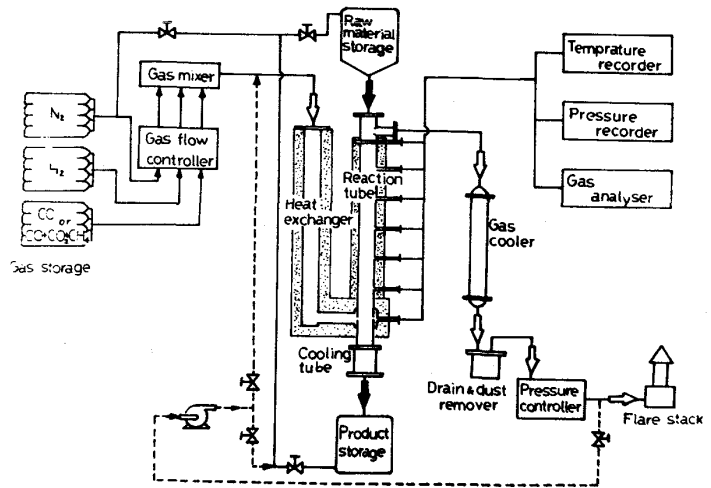
3・1 基礎式：移動層内におけるガス組成、ペレットの還元率、ペレットとガスの温度および圧力などの軸方向分布を記述する一次元数式モデルはつぎの仮定に基づいて誘導した^{(1),(2)} (1)定常状態, (2)ガスと粒子は押し出し流れ, (3)固体粒子内の温度は均一, (4)反応熱は固体粒子に与える, (5)ペレットの総括還元速度は3界面未反応核モデルで表わす。

3・2 速度パラメータの決定：速度式の中で重要な速度パラメータの値は段階還元実験で得られた結果を一界面未反応核モデルで解析して決定した。段階還元の実験は、700~1000℃の範囲で行い、2種類のペレットについて速度パラメータ(化学反応速度定数, 有効拡散係数)の温度依存性を求め⁽¹⁾理論計算に使用した。

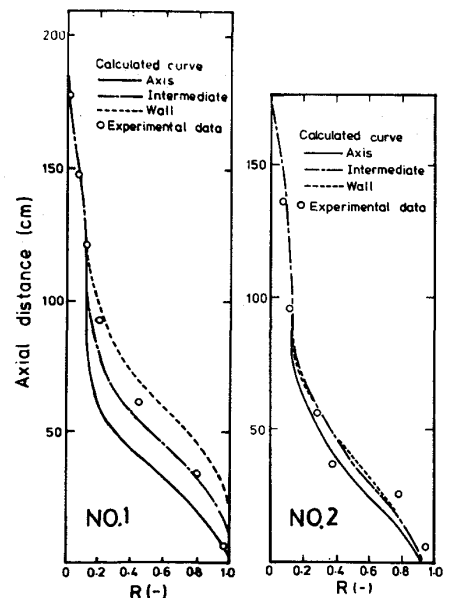
3・3 総括伝熱係数の評価：熱収支を考慮した数式モデルには総括伝熱係数, Uを与える必要がある。ここではNo.2の装置を用いて、固定層の状態では反応管軸方向および半径方向の温度分布を測定し、志垣ら⁽³⁾によって導出された式からUの値を計算した。ガスと粒子の種類としてはそれぞれ、空気と水素および酸化鉄ペレットと鋼球を使用して測定したが得られたUの値にさほど相異がなく、以後の計算では酸化鉄ペレット-空気系で得られた $U = 0.0039 \text{ cal/cm}^2 \cdot \text{min} \cdot \text{C}$ を使用した。

4 実験結果およびシミュレーション

4・1 半径方向温度差の還元率分布に及ぼす影響：No.1およびNo.2装置による実験結果から、外熱式の場合反応管半径方向の温度差は大きい非外熱式の場合はかなり小さくなる。層内壁、中間および中心での軸方向温度分布の実測値を用いて、物質収支のみで計算した総括還元率, Rの分布の差は非外熱式の場合は小さく(図・3), 移動層数式モデルや速度パラメータの値を反応熱の効果なども含めて実験的に検証するのに利点の多いことが明らかとなった。生産規模500t/dayのシャフト炉においても、



図・2 実験装置のフローシート



図・3 半径方向温度差の還元率分布に及ぼす影響

装置	T _B (℃)	G _{H₂} (Nℓ/min)	W (kg/min)	P (atm)
No.1	940	581	0.56	1.0
No.2	900	900	0.63	1.0

温度，ガス組成ともに半径方向にはほぼ均一であることが知られている⁽⁴⁾。

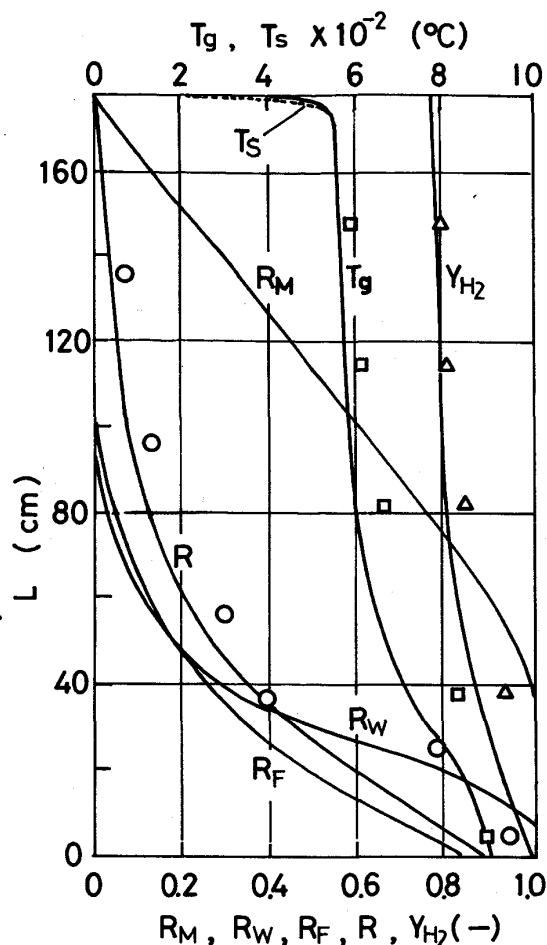
4・2 逐次反応を仮定した場合の還元率分布：還元反応が逐次的に進行すると仮定したRの計算値と実測値とを比較した場合，図・3と同一の速度パラメータを用いても実測値との差は極めて大きくなった。したがって，図・3に示したように3界面モデルの使用が妥当である。

4・3 物質と熱収支を考慮した数式モデルによるシミュレーション：塩基性ペレットを使用したNo.2装置による実験およびシミュレーション結果を，図4に示す。還元率，温度およびガス濃度分布の実測値と計算値とを比較した場合，層下部において差が認められるが，全体として両者はほぼ一致しており，数式モデルおよび解析法の妥当性を証明している。なお， $U=0$ の計算も行ったが，この場合は層上部で反応が完結し，実測値とは大きく異なる結果となった。このことは壁からの熱損失を正確に評価する必要のあることを示唆している。図・5にはワイヤラペレットを使用したNo.3装置による圧力1.15 atmにおける実験結果を示しているが，図・4と比較した場合，炉内温度分布がほぼ同一であるにもかかわらず使用したペレットの還元速度の相異により異なる還元率，ガス濃度分布となった。

常圧下における両者の還元率分布を見た場合，層下部で急速に反応が進んでいるにもかかわらず，層上部での反応は還元率10～20%前後で停滞している。これは本条件下のガス組成から見て，シャフト炉の酸素交換操作線⁽⁵⁾における操作線がW点に近いためである。これが水素還元反応操作の1つの限界である。したがって，水素還元の場合，生産性を向上させるためには吹込ガス量の増加とともにガス温度を高めることが重要な因子となる。

4・4 移動層反応操作に及ぼす圧力の影響：単一粒子の水素還元反応においては，数気圧までは昇圧に伴い還元速度の向上することが知られている^{(6),(7)}。移動層の還元操作に及ぼす圧力の影響を調べるため，図・5に示すように圧力を変えた実験を行った。他の条件は同じである。圧力1.15と5 atmの結果を比較してみると，5 atmの場合，圧力の効果により還元速度が向上したために還元率，水蒸気濃度とも層上部方向にシフトした分布となった。また，層下部においては高還元率が達成されたため吸熱反応の影響が消失し，温度分布も吹込ガス温度に近い分布となった。

操業成績に及ぼす圧力の効果を示せば表・3のようになり，圧力の増加に伴い操業成績の向上していることがわかる。表・3によれば，層全体の圧力損失も1.15 atmの場合は22.9 cm H₂Oであったものが，5 atmでは5.9 cm



図・4 計算値と実測値との比較
実験条件：図・3 - No. 2
 $U=0.0039 \text{ cal/cm}^2 \cdot \text{min} \cdot \text{C}$

表・3 移動層操業成績の比較 (No.3装置)

圧力	到達還元率	出口ガス濃度	層圧力損失	出口温度
P (atm)	R (-)	Y _{H₂O} (-)	ΔP (cmH ₂ O)	T _o (°C)
1.15	0.817	0.199**	22.9	-
3.0*	0.905	0.220**	9.5	-
5.0	0.952	0.233 0.232**	5.9	450-500

* 3.0 atmのデータは必ずしも定常状態に到達しているとはいえない

** 総括物質収支から求まる計算値

H₂Oと減少した。これは流動化開始速度が吹込ガス量の限界である場合、大量のガス吹込が可能であることを意味している。

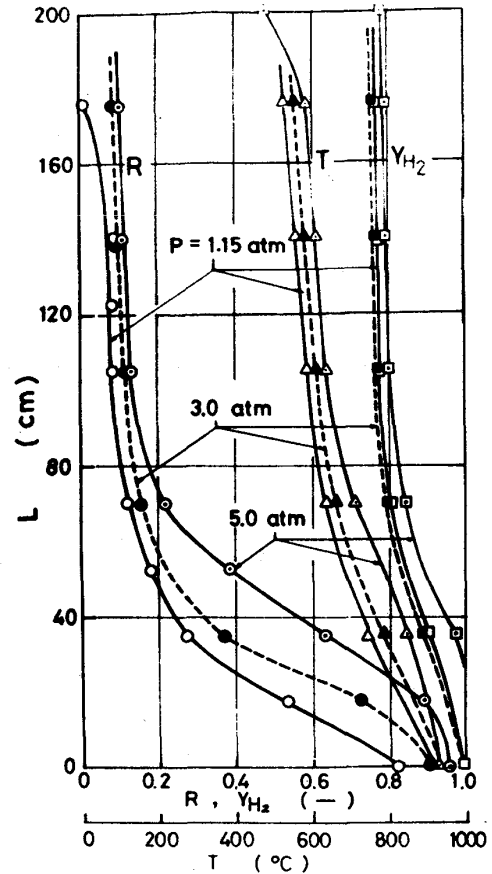
5、考察： 以上小型移動層による酸化鉄ペレットの水素還元について検討してきたが、これら知見の大型装置への適用性あるいは数式モデルや原料性状を評価するための実験方法が問題となる。前者については粒子およびガス流れに及ぼす管壁の効果、還元粉化とふくれ、クラスタリング等の問題もあるがここでは小型装置の実験でもっとも重要と思われる反応管径と壁からの熱損失との関係について述べる。操業条件を固定(100 t·Fe/m²·day, η=0.28, 100% H₂)して最終還元率 100% に到達させるに必要な吹込ガス温度と層高との関係を表わす計算値を管径をパラメータとして図・6に示す。ただし、この場合、Uは一定として計算した。図・6から明らかのように、一定の生産速度を維持するために必要な温度と層高の制限範囲は管径に著しく依存し、管径が大きいほど断熱状態に近づいている。換言すれば、小型実験装置では壁からの熱損失を正確に評価しなければならないことが明らかである。

一方、後者の実験方法については、現在すでに移動層による実験、シャフト炉シミュレータによる実験などが行われているが、いずれにしても実験はより簡便で正確なデータの得られることが望ましい。移動層内の還元反応の挙動(還元速度、還元様式など)のみに着目した場合、数式モデルで予測される温度ならびにガス組成に合わせた単一粒子によるシミュレート実験は可能であろう。このような観点から著者らは現在移動層の層内条件に合わせて単一粒子の昇温還元実験を進めている。

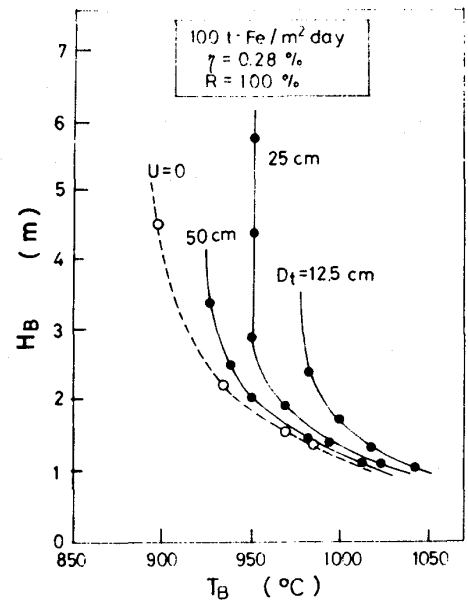
6 結言

小型移動層による酸化鉄ペレットの水素還元反応操作を理論的および実験的に検討し、種々の基礎的知見を得た。これらの知見はシャフト炉の設計ならびに操業改善のための基礎資料として重要であり、今後さらにデータの蓄積が必要であろう。

文献：(1) 柳谷ら：鉄と鋼，63(1977)，S.7；Proc. IISC，(1978)，449；鉄と鋼，64(1978)，S.531 (2) 原ら：鉄と鋼 62(1976)，315；鉄と鋼，62(1976)，324 (3) 志垣ら：東北大選研彙，32(1976)，32 (4) 村木ら：鉄と鋼，64(1978)，S 459 (5) A.Rist and N.Meysson：Rev. Metall.，18(1965)，995 (6) 原，土屋：鉄と鋼，63(1977)，S 4 (7) 黒豆ら：鉄と鋼，64(1978)，S 73



図・5 移動プロセス変数の分布に及ぼす圧力の影響(実測値)
実験条件：図・3-No.2，ワイヤラP.



図・6 壁からの熱損失がガス吹込温度(T_B)と層高(H_B)との関係に及ぼす影響
U=0.0039 cal/cm²·min·°C