

論 文

UDC 669.181.72

シャフト炉モデルプラントによる還元鉄の製造

成田 貴一*・金子伝太郎*・木村 吉雄*²竹中 芳通*²・田中 英年*³・稲田 裕*³

Production of Reduced Iron by Model Plant of Shaft Furnace

Kiichi NARITA, Dentaro KANEKO, Yoshio KIMURA, Yoshimichi TAKENAKA,
Hidetoshi TANAKA, and Yutaka INADA

Synopsis:

Experimental production of reduced pellets was performed using a small scale shaft furnace having inside diameter of 250 mm and reduction zone height of 2.7 m. The furnace was designed to permit continuous production of reduced pellets at the rate of 1.5 ton/day.

Effects of operational factors such as reduction temperature, gas composition and gas flow rate on the reduction behaviors of iron oxide pellets as well as the properties of products were investigated and following results were obtained.

- 1) Reduction rate of the pellets in the furnace increases according to the rise of reducing gas temperature and gas ratio.
- 2) The utilization of reducing gas is in a range from 30 to 43% and it becomes higher as reducing gas temperature increases.
- 3) The degree of reduction of products decreases rapidly when R value of reducing gas is less than 15.
- 4) The temperature in the furnace is lowered and progress of reduction is retarded as the ratio of H_2 to CO in the reducing gas increases due to the endothermic reaction caused by H_2 reduction of iron oxide.

1. 緒 言

大型シャフト炉による還元鉄の製造には大量の還元ガスを必要することから、その実用化が他の直接製鉄法に比べておそく、石油化学工業の発展にあいまつて確立された炭化水素のリフォーミング技術を適用して、1970年代に至つて実用化され現在そのシェアを拡大しつつある。

本法は炉内を上昇する還元ガスと降下する原料のあいだで熱交換、化学反応が進行するいわゆる対向流原理に基づいた効率の高いプロセスとして注目され、本邦では将来における原子力製鉄への適用も検討されている¹⁾。

還元鉄製造シャフト炉内の挙動を移動速度論を考慮して検討した数値解析結果としては SPITZERら²⁾をはじめとして TSAY³⁾、YAGI⁴⁾、原ら⁵⁾の報告がある。

いつぼう、実際に装入物が連続的に移動降下する反応

炉を用いた実験に基づいた解析結果は比較的少なく、外部加熱式内径 100 mm の反応管を用いた原ら⁶⁾の実験、内径 125 mm の外部断熱式小型移動層で酸化ペレットの水素還元を主体とした実験を行いシミュレーションとの対比を試みた柳谷ら⁷⁾の研究、0.7 m³容積のシャフト炉を使用した神原ら⁸⁾の研究をみるにすぎない。とくに $CO+H_2$ 還元ガスを用いた還元鉄製造シャフト炉の挙動を体系的に検討した実験研究はみあたらない。

還元鉄製造シャフト炉内においては酸化鉄の H_2 および CO による還元反応のほか滲炭反応や水性ガス反応などをもなつた複雑な物質および熱移動が起こっている。シャフト炉の操業や設計にあつて、これらの挙動を把握しかつ還元温度、ガス量、ガス組成など各種要因の影響を明確にしておくことが重視される。そのため $CO+H_2$ ガスを用い酸化鉄のシャフト炉還元の解析に適用する試みもなされているが、炉内における熱移動をも

昭和 54 年 10 月本会講演大会にて発表 昭和 54 年 11 月 7 日受付 (Received Nov. 7, 1979)

* (株)神戸製鋼所中央研究所 工博 (Central Research Laboratory, Kobe Steel, Ltd.)

*² (株)神戸製鋼所中央研究所 (Central Research Laboratory, Kobe Steel, Ltd., 1-3-18 Wakino-hama-cho Chuo-ku Kobe 651)

*³ カタールスチールカンパニー (Qatar Steel Co., Ltd., P. O. Box 10090 Umm Said Qatar)

考慮したダイナミックな挙動を把握するには限界がある。

筆者らは内径 250 mm, 反応層高さ 2.7 m の断熱式シャフト炉モデルを作成し, $\text{CO} + \text{H}_2$ 混合ガスを還元剤として操業されている直接製鉄用シャフト炉の炉内挙動を調査すること, シャフト炉の生産性や成品品質におよぼす操業諸因子の影響を明確にする目的で酸化鉄ペレットを原料として還元実験を行った。

2. 実験装置

2.1 シャフト炉の設計

実験用シャフト炉は実機シャフト炉の炉内挙動に対応しうるデータを採取することを第一条件とし, その設計にあたっては次のことが考慮された。

1) シャフト炉内における熱移動の状態を実機と対応させるため, 炉内へ供給する顕熱はすべて還元ガスが保持するそれで補う, 外部断熱方式とした。

2) 炉径の小さい実験用シャフト炉では実機に比較して炉壁を介しての熱損失量が大になるのは当然であるが, この値が還元ガスの有する総熱量の 5% を越えないこと。

3) 還元ガス量, ガス温度, ガス組成などをかなり広範囲にわたって任意に変更しうること。

4) 安定操業状態を維持して炉体垂直方向数箇所より装入物の測温, サンプルングおよびガス分析試料の採取が可能なこと。

5) シャフト炉内における還元挙動だけでなく, 還元ガスの製造とその循環システムなどに関してもプロセス工学的データを採取しうること。

設計上とくにシャフト炉の炉径を決定することが重要な課題で, この値を余り小さくすると炉壁からの損失熱量が大きくなり上記 5% 以下の値が満たされないこと, しばしば炉径を大にすることは実機に近いデータがとれる意味で有利な点が多いが実験条件をフレキシブルに変更することが制約され幅広いデータが採取しにくくなる。

以上のことを念頭におき断熱方法, 断熱材の熱的特性をも考慮して種々の炉径を想定した熱収支計算を行った結果から炉径を 250 mm に定めた。

炉内反応層の高さは生産量および炉内を上昇する還元ガスの流速, 原料の降下速度が実機のそれと極端にかけはなれないことを考慮して 2.7 m とした。

2.2 シャフト炉モデルプラントの構成

このようにして設計されたモデルプラントは還元鉄を日産約 1.5 t 製造しうるもので, そのフローシートを

Fig. 1 に示す。また設備の外観を Photo. 1 に示す。

主要な設備構成は大別してシャフト炉と還元ガスを製造するためのガスリフォーマからなっている。

ガスリフォーマは箱型の燃焼炉内に Ni 系触媒を充填した内径 143 mm, 長さ 3.2 m の耐熱鋳鋼製リフォーマチューブ 2 本が垂直に挿入されており, 原料としてのプロパンガスが水蒸気, CO_2 またはシャフト炉排ガスと統合して供給され, 反応管下部で予熱されたのち約 950 °C で $\text{CO} + \text{H}_2$ ガスに改質される。

リフォーマで改質されたガスはいつたん冷却され, 過剰水分を除去し, 還元ガス中の水蒸気濃度を約 1% に調整したのち, 電熱式ガスヒータにて所定温度まで加熱されシャフト炉へ吹き込まれ, 降下する酸化鉄ペレットを還元する。

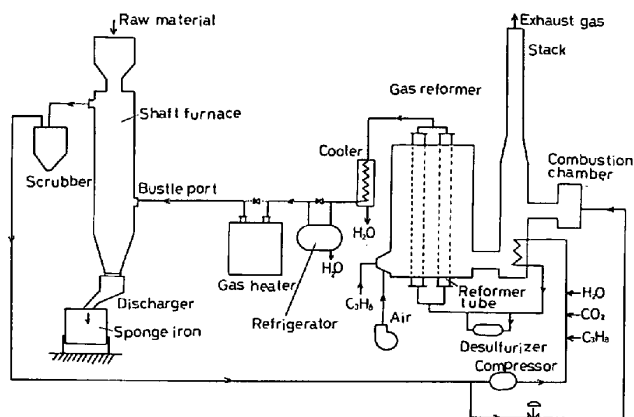


Fig. 1. Flow sheet of shaft type direct reduction model plant.

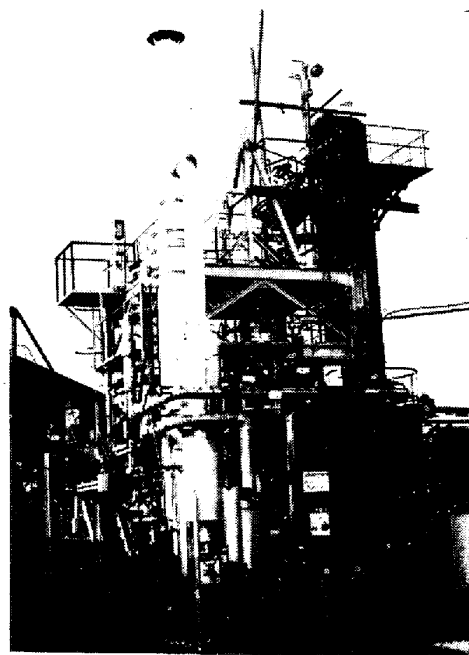


Photo. 1. General view of the model plant of shaft furnace.

実験用シャフト炉の詳細は Fig. 2 のようになっている。シャフト炉本体は SUS 310 S からなり、外側にカオウル断熱材を 200 mm の厚さに巻き保温している。炉内垂直方向 5 個所に温度測定端子、ガスおよび装入物の採取孔がそれぞれ設けられている。

酸化鉄ペレットはポケットエレベータによつてシャフト炉上部へ上げられシール弁を経て上部貯鉱槽に装入される。上部貯鉱槽には酸化鉄ペレットを約 500 kg 貯えることができる。上部貯鉱槽とシャフト炉の間には還元ガス遮断弁が取り付けられており、貯鉱槽内の原料が降下しシャフト炉へ供給されているあいだはシール弁が閉

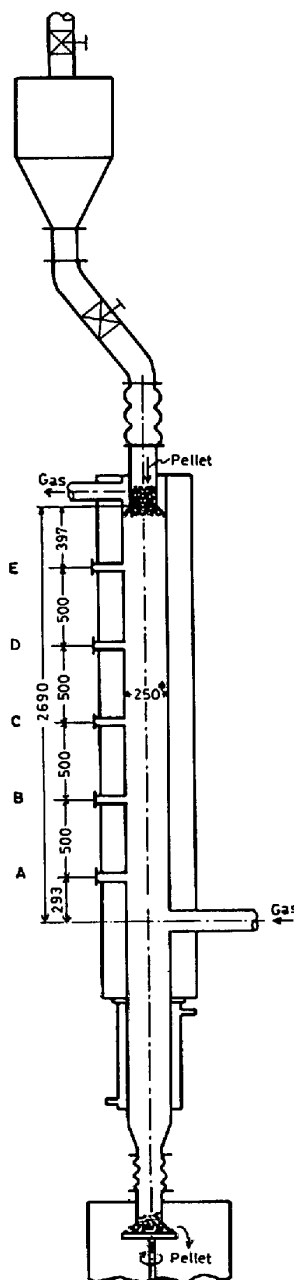


Fig. 2. Dimensions of the experimental shaft furnace.

じており、貯鉱槽内の原料がなくなると手動操作で遮断弁を閉じ、シール弁を開け原料を貯鉱槽へ供給するようになっている。

シャフト炉内で還元された還元鉄は下部冷却域にて外部水冷方式により間接冷却されたのち、テーブルフィーダで切り出され N_2 ガスを封入した成品採取箱へ貯えられる。

シャフト炉内装入物の滞留時間はテーブルフィーダの回転数で制御される。

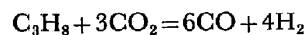
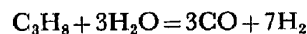
シャフト炉上部から排出される炉頂ガスはベンチュリースクラバーで除塵、冷却され一部は余剰ガスとして燃焼後大気中へ排出され、そのほかはコンプレッサーで昇圧後リフォーマへ循環される。

3. 実験方法

3.1 シャフト炉モデルプラントの操業

操業は 5 日間の連続運転を一期間単位とした。運転方法としてはまずシャフト炉および上部貯鉱槽内に酸化鉄ペレットを充填したのち、 CO_2 ガスを系内に循環させながらガスヒータおよびリフォーマの耐火物を加熱する。シャフト炉羽口部において循環ガスの温度が $700^\circ C$ に達した時点で原料の移動降下を開始する。さらに昇温を続け羽口ガス温度が目標とする還元温度に達した時点より還元ガスの製造を開始する。

還元ガスの製造はリフォーマチューブ内で次式により行われる。



すなわち目標とする還元ガス組成が得られるようにプロパンガスに添加する H_2O および CO_2 量を、また操業時においてはシャフト炉から循環する炉頂ガス量を変更調節する。とくに還元ガス製造開始時においてリフォーマチューブ内で炭素析出が起こり触媒を劣化させることを避けること、ならびに高濃度の還元ガスを急激にシャフト炉へ導入すると装入物の還元初期における体積膨脹に起因した棚吊りを起こすことがあるのでプロパンに対する酸化性ガス量を過剰にし、以後還元ガスの濃度は徐々に増加させるようにした。

目標とするガス組成が得られたのち、還元ガスの供給量および装入物の降下速度を目標値に調査する。原料の降下速度はシャフト炉下部に設置されたテーブルフィーダの回転数により制御され、その値は排出部から定期的に少量のサンプルを単位時間採取し秤量することによつて確認される。また、このサンプルは 6 mm のふるいにかけるふるい上を縮分し還元率の測定に供した。

Table 1. Chemical and physical properties of raw materials.

Raw materials	Chemical composition (wt%)							Physical properties			
	TFe	FeO	CaO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	P	S	Compression strength (kg/p)	Apparent density (kg/l)	Porosity (%)	Bulk density (kg/l)
Pellet W	65.21	0.39	0.42	3.47	1.97	0.034	0.002	288	3.61	27.4	2.12
Pellet S	66.60	0.36	0.16	1.97	0.23	0.012	0.002	203	3.76	25.8	2.27

一実験条件に対する安定操業時間は約 20 h とし、この間炉体各部からの装入物のサンプリングをはじめ諸データの採取を行う。その後実験条件を変更して一操業期間中に通常 3 種類の定常状態での実験データの採取を行った。

Fig. 2 に位置が示される試料採取孔は通常ボールバルブで気密にされているが、試料採取にあたっては、先端部に溝を有する内径 27 mm の鋼管をまず溝の部分を下にして炉内中心部へ押し込んだ後、溝部が上になるように回転することによつてペレット 5 ~ 10 個が採取される。これらは、N₂ 中で冷却したのち見掛比重、圧潰強度を測定後、粉碎し化学分析試料とした。

3.2 使用原料

本実験には主として豪州産 W ペレットを使用した。実験後期に同ペレットを使い果たし以後の入荷が困難であつたため、一部の実験は同じく豪州産 S ペレットで行つた。本報に示す実験データにおいて S ペレットによるものはそれを示している。

これら 2 種のペレットの化学組成および物理状を Table 1 に示す。

原料ペレットは水洗したのち振動スクリーンで 8 mm ~ 20 mm にふるいわけ後移動層上部貯鉄槽へ供給した。

4. 実験結果

4.1 代表的な操業条件および結果

目標還元ガス温度を 750, 850, 950°C の 3 水準とし成品 1 t 当たりのガス量 (以下ガス比と定義する) を 1000 ~ 2000 Nm³ の範囲で変更した場合の代表的な操業における操業条件とその結果を Table 2(a) に、得られた還元鉄の性状を Table 2(b) に示す。

この表におけるガス組成値は乾ガス基準とし、羽口ガス組成は CO と H₂ の和が 95%, H₂ と CO の比が 1.3 ~ 1.6 になるようにしている。湿ガス基準とした場合前述のごとく羽口還元ガス中に約 1% の水蒸気を含む。

実機シャフト炉の装入物層内温度はかなり上部まで羽

口還元ガス温度に近い値に維持されるとされているが、本シャフト炉においても適切なガス比を選択することにより相当上部まで高い温度レベルが保たれている。

同一還元ガス温度ではガス比を高めることにより炉頂ガス温度は上昇するが、いつぼうにおいて同一ガス比を保ち、還元ガス温度を上昇させた場合それにともなつて炉頂ガス温度は上昇せず、むしろ低下する傾向がみられる。これは還元ガス温度を上昇させることによりシャフト炉内における還元反応が活発になるため、生産量を増すことが可能となり還元反応および降下原料との熱交換のため炉内で多量の熱が消費されることによる。

羽口および炉頂におけるガス組成についてみると炉内において H₂ に比べ CO の減少割合が多いことが明らかで原⁶⁾の実験同様、シャフト炉内における CO の利用率が水性ガス変成反応の進行によつてみかけ上 H₂ のそれに比べて高いことを示している。

本シャフト炉の生産性は成品の金属化率を 95% とした場合 9 ~ 13 t/m³d であり、この値は還元ガス温度の高いものほど高い。また通常の常圧シャフト炉の生産性が 4 ~ 10 t/m³d といわれている⁹⁾¹⁰⁾ ことから、それらの値に比べても本シャフト炉の生産性はそんな色ないといえる。

還元ガス温度、ガス量が成品品質におよぼす影響としては Table 2(b) にみられるごとく、成品中の炭素量は明らかに還元ガス温度の低い場合が高い。還元されたペレットの圧潰強度は還元温度の高いものがわずかに高い傾向がみられる。

Photo. 2 は 3 水準の異なる還元ガス温度による操業で得られた成品のマイクロ組織を走査型電顕で観察したものであるが、還元生成した金属鉄の組織構造において還元温度による明らかな相違が認められる。すなわち低温還元されたものでは金属鉄表面が不規則で多くの微細気孔を有するのに対して、高温還元のものでは表面が平滑になり微細気孔が消滅し逆に大気孔が発達している。

4.2 シャフト炉内における還元の進行

Fig. 3 に還元鉄の生産量を 48 kg/h に保ち、還元ガ

Table 2(a). Experimental operating conditions and results.

Reduction gas temp. ¹⁾ (°C)	Test No.	Temperature (°C)							Gas volum (Nm ³ /h)	Out put (kg/h)	Pressure drop (mm)	Gas ratio (Nm ³ /t-prod)	Gas composition ²⁾ (%)					Furnace productivity (t/m ³ d)
		Bustle gas	A	B	C	D	E	Top gas					H ₂ Bustle Top	CO Bustle Top	CO ₂ Bustle Top	CH ₄ Bustle Top	N ₂ Bustle Top	
750	R-53	747	731	659	625	603	580	161	64	51	130	1 260	57.5 52.3	38.1 22.1	3.1 22.5	0 0.7	1.6 2.4	9.8
	R-51	750	774	759	693	647	616	249	75	53	160	1 420	55.8 50.2	40.3 23.6	3.2 24.0	0 0	0 2.2	
	R-52	745	790	762	740	688	638	267	86	51	170	1 680	58.8 51.5	37.2 23.0	2.4 22.2	0 1.2	1.6 2.1	9.8
	R-54	747	805	811	788	758	711	461	105	57	190	1 830	57.0 49.5	38.3 27.7	2.7 20.1	0.3 1.3	1.7 1.4	
850	R-21	845	820	800	765	670	610	200	63	52	100	1 210	52.9 43.4	42.8 23.5	4.0 27.6	0.3 0.3	0 1.7	10.0
	R-22	840	850	820	790	750	650	275	73	51	120	1 450	54.1 46.4	42.7 26.0	3.0 25.8	0.2 0.4	0 1.4	
	R-23	840	850	830	810	780	660	330	92	51	140	1 800	55.9 49.0	41.4 27.1	2.5 22.0	0.2 0.6	0 1.3	9.8
	R-11	840	840	825	815	780	756	340	103	51	170	2 020	56.9 51.0	40.3 24.3	2.6 24.4	0.2 0.3	0 0	
950	R-81	943	887	859	787	679	627	196	88	77	160	1 150	55.7 46.6	41.7 23.3	2.5 29.8	0 0.2	0.1 0.1	14.7
	R-82	939	902	867	830	792	679	220	86	67	159	1 300	55.4 44.2	42.2 27.6	2.4 27.9	0 0.1	0 0.1	
	R-84	940	872	816	711	656	609	198	101	73	140	1 390	66.1 55.5	32.0 20.3	1.8 23.9	0.1 0.3	0 0	14.0
	R-83	949	921	903	851	828	720	249	101	68	160	1 490	56.5 47.2	41.4 29.1	2.0 23.4	0 0.2	0.1 0.1	

1) Objective of the operation 2) Dry base

Table 2(b). Chemical and physical properties of products.

Reduction gas temp. (°C)	Test No.	Chemical composition (%)				Degree of reduction (%)	Degree of metallization (%)	Compression strength (kg/p)	Bulk density (kg/l)
		TFe	MFe	FeO	C				
750	R-53	81.0	49.35	30.82	0.21	70.71	60.93	29	1.52
	R-51	86.19	73.34	12.61	0.31	88.85	85.09	22	1.52
	R-52	87.84	81.18	6.46	0.79	94.31	92.42	16	1.60
	R-54	89.15	85.77	3.48	1.80	97.74	96.21	17	1.51
850	R-21	85.88	68.25	19.21	0.55	85.57	79.80	19	1.60
	R-22	90.29	86.27	4.05	0.36	66.72	95.57	16	1.56
	R-23	90.66	86.47	3.86	0.46	96.47	95.38	16	1.50
	R-11	89.40	86.10	4.19	0.60	97.52	96.31	18	1.60
950	R-81	84.21	62.76	22.95	0.12	81.54	74.53	22	1.66
	R-82	89.47	85.08	4.73	0.27	96.45	95.09	27	1.60
	R-84	86.41	71.13	17.01	0.16	87.38	82.31	22	1.59
	R-83	90.09	87.58	2.17	0.39	97.83	97.21	28	1.60

ス温度、ガス比をそれぞれ 845°C, 1 480 Nm³/t-prod に維持した運転における炉内温度、ガス組成の推移、還元率の推移を示す。炉内温度分布は羽口から上約 2m Fig. 2 E 点までにわたってなだらかに約 200°C 降下し、炉頂部の 0.5 m の範囲で急激に低下している。いっぽう酸化鉄の還元は炉頂部より徐々に進行している

が、還元率が本格的に高まるのは羽口より上 0.5 m の範囲である。

シャフト炉に原料が装入されたのち、熱交換は炉頂部の短い区間で達成されるが Fe₃O₄ から FeO までの移行が、水素、CO ガス還元とも吸熱反応であることなどの理由で、充填層の多くの部分が金属鉄が出現するまでの

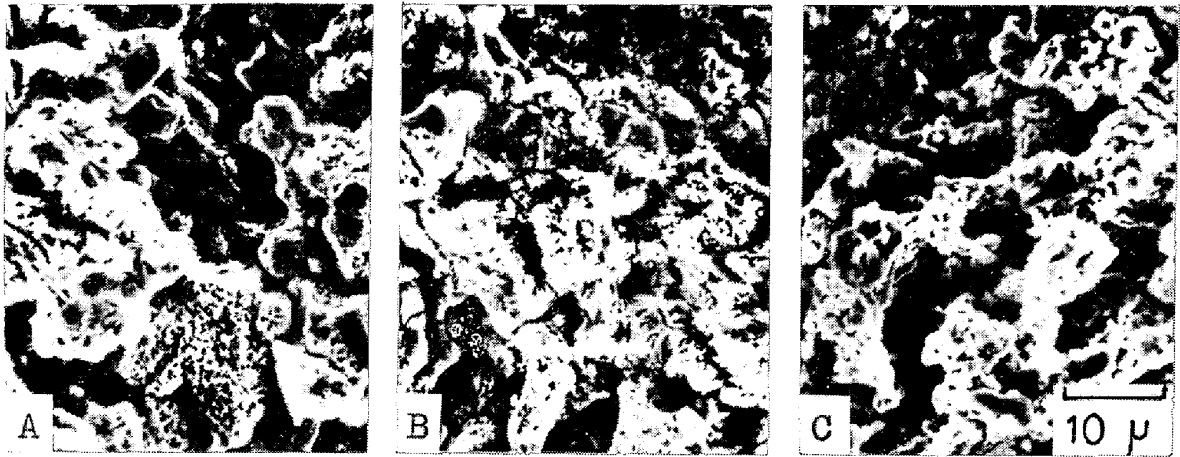


Photo. 2. Microstructure of the reduced pellet observed by SEM
Reduction gas temperature ; A : 750°C, B : 850°C, C : 950°C

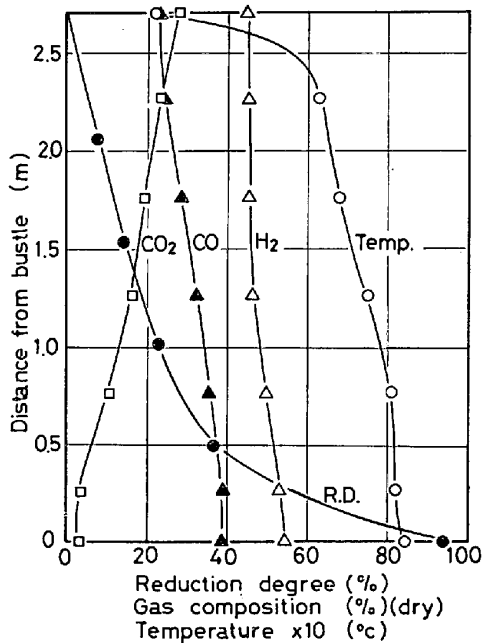


Fig. 3. Variation of temperature, gas composition and degree of reduction in the experimental shaft furnace.

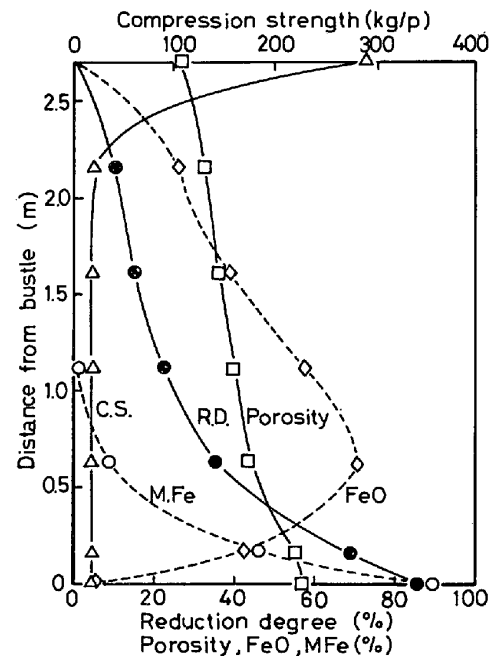


Fig. 4. Variation of chemical and physical properties in the experimental shaft furnace.

予備還元用に用いられており、FeOからFeに至る還元が羽口直上の短い区間で達成されている。

Fig. 4 は生産量を 52 kg/h に保ち、還元ガス温度、ガス比をそれぞれ 845°C、1 210 Nm³/t-prod、に維持した操業における炉内装入物の物性値の変化を示している。

還元の進行とともにペレットの気孔率はなだらかに増加しているのに対して、圧潰強度はシャフト炉装入前に 300 kg/p の値を示すものが装入後ストックラインよりわずか 0.5 m の区間で急激に 20 kg/p の値まで低下し以後ほとんど変化がみられない。

最上部の試料採取孔より採取されたペレットにはすで

にかなりのき裂がみられ、このき裂が強度低下に大きく影響していると考えられる。すなわち炉頂部において還元初期に Fe₂O₃ から Fe₃O₄ に変化する段階での酸化鉄の結晶構造変化にともなうき裂が発生し、ペレットの強度が急激に低下する。

Fig. 4 にはペレットの化学組成変化を示しているが、金属鉄が発生開始するのはかなり遅く、上部より約 1.5 m 降下したところで FeO 含有量が約 30% に達し、その時点から金属化が徐々に進行し最下部羽口付近に至って金属化の著しい増加がみられる。

5. 考 察

5.1 本シャフト炉の模型実験装置としての適用性

5.1.1 操作線図による検討

シャフト炉内における固体-気体間の酸素の交換状態は固体酸化鉄の酸化度 (O/Fe) とガスの酸化度 ((CO₂+H₂O)/(CO+H₂+CO₂+H₂O)) との関係を示す RIST and MEYSSON の操作線図¹¹⁾で表される。

Fig. 5 は還元ガス温度を 850°C とし還元ガス量を種々に変更した操業の操作線図と、著者らの所属する会社が実施した実機シャフト炉 (内径 4.8 m 還元帯高さ 8 m) の操作線図を対比した。

実験炉、実機とも還元ガス組成がほぼ同じであることから Fe-O-C, Fe-O-H 平衡状態図より RIST らの方法¹¹⁾に従い CO と H₂ 濃度の比率から FeO→Fe 還元における平衡点であるピンチポイント W 点が計算される。この操作線の傾きはガス比に比例し、傾きが小さいものほど還元ガス量が少ないことを示す。また操作線が W 点に近いものほど理想状態に近いことを示しており、その指標として AW 線を操作線が切る割合 AM/AW もつてシャフト効率を示している。

本シャフト炉実験の操作線図と実機シャフト炉のそれを成品の還元率がほぼ同じものについて対比してみると、ガス比が極端に高いものを別にして実機に近いシャフト効率が得られていることがわかる。

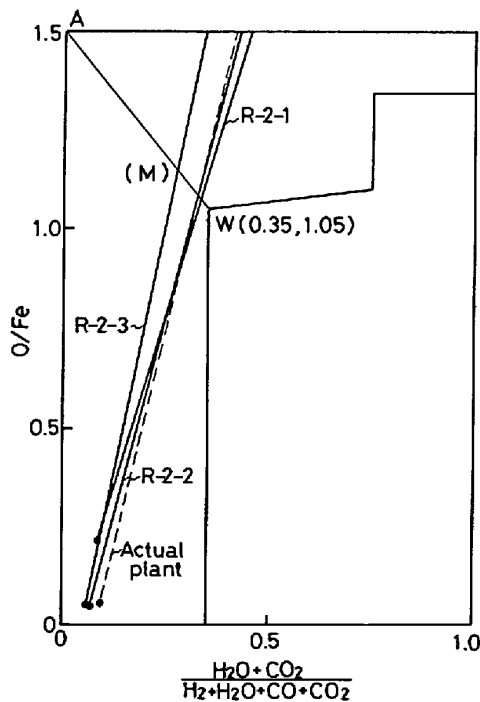


Fig. 5. Operating lines for experiments (Bustle gas temperature : 850°C)

5.1.2 炉壁損失熱および総括伝熱係数の検討

2.1 項で述べたごとく外部断熱式小型シャフト炉では装入物の単位容積に対する炉壁面積が大なるため、熱的に実機と対比し得るデータを把握するには壁面からの損失熱を一定値以下におさえることが重視される。

Fig. 6 に還元ガス温度 850°C, ガス比を 1400 Nm³/t·prod とした標準的な操業時の還元炉内熱収支を計算した結果を示す。この場合壁面からの損失熱は 2.3% であり、実機における値 1% 以下に比べてやや高いが小型実験炉としてはまず妥当な値であると判断される。

さらに炉壁からの損失熱を評価するため総括伝熱係数を求めるための実験を志垣ら¹²⁾が行った方法に準じて行つた。

本シャフト炉に酸化ペレットを充填し、下部テーブルフィーダからの切り出しを中止し固定層の状態にて所定温度に加熱した N₂ を流通せしめ、定常状態に達したのち炉内温度測定端子によつて 5 水準の炉内温度を熱電対にて、断熱材外部温度を表面温度計にて測定し、次式により総括伝熱係数を求めた。

$$U = \frac{-\int_{T_B}^{T_T} G \left(C_G + T_G \frac{dC_G}{dT_G} \right) dT_G}{\int_0^L \pi D (T_G - T_0) dz} \dots\dots\dots (1)$$

ここに

- U : 総括伝熱係数 (kcal/m²h°C)
- D : 反応管内径 (m)
- G : ガス流量 (kg-mol/h)
- C_G : ガスの平均比熱 (kcal/kg-mol·°C)

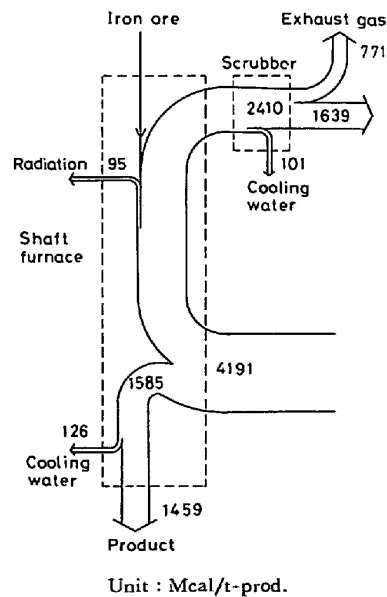


Fig. 6. Heat balance diagram of model plant shaft furnace. Unit : Mcal/t·prod.

T_G, T_B, T_T, T_0 : ガス温度, 羽口ガス温度, 炉頂ガス温度, 外気温度 (K)

羽口ガス温度 750~950°C, ガス流量 80~110 Nm³/h の範囲で4回の実験を行い, それらの平均値として $U = 1.12 \text{ kcal/m}^2 \cdot \text{h} \cdot ^\circ\text{C}$ を得た. 実機シャフト炉の U が約 $1.0 \text{ kcal/m}^2 \cdot \text{h} \cdot ^\circ\text{C}$ とされており, 本シャフト炉で測定計算された U はその値にほぼ一致している.

以上操作線図および炉壁損失熱, 総括伝熱係数などに関して本移動層の模型実験装置としての適用性を検討した結果, 本設備の操業データが還元反応面からも, また熱的にも実機のそれにほぼ対応し得るものと判断される.

5.2 シャフト炉による酸化鉄の還元におよぼす諸要因の影響

Table 2 に示された代表的操業結果およびそれをさらに補足することを目的として行つたガス組成を種々変更した操業結果を整理して, シャフト炉による酸化鉄の還元におよぼす諸要因の影響について述べる.

5.2.1 ガス比と成品還元率の関係

シャフト炉によつて酸化鉄を還元する場合, 還元に必要なガス量は経済的見地からきわめて重要である. また単位量の還元鉄を製造するのに要するガス量は還元ガスの成分, 還元温度, ガス利用率などに依存している.

Fig. 7 はガス比と還元率の関係を示している. 一定還元率以下ではガス比と還元率は比例関係にあり, 一定還元率に達した後はガス比を余り上げ過ぎても意味がないことがわかる. 還元率の低い成品を得るためには, 操作線図における操作線の傾きが低い方向すなわち, ガス量が少なくよくこの比例関係が成立するが, ガス比を余り増してもそれ以上還元がすすまない限界に達し以後余剰のガスが無駄に使用される.

還元ガス温度を上げることによつて H₂ 還元の還元ポテンシャルが増加し操作線が W 点に近づくためガス比-還元曲線は左側に移行し経済的に有利な方向に向かう.

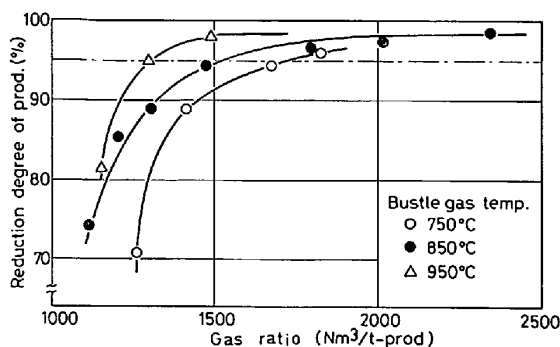


Fig. 7. Relation between degree of reduction of product and the gas ratio.

装入物の炉内滞留時間は理論的にはガス比-還元率曲線と無関係ではないが, Fig. 8 に示すごとく今回行つた還元温度を 850°C とする実験の炉内滞留時間 3~4 h の範囲ではとくにその影響は明確でなく, むしろガス比の影響が支配的であつた.

すなわちシャフト炉による還元では 4.2 項で述べたように, 還元反応そのものに要する時間は装入物ベッドの熱レベルがある値に達している限り比較的短かく, 重要なのはいかにしてベッドをその熱的レベルに到達させるかの熱交換の問題であり, これより還元温度またはガス比の影響が大であることが理解できる.

Fig. 9 はガス比とガス利用率の関係を示している. ガス利用率 η は羽口吹き込み還元ガス (CO, H₂) のうち酸化鉄の還元で使用される割合を示し, 次式により求めた.

$$\eta = \frac{W \cdot O_x \cdot R}{16G} \times 100\% \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここに

G : 還元ガスのモル流量 (kg-mol/h)

O_x : 原料ペレット中の O₂ 含有率 (-)

R : 成品還元率 (-)

W : 原料ペレット供給量 (kg/h)

Fig. 9 においてとくに 850°C 以上の高温還元で高い

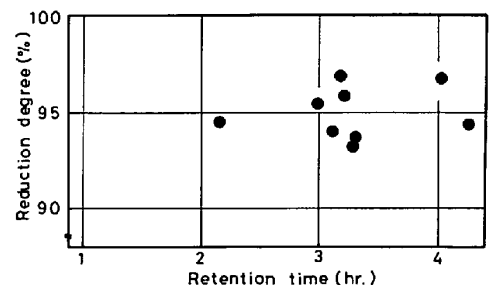


Fig. 8. Effect of retention time on the degree of reduction of products.

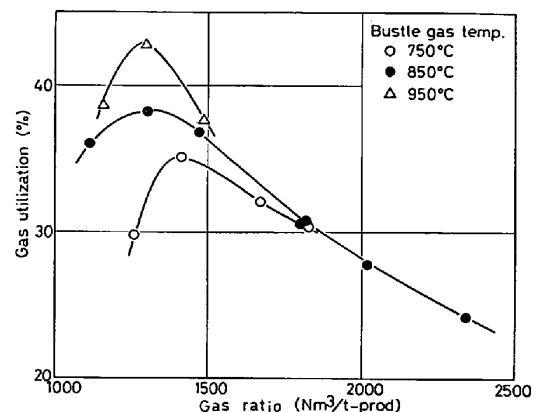


Fig. 9. Relation between the gas ratio and gas utilization.

ガス利用率が得られている。ガス利用率にピークが存在するのは高ガス比側では過剰に吹き込まれた還元ガスが利用されないこと、低ガス比側では羽口吹込ガスから炉内装入物ベッドへの熱移動が不十分になり還元反応速度が低下することによる。

以上のことから成品還元率を95%として、ガス比がもつとも低く、かつガス利用率からも有利なシャフト炉の操業条件を決定することができる。すなわち、

羽口還元ガス温度 (°C)	ガス利用率	ガス比 (Nm ³ /t-prod)
750	31	1750
850	36	1500
950	43	1300

したがってシャフト炉の操業においてクラスターの生成などによる制約を無視すれば、反応速度の点では高温還元が有利であると考えられる。

5.2.2 還元ガス中の H₂/CO 比の影響

還元ガス中の CO₂ 含有量を5%に維持し、還元ガス温度 850°Cにて H₂/CO 比を変更した場合の炉内温度分布、還元率分布の推移を Fig. 10 に示す。

実験室規模の固定層などによる酸化鉄の還元実験では通常還元温度を外熱方式で人為的に維持することから H₂ による還元が CO による還元比べて還元完了時間が短い。しかし装入物ベッドの温度維持を主として還元ガスの顕熱に依存している移動層としてのシャフト炉を

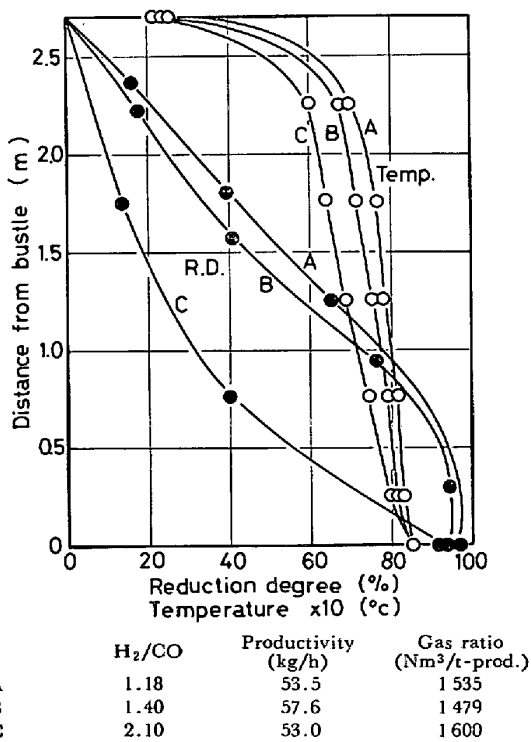


Fig. 10. Effect of H₂/CO of reducing gas on the reduction behavior in the shaft furnace.

総括的にみた場合、H₂還元にもなる吸熱反応の熱的影響を無視することができない。Fig. 10 に示されるごとく、H₂/CO 比が高まるとベッドの温度維持がむずかしくなり、結果として還元完了時間が長くなる傾向を示す。

実機シャフト炉の還元ガス組成はプロセスに適用するガスリフォーミング方法でほぼ決定されるといつてよく、その範囲は H₂/CO 比で 1.0~4.0 の範囲でプロセスによつてかなり異なっている。

還元ガス中の H₂/CO 比と還元ガス温度の関係については H₂/CO 比が高い場合には炉内における吸熱反応を補償するため還元ガス温度を高めるか、ガス量を増すなどの処置が必要であろう。H₂/CO 比が低い場合にはやや還元ガス温度が低くても装入物ベッドの温度維持が容易になるが、いつぼうにおいて炭素析出の影響などに注意すべきと考えられる。

5.2.3 還元ガス中の酸化性ガス濃度の影響

還元ガス中の酸化性ガス (CO₂, H₂O) の濃度が高いことは還元反応に対しては当然不利であるが、還元ガスの製造工程をも含むトータルシステムとしての経済性を考慮すると、あまり酸化性ガスの濃度を下げることが必ずしも妥当でない場合もある。

還元ガス中にある程度の酸化性ガスの存在が許容されればガスリフォーミング工程にとつても、またシャフト炉炉頂ガスを循環使用する面においても有利な点が多い。

やや実用的な見地から還元ガス中の還元性ガスと酸化性ガスの比をもつて R 値と称される。

$$R \text{ 値} = \frac{\text{CO} + \text{H}_2}{\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}}$$

Fig. 11 は還元ガス温度を 850°C としガス比, 生産量

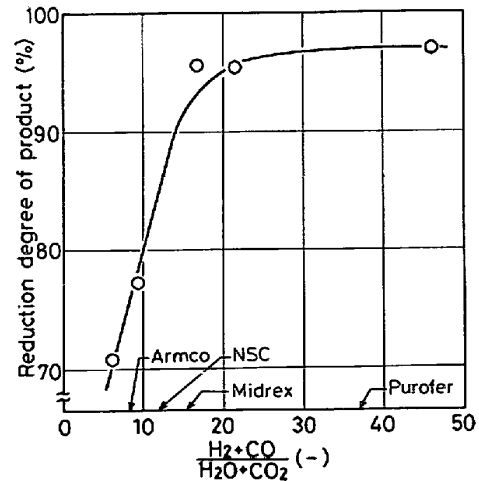


Fig. 11. Effect of (H₂+CO)/(H₂O+CO₂) on reduction degree of products. (S Pellet)

をほぼ一定とした操業にて R 値が成品還元率におよぼす影響をみたものである。また参考として文献^{13)~15)}からみた各種シャフト炉プロセスの R 値を示している。

R 値が 15 以上ではあまり還元ガス濃度を上げてても成品還元率は変わらないが 15 以下では還元が急激に悪くなることがわかる。したがって R 値は 15 以上確保することが望ましい。

6. 結 言

還元鉄生産能力 1.5 t/d, 内径 250 mm, 還元帯長さ 2.7 m の実験用シャフト炉を使用して還元鉄の製造実験を行った結果次のことが明らかにされた。

(1) シャフト炉壁からの損失熱量は吹込還元ガスが有する熱量の 5% 以下におさえることが可能であった。

また代表的操業条件におけるシャフト効率やシャフト炉生産性などから判断して実機シャフト炉の炉内挙動とほぼ対応しうるデータを採取しうることがわかった。

(2) 成品還元率が一定値に達するまではガス比と還元率は比例関係にあり、それ以後はガス比を高めても還元率にほとんど変化がみられない。

還元ガス温度と目標とする成品還元率を考慮して適正なガス比を選択することが経済的に重要である。

(3) 還元ガス温度を上昇させることによりシャフト炉内ガス利用率を高めることが可能で、少ないガス量で高い還元率を得ることができる。

(4) 還元ガス中の H_2/CO 比を高めることによつてシャフト炉内の吸熱反応が増し、装入物ベッドの温度が低下するため、装入物の降下速度をおそくしないと目標還元率が得られない。

還元ガスの H_2/CO 比を高めた場合には還元温度を下げるか、ガス量を増すなどの対策が必要である。

(5) 還元ガスの R 値は 15 以下では炉内における還元が急激におそくなる傾向を示すため、15以上を確保することが望ましい。

本シャフト炉を用いて実施した研究として各種酸化鉄原料の還元挙動、シミュレーション解析とその大型炉への適用などについても引き続き機会をみて報告したい。

終わりに本研究を遂行するにあたり、数々のご助言をいただいた東北大学選鉱製錬研究所、大森康男教授、高橋愛和教授、高橋礼二郎助手の方々に深甚なる謝意を表します。

文 献

- 1) T. SUGENO, K. SHIMOKAWA, and K. TSURUOKA: Iron Steel Eng., Nov. (1976), p. 40
- 2) R. H. SPITZER, F. S. MANNING, and W. O. PHILBROOK: Trans. Met. Soc. AIME, 242 April, (1968), p. 618
- 3) Q. T. TSAY, W. H. RAY, and J. SZEKELY: AIChEJ, 22 (1976) 6, p. 1064
- 4) J. YAGI and J. SZEKELY: Trans. ISIJ, 17 (1977), p. 568
- 5) 原 行明, 坂輪光弘, 近藤真一: 鉄と鋼, 62 (1976) 3, p. 315
- 6) 原 行明, 橋爪利夫, 石川英毅, 相田晴美: 製鉄研究, 289 (1976), p. 11908
- 7) 柳谷敏夫, 大森康男: 学振 54 委 1399 化工小委 83 1976 年 1 月
- 8) 神原健二郎, 下村泰人, 九島行正, 大槻直樹, 宮下 覚: 鉄と鋼, 64 (1978), S457
- 9) 岡部俠児, 浜田尚夫: 化学工学, 41 (1977) 11, p. 569
- 10) A. FAUCHER, A. H. MARGUIS, and T. E. DANCY: I&SM, May (1979), p. 35
- 11) A. RIST, N. MEYSSON: IRSID-RE 93 and RIS, Jan. (1965)
- 12) 志垣一郎, 八木順一郎, 高橋礼二郎, 大森康男, 西田礼次郎: 東北大学選鉱製錬研究所彙報, 32 (1976) 1, p. 32
- 13) H. D. PANTKE: Rev. Mét. Nov. (1945), p. 811
- 14) H. HOLIDAY: IISI, Oct. (1973) Johannesburg, South Africa
- 15) Nippon Steel Corp.: NSC Direct Reduction Process, May (1978)