

# 薄板状炭材内装鉄鉱石成型体の還元における 鉄石及び石炭銘柄の影響

上城 親司\*・星 雅彦\*・川口 尊三\*・亀井 康夫\*<sup>2</sup>

Influence of Ore and Coal Brand on the Reduction of the Carbon Composite Iron Ore Sheet

Chikashi KAMIJO, Masahiko HOSHI, Takazo KAWAGUCHI and Yasuo KAMEI

**Synopsis** : A new DRI process named SMIMET (Sheet Material Insertion Metallization Method), which a wet and dense sheet material of coal and iron ore mixture is reduced in RHF (rotary hearth furnace), was proposed. Binder addition and pelletizing process were omitted in this process. The fundamental and bench scale tests of it were carried out. In these tests, the raw materials were formed into the sheet shape samples by hand or sheet forming machine. Then, sheets were reduced at 1573K in air atmosphere. The produced DRI formed into briquettes at 1273K in Ar atmosphere or at room temperature. After that, the softening-melting down tests were carried out. As a result, sheets contained higher F.C. coal smashed when they were heated rapidly. Sheet smash was controlled by decrease of the apparent density of the sample. Also, higher metallization degree DRI were produced when hematite ore and/or higher F.C. coal was used. The influence of sheet thickness on the productivity was greater than that of apparent density of it. Therefore, the sheet thickness should be decreased when the higher F.C. coal was used to increase the productivity. In addition, the permeability of the softening-melting down tests was affected by the porosities of briquettes. It is believed that the strength of DRI increased when it was formed into briquette so that the temperature, which DRI began to soften and melted, was raised.

**Key words**: SMIMET; FASTMET; COMET; DRI; direct reduction; coal; ore; metallization.

## 1. 緒言

近年、還元鉄が新たな鉄源として注目されている。代表的な還元鉄の製造方法には、還元剤として天然ガスを利用するMIDREX法、HYL-III法や石炭を利用するSL/RN法等があるが、現在の主流は前者である<sup>1)</sup>。しかしこれらは天然ガスを使用するため、立地が天然ガス産出地に限られる。

現在、石炭と鉄鉱石の混合物を回転炉床炉内で加熱・還元するFASTMET法<sup>2,3)</sup>やCOMET法<sup>4)</sup>の開発が進められている。これらは還元速度が速いこと、SL/RN法に比べて還元材比が低いことが特徴である。しかしFASTMET法では、鉄石の磨鉱、ペレタイジング、乾燥工程が必要である。一方、COMET法では炭材と粉鉄石を層状に敷くだけなので、熱炭素還元反応を完了するのに要する時間はFASTMET法よりも長く、生産率が上がらないという問題がある。

そこでペレットフィード粉鉄石と微粉炭に水分を添加して混合し、見掛密度を上げるためにダブルロールシート成形・装入装置でシート状に成形し、成形されたシートを斜面に沿って回転床炉に装入する、新しい還元鉄製造法を提案した<sup>5-11)</sup>。本法では、磨鉱、ペレタイジング、乾燥工程が省略でき、バインダーが不要なので製造コスト削減が可

能であると共に、高生産率を目指すことができる。

本報告では、この新しい還元鉄製造法であるSMIMET (Sheet Material Insertion Metallization Method)法における石炭及び鉄石銘柄の還元性及び生産性に及ぼす影響について調査した。また製造された還元鉄の使用方法として、高炉での使用を仮定し、荷重軟化試験を実施して評価した。

## 2. 実験方法

### 2.1 供試試料

実験に用いた粉鉄石と微粉炭の成分と粒径をTable 1に示す。鉄鉱石としては、ヘマタイト系及びマグネタイト系鉄石のペレットフィード粉鉄石(-0.125 mmが94 mass%)を乾燥機で十分乾燥させて用いた。微粉炭は、様々な固定炭素(F.C.)を含む石炭の微粉を準備した。なお以下に述べる結果において、特に断りがない場合は、使用した粉鉄石と微粉炭はそれぞれOre A、Coal Aを指すものとする。

実験では、粉鉄石と微粉炭が重量比で77:23になるよう両者を配合し、水分添加後、高速攪拌ミキサーを用いて十分に混合した配合原料を用いた。またOre A:Coal A=77:23の配合原料中固定炭素量と等しい固定炭素量となるように、Ore A:Coal B=84:16で配合した原料も準備した。

平成18年4月28日受付 平成18年7月4日受理 (Received on Apr. 28, 2006; Accepted on July 4, 2006)

\* 住友金属工業(株)総合技術研究所(Corporate Research & Development Laboratories, Sumitomo Metal Industries, Ltd., 16-1 Sunayama Kamisu 314-0255)

\* 2 住友金属工業(株)本社(Head Office, Sumitomo Metal Industries, Ltd.)

Table 1. Characteristics of raw materials (mass%).

a) Ore							
Brand	T.Fe	Fe <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	Fe <sub>3</sub> O <sub>4</sub>	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	CW	-0.125mm
A	68.0	96.7	0.4	1.0	0.4	0.3	94
B	69.2	65.5	30.0	1.6	0.5	0.2	94
b) Coal							
Brand	FC	VM	Ash	C	H	O	-0.075mm
A	55.4	35.4	9.2	74.30	4.40	9.90	63
B	78.9	6.8	14.3	79.10	2.90	1.80	100
C	71.3	18.9	9.8	82.16	3.77	3.18	86
D	58.1	34.5	7.4	78.58	4.61	7.41	74
E	56.2	37.5	6.3	74.46	5.22	1.99	65
F	64.8	27.2	8.0	78.81	4.78	1.48	91
G	67.7	22.2	10.1	79.54	4.57	1.17	91
H	75.8	13.7	10.5	82.86	3.94	2.99	86

Steel belt width	320mm
Machine angle	22°
Dia. of the double rolls	400mm
Sheet insertion speed	250 - 350mm/s

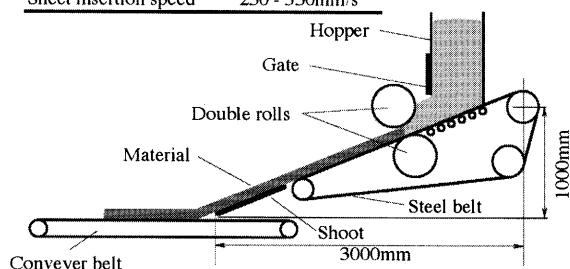


Fig. 1. Schematic view of experimental apparatus.

配合原料の水分は9.1 mass%一定とした。またペレットの場合は、9.1 mass%では造粒が困難だったので、平均13 mass%の水分で造粒した。

2.2 試料成型方法

試料の成形は、実験の目的に応じて、i) ダブルロールシート成形・装入装置によるシート成形、ii) ハンド圧密によるシート成形、iii) パンペレタイザーによるペレット成形、iv) 荷重試験装置によるタブレット成形の4種類の方法で行った。以下にそれぞれの成形方法を記す。

2.2.1 ダブルロールシート成形・装入装置によるシート成形<sup>10)</sup>

SMIMET法のベンチスケール成形テストで作成されるシートを使い、還元を与える鉱石・石炭銘柄の影響を調査する場合には、ダブルローシート成形・装入試験装置（以下単に成形機と略す）を使用した。また荷重軟化試験に供した還元鉄は、全て成形機で成形したシートを還元して作成した。成形作業に使用した成形機概念図をFig. 1に示す。成形機は原料ホッパーと圧密用のダブルロール、配合原料切り出し及び運搬の両機能を持ったスチールベルト、固定シュート有し、スチールベルト正面及び固定シュートは、水平面に対し22°傾斜している。配合原料はスチールベルトによってホッパーから切り出され、固定式のダブルロール前で一旦滞留し、上ロールとスチールベルトの間に噛み込まれてシート状に圧粉成形される。シートは順次スチールベルトから固定シュートに切れ目無く移動し、回転床炉の炉床に見立てたベルトコンベア上に装入される。ここで、固定シュートからベルトコンベアへ乗り継ぐときシートに生じる曲げ応力により、シートには進行方向と直角にひびが発生する。このひびによって、シートは大きな衝撃がかかって粉化することなく、シュートからベルトコンベアへ隙間無く移動する。

シートの成形・装入は以下の手順で行った。

まず上述の配合原料を、一回の成形試験で使用する30 wet-kg準備した。次にベルトコンベアを駆動し、実験開始と同時にスチールベルトを駆動してホッパーからの原料排出を開始してシート成形を行った。なお感圧紙を敷いて

測定した本成形機の成形圧は約29.4 MPaであった。成形・装入実験は開始から約30秒で終了した。成形・装入実験後、ベルトコンベア上のシートから幅方向に20 mm間隔で10 mm×10 mmの試料を切り出して採取し、シートの厚みと乾燥前後の重量を測定し、水分と見掛密度の測定を行った。さらにベルトコンベア上のシートから、270 mm×270 mmの還元実験用試料を切り出して還元実験に供した。なお今後、成形機で作成したシート試料を、単にシートと称す。

2.2.2 ハンド圧密によるシート成形

後述の、還元に及ぼすシート厚と見掛密度の影響を調査する場合には、両者を独立して変更するために、上述の配合原料をSUS製バット(100 mm×130 mm)に入れ、その中で直径30 mm×長さ200 mm程度の鉄製の丸棒でまんべんなく圧密し、同層厚で見掛密度の異なる、あるいは同見掛密度で層厚の異なるシート試料を成形した。今後この試料のことを、スモールシートと称す。

2.2.3 パンペレタイザーによるペレット成形

還元中の試料の粉化状況観察と、石炭配合量を変更した試験では、前記配合原料を直径800 mm×深さ200 mm、回転数20 rpmのパンペレタイザーを用いて、直径10~15 mmペレットを作成した。今後この試料をペレットと称す。

2.2.4 荷重試験装置によるタブレット成形

上記の方法では見掛密度の異なる試料を精度良く多量に作成することが困難だったので、見掛密度と還元中の粉化の関係を調査する場合には荷重試験装置を用いたタブレットを作成した。配合原料を直径30 mmの穴の空いた金型の中に充填し、荷重（最大5t）をかけて直径30 mm×高さ約10 mmの円柱状タブレットに成形した。見掛密度の制御は、載荷重の変更で行った。今後この試料をタブレットと称す。

2.3 還元実験方法<sup>5-9)</sup>

Fig. 2に還元実験に用いた、内側縦600 mm×横600 mm×高さ600 mmで、300 mm×300 mmの炉底が素早く上下に移動して試料が急速昇温できる、炉底昇降炉の概念図を示す。本装置には覗き窓があり、還元中の試料が観察できる。

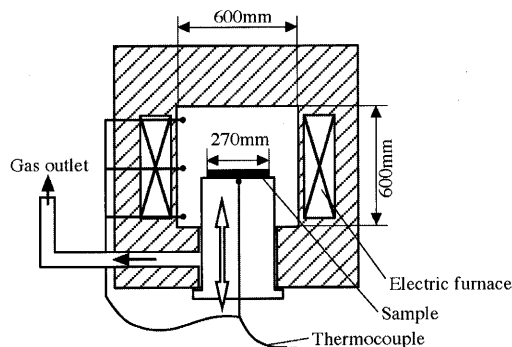


Fig. 2. Schematic view of the large type electric furnace with a hearth moving up and down.

還元実験は以下の手順で行った。まず電気炉を1573Kまで昇温した。炉温が1573Kに到達後、炉底を降下し、素早く試料を炉底に乗せ、炉底を上昇させて試料を炉内に配置して還元し、その時の試料の様子を覗き窓からビデオで撮影した。還元時間は、金属化率が80%以上になる時間に設定した。この時間はあらかじめ行った還元中断試験<sup>7)</sup>より、層厚10mmのシートでは10分で、1mm層厚が増える毎に1分還元時間を延長するとした。なお見掛密度による還元時間の操作は行わなかったが、この点については後述する。この所定時間還元した後、再び炉底を下げて試料を速やかにN<sub>2</sub>で封入した冷却箱に排出し、直ちに室温まで冷却した。

還元時の試料配置方法は、以下のようにした。まずシートとペレットは、実機の回転床炉に近い条件で還元させるため、炉底レンガ上に直接配置した。ただしペレットの場合は、転がりを防止するため、270mm×270mm×10mmの鉄製の枠内にペレットを配置して行った。ここでペレットの配置は、装入実験により最も安定して薄く敷く条件<sup>9)</sup>を求めて決定した。この時のペレット充填状態は、隙間無くペレットが並んだ1層目の上に、部分的にペレットが乗った状態で、部分的に乗ったペレットの重量は、一層目のペレット重量の0.3倍に相当し、全体として一層目のペレット重量の1.3倍が装入された。

またスモールシートとタブレットの場合は、バットに入れてバット毎炉内に装入して還元した。

いずれの場合も冷却後、得られた還元鉄の粒度分布測定と、成分分析を行った。還元鉄の評価を行うに当たり、粉化しやすさの指標として、還元鉄全体の+10mm比率(+10mm ratio)、生産性の指標として、成分分析の結果より以下の式で計算される金属化率(Metallization degree)と床面積当たりの鉄生産率(Productivity)を採用した。

$$+10\text{ mm ratio (\%)} = 100 \cdot \frac{W_{\text{DRI}}^{+10\text{ mm}}}{W_{\text{DRI}}} \dots\dots\dots (1)$$

$$\text{Metallization degree (\%)} = 100 \cdot \frac{[\%M.Fe]_{\text{DRI}}}{[\%T.Fe]_{\text{DRI}}} \dots\dots\dots (2)$$

$$\text{Productivity (Fe-kg/m}^2\text{/h)} = \frac{W_{\text{DRI}} \cdot \frac{[\%M.Fe]_{\text{DRI}}}{100}}{T \cdot A} \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 $W_{\text{DRI}}$ ：還元鉄重量(kg)、 $W_{\text{DRI}}^{+10\text{ mm}}$ ：10mm以上の還元鉄重量(kg)、 $[\%M.Fe]_{\text{DRI}}$ ：還元鉄のM.Fe(mass%)、 $[\%T.Fe]_{\text{DRI}}$ ：還元鉄のT.Fe(mass%)、 $T$ ：還元時間(h)、 $A$ ：試料層底面積(m<sup>2</sup>)である。シートの場合はシート面積を用い、ペレットの場合は枠内の面積をペレットの装入面積として用いた。2・2で述べたように、切り出されたシートのサイズは270mm×270mm、ペレット還元時の枠の大きさも270mm×270mmなので、計算に使用した試料底面積は0.0729m<sup>2</sup>である。

ところで(3)式は、原料の見掛密度 $\rho_{\text{raw}}$ と層厚 $h$ から、以下のように記述できる。

$$\begin{aligned} \text{Productivity (Fe-kg/m}^2\text{/h)} &= \frac{\eta_{\text{DRI}} \cdot W_{\text{raw}} \cdot A \cdot h \cdot \frac{[\%M.Fe]_{\text{DRI}}}{100}}{T \cdot A} \\ &\propto \rho_{\text{raw}} \cdot [\%M.Fe]_{\text{DRI}} \left( \frac{h}{T} \right) \dots\dots (3)' \end{aligned}$$

ここで、 $\eta_{\text{DRI}}$ ：還元鉄成品歩留(mass%)、 $W_{\text{raw}}$ ：原料重量(kg)、 $h$ ：原料層厚(m)、 $\rho_{\text{raw}}$ ：原料見掛密度(kg/m<sup>3</sup>)である。よって上述のように、見掛密度の変更時にも、層厚当たりの還元時間を一定にして、見掛密度が鉄生産率に与える影響を層厚の影響を排除して調査した。

2・4 荷重軟化試験方法<sup>11,12)</sup>

炭材と粉鉄石を混合した原料を還元・溶融して還元鉄を製造するプロセス<sup>13,14)</sup>と異なり、溶融を伴わないSMIMET法では、製造された還元鉄中に脈石成分が残存する。従って脈石成分の多い鉄石を使用した場合、製造された還元鉄を電気炉で処理すると、スラグ量が増加して処理コストが増加する事態になることも予想される。一方そのような還元鉄を高炉で処理できれば、還元鉄中のスラグは容易に除去できると思われる。また高炉に還元鉄を装入すれば、焼結鉄よりもスラグ量が低いので、高炉内の通気性を改善できる可能性がある。そこで還元鉄の高炉使用を前提に、シートの還元実験で製造された還元鉄と、その還元鉄を加圧成形して作成したブリケットを用い、高炉使用を想定した条件での荷重軟化試験を実施した。まず以下に、ブリケットの作成方法を述べる。

シートを還元して得られた還元鉄を上部にピストンのついた内径50mm、高さ100mmの黒鉛容器に入れ、室温から10K/minでAr雰囲気中1273Kまで昇温し、1273Kに保持したまま荷重49MPaまで加圧して作成した。また室温でも、同容器に入れた還元鉄に同荷重をかけてブリケットを作成した。以下熱間あるいは冷間で加圧整形したブリケットを、それぞれ、HBI、CBIと称す。

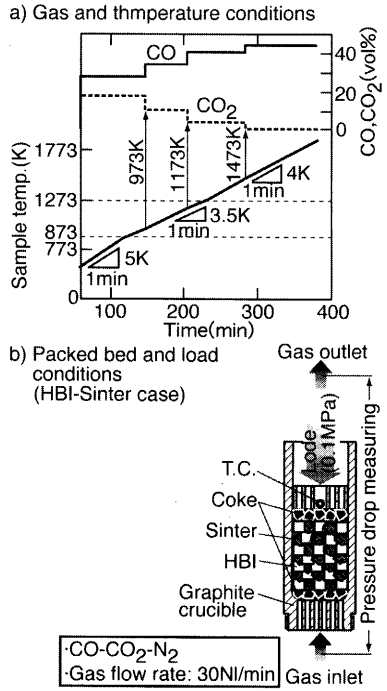


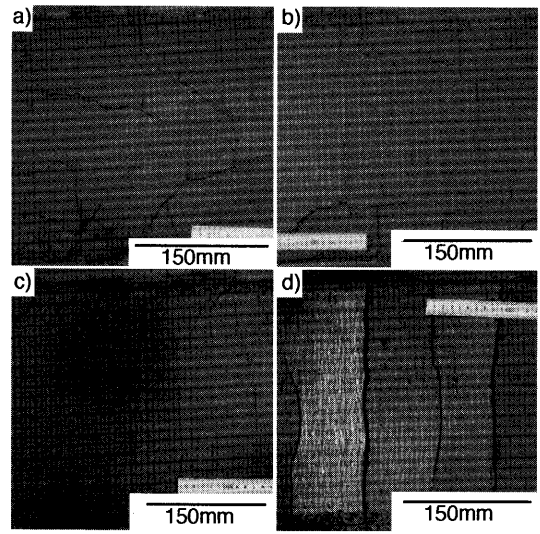
Fig. 3. Experimental conditions for investigating sinter properties by softening-melting down apparatus.

次に、荷重軟化試験は以下の手順で行った。HBI, CBIを粒径10~15mmに切断したもの及び、粒径10~15mmの還元鉄を、黒鉛るつぼ(内径70mm×高さ100mm)に焼結鉱(粒径10~15mm)と250gずつ均一に混合するよう装入して合計500gの充填層を形成させた。ここで還元鉄500gの充填層を設定しなかったのは、本プロセスで製造された還元鉄を高炉に装入する場合、還元鉄：通常高炉原料=50:50が、還元鉄の生産量からも最高置換率と予想されたからである。この試料充填層に荷重0.1MPaを加えながらFig. 3に示した温度、ガス組成及びガス流量条件下で還元し、その時の試料温度、層厚及び圧力損失の変化を測定した。試料が充填層の圧力損失に与える影響の評価指標として、(4)式で示されるKSを採用した。

$$KS = \int_{1273}^{1773} K(t) dt \dots\dots\dots(4)$$

$$K(t) = \frac{\Delta P / H}{\rho_g^{1-\beta} \mu_g^\beta u_g^{2-\beta}} \dots\dots\dots(4)'$$

ここで、KS：高温部通気抵抗指数 (SI単位・K)、t：試料温度(K)、K(t)：温度tにおける通気抵抗指数 (SI単位)、ΔP：圧損(Pa)、H：層高(m)、ρ<sub>g</sub>：ガス密度(kg/m<sup>3</sup>)、μ<sub>g</sub>：ガス粘度(kg/m・s)、u<sub>g</sub>：ガス空塔速度(m/s)、β：定数(=0.3)である。



a) Ore A/Coal A, b) Ore B/Coal A, c) Ore A/Coal B, d) Ore A/Coal D Ore/Coal=77/23

Fig. 4. Schematic view of the sheets formed by the sheet forming machine.

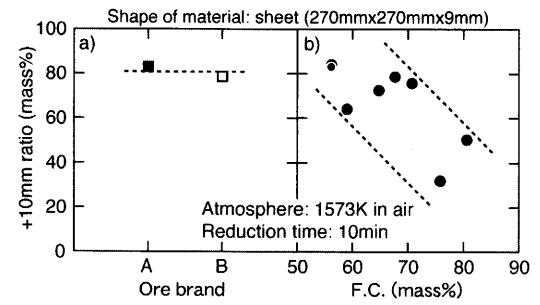


Fig. 5. The influence of ore brand and FC of coal on +10mm ratio of DRI.

### 3. 実験結果

#### 3.1 石炭・鉱石銘柄の影響

Fig. 4に、シート成形機によって成形されたシートの例を示す。石炭・鉱石銘柄を変更しても、その成形性に大きな違いは見られず、層厚9mm、見掛密度2.05~2.38×10<sup>3</sup> dry-kg/m<sup>3</sup>のシートに成形された。

成形されたシートをFig. 2に示した電気炉で還元するために、長さ270mm、幅270mmのシートを切り出し、10分間還元した。できた還元鉄の+10mm比率をFig. 5に示す。鉱石銘柄を変更した場合は、+10mm比率にほとんど変化はみられなかった。しかし石炭銘柄については、固定炭素(F.C.)の多い銘柄である程、還元鉄の+10mm比率は低下する傾向を示した。

次に、石炭・鉱石銘柄が金属化率に与える影響を調べた。鉱石については、Fig. 5に示した還元鉄を分析して比較した。石炭については、試料が粉化したので、新たにOre A/Coal A, B, C, Dのスマールシート(130mm×100mm×12mm、見掛密度=1.66×10<sup>3</sup> dry-kg/m<sup>3</sup>)を還元して比較し

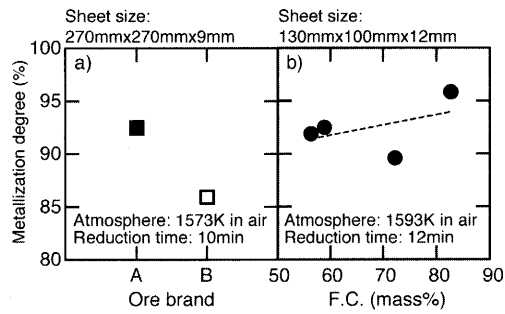


Fig. 6. The influence of ore brand and FC in coal on metallization degree.

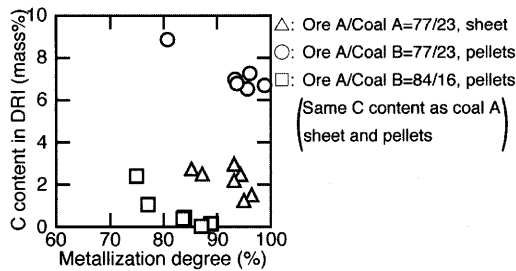


Fig. 7. Relationship between metallization degree and C content in DRI.

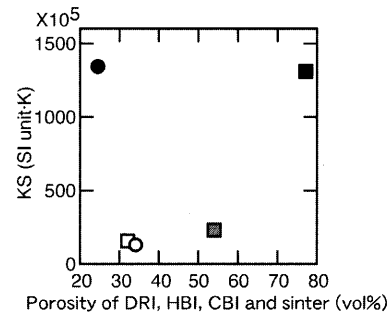
た。Fig. 6に、 鉱石銘柄及びF.C.と金属化率の関係を示す。Fig. 6に示したように、ヘマタイト系鉱石のOre Aの金属化率は、マグネタイト系鉱石のOre Bよりも高かった。これは前田ら<sup>15)</sup>も報告しているように、ヘマタイトの還元がマグネタイトの還元よりも速いことによると考えられる。

一方石炭の場合は、同配合量、同還元条件下では、F.C.が高い方が金属化率も高くなる傾向が見られた。そこでCoal Bについて、試料中の固定炭素量がCoal A等量となるように配合量を調整し、還元中の粉化を防ぐため、ベントナイトを2mass%添加したペレットを作成して還元し、金属化率と残留C量の関係を調査した。得られた結果をFig. 7に示すが、内装Cが等量のペレットでは、Coal Bの還元鉄は金属化率の上昇と共に残留C量が低下し、さらに金属化率90%付近で残留C量も0mass%になった。一方Coal Aを使用したペレットの金属化率90%の時は、残留Cは約2mass%だった。また石炭配合量がCoal Aと同じ23mass%としたCoal Bペレットの金属化率90%、残留Cが約7mass%だった。

### 3.2 荷重軟化試験結果

Fig. 8に、実験結果から計算されたKSと還元鉄の気孔率の関係を示す。比較のために焼結鉱単味の充填層の結果も示した。横軸の気孔率は、焼結鉱(単味の場合)あるいはHBI, CBIの気孔率である。HBI, CBIの気孔率は(5)式で求めた。

$$\epsilon_{DRI} = \frac{V - V_{true}}{V} \dots\dots\dots(5)$$



C in DRI	M.D.	Type	Shape of DRI
■	2.09	90.2	DRI Sheet
▣	2.09	90.2	CBI Sheet
□	2.09	90.2	HBI Sheet
○	3.15	95.8	HBI Pellet
●	-	-	Sinter

M.D.: Metallization degree

Fig. 8. The influence of the porosities of samples on the permeability of the packed bed.

$$V = \pi r^2 h \dots\dots\dots(6)$$

$$V_{true} = \frac{W}{100} \left( \sum \frac{[\%i]}{\rho_i} + \frac{100 - \sum [\%i]}{\rho_{slag}} \right) \dots\dots\dots(7)$$

ここで、 $\epsilon_{DRI}$ : HBI, CBIの気孔率(vol%),  $V$ : HBI, CBIの体積(kg/m<sup>3</sup>),  $r$ : HBI, CBIの半径(m),  $h$ : HBI, CBIの高さ(m),  $V_{true}$ : 気孔を含まないHBI, CBIの体積(m<sup>3</sup>),  $[\%i]$ : 成分*i*のmass% (ただし*i*=Fe, FeO, C),  $\rho_i, \rho_{slag}$ : 成分*i*及びスラグの真密度である。真密度はそれぞれの物性値を用い、スラグはAl<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の物性値を使用した。

HBI50%-焼結鉱50%でのKSは、還元鉄の形状にかかわらず焼結鉱100%時の約11%まで低下した。またKSは、HBI, CBIの気孔率の上昇と共に増加したが、HBI, CBI化していない還元鉄を50%混合した場合でも、KSは焼結鉱100%の時よりもやや低くなった。還元鉄は焼結鉱よりもスラグ量が少ないので、還元鉄と焼結鉱の置換により通気性が向上し、さらにHBI, CBI化することで、気孔率低下により強度が増加し、より高温まで軟化し難くなるので、さらに通気性が向上したと思われる。

## 4. 考察

### 4.1 昇温中の粉化

回転床炉内で原料が粉化すると、発生した粉の炉底レンガへの付着・堆積が起り、付着対策が必要となるのであるべく粉化しない方が望ましい。本実験での粉化の指標である還元鉄の+10mm比率は、Fig. 5に示したように、石炭中のF.C.が高い程低下した。そこでF.C.と粉化の関係を調査するため、最もF.C.が高いCoal B使用時の還元中の挙動をペレットで観察した。Fig. 9に、昇温開始時と30秒後のOre A/Coal Bペレットの写真を示すが、昇温開始約5秒後から、ペレットは表面から薄片がはじけ飛ぶようにし

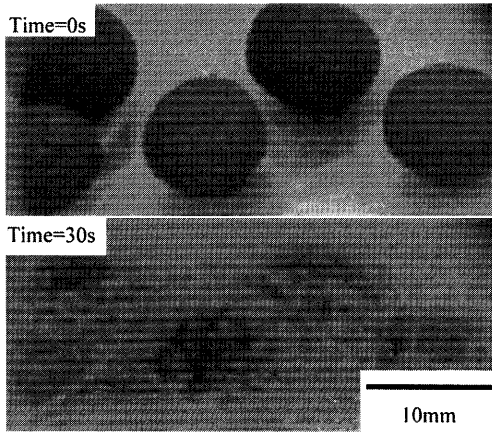


Fig. 9. Schematic view of carbon composite iron ore pellets at the start of examination and 30 s after. (Ore A/Coal B=77/23, moisture=13 mass%)

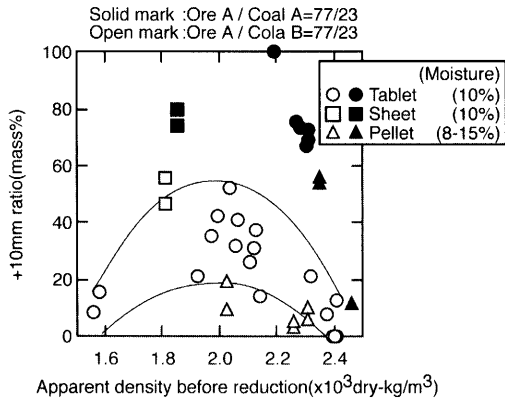


Fig. 10. Relationship between apparent density and +10mm ratio.

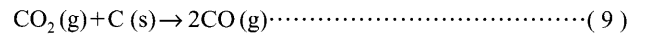
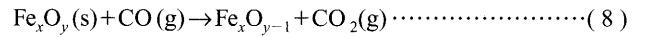
て粉化し、30秒後にはペレットが無くなるのが観察された。このように薄片がはじけ飛ぶような粉化は、他の高F.C.石炭でも確認された。このことから高F.C.炭使用時の+10mm比率低下は、昇温初期に起こる粉化が原因と思われる。高F.C.炭は、石炭化度が高いので、芳香環部分の分子平面が平行で規則的に配列していると考えられる<sup>16)</sup>。よって急速昇温による熱分解時には、その結晶構造を反映して薄片状に弾けて粉化したものと思われる。

ところで昇温時の粉化の要因として、原料中石炭の割れやすさと共に、水分の逃げ道である気孔の存在率（見掛密度）が挙げられる。そこで、粉化しやすいCoal Bと、粉化が起こりにくいCoal Aを用いて、見掛密度と+10mm比率の関係をタブレットで調査した。その結果をFig.10に示す。参考のために、図中にはシートとペレットの結果もプロットした。同じ見掛密度で比較すると、Coal Bを用いたケースは、Coal Aを用いた場合に比べ、+10mm比率が低かった。しかし見掛密度が $2.4 \times 10^3$  dry-kg/m<sup>3</sup>付近では、粉化しにくいCoal Aを使用しているにもかかわらず、+10mm比率は約25 mass%まで低下し、逆にCoal B使用時でも、見掛密度を $2.0 \times 10^3$  dry-kg/m<sup>3</sup>付近にすれば、+10mm比率は平均で

35 mass%になった。この結果から、F.C.の高い石炭使用時には、原料の見掛密度を低下させることで、昇温中の粉化を抑制できると予想される。

#### 4.2 石炭のF.C.とその添加量

回転床炉を用いた還元鉄製造プロセスにおいても、高炉と同様還元材比の低減は製造コスト低減に寄与すると考えられる。先に示した実験結果では、石炭のF.C.が高い程、還元鉄の金属化率は高くなった。一方試料内の固定炭素量をCoal A等量にしたCoal Bの実験では、金属化率90%付近での残留C量が、Coal A使用時には2 mass%だったのに対し、Coal B使用時には0 mass%になった。本実験のような炭材内装粉鉱石原料内では、主に(8)、(9)式によって反応が進行すると認識されている<sup>17)</sup>。



本実験のように、外部加熱方式で輻射により試料が加熱される条件下では、(9)式が律速反応であるとの報告が多い<sup>18-23)</sup>。従って、F.C.の高い石炭を使用すると、試料内の固定炭素量に比例して(9)式で発生するCOガス量も増加するので、(8)式の反応が進んで金属化率が上昇したと考えられる。また固定炭素量を一定にすると、同じ金属化率の還元鉄中残留Cは、F.C.の低い石炭を使用したときの方が多かった。従って炭材内装粉鉱石の還元には、石炭中のF.C.だけでなく、石炭中揮発分VMも寄与していることが考えられる。しかし一連の実験から、Coal Bを18 mass%以上23 mass%未満のある配合量にすれば、金属化率90%で残留Cが2 mass%の還元鉄が得られたものと考えられ、高F.C.炭を使用する方が、還元材比低減に寄与できると予想される。

#### 4.3 鉄生産性

シート内での反応は鉄の還元と石炭のガス化が同時に起きている状態であるから、反応を促進してより短時間でより高金属化率の還元鉄を生産するためには、シートへの熱供給速度の上昇が重要である。シート内の温度上昇は、表面からの1次元の伝熱に支配されていると思われるので、ある時間*t*でのシート表面から*x*だけ離れた部位の温度*T*は、均質な平板内の温度変化を表す基礎微分方程式(10)で記述できると思われる。

$$\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\lambda}{\rho C_p} \frac{\partial^2 T}{\partial x^2} \dots\dots\dots (10)$$

ここで*T*：温度(K)、*t*：時間(s)、 $\lambda$ ：熱伝導度(W/m/K)、 $\rho$ ：密度(kg/m<sup>3</sup>)、 $C_p$ ：比熱(J/kg/K)、*x*：表面からの距離(m)である。今、初期温度*T*<sub>1</sub>、層厚*H*のシートを温度*T*<sub>0</sub>の炉に装入したときの、*t*秒後の層内温度を考える。なお底面は断熱とする。(10)式の初期条件は、

$t=0, x>0$ において、 $T=T_1$

境界条件は、

$t=\infty, x>0$ において、 $T=T_0$

$x=0, t>0$ において、 $T=T_0$

$x=H, t>0$ において、 $\partial T/\partial x=0$

である。これらの式を無次元化し、

温度  $T$  の無次元化、 $\phi=(T-T_1)/(T_0-T_1)$

時間  $t$  の無次元化、 $\theta=\beta t$  (ただし  $\beta=\lambda/(\rho C_p H^2)$ )

位置  $x$  の無次元化、 $\omega=x/H$

(10)式に代入して整理する。

$$\frac{\partial \phi}{\partial \theta} = \frac{\partial^2 \phi}{\partial \omega^2} \dots\dots\dots(10)'$$

また初期条件、境界条件はそれぞれ以下ようになる。

$\theta=0, \omega>0$ において、 $\phi=1$

$\theta=\infty, \omega>0$ において、 $\phi=0$

$\omega=0, \theta>0$ において、 $\phi=0$

$\omega=1, \theta>0$ において、 $\partial \phi/\partial \omega=0$

(10)'式には  $\phi, \theta, \omega$  以外の変数は含まれず、無次元温度  $\phi$  と無次元位置  $\omega$  の関係、すなわち無次元温度分布を決定するのは無次元時間  $\theta=\beta t$  のみである。この無次元化により、 $\beta$  の定義から層内の昇温速度は  $H^{-2}$  と、 $\lambda/(\rho C_p)$  に比例することが判るので、シートを薄くするか、見掛密度を低下させれば昇温速度は上昇し、生産率が上昇すると考えられる。しかしシートは多孔質体なので、(10)式中の熱伝導度は有効熱伝導度  $\lambda_e^{(24)}$  である。

$$\frac{\lambda_e}{\lambda_F} = \varepsilon_v + \frac{1-\varepsilon_v}{\phi + \frac{2}{3} \frac{\lambda_F}{\lambda_S}} \dots\dots\dots(11)$$

ここで、 $\lambda_e$  : 有効熱伝導度 (W/m/K),  $\lambda_F, \lambda_S$  : 気体, 固体の熱伝導度 (W/m/K),  $\varepsilon_v$  : 空隙率 (-),  $\phi$  : 流体薄膜有効厚さの粒径に対する比 (-) である。有効熱伝導度は空隙率の影響を受けるので、空隙率が低い、すなわち見掛密度が高い方が、有効熱伝導度は高くなる。よって高密度にする方が、底面温度上昇が速い可能性もある。そこで層内の昇温速度に影響を与える、シートの見掛密度と層厚について、両者を独立に変更できるスモールシートの還元実験を行い検討した。

Fig.11に、見掛密度一定下で層厚を変更したスモールシートの還元実験から得られた層厚と鉄生産率の関係を示す。層厚が増加すると、鉄生産率及び金属化率が共に低下した。層厚増加により得られる還元鉄重量の増加よりも、層内温度上昇の遅れによる金属化率低下の方が、鉄生産率に与える影響が大きかったためと思われる。

次に、層厚一定下で見掛密度を変更したスモールシートの還元実験から得られた見掛密度と鉄生産率の関係を Fig.12に示す。金属化率は見掛密度上昇に伴いやや低下し

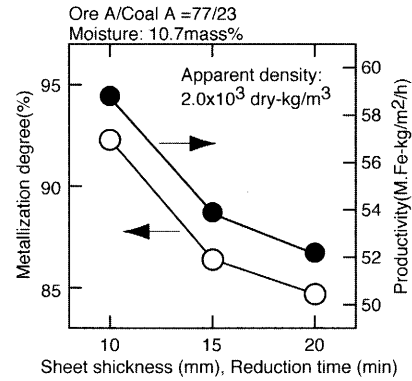


Fig. 11. Effect of sheet thickness on productivity.

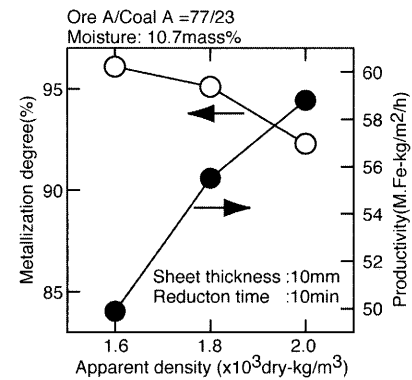


Fig. 12. Effect of sheet density on productivity.

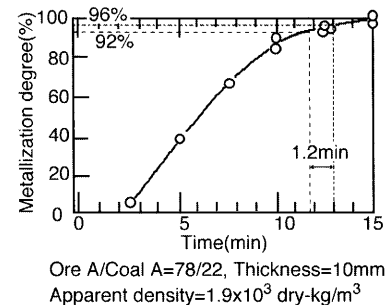


Fig. 13. Transition of metallization degree of sheet with time.

たが、鉄生産率は見掛密度上昇により増加した。見掛密度の上昇により底面温度の上昇が遅れ、金属化率が低下したことよりも、見掛密度上昇により還元鉄重量が増加したことの方が、鉄生産率に与える影響が大きかったためと思われる。ここで、スモールシートの見掛密度が  $1.6 \text{ dry-kg/m}^3$  の時に、還元時間を短縮して金属化率の低い還元鉄を製造した場合を考える。前報<sup>7)</sup>で測定した、スモールシートの還元時間と金属化率の関係を Fig.13に示す。金属化率92%から96%になるのに、1.2分経過していたので、Fig.12で見掛密度が  $1.6 \times 10^3 \text{ dry-kg/m}^3$  のスモールシートも、8.8分還元すれば金属化率92%となり、見掛密度が  $2.0 \times 10^3 \text{ dry-kg/m}^3$  のスモールシートと同金属化率 (M.Fe = 81.6 mass%) になったものと推定される。しかし見掛密度  $1.6 \times 10^3 \text{ dry-}$

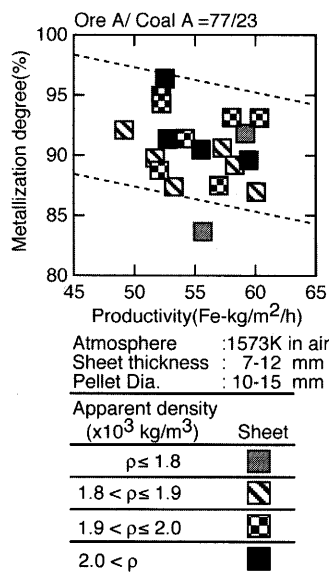


Fig. 14. Relationship between the productivity and the metallization degree.

kg/m<sup>3</sup>のスマールシートから得られる還元鉄量は、2.0×10<sup>3</sup> dry-kg/m<sup>3</sup>の時に得られる金属鉄量より少ないので、鉄生産率は54.3 Fe-kg/m<sup>2</sup>/hと推定された。本実験で選択した還元時間（層厚1 mm当たり1分）は、一般的に還元が停滞する還元末期以前に還元を終了する条件だったので、還元時間短縮は金属化率低下に直結し、鉄生産率の増加が少なかったものと思われる。

以上の結果より、層厚が10 mmから20 mmになったときの鉄生産率低下が約11%、見掛密度が2.0×10<sup>3</sup> dry-kg/m<sup>3</sup>から1.6×10<sup>3</sup> dry-kg/m<sup>3</sup>になったときの低下が約15%だったので、見掛密度が鉄生産率に与える影響の方がやや大きいと結論される。

そこで、さらに様々な見掛密度及び層厚のシートを還元し、生産率と金属化率の関係を整理した。その結果を、Fig.14に示す。実験の結果、鉄生産率を上げると金属化率が低下したが、例えばFig.14中の鉄生産率53 Fe-kg/m<sup>2</sup>/h付近では、見掛密度が高い方が金属化率は高い傾向があった。これは本成形機では、見掛密度が高いシートは層厚が低い傾向があったことと、(10)式中の熱伝導度λがシートの空隙率に影響を受けたことによると思われる。すなわち見掛密度の上昇による金属化率低下よりも、層厚低減による金属化率上昇の方が、鉄生産率に与える影響が大きかったので、層厚が低くかつ見掛密度が高い方が、金属化率が高く、得られる還元鉄量も多くなったと思われる。

最後に、上述したように、昇温中の粉化を抑制するためには、石炭銘柄毎の見掛密度制御が必要になると推定される。しかし見掛密度低下による鉄生産率低下は、層厚低下で補償できると考えられるので、高F.C.炭使用時にも、高鉄生産率を確保できるものと推察される。

## 5. 結言

シート状原料を用いた新しい還元鉄製造法であるSMIMET法における石炭及び鉍石銘柄の影響と、還元鉄の高炉使用を前提とした荷重軟化試験を実施し、以下の知見を得た。

(1) 石炭及び鉍石銘柄によらず、シートの成型は可能であった。

(2) ヘマタイト系鉍石を使用した場合の方が、マグネタイト系鉍石に比べ、金属化率の高い還元鉄が得られた。ヘマタイトの方が、マグネタイトに比べ還元速度が速いことに起因すると思われる。

(3) F.C.が高い石炭を使用すると、還元中に粉化した。しかし見掛密度を低下して粉化を低減した場合、F.C.の高い石炭の方が、金属化率の高い還元鉄が得られた。

(4) 還元鉄をブリケット化して気孔率を低下させると、荷重軟化試験における通気性が向上し、高温部通気抵抗指数KSが低下した。

## 文 献

- 1) T.Zervas, J.T.McMullan and B.C.Williams: *Int. J. Energy Res.*, **20** (1996), 69.
- 2) J.A.Lipinski: *Ironmaking Conf. Proc.*, ISS, Warrendale, 52 (1993), 349.
- 3) K.Miyagawa, T.Matsumura, Y.Takenaka, K.Sugiyama and T.Harada: *CAMP-ISIJ*, **10** (1997), 115.
- 4) *J. Met.*, (1965), May, 459.
- 5) T.Kawaguchi, H.Yamaoka and Y.Kamei: *CAMP-ISIJ*, **13** (2000), 124.
- 6) C.Kamijo, M.Hoshi, T.Kawaguchi, H.Yamaoka and Y.Kamei: *CAMP-ISIJ*, **13** (2000), 985.
- 7) C.Kamijo, M.Hoshi, T.Kawaguchi, H.Yamaoka and Y.Kamei: *ISIJ Int.*, **41** (2001), Supplement, S13.
- 8) M.Hoshi, C.Kamijo, T.Kawaguchi, H.Yamaoka and Y.Kamei: *CAMP-ISIJ*, **13** (2000), 830.
- 9) C.Kamijo, M.Hoshi, T.Kawaguchi, H.Yamaoka and Y.Kamei: *CAMP-ISIJ*, **13** (2000), 831.
- 10) C.Kamijo, M.Hoshi, K.Ohne, T.Kawaguchi, H.Yamaoka and Y.Kamei: *CAMP-ISIJ*, **15** (2002), 111.
- 11) C.Kamijo, T.Kawaguchi and Y.Kamei: *CAMP-ISIJ*, **14** (2001), 208.
- 12) K.Mochizuki, T.Murai, Y.Kawaguchi and Y.Iwanaga: *Tetsu-to-Hagané*, **72** (1986), 1855.
- 13) Y.Sawa, T.Yamamoto, K.Takeda and H.Itaya: *ISIJ Int.*, **41** (2001), Supplement, S17.
- 14) T.Matsumura, Y.Takenaka, M.Shimizu, T.Negami, I.Kobayashi and A.Uragami: *Tetsu-to-Hagané*, **84** (1998), 405.
- 15) T.Maeda and Y.Ono: *Trans. Iron Steel Inst. Jpn.*, **25** (1985), 1191.
- 16) (財) エネルギー総合工学研究所石炭研究会: 石炭技術総覧, 電力新報社, 東京, (1993).
- 17) 社団法人 日本鉄鋼協会学会部門高温プロセス部会: 酸化鉄の炭素還元の基本と応用, 日本鉄鋼協会, 東京, (2000).
- 18) Y.K.Rao: *Metall. Trans.*, **2** (1971), 1439.
- 19) R.J.Fruehan: *Metall. Trans. B*, **8B** (1977), 279.
- 20) M.C.Abraham and A.Ghosh: *Ironmaking Steelmaking*, **6** (1979), 14.
- 21) P.Tiwari, D.Bandyopadhyay and A.Ghosh: *Ironmaking Steelmaking*, **19** (1992), 464.
- 22) D.Bandyopadhyay, N.Chakraborti and A.Ghosh: *Steel Res.*, **64** (1993), 340.
- 23) V.K.Trujic and D.T.Zivkovic: *Mater. Trans., JIM*, **38** (1997), 983.
- 24) 国井大蔵: 熱的単位操作 上, 丸善, 東京, (1976).