

## 論文

UDC 669.094.1 : 622.341.19

## 噴流層による粉鉄鉱石の還元\*

尾 沢 正 也\*\*

## Spouted Bed Reduction of Iron Ore

Masaya OZAWA

## Synopsis:

The most serious problem inherent to the fluidized bed reduction of iron ore is sintering. One of the solution to this problem is to use relatively coarse powder of iron ore. Spouted bed is a technique of processing relatively coarse granular materials. The purpose of the present investigation is to try spouted bed reduction with relatively coarse powder of iron ore and to know characteristics and feasibility of this technique.

Experiments were performed with transparent models and spouting conditions were determined. Effects of reductant gas flow rate, cone angle, particle size distribution on the spouted bed reduction were investigated. It was turned out that the spouted bed reduction was effective to relatively coarse granules of iron ore. Rate of reduction was proportional to the flow rate of reductant gas fed to the bed. Sintering tendency was less with spouted bed than with usual fluidized bed in a low gas velocity region.

Critical flow rate and reducing temperature causing sintering were shown. A discussion was made on the relation between the results obtained with model experiments and with high temperature reduction.

(Received July 7, 1972)

## 1. 緒 言

粉鉄鉱石のガス還元においては流動層の利用が広く試みられたが<sup>1)2)</sup>、高温ガス還元を行なうときは常に焼結もしくは凝集の問題が伴い<sup>3)</sup>、これを防止するためにコークスやケイ砂などの非焼結性粉粒体の混入<sup>4)</sup>、攪拌流動層の採用<sup>5)</sup>、原料鉱石の選択<sup>6)</sup>など種々の工夫がなされている。焼結防止の一つの方法は粉鉄粒度を大きくすることであるが、流動法では粉体粒度の増大に伴ってスラッキングを生じやすくなり、また流動状態を保持するために大量のガスを必要とするようになって実際操業の安定性、熱効率、ガス利用率の面で問題を生ずるようになる。

噴流層はかような比較的粗大な粒を含む場合に用いられる一種の流動化法であるが<sup>7)</sup>、粉鉄鉱石の還元を利用された例はきわめて少なく、VAVILOV<sup>8)</sup>の研究があるにすぎない。この方法の利点は比較的粗粒の粉に対しても流動層ほど大きなガス流速を必要とせず、スラッキングを生じがたく、また整流器部分の構造が簡単のため目詰

まりを生ずるおそれが少ないことなどであり、とくに高温ガス還元に対して有利であると考えられるので、その適応性を調べるために、試料として赤鉄鉱粉を用い、噴流層の生成条件を求め、温度、ガス流量、ガス噴出部の円錐頂角、粉鉄鉱石の粒度などの諸因子について実験を行ない、焼結することなく還元を行ないうる操作条件を求め、また通常の流動還元との比較を行なった。さらに実際操業においてはかなり広い粒度分布をもつた粉鉄鉱石を用いなければならないので、配合によつて粒度分布を変えた鉱石試料につき噴流層の模型実験および還元実験を行ない、試料の粒度分布と流動化の条件、焼結発生との関連につき検討を行なった。

## 2. 装置および方法

## 2.1 還元装置

還元実験に用いた装置は Fig. 1 に示すような、シリ

\* 昭和45年4月、昭和46年10月本会講演大会にて発表、昭和47年7月7日受付

\*\* 金属材料技術研究所

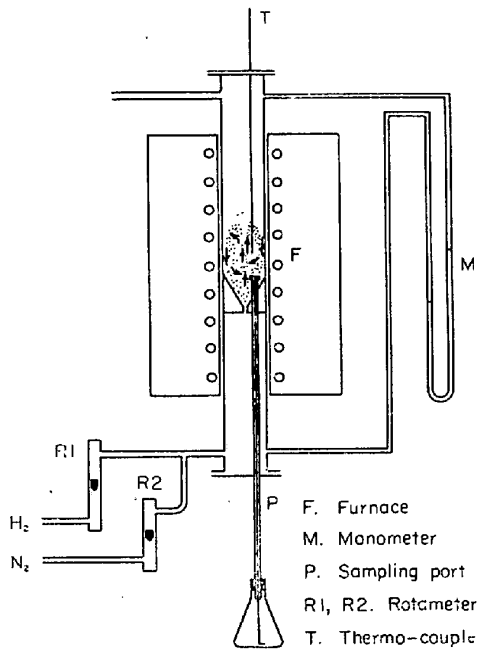


Fig. 1. Diagram of spouted bed reduction unit.

コニットを発熱体とする電気炉に内径 50 mm のステンレス鋼製噴流および流動層反応管または内径 70 mm の噴流層反応管をそう入したものである。内径 50 mm の反応管は下部に円錐頂角 60° または 90°、ノズル径 5 mm の噴流部、または通常の流動層に用いられるような 0.8 mmφ の小孔を 8 mm 間隔にあけた 2 枚のステンレス鋼板の間に 200 メッシュのステンレス鋼製金網をはさんだ整流板をとりつけることができる。また内径 70 mm の反応管は円錐頂角 60°、ノズル径 6 mm の噴流層専用のものである。

これらはいずれも円錐部の中間に試料採取用のポートを設け、常時はこれを円錐状のステンレス鋼製のプラグでもつて閉じ、試料採取時にこのプラグを下から針金で押し上げ、あるいは上からロッドで持ち上げて、試料採取管の下にとりつけた、N<sub>2</sub> で内部を置換した三角フラスコ中に試料を落した。

反応管の上部の蓋には石英ガラス製の視窓を設けて、内部の流動状態あるいは焼結の進行状態を直接観察できるようにした。また試料投入口、熱電対そう入用ポートを設けた。

ガスは市販の水素および窒素ガスを用い、減圧弁、流

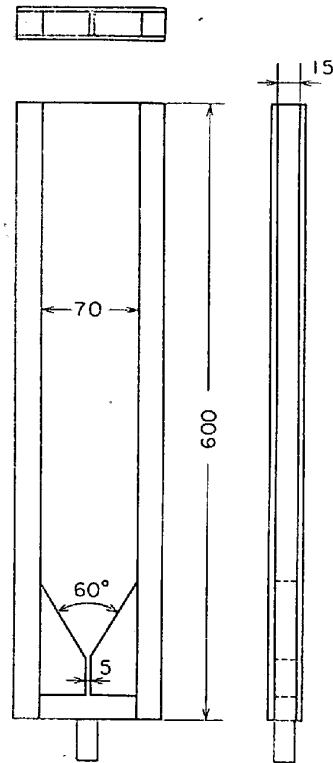


Fig. 2. Two-dimensional model of spouted bed.

量計を経て反応管下部に導入した。

## 2.2 模型実験装置

噴流層の生成、安定条件を調べるために、2.1 の還元装置に対応する透明プラスチック製 3 次元流動模型およびガラス板製 2 次元模型を用いた。3 次元模型の形状は還元用に用いた反応管に準ずるので、2 次元模型についてのみ Fig. 2 に示す。

## 3. 試料

実験に用いた試料はインド産赤鉄鉱石およびオーストラリア産ハムスレー赤鉄鉱石で、その化学成分は Table 1 に示すとおりである。これをジャイレトリー型のサンプルグラインダーで粉碎、篩別し、必要に応じて混合して用いた。

## 4. 実験結果および考察

### 4.1 噴流層の形成条件

底部が円錐状に絞られた円筒形の容器の下端のノズル

Table 1. Chemical composition of iron ores (%).

	T. Fe	Fe(II)	SiO <sub>2</sub>	Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	MgO	CaO	P	S
Indian ore	59.66	0.51	4.30	3.40	0.08	0.08	—	—
Hamersley ore	63.5	0.62	3.62	2.21	—	0.35	0.052	0.021

からガスを吹きこむと、その条件によつて容器内部に装入された粉粒体は中心部の上昇する稀薄輸送層とその周りの環状の下降する堆積移動層から成るいわゆる噴流層を形成する<sup>7)</sup>。粉鉄鉱石についての噴流層形成条件を調べるために、透明プラスチック製の3次元模型を用い、鉱石粒度、静止充てん層高さ、ガス流速を変えて噴流層形成の状態を肉眼で観察した。

4.1.1 層の圧損失と流動化

28~48 メッシュの粒度範囲のインド 鉄石粉の静止充てん層に対して下部の円錐頂部から N<sub>2</sub> ガスを吹きこみ

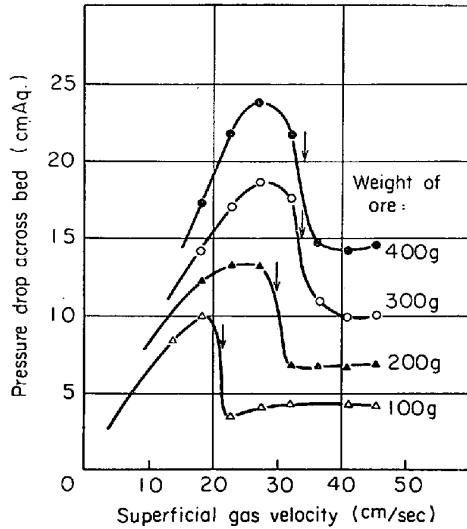


Fig. 3. Pressure drop-gas velocity diagram for spouted beds.  
Sample : Indian hematite, 28-48 mesh.  
Gas : N<sub>2</sub>

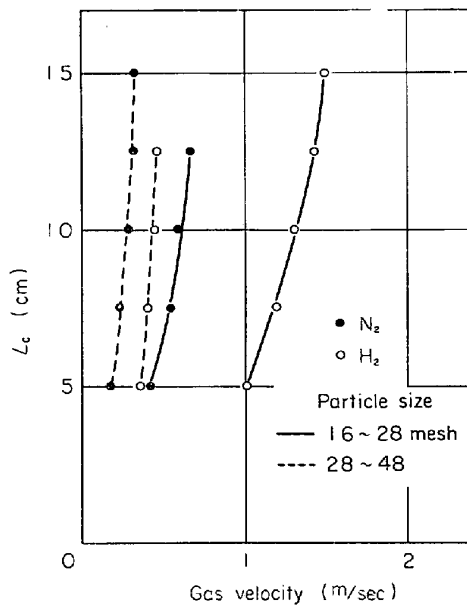


Fig. 4. Minimum spouting gas velocity.  
Sample : Indian ore.

その流速を高めていったときの層内の圧損失を Fig. 3 に示す。

層の圧損失は最初は充てん層の圧損失に相当し、流速に比例して増大する。圧損失はやがて極大値に達し、中心部のジェットの貫通とともに急速に減少して噴流層を形成する。このとき層の圧損失は流動層の理論圧損失<sup>13)</sup>の約 70% のところで安定化し、さらに流速を増しても噴流層領域内では大きな変化はない。この経過において、噴流開始流速に相当する点を矢印で示した。

噴流状態からガス流速を減ずるときは噴流開始流速よりも低い流速まで噴流状態を維持し、噴流の停止とともに前と同様圧損失が若干上昇するが、この山は噴流開始のときよりも小さい。後者の噴流を維持する最小のガス流速は最小噴流化流速  $u_{msp}$  と呼ばれる。

この最小噴流化流速を内径 50 mm の 3 次元模型を用い、28~48 メッシュおよび 16~28 メッシュの粉鉄石について、静止充てん層高さを変えて測定した結果を Fig. 4 に示す。鉄石の静止充てん層高さ 10 cm における、水素ガスによる最小噴流化流速は 28~48 メッシュの粉鉄石に対して約 0.45 m/sec 16~28 メッシュの粉鉄石に対して約 1.3 m/sec となった。

4.1.2 層の状態図

粉鉄鉱石の静止充てん層高さとガス流速に関する層の状態図の一例を Fig. 5 に示す。これは流動化ガスとして N<sub>2</sub> を用い、内径 50 mm、円錐頂角 60° の 3 次元模型により 28~48 メッシュの赤鉄鉱石粉を流動化させて得たものである。

低流速域において層は静止充てん層の状態で存在するが、充てん高さ 10 cm の場合、ガス流速約 0.3 m/sec 以上では噴流層を形成し、さらに流速を増して約 0.45 m/sec 以上になると規則的な噴流状態ではなく、不規則な、激しいスラッキングを伴う流動層に転移する。

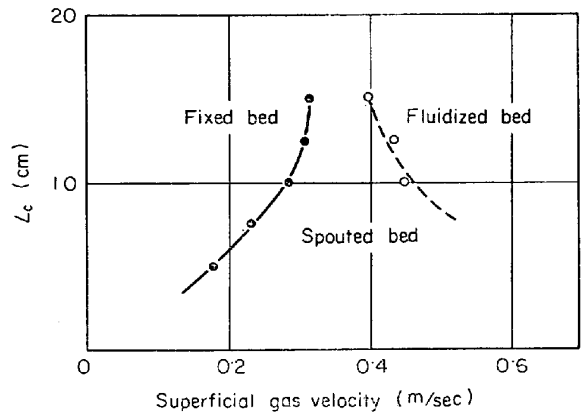


Fig. 5. Phase diagram for Indian hematite.  
Particle size : 28-48 mesh. Gas : N<sub>2</sub>

静止充てん層と噴流層との境界として最小噴流化流速を採用したが、これは  $N_2$  の場合ほぼ、

$$u_{msp} \propto \sqrt{L_c}$$

$L_c$  : 静止充てん層高さ

の関係を保つて充てん層高さの増加とともに高流速側に移行する。同時に生成した噴流層は不安定となつて、充てん層高さ 15 cm 以上では流速を増すと容易に明らかな気泡の発生を伴う流動層に転移する。充てん層高さが小となるとそれに伴つて噴流層領域は拡大安定化し、7.5 cm 以下では流速 0.6 m/sec までの実験範囲内で流動層への転移は認められなかつた。

静止充てん層高さを高くすることは反応装置の容量を増し、ガス利用率の向上と処理能力の増大のためのぞましいことであるが、噴流層の安定化という面からは相反する条件となる。したがつてこの中間の、噴流層の安定領域の比較的広いところということで、静止充てん層高さ 10 cm、すなわち鉱石充てん量として 300 g を内径 50 mm の反応管を用いた場合の還元試験の基準装入量とした。

#### 4.2 噴流層による水素還元

噴流層による水素還元についてその反応速度、焼結の問題などに関する概括的な知見を得、かつ多孔板を整流板とする通常の流動層との比較を行なうため、まず内径

50 mm の反応管を用い、比較的粒度範囲の狭い赤鉄鉱石 (主としてインド鉱石) について還元実験を行なつた。

##### 4.2.1 還元ガス流量

鉱石粒度 28~48 メッシュの試料について、還元温度 800°C および 900°C において水素ガス流量を変えたときの還元曲線を Fig. 6 に示す。

還元率約 10% まで還元はきわめて速やかに進み、その後還元率 80% 前後まで時間に対しほとんど直線的に還元が進行する。水素ガス流量 30 Nl/min では還元率 80% まで約 10 min であつた。

つぎに温度 900°C では還元速度はかなり速やかになり同じくガス流量 30 Nl/min で還元率 80% まで約 7 min、95% まで約 10 min であつた。いずれも還元ガス流量の影響はかなり顕著であつた。またこの流量範囲ではいずれも焼結を生じなかつた。

流動層還元において、広範囲にわたつて還元が時間に対し直線的に進行することは Ezz ら<sup>9)</sup> に同様の報告がある。この部分における還元速度  $\Delta R/\Delta t$  をとつてガス流量に対してプロットすると、Fig. 7 にみられるように各温度、粒度についてそれぞれほぼ直線関係が得られた。これより各温度、粒度条件において還元速度は層内に供給される還元ガス量によって律速されることがわかる。

##### 4.2.2 還元温度と還元曲線

鉱石粒度 28~48 メッシュの試料について、内径 50 mm の反応管を用い、水素ガス流量 30 Nl/min、温度 550~900°C の条件で還元を行なつたときの還元曲線を Fig. 8 に示す。これにみられるように温度の上昇とともに還元速度は増大し、また到達還元率の点でも高温還元の有

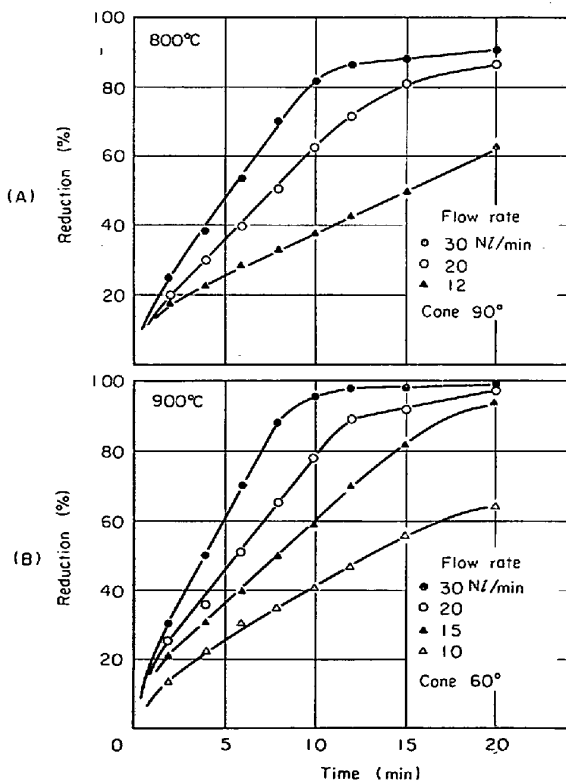


Fig. 6. Reduction of hematite in spouted bed at 800°C(A) and 900°C(B).  
Particle size : 28—48 mesh

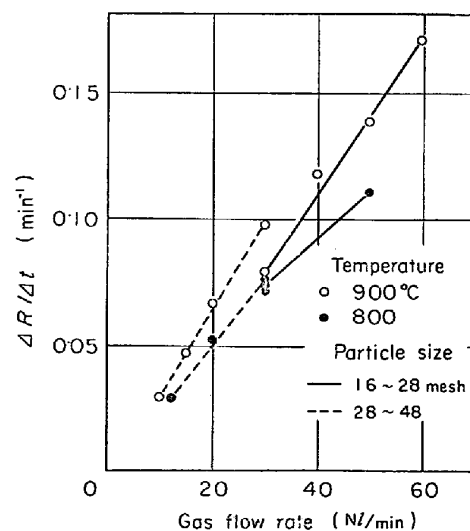


Fig. 7. Flow rate vs. rate of reduction.  
Sample : Indian ore.

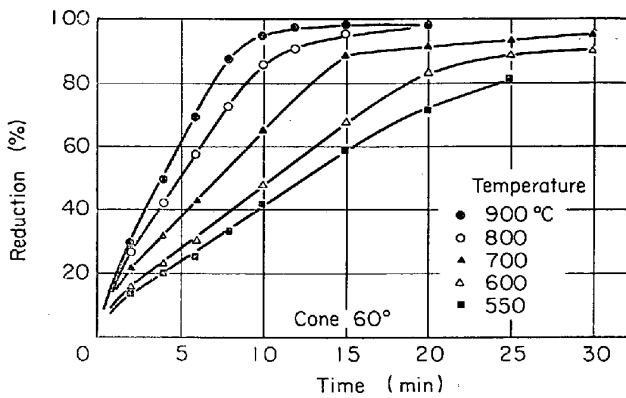


Fig. 8. Reduction of Indian ore at 900-550°C.  
H<sub>2</sub> flow rate : 30 Nl/ min.  
Particle size : 28-48 mesh.

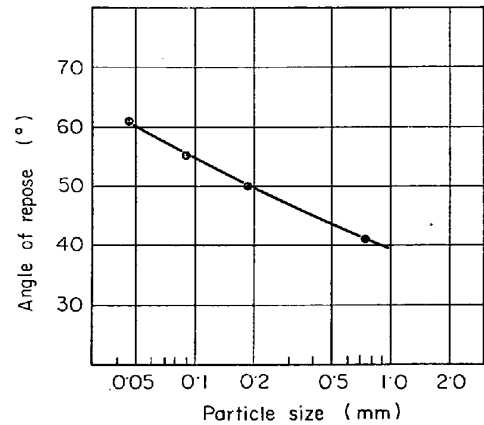


Fig. 10. Angle of repose vs. particle size.  
Sample : Hamersley ore.

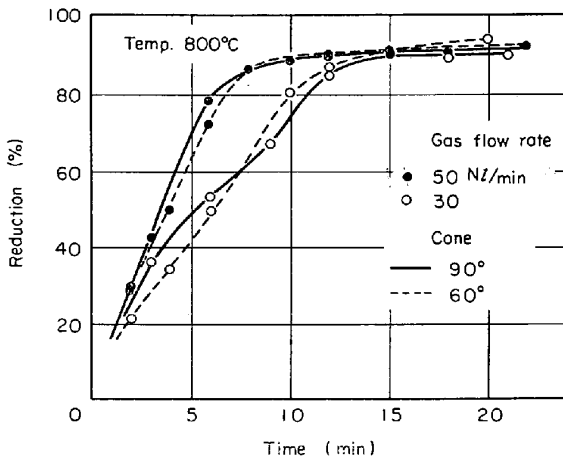


Fig. 9. Effect of cone angle. Particle size : 16-28 mesh. Sample : Indian ore.

利性が認められた。通常報告されているような 700°C 付近における還元の停滞現象<sup>10)</sup>は本実験では認められなかった。またこの流速条件下ではいずれの場合も焼結を生じなかった。

#### 4.2.3 ガス噴出部円錐頂角の影響

噴流層形成についてガス噴出部円錐頂角の影響は小さいという報告<sup>11)</sup>と 60° が最適であるという報告<sup>12)</sup>がある。M. LEVA<sup>7)</sup>によると管径  $D_t=6''$  の場合、 $u_{msp}$  に関しては円錐頂角 45~85° の間その影響がない。

噴流層還元における 1つの操作条件として円錐頂角をとり上げ、60° と 90° の 2水準について比較を行なったがその結果の一例を Fig. 9 に示す。これは粒度範囲 16~28 メッシュの粉鉄鉱石を 800°C で噴流層還元した例であるが、円錐頂角 60° と 90° とでは還元曲線にほとんど差がないことがわかる。ほかに 28~48 メッシュのものについても同様の実験を行なったが、この場合もほとんど円錐頂角の影響は認められなかった。

図 2 次元模型を用いた常温水素による噴流層の観察によ

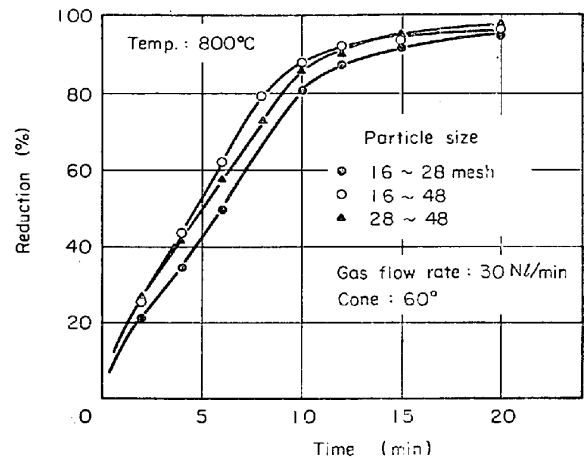


Fig. 11. Effect of particle size range.

ると、円錐頂角 90° の場合、円錐部と円筒部との接合部分に粒の運動の停滞部分を生ずる。常温における赤鉄鉱石粉の安息角は、傾斜法による測定では Fig. 10 のごとくであり、この結果から円錐頂角 90° における粒の運動の停滞現象を説明することができる。しかし高温においては安息角の減少が予想され、高温還元においては円錐頂角 60° と 90° 程度の差は層内の粉粒体の運動状態に大きな相違を与えないものと考えられる。

#### 4.2.4 粒度範囲の効果

粉体の処理において粒度分布の効果は重要な問題であり、噴流層における粒度分布の問題は別項において詳論するが、本項においては単に粒度範囲を変えて行なった還元実験について述べる。

Fig. 11 は還元温度 800°C、水素ガス流量 30 Nl/ min において、16~28 メッシュ、28~48 メッシュおよびこの両者を半量ずつ合わせて 16~48 メッシュの粒度範囲とした試料についての還元曲線を示した。これから明らかかなように、粒度範囲の広いものの方が還元速度が速やかで、平均粒径は大きいにもかかわらず、細粒試料の還

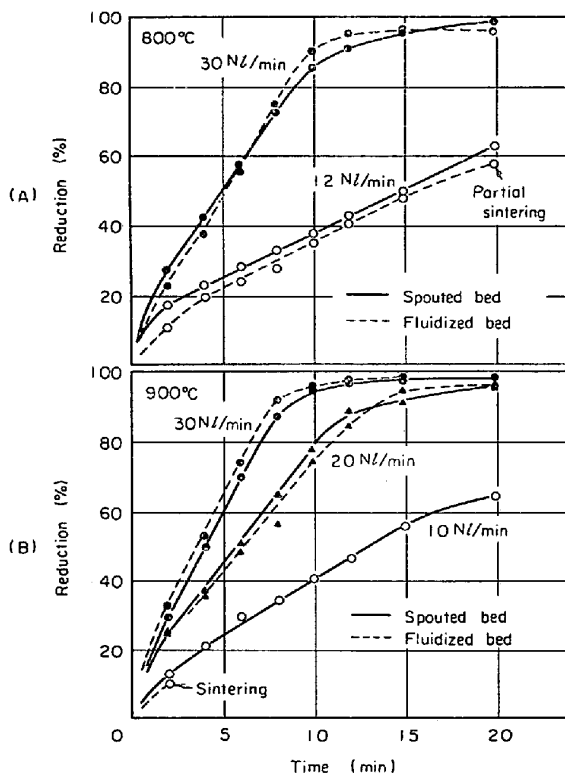


Fig. 12. Comparison of the reduction in spouted bed with that in regular fluidized bed.  
Sample: Indian ore, 28-48 mesh.

元曲線とほとんど一致するという結果を得た。また同様に還元実験を 900°C、水素ガス流量 20 および 30 NL/min について行なつたところ、16~28 メッシュのものは 20 NL/min では還元開始後間もなく焼結し、また 30 NL/min でも 10 min 後に焼結したが、16~48 メッシュのものはいずれの場合も焼結せず、その還元曲線は 28~48 メッシュのものと大差なく、速やかに還元が進行した。以上から 20~30 NL/min の範囲では鉱石粒度範囲の広いものの方が層内の粒子の運動が活発なため焼結を起こしがたく、また混合が良好で還元速度が速いものと考えられる。

#### 4.2.5 流動層との比較

内径 50 mm の反応管について、下部に円錐形のアタッチメントをとりつけて噴流層として用いた場合と、0.8 mmφ、8 mm ピッチの多孔板をとりつけて通常の流動層として用いた場合とについての比較を行なつた例を Fig. 12 に示す。Fig. 12 (A) は還元温度 800°C、鉱石粒度 28~48 メッシュ、水素ガス流量 30 および 12 NL/min の条件における噴流層還元と流動層還元の還元曲線を比較したものである。ガス流量 30 NL/min では両者はほとんど差がないが、流量 12 NL/min の場合、流動層では若干焼結気味で、還元の進行も噴流層に比較し

て遅い。Fig. 12 (B) は還元温度 900°C、鉱石粒度 28~48 メッシュ、水素ガス流量 10, 20, 30 NL/min における比較である。この場合も低流速においては流動層では完全に焼結を起こしたが、流速を増すと両者の間に大きな差はなくなった。他に鉱石粒度 16~28 メッシュの試料についても比較を試みたが同様に低流速では流動層の方が焼結を起こしやすく、還元の進行も若干遅かつた。

以上通常の目皿を用いた場合、低流速では流動が弱く層内粒子の運動が十分でないため焼結が起こりやすいが、噴流層の場合は比較的流速で流動化状態が保たれるため焼結を生じないものと考えられる。流速が高くなると流動層も噴流層も大差なくなり、スラッキングを起こさない範囲で十分高い流速となると層内の混合は流動層の方が有利であると考えられるが、とくに粗粒の流動においてはスラッキングを生じやすいので、両方法の選定に当たっては操作条件について慎重な検討を必要とする。

#### 4.2.6 ガス利用率

噴流層還元におけるガス流量とガス利用率との関係を温度 900°C、鉱石粒度 28~48 メッシュの条件における例についてプロットしたものを Fig. 13 に示す。この場合平均ガス利用率は還元率 0~95% で約 30% とかなり高い値が得られた。ガス利用率はガス流量を減ずるとともに一たんは上昇するが、層内の混合、粒の運動の低下とともに再び減少し、この間にガス利用率の面から最適条件が存在する。800°C 還元においては 95% 還元におけるガス利用率約 25%、40% 還元におけるガス利用率約 40% とかなり減少するが、900°C 還元における場合

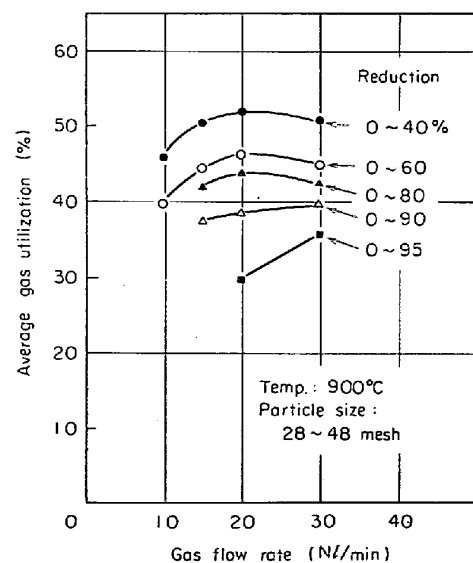


Fig. 13. Gas utilization in spouted bed reduction.  
Cone: 60° Sample: Indian ore.

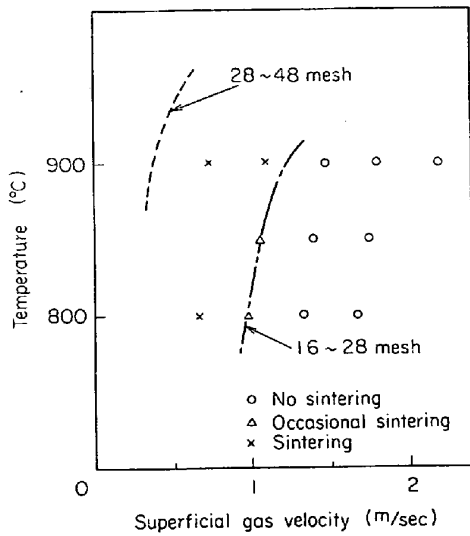


Fig. 14. Critical conditions for sintering in the spouted bed reduction.  
Cone : 60° Sample : Indian ore.

と同様の傾向がみられた。

4.2.7 焼結範囲

以上の噴流層還元について、試料鉄石粒度 16~28 メッシュの試料につき還元温度、ガス流速に関して焼結、非焼結の状態を示したものが Fig. 14 である。これから明らかなように還元温度とガス流速条件に関して、鎖線で示したような焼結-非焼結の大体の限界を描くことができる。Fig. 14 には同様にして求めた 28~48 メッシュの試料に関する焼結-非焼結の限界線を破線で示した。

この限界線は 16~28 メッシュの試料については 1~1.3 m/sec の流速範囲にあり、また 28~48 メッシュの試料については 0.3~0.4 m/sec の流速範囲にあつて、還元温度が低いほど低流速側に移行する。そしてこれらの値は常温における観察にもとづくおのおのの粒度範囲の鉄石試料の最小噴流化流速 1.3 m/sec および 0.45 m/sec と近い値を示している。これらについては後にさらに論ずるが、以上の結果から定性的に、噴流層還元における焼結現象は温度とともに粉粒体の層内における運動状態と関係があり、層内粒子の運動の停滞が焼結の原因となるということが出来る。したがって粒径を大きくした場合でも焼結防止のためにはそれに対応してガス流速を高め、層内の流動化状態を適切に保持することが必要である。

4.3 2次元模型による実験

4.3.1 常温模型実験と高温実験との対応

2次元ないし3次元模型による実験は層内の運動状態を一目で判断することのできる有力な手段ではあるが、高温における運動状態とどのように対応するであろうか

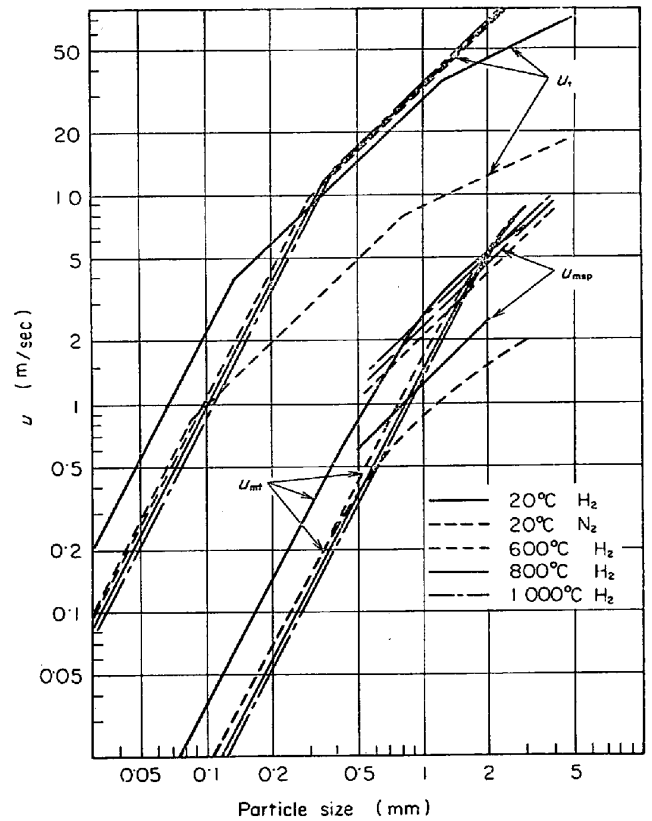


Fig. 15. Calculated terminal velocities and minimum fluidizing and spouting gas velocities for hematite ore.

という問題がある。

粉体の静止充てん層の下部よりガスを通じてこれを流動化させるとき、層内の粒子が運動していわゆる流動化状態を示すことのできる流速範囲は最小流動化流速  $u_{mf}$  あるいは最小噴流化流速  $u_{msp}$  と粒子終端速度  $u_t$  との間である。そして層内の流動状態は層内ガスの見掛流速  $u$  の粒子終端速度に対する比、 $u/u_t$ 、あるいは最小流動化流速に対する比  $u/u_{mf}$  でもつて通常論じられる。Fig. 15 に粉鉄鉱石を 20°C の  $N_2$  または  $H_2$ 、または 600, 800, 1000°C の  $H_2$  で流動化した場合の粒子終端速度および最小流動化流速の計算値を示した。

粒子終端速度についてはよく知られているように粒子に関するレイノルズ数によつて3つの領域に分けて考えられる。すなわち球形の粒子 (形状係数  $\phi_s=1$ ) について、

Stokes 領域

$$u_t = \frac{g(\rho_p - \rho_f)d_p^2}{18\mu} \quad Re_p < 0.4$$

Allen 領域

$$u_t = \left[ \frac{4}{225} \frac{(\rho_p - \rho_f)^2 g^2}{\rho_f \mu} \right]^{1/3} d_p \quad 0.4 < Re_p < 500$$

## Newton 領域

$$u_t = \left[ \frac{3 \cdot 1 g (\rho_p - \rho_f) d_p}{\rho_f} \right]^{1/2} \quad 500 < Re_p < 200\,000$$

$g$  = 重力の加速度

$\rho_p$  = 粉体密度 [g/cm<sup>3</sup>]

$\rho_f$  = 流体密度 [g/cm<sup>3</sup>]

$\mu$  = 流体粘度 [g/cm·sec]

$d_p$  = 粒 径 [cm]

図には  $\phi_s = 0.8$  とした計算値が示されているが、これに明らかなように粒径の増大に伴って  $u_t$  は Stokes, Allen, Newton の領域を経て増大するが、常温 N<sub>2</sub>, 常温 H<sub>2</sub>, 高温 H<sub>2</sub> ではそれぞれ  $\rho_f$ ,  $\mu$  が異なるので、異なつた点にクニークを有する折線で示される。

ここで注目されるのは高温 H<sub>2</sub> 中での  $u_t$  が  $d_p = 0.2 \sim 1$  mm の範囲において常温 H<sub>2</sub> とほぼ等しくなつてゐることである。したがつてこの粒度範囲においては流動の上限付近において高温 H<sub>2</sub> 中と常温 H<sub>2</sub> 中ではきわめて近似した運動状態が予期される。

つぎに最小流動化流速  $u_{mf}$  については ERGUN の式より誘導された次式<sup>13)</sup>が知られている。

$$\frac{1.75}{\phi_s \epsilon_{mf}^3} \left( \frac{d_p u_{mf} \rho_f}{\mu} \right)^2 + \frac{150(1 - \epsilon_{mf})}{\phi_s^2 \epsilon_{mf}^3} \left( \frac{d_p u_{mf} \rho_f}{\mu} \right) = \frac{d_p^3 \rho_f (\rho_p - \rho_f) g}{\mu^2}$$

$\epsilon_{mf}$  = 最疎充てん空隙率

$\phi_s$  = 形状係数

この2次式を解いて常温 N<sub>2</sub>, H<sub>2</sub>, 高温 H<sub>2</sub> について  $u_{mf}$  を求めた。

また最小噴流化流速  $u_{msp}$  については比較的狭い粒度条件 ( $d_p = 0.023 \sim 0.25$  in) について M. LEVA<sup>1)</sup> が次式を提唱している。

$$u_{msp} = \frac{d_p}{D_t} \left( \frac{D_i}{D_t} \right)^{0.7} \left[ \frac{2g_c L (\rho_p - \rho_f)}{\rho_f} \right]^{0.5}$$

$D_t$  = 管 径

$D_i$  = ノズル径

$L$  = 充てん層高さ

これを粉体、流体条件について整理すると次式となる。

$$u_{msp} = k \rho_f^{-1/2} d_p$$

$k$  = 定 数

常温 H<sub>2</sub> に関する本実験の実測値にもとづいて高温 H<sub>2</sub> に対する値を算出して図中に示した。

$u_{mf}$  に関しては  $d_p = 2$  mm 付近で常温 H<sub>2</sub> 中の値と高温 H<sub>2</sub> 中の値が一致するが、 $d_p < 0.5$  mm では常温 N<sub>2</sub> 中の値と高温 H<sub>2</sub> 中の値が一致する。この領域では高温 H<sub>2</sub> 中での  $u_{mf}$  は常温 H<sub>2</sub> 中での  $u_{mf}$  の約 1/2 である。

ところが LEVA の式によれば  $u_{msp}$  に関しては  $u_{mf}$  の関係とはまったく逆に、高温 H<sub>2</sub> 中での  $u_{msp}$  は常温 H<sub>2</sub> 中での  $u_{msp}$  の約 2 倍である。

以上この領域における  $u_{msp}$ ,  $u_{mf}$  についてはさらに実験的な検討を要するが、これらの値は  $d_p = 0.5 \sim 1$  mm の間の中間領域では高温 H<sub>2</sub> 中の値と常温 H<sub>2</sub> 中の値とがそれほど大きく隔たつてはいないと推測される。

以上から本実験で取り扱つた粉鉍石の粒度範囲において通常の噴流ないし流動状態に関し、常温 H<sub>2</sub> 中における状態から高温 H<sub>2</sub> 中における状態を推測することが可能であると思われる。

## 4.3.2 2次元模型による実験

噴流層においては層内の半径方向の状態が均一ではなく、中心部と周辺部では明らかに異なつた運動をしてゐる。したがつて3次元模型では周辺部と上層部の運動しか観察できず、中心部と中間部の動きに関する知見はまったく得られない。さらに粒度分布の広い試料の噴流層では層の軸方向に関してその状態が不均一で、粗粒部分の分離、上層のみの噴流ないし流動化など、3次元模型の観察のみではときとして誤つた判断を下すことがある。かような考えのもとにわれわれは層の軸を含む面に関する2次元模型について噴流層の観察を行なつた。

## 4.3.3 比較的均一な粒度の粉鉍の噴流層

3次元模型による結果についてすでに述べたが、Photo. 1 に2次元模型を用いて 32~60 メッシュの粉鉍石を噴流化させた例を示す。静止充てん層高さ  $L_c$  の小さい (a), (b) は典型的な噴流状態を示し、(c), (d) もほぼこれに準ずるが、 $L_c$  の大きな (e) ではすでにスラッキングを伴つた流動層となつてゐる。

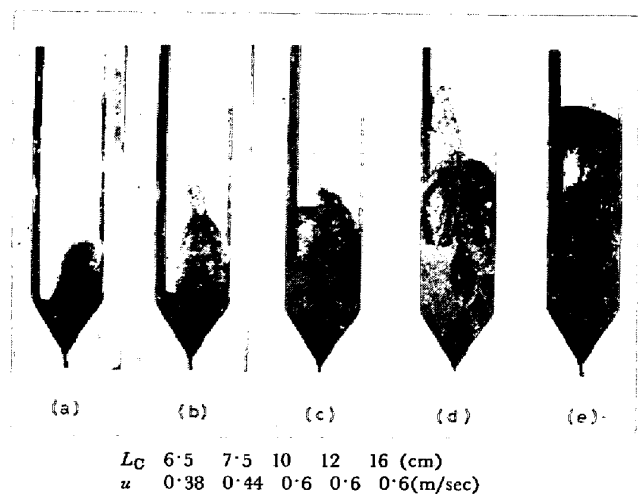


Photo. 1. Two-dimensional model of spouted bed.  
Sample: Hamarsley ore, 32-60 mesh.  
Gas: H<sub>2</sub>



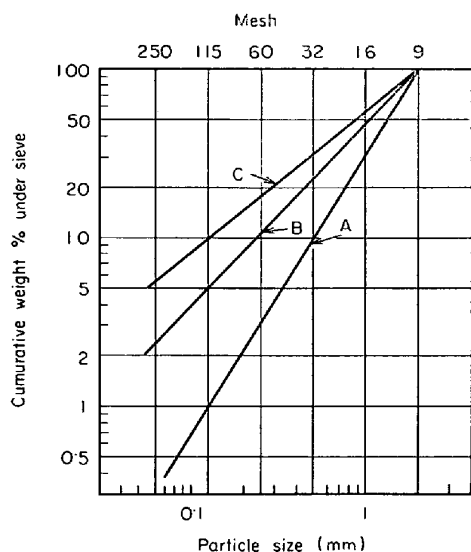


Fig. 16. Particle size distribution of ore sample.

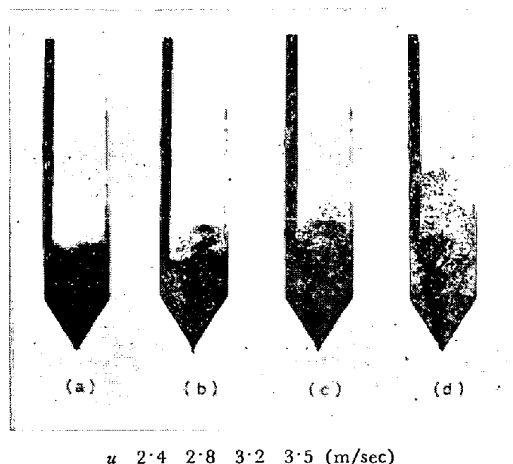


Photo. 2. Two-dimensional model of spouted bed.  
 Sample : Hamersley ore.  
 Particle size distribution : Type B.  
 $L_c = 10$  cm.  
 Gas :  $H_2$

#### 4.4 粒度分布をもつた試料の噴流層

流動ないし噴流層について試料粉体の粒度分布の影響が大きいことは知られているが、試料の粒度分布と流動化現象、あるいは反応とを結びつけて記述することは非常に困難であり、定量的な検討はほとんどなされていない。しかし現実の問題として装置のスケール・アップを考えると、粒度分布の問題は非常に重要であつて、とくに鉄鉱石の流動化還元を行なう場合に、単一粒度の粉鉄を処理することなどは考えられないので、なんらかの形でその影響を把握しておく必要がある。

この粒度分布について、ここでは取扱いの簡便化のために原料鉄鉱石がすべて GAUDIN-SCHUHANN の分布式に従い、

$$D(x) = Cx^m$$

$D(x)$  = 篩下積算重量比

$x$  = 粒 径

の関係が成立し、分布曲線は粒径と篩下積算重量比とが両対数のグラフの上で直線関係を有し、粉碎条件その他によつてその勾配が変わると仮定した。そして Fig. 16 に示すように -9 メッシュについて、-115 メッシュが 1, 5, 10% となるような分布を仮りに A, B, C 分布と表示した。

かような粒度分布をもつた試料について、ガス流速の変化に伴い、層内の運動がどのような状態となるかを 2 次元模型を用いて調べてみた。その一例を Photo. 2 に示す。これは粒度分布 B、静止充てん層高さ 10 cm,  $H_2$  ガス流速 2.4, 2.8, 3.2, 3.5 m/sec における層内の運動状態を示している。

ガス流速を増してゆくとノズル部に噴流を生じ、それが流速の増加とともに成長して、ついに貫流するという過程は均一粒径または比較的粒度範囲の狭いものの場合とほぼ同様である。しかしここに示したように粒度分布の広い試料の場合、完全な噴流層を形成する前に (a) のような微粒部分と粗粒部分との分離を生じ、微粒部分が層上部であつても良好な噴流ないし流動状態を示すにもかかわらず、下部は粗粒の静止充てん層ないし、そのノズル部に部分的な噴流状態を示すところの 2 段流動状態を呈する段階を含む。この段階は実際の反応管の覗き窓からの観察では判別できないし、3 次元模型においても判別が困難である。粒度分布をもつた試料につき還元実験を進めているとき、上部覗き窓からの観察では良好な噴流状態を呈しているにもかかわらず、途中から急速に焼結が進行する場合が間々認められたが、これはかような 2 段流動状態に対応するものと考えられる。

かような 2 次元模型による、粒度分布をもつた試料の噴流層実験の結果を Fig. 17 に示す。この図には常温  $H_2$  ガス中での終端速度の計算値、最小噴流化流速の実測値を併記してある。鉄石粒子はこの 2 つの曲線の間で流動化状態で存在し、 $u_t$  曲線の外では飛出または輸送層、 $u_{msp}$  曲線以下では静止充てん層として存在するが、混合粒の場合には流動範囲は若干広がるものと考えられる。

いま粒度分布 A, B, C について平均粒径 (調和平均粒径) をとつてみるとおのおの 0.83 mm, 0.48 mm, 0.33 mm となる。このおのおのに対する 2 段流動の流速範囲を 2 重線で、噴流状態良好の範囲を 1 重線で示した。これらを結ぶ 2 段流動および噴流良好の領域はいずれも  $u_{msp}$  曲線と  $u_t$  曲線の間、両者にほぼ並行する形で

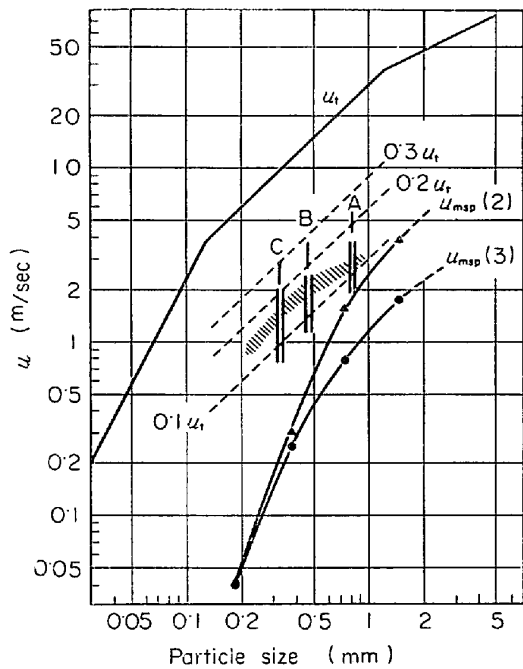


Fig. 17. Quality of spouting and critical condition for sintering.  
Hatched zone: Critical condition for sintering  
(2): Two-dimensional.  
(3): Three-dimensional model.

延びていて、噴流良好の流速範囲は粒子終端速度の 0.2 ~ 0.3 倍である。

還元実験における焼結発生の限界流速のおよその値を Fig. 17 中に斜線で示した。この値は粒子終端速度の 0.1~0.2 倍の範囲にあつて 2 次元模型による 2 段流動発生の限界流速よりも若干低い。この領域において  $H_2$  ガス中における  $u_t$  は常温の値と高温の値とがほぼ一致するので、2 次元模型においては壁効果はかなり大きいため 3 次元模型におけるよりも限界流速が高くなることを考えあわせれば、2 段流動の生成といったような層内の運動の停滞の発生する流速条件が焼結発生の流速条件とほぼ一致するものと考えられる。

前記の比較的粒度分布の狭い試料について焼結の限界流速が常温  $H_2$  中における  $u_{msp}$  に近い値であつたのに対して、粒度分布の広い試料についての焼結限界流速はその調和平均径に対応する  $u_{msp}$  よりもずっと高い値となつており、4.2.4 に述べた事実と矛盾するようであるが、粗粒成分が多くなると流速条件は必然的に粗粒成分の流動条件により大きく支配されるようになり、流速条件の選定には注意を要する。

粒度分布を有する試料についての還元実験はハマスレー鉱石を用い、内径 70 mm の反応管を用いて行なつたがその結果の例を 2, 3 挙げる。Fig. 18 は 800°C に

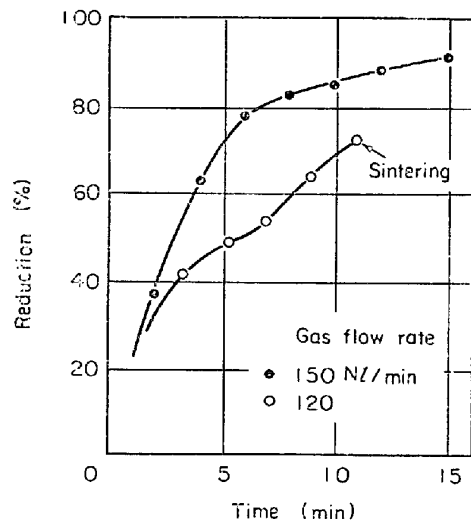


Fig. 18. Reduction of Hamersley ore, type B distribution, at 800°C.

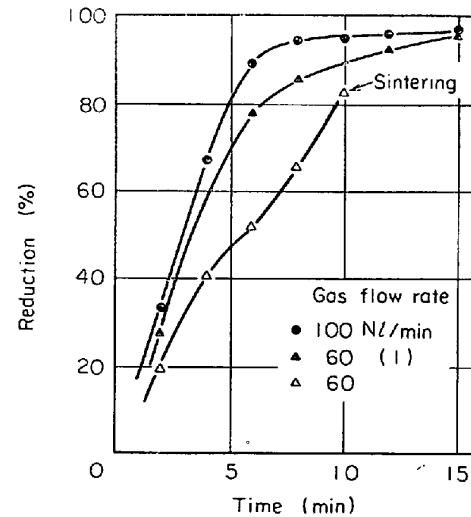


Fig. 19. Reduction of Hamersley ore, type C distribution, at 800°C.  
(1) : -60mesh fraction was cut.

おける粒度分布 B 試料の還元曲線であるが、流量 150 NL/min ( $u=2.75$  m/sec) では正常な還元の進行を示すが、120 NL/min ( $u=2.20$  m/sec) では 5 min 後付近から停滞を示し、約 10 min 後に焼結を起こしている。

Fig. 19 は 800°C における粒度分布 C 試料の還元曲線であるが、この場合 100 NL/min ( $u=1.83$  m/sec) で正常な還元の進行を示すのに 60 NL/min ( $u=1.10$  m/sec) では約 10 min 後に焼結を起こしている。この図において 60 メッシュ以下をカットした試料についての還元曲線を付記しているが、この場合は  $u=1.10$  m/sec でも焼結を生じなかつた。

Fig. 20 は 800°C における粒度分布 A 試料の還元曲線を示す。この場合 150 NL/min ( $u=2.75$  m/sec) で

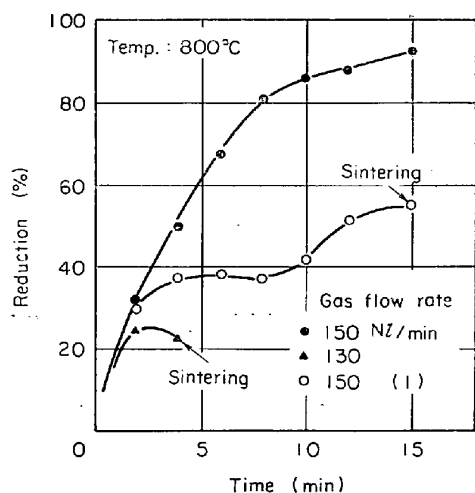


Fig. 20. Reduction of Hamersley ore, type A distribution, at 800°C.

(1) : -60mesh fraction was cut.

は焼結を生じなかつたが 130 NL/min ( $u=2.38\text{m/sec}$ ) では約 4 min 後に焼結を生じた。また -60 メッシュをカットすると 150 NL/min でも 15 min 後に焼結した。

以上 2 次元模型での実験と対応して高温時における層内の運動、さらに焼結の問題を検討したが、さらに微粒部分のカットが平均粒度の大きい A 分布では悪影響を、平均粒度の小さい C 分布では好影響を与えることが認められ、同様の傾向は 900°C 還元においても認められた。微粒成分が層の流動状態の改善に寄与することは粒径の比較的小さい通常の流動層において知られており、 $-44\mu$  の粒度成分を good fraction として考慮することが提唱されている<sup>14)</sup>が、鉄鉱石の流動還元においては微粒成分は焼結の原因となり、流動状態の改善への寄与と焼結の原因という相反する影響を持つているために、条件の critical などところでの微粒成分の影響を定量的に記述することは非常に困難である。

## 5. 結 言

以上鉄鉱石の高温ガス還元への噴流層の適応性を知るための概括的な実験を行ない、さらに粒度分布の影響に関する実験を行なつたが、その結果

(1) 噴流層を用いて比較的粗粒の粉鉄鉱石をかなり速やかに還元処理しうることがわかつた。

(2) 本実験の範囲内では反応速度は層内への還元ガ

ス流量にほぼ比例する。

(3) 還元の進行は流動層と大差ない、しかし低流速においては噴流層の方が焼結し難い。

(4) ガス利用率はガス流量を下げると高くなるが、層内粒子の運動の停滞を生ずるようになると再び下り、この間に最適条件が存在する。

(5) 層内粒子の運動の停滞は焼結の原因となる。粒径を大きくしてもこれに対応してガス流速を高くとらねば焼結を起こす。

(6) 粒度範囲がやや広い方が層内粒子の運動が激しく、還元速度が高く焼結を生じがたい、しかし粒度範囲がさらに広く、粗粒部分の多い粒度分布をもつようになると流速条件によつて粗粒を分離し、2 段流動を生じ、粒の運動の停滞部分が焼結発生の原因となる。

本稿を終わるにあたり、有益なご教示を賜りまた御討論いただいた本研究所製錬研究部長 田中稔博士に深謝の意を表します。

## 文 献

- 1) E. G. HAMILTON and B. O. HOLLAND: The direct reduction of iron ores, (1969), p. 113
- 2) R. A. RUBKER and K. W. BRULAND: Chem. Eng. Progress. Symposium Series, 59 (1963), p. 84
- 3) 森山, 大津, 井本: 工化, 67 (1964), 12, p. 1985
- 4) H. SCHENCK, et al.: Arch. Eisenhüttenw., 33 (1962), 4, p. 211
- 5) 田中: 鉄と鋼, 52 (1966), 3, p. 225
- 6) J. W. BROWN, et al.: J. Metals, 18 (1966), 2, p. 237
- 7) M. LEVA: Fluidization, (1959), p. 169 [McGraw-Hill]
- 8) N. S. VAVILOV: Izv. VUZov, Cher. Met., (1963), 5, p. 26
- 9) S. Y. M. EZZ and R. WILD: JISI, 194 (1960), p. 211
- 10) J. O. EDSTROM: JISI, 175 (1953), p. 289
- 11) J. S. M. BOTTERILL: Brit. Chem. Eng., 6 (1961), p. 327
- 12) R. H. BUCHANAN et al.: Brit. Chem. Eng., 6 (1961), p. 402
- 13) D. KUNII and LEVENSPIEL: Fluidization Engineering, (1969), p. 72 [John Wiley & Sons]
- 14) 池田: 化学工学, 34 (1970), p. 1013