

論文 回転炉による直接製鉄プロセスのモデル化

肖 興 国*・桑原 守*・鞭 巖*²

Mathematical Modelling for Process of Direct Reduction of Iron Ore by Rotary Kiln

Xing-guo XIAO, Mamoru KUWABARA and Iwao MUCHI

Synopsis :

A mathematical model for the process of direct reduction of iron ore (DRI Process) by rotary kiln has been developed to predict the axial distribution of process variables for Case 1 (i.e., the case with the feedings of auxiliary air and carbonaceous materials along the axis of the kiln) and for Case 2 (i.e., the case without these feedings).

Direct reduction of hematite by solid carbon, combustion of coal or coke in the solid bed, combustion of heavy oil in the freeboard which is fed from burner and combustion of CO evolved from the bed are taken into account together with the heat and mass transfer processes.

Applicability of the model has been verified by comparison of the calculated results of fractional reduction or solid-bed temperature with the experimental results obtained by the other investigators. The model has been applied to investigate the effects of the flow-rate ratio of solid to gas and that of carbon to ore on the axial distribution of process variables.

1. 結 言

回転炉の数学的モデルに関する研究は少ないが、従来、セメントと酸化アルミナの焼成プロセスに関しては、SAAS¹⁾、SPRANG²⁾、MANITIUS³⁾らの報告がある。また、BRIMACOMBEら⁴⁾は、SL/RNプロセスの理論解析を発表している。CROSSら⁵⁾や西田ら⁶⁾は、鉄鉱石のペレットを生産するための回転炉について伝熱モデルを発表した。富田ら⁷⁾は、回転炉によるニッケル鉱石還元について、反応を一次反応とみなし、実測の温度分布に基づいて見かけの反応速度定数を求めている。下里ら⁸⁾は、回転炉による鉄鉱石の直接還元プロセスを、固定層における非定常過程として模擬し、実験に基づいて還元機構を検討している。しかしながら、これらの研究の大部分は、主に、伝熱、化学反応過程、粒子の挙動などの個々の過程の解明、あるいは、乾燥や熱分解といった比較的単純なプロセスのモデル化を目的としており、回転炉による直接製鉄プロセスを対象にした数学的モデルとしては、BRIMACOMBEら⁴⁾のモデルしか見当たらない。このモデルでは、キルンの中間位置で還元炭材を装入しない操業を取り扱っており、フリーボード(粒子層上方の空間)を流れる空気による還元炭材の燃焼を考慮していないし、バーナーの燃焼反応については記述がな

い。また、モデルの詳細な数式表現が示されていない。

本研究では、回転炉内の化学反応を考慮した熱および物質の微分収支、および、総括の熱収支と物質収支に基づいて、鉄鉱石の直接還元プロセスの数学的モデルを展開した。本モデルでは、キルンの中間位置で、炉壁を通して補助還元用炭材を供給する場合、および、フリーボードで補助バーナーから空気を供給して、COガスを燃焼させる場合、あるいは、これらの供給がない場合の操業についても計算ができるようにした。計算結果に基づいて、プロセス変数の軸方向分布に及ぼす操業条件変更の効果についても検討した。

2. 数学的モデル

2.1 系の設定と仮定

数学的モデルを誘導するに当たって、次の仮定を設ける。

(1) Fig. 1 に鉄鉱石還元用回転炉の模式図を示すが、炉の途中には、フリーボードの気流中のCOを燃焼させるための空気を供給するエアポート(AP)と、還元用炭材を補給するスクープ・フィーダー(SF)が設置されている。

(2) 操業は定常状態になっている。

(3) 気流および粒子層はともに押し出し流れとし、

昭和 60 年 9 月 19 日受付 (Received Sep. 19, 1985)

* 名古屋大学工学部 (Faculty of Engineering, Nagoya University, Furo-cho Chikusa-ku Nagoya 464)

*² 名古屋大学工学部 工博 (Faculty of Engineering, Nagoya University)

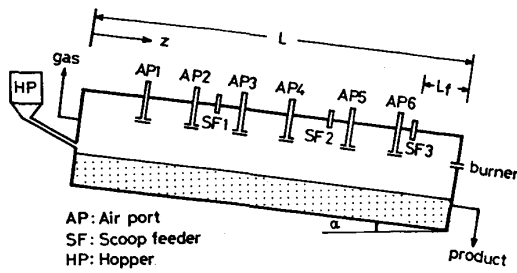
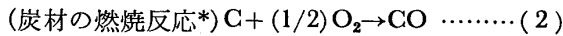
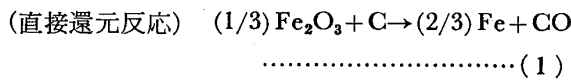


Fig. 1. Schematic diagram of rotary kiln.

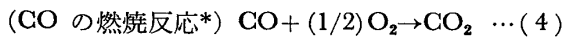
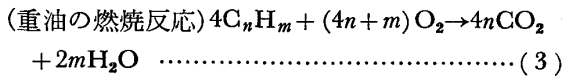
いずれも、炉軸に垂直な断面内での分布は無視する。

(4) 考慮する反応は次の四つとする。

粒子層での反応：



気流中での反応：



ここで、 C_nH_m は重油の見かけの分子式である。なお、AP と SF が設置されていない場合には、*記号がついている反応は考慮しない。

(5) 粒子層内の直接還元反応で生成した CO ガスは、すべて気流中に排出されるとし、その CO 発生のために粒子層内のガス成分は CO と CO_2 のみとする。

2.2 反応速度

(1) 直接還元反応

鉄鉱石の固体炭素による直接還元反応については、適当な反応速度式が見当たらないので、ここでは、下里ら⁸⁾によつて、実験で確認されている評価方法を採用する。すなわち、直接還元反応を、間接還元反応 ($(1/3)Fe_2O_3 + CO \rightarrow (2/3)Fe + CO_2$) とソリュージョンロス反応 ($CO_2 + C \rightarrow 2CO$) の和とみなす。すなわち、粒子層で還元反応により生成する CO_2 は直ちに固体炭素と反応して消費されると考える。これらの反応の総括反応速度 R^* と R_c^* を鞭ら⁹⁾の式で表し、前節(5)の仮定から $y_{sCO} + y_{sCO_2} = 1$ を考慮すれば、次式が得られる。

$$R^* = R_c^* = k_1'(y_{sCO} - y_{sCO}^*) = k_c'(1 - y_{sCO}) \quad \dots (5)$$

ただし、

$$y_{sCO}^* = 1 / (K_1 + 1) \quad \dots (6)$$

$$k_1' \equiv \frac{\pi d_{p1}^2 \phi_1^{-1} N_1 P / R t_s}{1/k_{f1} + (d_{p1}/2) \{ (1-f_1)^{-1/3} - 1 \} / D_{s1} + \{ (1-f_1)^{2/3} / 3k_1 (1+1/K_1) \}^{-1}} \quad \dots (7)$$

$$k_c' \equiv \frac{\pi d_{pc}^2 \phi_c^{-1} N_c P / R t_s}{1/k_{fc} + 6/d_{pc} \rho_c E_{fc}} \quad \dots (8)$$

(5)式から、粒子層内の CO 組成 y_{sCO} は

$$y_{sCO} = (k_c' + k_1' y_{sCO}^*) / (k_1' + k_c') \quad \dots (9)$$

(9)式の y_{sCO} を(5)式に代入すると、直接還元反応速度 R^* が求められる。(7)式と(8)式中の各項の推算には次の(10)式～(29)式⁹⁾を使用した。

$$k_{f1} = (Sh) D_1 / d_{f1} \quad \dots (10)$$

$$D_1 = 7.29 \times 10^{-5} t_s^{1.78} / P \quad (t_s < 848 \text{ K}) \quad \dots (11)$$

$$D_1 = 7.29 \times 10^{-5} t_s^2 / P \quad (t_s > 848 \text{ K}) \quad \dots (12)$$

$$D_{s1} = D_1 \varepsilon_{v1} \xi_1 \quad \dots (13)$$

ただし、 $\varepsilon_{v1} = 0.53 + 0.47 \varepsilon_{p1}$ (14),

$$\xi_1 = 0.238 \varepsilon_{p1} + 0.04 \quad \dots (15)$$

$$k_1 = 9.64 \times 10^{-2} \exp(-3460/t_s) \quad \dots (16)$$

$t_s \leq 848 \text{ K}$ のとき

$$f_s < 0.111 : K_1 = \exp(4.91 + 6235/t_s) \quad \dots (17)$$

$$t_s > 0.111 : K_1 = \exp(-0.7625 + 543.3/t_s) \quad \dots (18)$$

$t_s > 848 \text{ K}$ のとき

$$f_1 < 0.111 : K_1 = \exp(4.91 + 6235/t_s) \quad \dots (19)$$

$$0.111 < f_s < 0.333 : K_1 = \exp(2.13 - 2050/t_s) \quad \dots (20)$$

$$f_1 > 0.333 : K_1 = \exp(-2.462 + 2164/t_s) \quad \dots (21)$$

$$k_{fc} = (Sh) D_c / d_{pc} \quad \dots (22)$$

$$D_c = 6.29 \times 10^{-5} t_s^{1.78} / P \quad \dots (23)$$

$$E_f = 3(m' \cdot \coth m' - 1) / m'^2 \quad \dots (24)$$

$$m' \equiv (d_{pc}/2) \sqrt{\rho_c k_c / D_{sc}} \quad \dots (25)$$

ここで、 $D_{sc} = D_c \varepsilon_c \xi_c$ (26), $\varepsilon_c = 0.45$ (27),

$$\xi_c = 0.04 + 0.238 \varepsilon_c \quad \dots (28)$$

$$k_c = 8.31 \times 10^9 \exp(-40260/t_s) \quad \dots (29)$$

なお、(10)、(22)式中のシャウウッド数 Sh は、粒子層中での若干の気流の存在を考慮して、 $Sh = 4.0$ とする。

(2) 粒子層での炭素の燃焼反応

AP から、気流中の CO の燃焼に必要な酸素量以上の過剰な空気を供給すれば、炭材の部分燃焼による発熱が固体温度の上昇に寄与する。炭材の燃焼速度は、実機のシミュレーションの経験に基づいて次のように仮定した。

$$R_c^* = 0.5 F'_{ga} / A_s \quad \dots (30)$$

(30)式の仮定は、たとえば、補給される空気流量の12%が粒子層表面付近の炭材の燃焼に利用されるとすると、この際、燃焼する炭材は粒子層の断面積の1/10程度の面積を占める量に相当することを意味している。

(3) 重油の燃焼

重油バーナーの燃焼については、適切な反応速度式が

見当たらず、厳密な速度論的解析も困難である。ここでは、モデルを単純化するために、火炎長さについては従来報告されている経験式¹⁰⁾ ($l_f/d_0=320\sim 500$) を採用する。また、重油の燃焼速度は、酸素の濃度の一次に比例すると仮定する。すなわち、

$$R_3^* = (F_g/A_g) dy_{O_2}/dZ = k_3 (F_g/A_g) y_{O_2} \dots (31)$$

速度定数 k_3 は、 $Z=l_f$ で $y_{O_2}=y_{O_2,f}$ 、 $Z=L$ で $y_{O_2}=0.21$ という境界条件を適用して決定しておく。

$$\therefore k_3 = -\ln(y_{O_2,f}/0.21)/l_f \dots (32)$$

(4) 気流中での CO の燃焼

気流中に過剰空気が存在すれば、還元反応と炭素の燃焼によつて気流中に排出される CO が直ちに燃焼して消失することが推定される。すなわち、

$$R_4^* = (R_4^* A_s + R_4^* A_{s1})/A_g \dots (33)$$

2.3 物質収支

回転炉内の微小要素の回りで粒子層と気流部分のそれぞれについて物質収支を考える。

(1) 粒子層における物質収支式

$$dF_s/dZ = F_{sc}' - (2/3)R_1^* A_s - R_2^* A_{s1} \dots (34)$$

$$dF_{Fe_2O_3}/dZ = -1/3R_1^* A_s \dots (35)$$

$$dF_{Fe}/dZ = 2/3R_1^* A_s \dots (36)$$

$$dF_c/dZ = F_{sc}' - R_1^* A_s - R_2^* A_{s1} \dots (37)$$

(2) 気流部分における物質収支式

$$dF_g/dZ = -F'_{ga} - R_1^* A_s - 0.5(R_2^* A_{s1} - R_4^* A_g) - \{m/(4n+m)\} \cdot R_4^* A_g \dots (38)$$

$$dF_{CO_2}/dZ = -\{4n/(4n+m)\} R_4^* A_g - R_4^* A_g \dots (39)$$

$$dF_{CO}/dZ = -R_1^* A_s - R_2^* A_{s1} + R_4^* A_g \dots (40)$$

$$dF_{O_2}/dZ = -0.2/F_{ga}' + 0.5(R_2^* A_{s1} + R_4^* A_g) + R_4^* A_g \dots (41)$$

$$dF_{H_2O}/dZ = -\{2m/(4n+m)\} \cdot R_4^* A_g \dots (42)$$

2.4 伝熱と熱収支

(1) 伝熱機構と伝熱長さ

軸方向の伝導と輻射の伝熱は無視する。半径方向の各伝熱面の単位炉軸長さ当たりの面積を伝熱長さとして定義する。おのおのの伝熱長さは Fig. 2 に示してある。それらは、次のように幾可学的に求められる¹³⁾。

$$\left. \begin{aligned} A_1 &= \pi D_i (1 - \theta/2\pi), & A_2 &= D_i \sin(\theta/2), \\ A_3 &= D_i \theta/2, & A_4 &= \pi (D_i + l_w/2), \\ A_5 &= \pi D_o \end{aligned} \right\} \dots (43)$$

(2) 熱収支式

回転炉の微小部分の回りで熱収支を行う。

気流中での熱収支式：

$$dt_g/dZ = \{q_{gw} + q_{gs} - (q_{og}' + q_g + q_{sg}') -$$

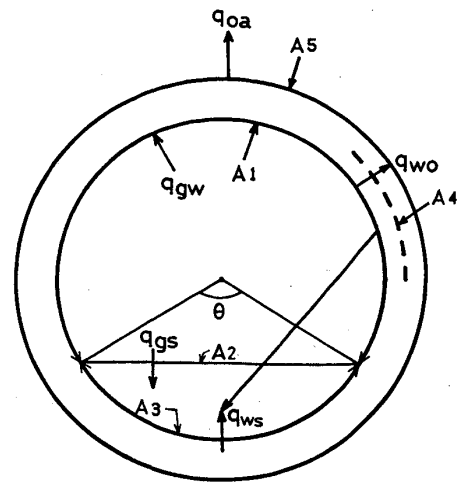


Fig. 2. Schematic illustration of heat transfer in the cross section of rotary kiln.

$$c_g t_g dF_g/dZ\} / F_g (c_g + t_g dc_g/dt_g) \dots (44)$$

粒子層での熱収支式：

$$dt_s/dZ = \{(q_{ws} + q_{gs} + q_{os}' + q_s) - q_{sg}' - c_s t_s dF_s/dZ\} / F_s (c_s + t_s dc_s/dt_s) \dots (45)$$

半径方向での熱収支式：

$$q_{gw} - q_{ws} = q_{wo} = q_{oa} \dots (46)$$

(44) ~ (46) 式中の各項は次式から求められる。

伝熱に基づく項：

$$\left. \begin{aligned} q_{gw} &\equiv U_1 A_1 (t_g - t_w), & q_{gs} &\equiv U_2 A_2 (t_g - t_s), \\ q_{ws} &\equiv (U_3 A_3 + U_6 A_2) (t_w - t_s), \\ q_{wo} &\equiv U_4 A_4 (t_w - t_o), & q_{oa} &\equiv U_5 A_5 (t_o - t_a) \end{aligned} \right\} \dots (47)$$

ただし、総括伝熱係数 U は次のように定義される。

$$\left. \begin{aligned} U_1 &\equiv h_{cgw} + h_{rgw}, & U_2 &\equiv h_{cgs} + h_{rgs}, \\ U_3 &\equiv h_{cws}, & U_4 &\equiv h_{wo}, \\ U_5 &\equiv h_{coa} + h_{roa}, & U_6 &\equiv h_{rws} \end{aligned} \right\} \dots (48)$$

物質移動に基づく項：

$$\left. \begin{aligned} q_{og}' &\equiv c_a t_a F_{ga}', & q_{os}' &\equiv c_c t_c F_{sc}', \\ q_{sg}' &\equiv (R_1^* A_s + R_2^* A_{s1}) t_s c_{CO} - 0.5 R_2^* A_s c_{O_2} \end{aligned} \right\} \dots (49)$$

反応に基づく項：

$$\left. \begin{aligned} q_{rg} &\equiv \{R_3^* (-\Delta H_3) + R_4^* (-\Delta H_4)\} A_g, \\ q_s &\equiv R_1^* A_s (-\Delta H_1) + R_2^* A_{s1} (-\Delta H_2) \end{aligned} \right\} \dots (50)$$

(46) 式と (47) 式から内壁および外壁の温度を算出する式が次のように得られる。

$$t_w = \frac{(U_4 A_4 + U_5 A_5) (U_1 A_1 t_g + U_3 A_3 t_s + U_6 A_2 t_s) + U_4 A_4 U_5 A_5 t_a}{(U_4 A_4 + U_5 A_5) (U_1 A_1 + U_3 A_3 + U_6 A_2) + U_4 A_4 U_5 A_5} \dots (51)$$

$$t_o = (U_4 A_4 t_w + U_5 A_5 t_a) / (U_4 A_4 + U_5 A_5) \dots (52)$$

3. パラメーターの評価

3.1 気流, 粒子層, 内壁間の伝熱係数

(1) 対流伝熱係数

気流・内壁間の伝熱係数には次式¹¹⁾を採用した。

$$h_{c_{gw}} = 66.6(G_g/4.84A_g)^{2/3} \dots (53)$$

粒子層・内壁間の対流伝熱については, 流れを伴わない場合の充填層の有効熱伝導度の推算式¹²⁾から各温度での伝熱係数 $h_{c_{ws}}$ を算出し, t_s 対 $h_{c_{ws}}$ のプロットに基づいて最小二乗法によつて求めた(54)式¹³⁾を使用した。

$$h_{c_{ws}} = 0.976(t_s/100)^2 - 10.5(t_s/100) + 67.4 \dots (54)$$

粒子層表面における気流・粒子層間の伝熱については, (55)式¹⁴⁾を使用した。

$$Nu \equiv h_{c_{gs}} d_p / \lambda_g = 2.0 + 0.6(d_p G_g / \mu_g A_g)^{1/2} \cdot (c_p \mu_g / \lambda_g M_g)^{1/3} \dots (55)$$

(55)式中の混合ガスの物性値は温度関数で評価した。

(2) 物質 i, j 間の放射伝熱係数

$$h_{r_{ij}} = 5.67 \times 10^{-8} \zeta_{ij} (t_i^4 - t_j^4) / (t_i - t_j), \quad (i, j) = (g, w), (g, s), (w, s) \dots (56)$$

(56)式中の有効黒度 ζ については, 二種類の灰色体の閉じた系における推算式¹⁰⁾を採用した。すなわち,

$$\zeta_{gw} = \eta_g \eta_w \{1 + F_{ws}(1 - \eta_g)(1 - \eta_s)\} / \gamma \dots (57)$$

$$\zeta_{gs} = \eta_g \eta_s \{1 + F_{ws}(1 - \eta_g)(1 - \eta_w)\} / \gamma \dots (58)$$

$$\zeta_{ws} = \eta_w \eta_s (1 - \eta_g) / \gamma \dots (59)$$

$$\gamma \equiv 1 - F_{ww}(1 - \eta_g)(1 - \eta_w) - F_{ws}(1 - \eta_g)^2 \cdot (1 - \eta_w)(1 - \eta_s) \dots (60)$$

ただし, 形態係数は $F_{ws} \equiv A_2/A_1$, $F_{ww} \equiv 1.0$ と表される。

黒度 η_w と η_s の値は一定とみなして, $\eta_w = \eta_s = 0.85$ を採用した。熱放射性ガスとしては, CO_2 だけを考慮し, ガス出口から火炎の先端まで CO_2 の平均分圧 P_{CO_2} を 0.06 atm (6.1 kPa) とし, ガスの有効厚さを内径の 90% とする。 η_{CO_2} と温度との関係の線図¹⁶⁾を利用して求めたガス黒度 η_g の値を $t_g \leq 1273 \text{ K}$ では $\eta_g = 0.09$ とし, 火炎領域では $\eta_g = 0.05$ とした。それ以外の温度域では, (61)式から算出した。

$$\eta_g = \exp(-8.664 \times 10^{-4} t_g - 1.305) \dots (61)$$

3.2 内壁・外壁間の伝熱

ここでは, 伝熱係数を次式で表した。

$$h_{w0} = 2\lambda_w / (D_o - D_i) \dots (62)$$

3.3 外壁と周囲空気間の伝熱

回転炉の外表面での伝熱係数としては, ここでは, 一定の値 $h_{c_{oa}} = 10.5$ を用いたが, この数値は風速 5 m/s 以下の場合の実験式¹⁷⁾から推算した。放射伝熱係数とし

ては,

$$h_{r_{oa}} = 5.67 \times 10^{-8} \eta_w (t_o^4 - t_a^4) / (t_o - t_a) \dots (63)$$

3.4 原料の炉内平均移動速度

回転炉における粒子の平均移動速度 \bar{u}_m の推算式はいくつか発表されているが, ここでは, (64)式¹⁷⁾を採用する。

$$\bar{u}_m = 0.0385 D_i N (\alpha/\beta)^{0.85} \dots (64)$$

3.5 粒子層の断面積と粒子層表面の張る角

Fig. 2 から, 粒子層の断面積 A_s は, 粒子層表面の張る角 θ の関数として(65)式で表される。

$$A_s = \pi(D_i/2)^2(\theta/2\pi) - (D_i/2)^2 \sin(\theta/2) \cos(\theta/2) = (D_i/2)^2(\theta - \sin \theta)/2 \dots (65)$$

ここでは, θ を A_s の関数で表す必要があるで, $\sin \theta$ を近似的に θ の二次式で表すと,

$$\sin \theta = (4/\pi^2) \theta (\pi - \theta) \dots (66)$$

が得られる。(66)式を(65)式に代入して整理すると,

$$\theta = (\pi/2 - \pi^2/8) + \sqrt{(\pi/2 - \pi^2/8)^2 + 2\pi^2 A_s / D_i^2} \dots (67)$$

となる。 A_s は次式から求められる。

$$A_s = F_s M_s / \rho_s \bar{u}_m \dots (68)$$

3.6 平均比熱

気流と粒子層の平均比熱は次式で示される。

$$c_j = \sum_i y_{ji} c_i, \quad (j = g, s) \dots (69)$$

各成分の平均比熱 c_i は温度関数として評価した。

4. 計算方法と境界条件

4.1 計算方法

本モデルの基礎式は, 一連の一階常微分方程式と代数方程式からなっているが, 差分法によつて数値計算できる。本モデルのフローチャートを Fig. 3 に示した。軸方向の分割数が 400 の場合, 計算所要時間は名古屋大学大型計算機センター FACOM-M382 電算機で約 20 s である。

4.2 境界条件の設定

粒子の入口 ($Z=0$) から計算を始める場合, 初期値は次のようにして求められる。

(1) 組成

粒子層の組成は実操業のデータにより与えられるが, 気流のそれは回転炉全長にわたる総括物質収支によつて得られる。すなわち, 重油バーナーによる燃焼生成ガスのモル流量を $F_{i,f}$ ($i = \text{CO}_2, \text{H}_2\text{O}, \text{O}_2, \text{N}_2$), 直接還元反応と炭材の直接燃焼により気流中に排出される CO のモル流量を, それぞれ, Y_1 と Y_2 , 気流中の CO 燃焼によつて生成する CO_2 のモル流量を Y_3 とすると, ガス出口でのガスのモル流量は(70)~(74)式で表される。

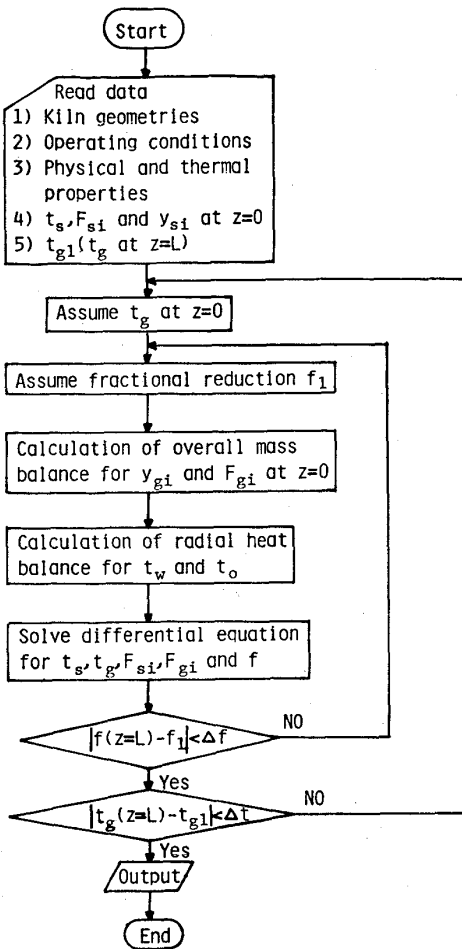


Fig. 3. Flow chart for numerical solution.

$$F_{CO,0} = Y_1 + Y_2 - Y_3 \dots\dots\dots (70)$$

$$F_{CO_2,0} = F_{CO_2,f} + Y_3 \dots\dots\dots (71)$$

$$F_{H_2O,0} = F_{H_2O,f} \dots\dots\dots (72)$$

$$F_{O_2,0} = F_{O_2,f} + 0.21F_{ga'} - 0.5(Y_2 + Y_3) \dots (73)$$

$$F_{N_2,0} = F_{N_2,f} + 0.79F_{ga'} \dots\dots\dots (74)$$

なお、前述した本モデルの仮定によると、APがない場合には、 $Y_2 = Y_3 = 0$ 、APがある場合には、 $Y_2 = 0.05 F_{ga'}$ 、 $Y_3 = Y_1 + Y_2$ である。 Y_1 、したがって、粒子入口でのガス流量 $F_{i,0}$ は、試行錯誤計算によつて求めることができる。

(2) 温度

粒子入口におけるガス温度も、2点境界値問題としての試行錯誤計算によつて決定できる。

5. 計算結果

5.1 計算条件とデータ

本モデルの妥当性を検証するために、まず、実操業のプロセスのシミュレーションを行った。

ここでは、APとSFが設置されている下里ら¹⁸⁾の鉄鉱石還元の実験炉操業 (Case 1) と、APとSFが設

置されていない荒川ら¹⁹⁾の砂鉄の予備還元操業 (Case 2) とを対象にした。それらの装置条件と操業条件を Table 1 と Table 2 に示した。これら二種類のプロセスに使われる重油成分の分析値から推算した重油の見かけの分子式と、空間率、密度などの物性値は Table 3 に示した。なお、粒子層の動的状態における傾斜角 β は 20° 程度と推定した。

装入鉱石ごとの還元反応速度データは不明なため、ここでは、鉄鉱石と砂鉄のいずれの還元に対しても、2.2節の(1)で示した速度式が適用できるとし、それらの還元速度の差異は初期還元率のみに依存すると仮定した。

5.2 Case 1 (空気と炭材を補助供給する場合)の結果

ここでは、下里らの試験炉操業のシミュレーションを行う際、APとSFから供給される空気と還元用炭材の

Table 1. Specification of rotary kiln.

	Case 1	Case 2
Total length (m)	31	46
Inside diameter (m)	1.8	2
Outside diameter (m)	2.2	2.3
Inclination (deg)	2.3	2.0
Number of air port	6	0
Number of scoop feeder	3	0

Table 2. Operating conditions.

	Case 1	Case 2
Pressure in kiln (MPa)	0.1013	0.1013
Air flow rate from burner (mol/s)	12.7	83.4
Oil flow rate from burner (kg/s)	0.0235	0.145
Ore feed rate (kg/s)	0.556	1.706
Carbon feed rate (mol/s)	6.86	23
Air flow rate from AP (mol/s)	53.2	0.0
Carbon feed rate from SF (mol/s)	10.97	0.0
Revolution (r. p. m.)	0.33	0.22~1.2
Solid temperature at Z=0 (K)	323	303

Table 3. Physical properties of raw materials.

	Case 1	Case 2	
Ore	Voidage (-)	0.3	0.3
	Shape factor (-)	1.0	1.0
	Bulk density (kg/m ³)	2000	2000
Coke	Voidage (-)	0.5	0.5
	Shape factor (-)	1.0	1.0
	Bulk density (kg/m ³)	500	500
Oil	Apparent molecular formula	C ₂ H ₃	C ₆ H ₇

Table 4. Enthalpy of reactions.

Reaction formula	ΔH
(1/3) Fe ₂ O ₃ + C = (2/3) Fe + CO	171.2 kJ/mol (CO)
C + (1/2) O ₂ = CO	-393.7 kJ/mol (CO)
CO + (1/2) O ₂ = CO ₂	-280.6 kJ/mol (CO)
(1/6.75) C ₅ H ₇ + O ₂ = (5/6.75) CO ₂ + (3.5/6.75) H ₂ O	-430.7 kJ/mol (O ₂)
(2/5.5) C ₂ H ₃ + O ₂ = (4/5.5) CO ₂ + (3/5.5) H ₂ O	-431.9 kJ/mol (O ₂)

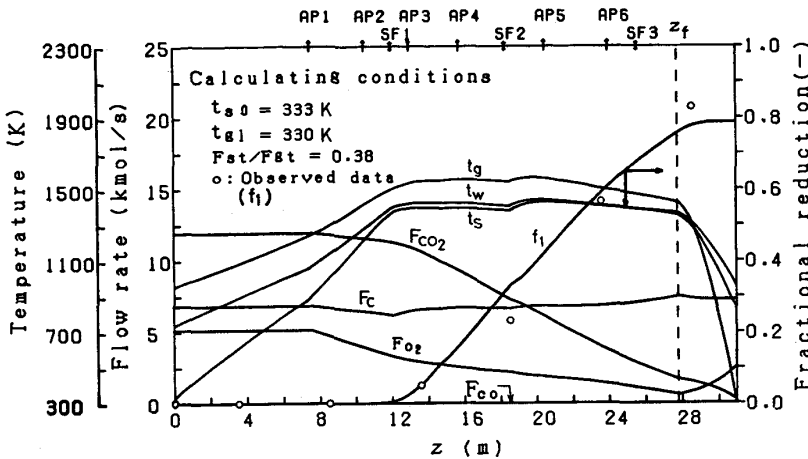


Fig. 4. Calculated results of temperatures of gas, wall and bed, flow rates (F_C , F_{CO_2} , F_{CO} and F_{O_2}), and fractional reduction (Case 1).

全流量は、それぞれ、AP のある区間と SF のある区間にわたって連続的に均一に供給されると仮定した。また、実炉での炉内径は、 $Z < 17\text{ m}$ では 1.7 m 、それ以上では 2.0 m となっているが、ここでは、平均径を採用した。計算結果は、還元率の実測値とともに Fig. 4 に示してある。なお、AP と SF の位置は図中に示してある。

Fig. 4 によれば、粒子層の温度分布は三種類の段階に分けられる。12m までは予熱と昇温段階とみなせるが、12m から 28m までは温度があまり変化しない反応段階と考えられ、この領域内で還元反応がほぼ完了する。28m 以後は降温段階である。気流の温度分布は大体粒子層のそれと対応して変化しているが、火炎領域に入ると粒子層よりも温度降下が急激になっている。

粒子層内での反応は、粒子の入口から約 7.5m まではほとんど進行しておらず、7.5m から 12m までは炭素の直接燃焼反応が始まり、炭素のモル流量が減少するが、12m 以後は補助的な炭材供給があるため炭素のモル流量は上昇する。14m 以後は、反応によって消費された炭素量は供給される量とほぼバランスしている。火炎領域に入ると、炭材の供給が停止されるため、炭素の流量が減少する。なお、粒子層内は強い還元性ふんい気になっているが、フリーボード中は酸化性のふんい気になっている。還元率の計算結果は実測値とよく一致している。

5.3 Case 2 (空気と炭材の補助供給をしない場合) の結果

Fig. 5 に、粒子層と気流の軸方向温度分布の計算結果、および、粒子層温度の実測値が示してある。計算結果は実測値と比較的良好に一致している。粒子の入口から 30m までは温度がゆるやかに上昇するが、30m 以後は高温領域になり、粒子比熱の上昇に伴って熱流比 (>1)

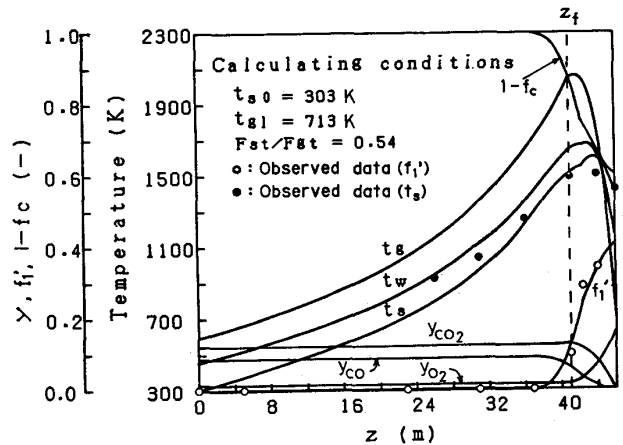


Fig. 5. Calculated results of temperatures of gas, wall and bed, concentrations of gas, and fractional conversions of iron ore and carbon (Case 2).

$$f_1' \equiv (f_1 - 1/9) / (1 - 1/9)$$

が上昇することによる温度分布の特性に、放射伝熱量が増加する効果が付加されるため、温度曲線の傾きが増加している。1373 K を越えると、層内の直接還元が活発となるため、吸熱の効果が粒子層の昇温を抑制するようになる。重油燃焼の火炎領域に入ると気流の温度が急激に低下するが、粒子層の温度低下は少ない。

Fig. 5 には、含チタン磁鉄鉱である砂鉄の、原鉱石基準の還元率 $f_1' \equiv (f_1 - 1/9) / (1 - 1/9)$ 、粒子層内の炭素の未反応率、および、気流のガス組成の計算値も、還元率の実測値とともに示してある。図からわかるように、還元率の計算結果は実測値とよく一致している。粒子の入口から 36m までは、還元はほとんど進行していないが、36m を越えると還元率が急激に増加する。粒子の出口の近くでは、温度低下と平衡定数の推算式の切りかえ†のため、還元速度が減少している。なお、炭素

† f_1' で表した還元率のウスタイトまでの変化は、 $(1/3 - 1/9) / (1 - 1/9) = 0.25$ である。

の転化率は直接還元機構に依存して還元率と対応する分布となつている。気流中のガス組成については、36m まではほとんど変わらないが、36m 以後は層内反応により CO が減少する。火炎領域に入ると、重油の燃焼により CO₂ が減少し O₂ が空気中のガス組成まで上昇してゆく。

5.4 操業条件変更の効果

(1) 粒子とガスの流量比の効果

粒子の供給速度を一定に保ち、バーナーで吹き込まれる空気流量を(重油)/(空気)比一定のもとで変えて計算した結果が Fig. 6 に示してある。図から、供給される粒子と空気中のモル流量比の変化に伴って、温度と還元率の軸方向分布がかなり変化することがわかる。すなわち、一定の粒子供給量のもとでガスの流量が増加すると、粒子層の昇温が急速に進行し、そのため、還元反応も促進されて高い還元率が得られる。ガス出口の温度は

ガスの流量の増加とともに高くなり、熱損失も増加する。

(2) 粒子層の配合比の効果

供給する粒子とガスのモル流量は一定に保つて、粒子層の配合比(すなわち、供給原料中の炭材のモル分率)を変えて計算した結果が Fig. 7 に示してある。炭材の配合率が増加すると、粒子の質量流量は減少する。炭材の供給量が量論値以上に存在する条件下では、炭材の配合率の増加に伴って粒子層の昇温が促進され、還元反応も促進される。

6. 結 言

回転炉による鉄鉱石や砂鉄の還元プロセスを対象にして数学的モデルを展開し、そのモデルに基づいて、AP と SF を設置して炉の中間で空気および炭材を供給する場合と、炉の中間でこれらを供給しない場合について、実操業結果のシミュレーションを行った。軸方向の温度分布と還元率分布については、計算結果と実測結果との間にかかなり良好な一致が得られた。粒子とガスの流量比および炭材配合比などの操業条件を変更した場合の効果についても、本モデルによつて検討した。本報の数学的モデルは、回転炉による直接製鉄の分野で、操業条件の決定および装置設計に有用になるものと考えられる。

三菱重工業(株)広島研究所の下里省夫氏と板野重夫氏より操業データの提供をいただいたこと、ならびに、当時学生の石黒明夫(現:東洋エンジニアリング(株)), 藤田康久(現:愛知製鋼(株))両氏に、本研究の推進に協力していただいたことに感謝の意を表します。

記 号

- A_i ($i=1\sim 5$): 単位長さ当たりの伝熱面積 (m^2/m)
- A_g, A_s : 気流と粒子層の断面積 (m^2)
- A_{s1} : 粒子層表面での炭材燃焼領域の断面積 (m^2)
- C_g, c_s : 気流と粒子層の比熱 ($kJ/k\ mol\cdot K$)
- D_i, D_o : 回転炉の内径と外径 (m)
- D_{s1} : 還元鉄相内の CO の粒内拡散係数 (m^2/s)
- D_{sc} : コークス粒内での CO₂ の粒内拡散係数 (m^2/s)
- D_1, D_c : CO と CO₂ の拡散係数 (m^2/s)
- d_{p1}, d_{pc} : 鉄石とコークスの粒子径 (m)
- d_o : バーナーのノズル径 (m)
- E_f : コークスと CO₂ との反応有効係数 (-)
- F_i : i 成分のモル流量 ($k\ mol/s$)
- F_g, F_s : 気流と粒子のモル流量 ($k\ mol/s$)
- F_{ga}', F_{sc}' : AP と SF から供給される単位回転炉長さ当たりの空気と炭材のモル流量 ($k\ mol/m\cdot s$)
- F_{ct}, F_{gt}, F_{st} : 供給される炭材, 空気と粒子の総モル流量 ($k\ mol/s$)
- F_{ws}, F_{ww} : 角関係(形態係数) (-)
- f_1, f_c : 鉄石の還元率と炭材の反応率 (-)
- G_g : 気流の質量流量 (kg/s)

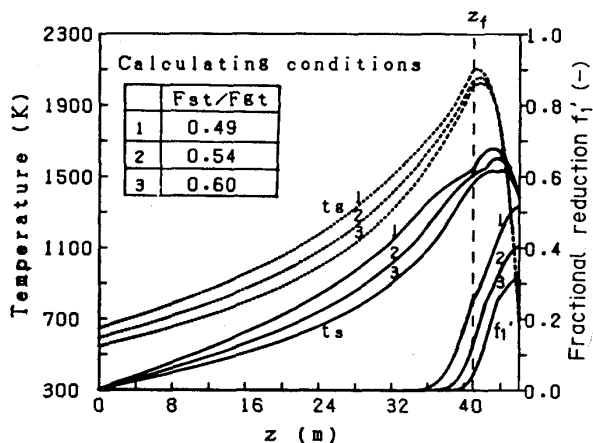


Fig. 6. Effect of the flow-rate ratio of solid to gas on temperature and fractional reduction at constant molar flow rate (Case 2).

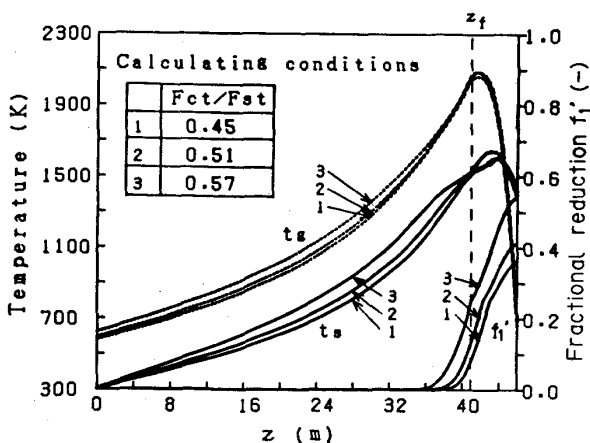


Fig. 7. Effect of the flow-rate ratio of carbon to ore on temperature and fractional reduction at constant gas and solid molar flow rate (Case 2).

ΔH_i : 反応のエンタルピー変化 (kJ/k mol)
 h_{ci}, h_{ri} : 対流と放射の伝熱係数 (kW/m²·K)
 K_1 : 還元反応の平衡定数 (-)
 k_1 : 還元反応の速度定数 (m/s)
 k_3 : 重油燃焼反応の速度定数 (1/m)
 k_c : ソリュション・ロス反応の速度定数 (m³/kg·s)
 k_{f1}, k_{fc} : 境膜物質移動係数 (m/s)
 L : 回転炉の全長 (m)
 l_f : 火炎領域の長さ (m)
 l_w : 壁の厚さ (m)
 M_g, M_s : ガスと粒子層の平均分子量 (kg/k mol)
 N : 回転速度 (r.p.m.)
 N_1, N_c : 鉱石とコークスの粒子層単位体積当たりの粒子数 (m⁻³)
 P : ガス圧力 (Pa)
 q_{ij} : i から j への単位炉長当たりの伝熱速度 (kW/m)
 q_{ij}' : i から j への物質移動に基づく単位炉長当たりの顕熱流量 (kW/m)
 $q_j (j=g, s)$: j 相での単位炉長当たりの発熱速度 (kW/m)
 R : 気体定数 (=8314.41) (J/K·k mol)
 R_i^* : 総括反応速度 (k mol/m³·s)
 t : 温度 (K)
 \bar{u}_m : 粒子の平均移動速度 (m/s)
 U : 総括伝熱係数 (kW/m²·K)
 y_i : i 成分のモル分率 (-)
 Z : 回転炉の粒子入口からの軸方向距離 (m)
 z_f : 回転炉の粒子入口から火炎先端までの距離 (m)
 α : 回転炉の傾斜角 (rad)
 β : 原料の安息角 (rad)
 $\epsilon_j (j=v_1, p_1, c)$: 鉱石と炭材の気孔率 (-)
 $\xi_i (i=1, c)$: 鉱石と炭材の迷宮度 (-)
 ζ_i : 有効黒度 (-)
 $\eta_i (i=g, s, w)$: 黒度 (-)
 θ : 粒子層の張る角 (Fig. 2 参照) (rad)
 λ_g : ガスの熱伝導度 (kW/m·K)
 μ_g : ガスの粘性係数 (Pa·s)
 ρ_b : かさ密度 (kg/m³(bed))
 ρ_g : ガス密度 (kg/m³)
 $\phi_j (j=1, c)$: 粒子の形状係数

(添字)

0 : $Z=L$, 1 : $Z=L$, c : 炭材, g : 気流, s : 粒子層,
 w : 内壁, o : 外壁, a : 空気. (例, gw : 気流から
 内壁へを表す)

文 献

- 1) A. SAAS: Ind. Eng. Chem., Process Des. Develop., 6 (1967), p. 532
- 2) H. A. SPRANG III: Automatica, 8 (1972), p. 309
- 3) A. MANITIUS, E. KURCYUSZ and W. KAWECKI: Ind. Eng. Chem., Process Des. Develop., 13 (1974), p. 132
- 4) V. VENKATESWARAN and J. K. BRIMACOMBE: Metal. Trans. B, 8B (1977), p. 387
- 5) M. CROSS and R. W. YOUNG: Ironmaking Steelmaking, 3 (1976), p. 129
- 6) 西田礼次郎, 谷村 亨, 山本芳宏: 鉄と鋼, 59 (1973), S 321
- 7) 富田源一, 西山 秀: 日本鉱業会誌, 77 (1961), p. 109
- 8) 下里省夫, 板野重夫, 白石成之: 鉄と鋼, 59 (1973), S 323
- 9) 鞭 巖, 森山 昭: 冶金反応工学, (1972), p. 230 [養賢堂]
- 10) 日・ソ通信社翻訳部: 工業用炉設計便覧 (1977), p. 272
- 11) J. H. PERRY: Chem. Eng. Handbook, 4th ed. (1963), p. 20 [McGraw-Hill]
- 12) 国井大蔵: 化学工学, 25 (1961), p. 891
- 13) 石黒明夫: 名古屋大学修士論文 (1973)
- 14) W. E. RANZ and W. E. MARSHALL, JR: Chem. Eng. Progress, 48 (1952), p. 141
- 15) 佐藤一雄: 物性定数推算法, 第5版 (1968), p. 84, p. 112 [丸善]
- 16) W. M. ROHSENOW and J. P. HARTNETT: Handbook of Heat Transfer (1973), p. 15 [McGraw-Hill]
- 17) W. W. ZABLOTNY: Int. Chem. Eng., 5 (1965), p. 360
- 18) 三菱重工業(株)広島研究所: 私信 (1984)
- 19) 荒川秀雄, 伊与田隆蔵: 鉄と鋼, 49 (1963), p. 1753, p. 1861