

© 1986 ISIJ

三界面モデルによる鼓胴型回転流動層の解析 論文

小林一彦*・相馬胤和**

Analysis of Fluidized Rotary Bed in Countercurrent Reduction by Three-Interface Model

Kazuhiko KOBAYASHI and Tanekazu SÔMA

Synopsis :

Countercurrent reduction results by fluidized rotary bed have shown that gas utilization increased with the increase of the stage number or L/D value, which meant the countercurrent reduction should be established.

However, since the mean residence time of ore measured was not equal and the countercurrent effect was different in each reactor, both the mean residence time factor and the countercurrent factor affect simultaneously the fractional reduction.

Thus, in this paper, in order to investigate only the effect of countercurrent on the fractional reduction, a single fluidized-bed-model including gas and ore flow in the bed was developed with three-interface model and numerical computation was conducted for the three-staged reduction.

Under the assumption that gas flow is plug flow and ore is complete mixing flow in a one-staged bed, fractional reductions computed from this model were in good agreement with observed one in each reactor.

Therefore the effect of countercurrent on the fractional reduction was estimated separately by this model.

1. 緒 言

前報¹⁾では、粉鉱の利用を目的とした流動層の一種である回転流動層に多段鼓胴型反応器、多段コニカル反応器、 L/D 反応器を使用して向流還元に及ぼす炉形の影響を実験的に検討した。

多段鼓胴型反応器並びに多段コニカル型反応器では、いずれも段数の増加に伴い、定常還元率は上昇し、この時実測された定常ガス利用率も段数の増加に伴い、ウスタイト一鉄と平衡する水素のガス利用率を越えることが確認され、還元反応は2段以上で進行しているものと推定される。

L/D 反応器についても鼓胴部の内容積を変えずに、その内径 D に対する長さ L の比 L/D を大きくとる程、定常還元率は上昇し、一段反応器であるにもかかわらず、定常ガス利用率はウスタイト一鉄と平衡する水素のガス利用率を越えることが確認され、還元反応はやはり2段以上で進行しているものと推定される。

そこで、各反応器に対して粒子滞留時間分布を実測したところ、反応器を多段化することや、 L/D を大きく

とることで、鉱石の流れは完全混合からプラグフロー側に改善されることが確認され、しかも単位層内の鉱石の流れは、ほぼ完全混合で記述されることも確認された。

従つて、鉱石の流れが反応を大きく支配しているものと推察されるが、反応器内に滞留する鉱石のホールドアップが異なるため、鉱石の流れのみの影響を実験値から導き出すことはできない。

そこで、本報では、この点を明らかにするため鉱石の滞留時間分布を考慮した三界面モデルによる多段流動層モデルを導出し、各反応器で達成された定常還元率とモデル計算値とを比較検討したところ、良好な結果が得られたので報告する。

2. 理 論 計 算

三界面モデルによる流動層の計算モデルとしては、最近、佐藤ら²⁾が回分式流動層に対する計算例を報告している。しかし、鉱石の滞留時間分布を考慮した三界面モデルによる連続式流動層の計算例は見当らない。

そこで、新たに、鉱石及びガスの流れを同時に考慮した三界面モデルに基づく連続式単段流動層の解法を導出

昭和 60 年 4 月 30 日受付 (Received Apr. 30, 1985)

* 東京大学大学院(現: 東邦チタニウム(株)技術研究所) (Graduate School, The University of Tokyo, Now Technical Research Laboratories, Toho Titanium Co., Ltd, 3-3-5 Chigasaki Chigasaki 253)

** 東京大学工学部 工博 (Faculty of Engineering, The University of Tokyo)

し、更に、この解法を多段流動層に拡張し、3段迄の計算を行つた。

2.1 単段流動層の解法

鉱石側の平均還元率 \bar{f}_p は、鉱石の滞留時間分布関数 $E_n(\bar{t}, t)$ と鉱石の反応率関数 $f(\bar{p}, X, t)$ を用いて(1)式で表される。

$$\bar{f}_p = \int_0^\infty f(\bar{p}, X, t) \cdot E_n(\bar{t}, t) dt \quad [-] \quad \dots \dots \dots (1)$$

ここで \bar{p} : 大気圧で無次元化した層内平均ガス分圧
[-]

X : 層入口において、鉱石中に含まれる各酸化物の無次元界面半径で、未還元鉱では $X = (1, 1, 1)$ である。

\bar{t} : 鉱石の層内における平均滞留時間 [min]

$f(\bar{p}, X, t)$: 還元温度が 750°C では、高還元率領域で還元が停滞することもあるが、ここでは、その影響を無視した。

流動層内の粒子の流れは、完全混合で表せる場合が多く、前報で述べたように本実験で用いた回転流動層内の鉱石の流れもほぼ完全混合と見なせるので、モデル計算でも、層内の鉱石の流れは完全混合と仮定した。

この時出口年令分布関数 $E_n(\bar{t}, t)$ は(2)式で表せる。

$$E_n(\bar{t}, t) = \frac{1}{\bar{t}} \cdot e^{-t/\bar{t}} \quad [1/min] \quad \dots \dots \dots (2)$$

(2)式を(1)式に代入すると、鉱石の平均還元率 \bar{f}_p は(3)式で表せる。

$$\bar{f}_p = \int_0^\infty f(\bar{p}, X, t) \cdot \left(\frac{1}{\bar{t}} \cdot e^{-t/\bar{t}} \right) dt \quad [-] \quad \dots \dots \dots (3)$$

一方、向流還元では、ガス流量 Q [NL/min]、ガス利用率 U [-]、それと給鉱速度 W_s [g/min] が決まると、これらの変数を用いて、(4)式からも還元率 \bar{f}_g [-] が計算できる。

$$\bar{f}_g = \frac{Q \cdot U}{1.4 \cdot X_o \cdot W_s} \quad [-] \quad \dots \dots \dots (4)$$

ここで、 U : $p_{in} - p_{out}$ である。

p_{in}, p_{out} : 層入口及び出口における大気圧で無次元化した水素ガス分圧 [-]

X_o : 鉱石中の酸素分率 [-]

W_s : 給鉱速度 [g/min]

定常状態では、鉱石側の還元率 \bar{f}_p とガス側の還元率 \bar{f}_g は等しいので(5)式が成立する。

$$\bar{f}_p = \bar{f}_g \quad [-] \quad \dots \dots \dots (5)$$

(3)式中の鉱石の平均滞留時間 \bar{t} は層内における鉱石のホールドアップを給鉱速度で除してやれば計算できる。(4)式中の X_o は鉱石により決定され、ガス流量 Q と給鉱速度 W_s は還元条件により決定される。一方、

常圧還元では $p_{in} = 1$ である。

従つて、(3)式に含まれる還元ガス分圧 \bar{p} と(4)式に含まれる出口還元ガス分圧 \bar{p}_{out} が解かれるべき変数となる。

両者の関係を表わす束縛方程式は(5)式のみであるので、 \bar{p} と \bar{p}_{out} の両者を同時に解くことはできないが、次のようにガス流れ条件を考慮すると、もう一個別の関係式を導出できる。

i) ガス流れが完全混合の場合

層内のガス分圧は層出口でのガス分圧に等しいので、(6)式が成立する。

$$\bar{p} = \bar{p}_{out} \quad [-] \quad \dots \dots \dots (6)$$

ii) ガス流れがプラグフローの場合

森山³⁾が示しているように、層単位長さ当たりの物質収支式は(7)式で表される。

$$\frac{1}{RT} \cdot \frac{dp}{dz} + \frac{1}{u_0} \cdot V^*(\bar{f}_p, \bar{p}) = 0 \left[\frac{\text{mol}}{\text{cm}^4} \right] \quad \dots \dots \dots (7)$$

ここで $V^*(\bar{f}_p, \bar{p})$: 単位層中に含まれる鉱石の反応速度 [mol/cm³·s]

u_0 : 空塔基準ガス流速 [cm/s]

反応速度 $V^*(\bar{f}_p, \bar{p})$ は、鉱石が曝される還元ガス分圧 \bar{p} と鉱石の還元率 f の関数であるが、鉱石の流れは層内で完全混合と考えているので、層方向への鉱石の還元率分布はなく層出口における還元率 \bar{f}_p に等しいので、反応速度 $V^*(\bar{f}_p, \bar{p})$ に含まれる f_p を \bar{f}_p と置いた。

反応速度 $V^*(\bar{f}_p, \bar{p})$ は層単位体積当たりの反応速度であるので、粒子一個当たりの反応速度 $v^*(\bar{f}_p, \bar{p})$ を用いると(7)式は(8)式で表せる。

$$\frac{1}{RT} \cdot \frac{dp}{dz} + \frac{1-\varepsilon}{4/3\pi r_0^3 \cdot u_0} \cdot v^*(\bar{f}_p, \bar{p}) = 0 \left[\frac{\text{mol}}{\text{cm}^4} \right] \quad \dots \dots \dots (8)$$

ここで $v^*(\bar{f}_p, \bar{p})$: 三界面モデル⁴⁾から計算される粒子一個当たりの反応速度 [mol/cm³·s]

r_0 : 鉱石粒子半径 [cm]

ε : 層空隙率 [-]

一方、(3)式に含まれる層内平均ガス分圧 \bar{p} は、(9)式で計算される。

$$\bar{p} = \frac{\int_0^L p dz}{\int_0^L dz} \quad [-] \quad \dots \dots \dots (9)$$

(8)式を用いて(9)式に含まれた変数 ε を \bar{p} に変換すると(9)式は(10)式で表せる。

- ① I段入口ガス分圧 p_{m1} を仮定する。
- ② 単段流動層のアルゴリズムを使い、I段出口ガス分圧 p_{out} を計算する。
- ③ I段で計算された各酸化物の平均界面半径 $X_m (= \bar{x}, \bar{y}, \bar{z})$ をII段入口の鉱石の初期条件、 $p_{in}=1$ をガスの入口条件として、II段出口のガス分圧 p_{m2} を計算する。
- ④ p_{m1} と p_{m2} が一致しない場合には、I段入口で仮定したガス分圧 p_{m1} に変更を加えつつ、I段入口のガス分圧 p_{m1} とII段出口のガス分圧 p_{m2} が一致するまで、二分法により上記の計算を繰返す。

実際の計算では、 p_{m1} と p_{m2} の相対誤差が 0.1% 以内に入つた時点を p_{m1} と p_{m2} が一致したものと判定した。計算時間は約 10 min であった。

3段流動層についても、全く同じアルゴリズムにより計算できる。計算時間は 1 h~1.5 h であった。

なお、層内のガス流れに関する情報はないので、ここでは、全てプラグフローと仮定して計算させた。

2.5 速度パラメーター

(3)式に含まれる反応率関数 $f_p(\bar{p}, X, t)$ の計算には 3 ロの反応速度パラメーター k_{ci} ($i=1, 2, 3$)、粒内有効拡散係数 D_e 、物質変動係数 k_f が必要である。しかし本研究では小粒鉱石を使用しているので反応律速とした。

Table 1 は反応速度パラメーターの値を示している。これらの値は固定層還元で測定した還元率曲線に対するパラメーターフィッティングから決定した。

著者らは、別報にて 750°C の水素還元では高還元率領域(90% 以上)で還元が停滞していることを報告しているが、本研究に現れる還元率は高々 90% であるので、還元率が 90% 以下の領域で反応速度式を適用し還元率を計算した。

2.6 計算例

Fig. 2 は、750°Cにおいて、水素流量 2 Nl/min、給鉱速度 2, 6 g/min、それに鉱石のホールドアップ 150 g の場合を例にとって定常還元率に及ぼす多段化の効果を調べたものである。平均滞留時間が 25 min の場合、段数の増加に伴い、定常還元率も大きく上昇している。平均滞留時間が 75 min の場合、2段迄の改善効果は認められるが、2段以後は高還元率領域に入っているため

Table 1. Reaction rate parameters used for computation.

k_{c1} [cm/s]	k_{c2} [cm/s]	k_{c3} [cm/s]
0.11	0.11	0.14

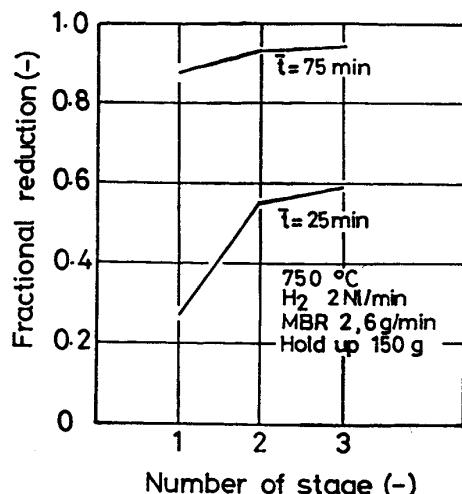


Fig. 2. Example of fractional reduction computed for multistage reactor.

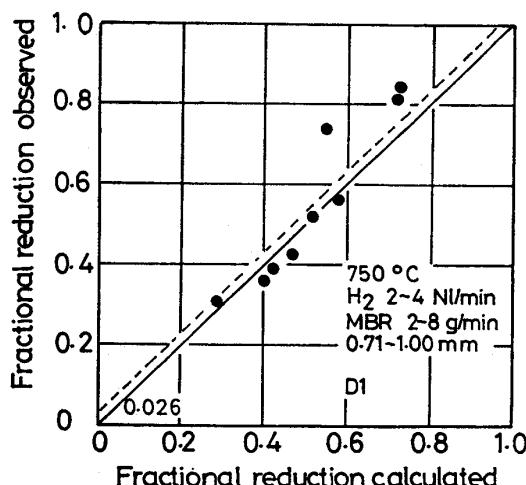


Fig. 3. Comparison of fractional reduction computed with one observed.

か、改善効果はほとんど認められない。

3. 実験値と計算値の比較

3.1 多段鼓胴型反応器

Fig. 3 は、1段鼓胴型反応器に対して水素流量 2~4 Nl/min、給鉱速度 2~8 g/min で達成された定常還元率と計算値とを比較したものである。破線は勾配 1 の最小自乗直線を、0.026 は y 切片を表している。高還元率領域で実測値が計算値から高い方にずれる傾向にあるが、全体としては両者の一致の程度は良好である。

Fig. 4 は、2段鼓胴型反応器に対して実測された定常還元率と計算値とを比較したものである。両者はかなり良い一致を示している。

以上の計算結果より、多段鼓胴型反応器では、単位層内の鉱石の流れが完全混合、ガス流れがプラグフローで記述できることが明らかにされた。

3.2 多段コニカル反応器

Fig. 5 は、1段コニカル反応器に対して実測された

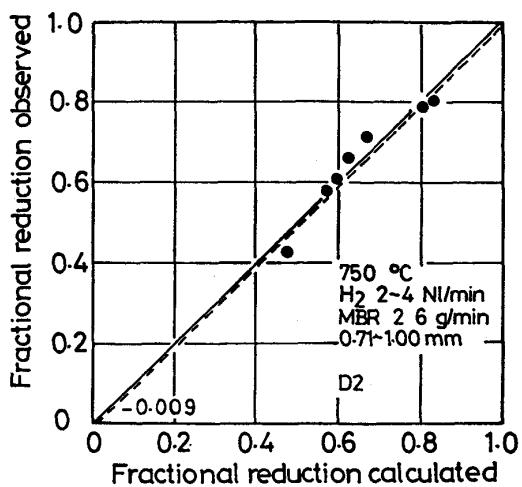


Fig. 4. Comparison of fractional reduction computed with one observed.

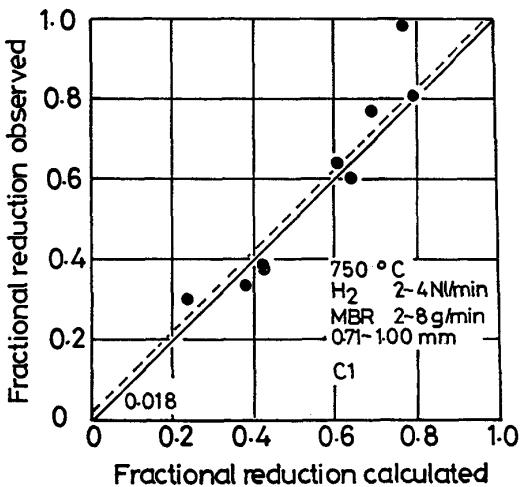


Fig. 5. Comparison of computed fractional reduction with observed one.

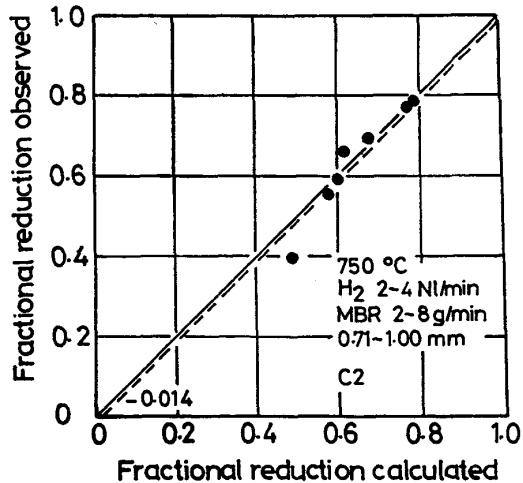


Fig. 6. Comparison of fractional reduction computed with one observed.

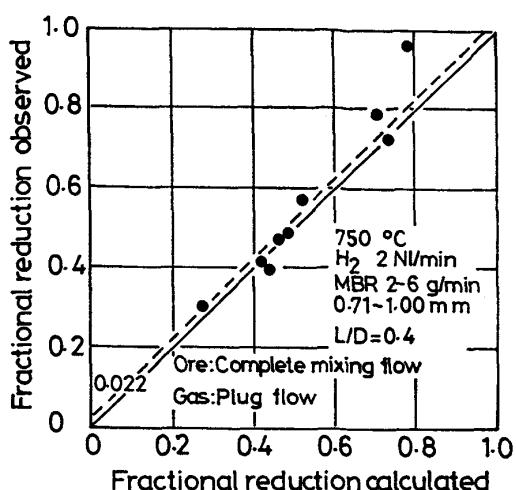


Fig. 7. Comparison of fractional reduction computed with one observed.

定常還元率と計算値とを比較したものであり、両者の一致の程度は良好である。

Fig. 6 は、2段コニカル反応器に対する結果であるが、計算値と実験値との一致の程度は良好である。

以上の計算結果より、多段コニカル型反応器においても、単位層内の鉱石の流れが完全混合、ガス流れがプラグフローで、ほぼ記述できることが明らかにされた。

3.3 L/D 反応器

L/D 反応器では、鉱石の滞留時間分布測定で実測された分布関数は完全混合と2段モデル又は2.5段までの間中領域に存在しているが、槽列モデルでは整数段をモデルしか表せないので、簡単のため、鉱石の流れは完全混合と仮定した。ガス流れについては、プラグフローと仮定した。

Fig. 7 は、L/D=0.4 の反応器に対して実測された定常還元率と計算値を比較したものである。破線はデータに対する最小自乗直線を表している。実線は、実測値と計算値が完全に一致した場合を表している。従つて、破線がこの直線よりも高還元率側にある場合、実測値が計算値を凌いでいることを意味しており、計算の前提条件よりも更に反応器の性能が優れていることを表している。逆に破線がこの直線よりも低還元率側にある場合、計算の前提条件よりも劣っていることを意味している。Fig. 8 では、破線が実線よりも高還元率領域にあるので、鉱石が完全混合、ガスがプラグフローという条件よりも優れているものと推察されるが、ほぼ計算値と実測値は一致しており、ガスはプラグフローで、鉱石は完全混合で、反応は進行しているものと考えられる。ここで実験値が計算値よりも若干高い値を示しているが、これは前報で述べた滞留時間分布関数が完全混合よりも

プラグフロー側に存在しているので、この差が実験値に反映しているものと推定できる。

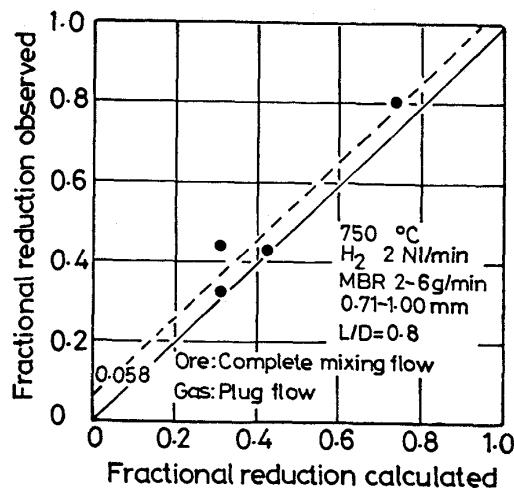


Fig. 8. Comparison of fractional reduction computed with one observed.

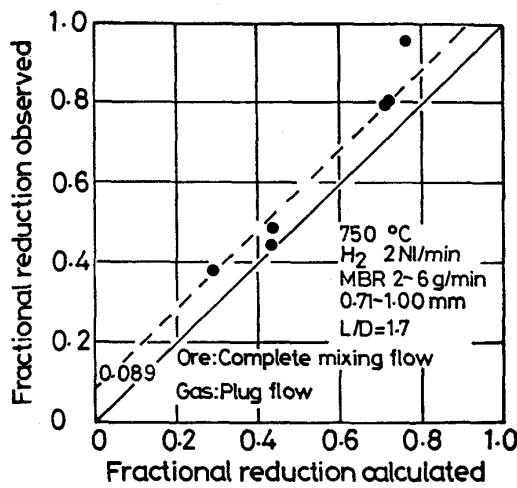


Fig. 9. Comparison of fractional reduction computed with one observed.

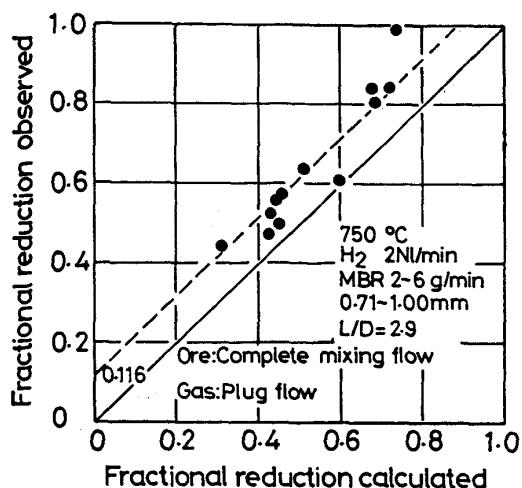


Fig. 10. Comparison of fractional reduction computed with one observed.

Fig. 8 は、 $L/D=0.8$ の反応器に対して実測値と計算値を比較したものである。実験値は計算値よりも高還元率側に偏奇しており、その程度は 0.058 である。

Fig. 9 は、 $L/D=1.7$ に対して実測値と計算値を比較したものである。実験値は計算値よりもやはり高還元率側にあり、その程度は 0.089 である。

Fig. 10 は、 $L/D=2.9$ に対する検討結果である。実験値は計算値よりもかなり高く、その程度は 0.116 である。

以上の L/D に対する計算値と実測値との比較結果より、 L/D が大きくなる程、鉱石の流れを完全混合として計算した実線からの偏奇も大きくなる方向に変化している。

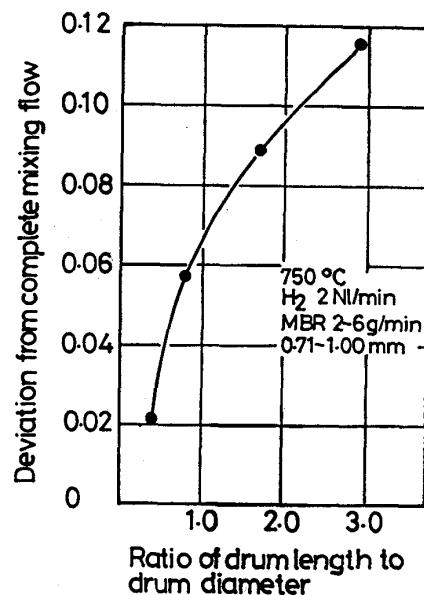


Fig. 11. Effect of L/D value on deviation factor.

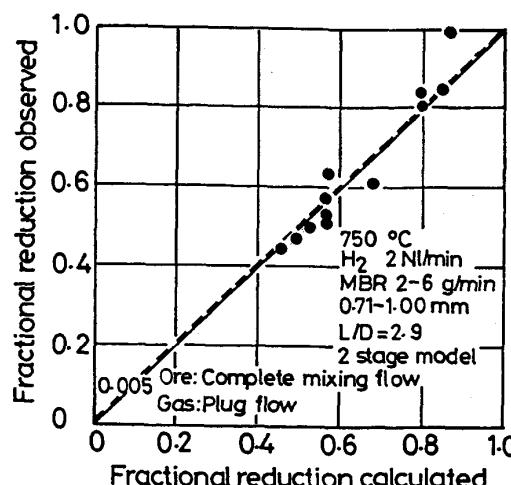


Fig. 12. Comparison of fractional reduction computed on two stage model with one observed.

Fig. 11 は、上記で述べた完全混合からの偏奇の程度を表す係数と L/D との関係を表している。この係数は L/D の増加に伴い、単調に増加している。前報で述べたように、 L/D が 0.4 から 2.9 まで変化すると、滞留時間分布関数も完全混合からプラグフローへ推移しており、ここで示した偏奇係数の上昇がプラグフローへの改善効果の程度を、表している。特に $L/D=2.9$ で実測された分布関数は 2.5 段ではほぼ記述されていたが、ここでは 2 段として計算させた。

Fig. 12 は実測値と計算値とを比較したものであり両者の一致は良好である。即ち、コールド実験では 2.5 段程度の改善効果があつたが、分布関数の測定時には鼓胴部と軸部の両者が粒子の経路に入つており、還元実験では軸部は還元に寄与しないため 2 段モデルで還元データが記述されたものと推察される。

以上の計算結果より、鼓胴部の内容積を変えないで、鼓胴部を細長くすることにより、 $L/D=2.9$ 程度では単段であるにもかかわらず、2 段の反応を行なわせ得ることが明らかにされた。

4. 結 言

粉鉱の効率的利用を目的として、流動層の一種である回転流動層に種々の反応器を使用した向流還元実験結果を検討するためガス並びに鉱石の流れを考慮した三界面モデルに基づいた流動層モデルを導出し、実験値と比較検討したところ、次の結論に達した。

1) 多段鼓胴型反応器並びに多段コニカル型反応器では、単位層内のガス流れをプラグフロー、鉱石の流れを完全混合と仮定することで、還元反応をほぼ記述出来る。

2) L/D 反応器ではガスがプラグフロー、鉱石が完全混合と仮定した 1 段モデルで記述されるが、 L/D の上昇に伴い、1 段モデルから 2 段モデルまでの向流改善効果がある。

記 号

- C_M, C_W, C_F : ヘマタイト、マグネサイト、ウスタイトに含まれる被還元酸素量の割合
($C_M=0.1111, C_W=0.1889, C_F=0.7000$)
 D_{e_i} : 粒内有効拡散係数 [cm^2/s] ($i=1, 2, 3$)
 $E_n(t, t)$: 粒子滞留時間分布関数 [$1/\text{min}$]
 f_g : ガス側から計算される還元率 [-]
 f_p : 鉱石側から計算される還元率 [-]
 $f(\bar{p}, X, t)$: 三界面モデルから計算される粒子一個当たりの還元率 [-]
 k_{c_i} : 反応速度パラメータ [cm/s] ($i=1, 2, 3$)
 k_f : 物質移動係数 [cm/s]
 K_i : 平衡定数 [-] ($i=1, 2, 3$)
 p^{*}_{ei} : 全圧で無次元化した平衡ガス分圧 [-]
($i=1, 2, 3$)

- p_0 : 全圧 (本計算では 1 気圧とした.) [atm]
 p_{in}, p_{out} : 層入口及び出口における大気圧で無次元化した還元ガス分圧 [-]
 Q : ガス流量 [Nl/min]
 r_0 : 鉱石粒子半径 [cm]
 R : 気体定数 (82.06 [atm·cm³/mol·K])
 t : 時間 [min]
 \bar{t} : 鉱石の平均滞留時間 [min]
 n_o : 空塔基準ガス流速 [cm/s]
 U : ガス利用率 [-]
 $v^*(\bar{f}_p, p)$: 三界面モデルから計算される粒子一個当たりの反応速度 [$\text{mol}/\text{cm}^3\cdot\text{s}$]
 V^* : 単位層中における鉱石の反応速度 [$\text{mol}/\text{cm}^3\cdot\text{s}$]
 W_s : 純鉱速度 [g/min]
 x : $\text{Fe}_2\text{O}_3 \rightarrow \text{Fe}_3\text{O}_4$ 反応の無次元化界面半径 [-]
 y : $\text{Fe}_3\text{O}_4 \rightarrow \text{FeO}$ 反応の無次元化界面半径 [-]
 z : $\text{FeO} \rightarrow \text{Fe}$ 反応の無次元化界面半径 [-]
 X_0 : 鉱石中の酸素分率 (=0.2917) [-]

添字

- i : 1 : $\text{Fe}_2\text{O}_3 \rightarrow \text{Fe}_3\text{O}_4$ 反応
2 : $\text{Fe}_3\text{O}_4 \rightarrow \text{FeO}$ 反応
3 : $\text{FeO} \rightarrow \text{Fe}$ 反応

文 献

- 1) 小林一彦, 相馬胤和: 鉄と鋼, 72(1986), p. 759
- 2) 佐藤享司, 西川泰則, 植田芳信: 鉄と鋼, 70(1984), p. 1362
- 3) 森山 昭: 金属学会誌, 31(1967), p. 617
- 4) 原 行明, 坂輪光弘, 近藤真一: 鉄と鋼, 62(1976), p. 315
- 5) 小林一彦, 大塚研一, 相馬胤和: 鉄と鋼, 68(1982), S 824

Appendix

原の三界面モデルによると 1~3 界面モデルにおける全反応速度は次の様に表せる。

i) 3 界面モデル

$$v^*(\bar{f}_p, p) = \sum_{i=1}^3 v_i = \frac{p_0 \cdot 4\pi r_0^3}{RT} \cdot \alpha_3 \cdot (p - \beta_3)$$

$$\text{ここで } \alpha_3 = F_{31} + F_{32} + F_{33}$$

$$\beta_3 = \frac{F_{31} \cdot p_{e1}^* + F_{32} \cdot p_{e2}^* + F_{33} \cdot p_{e3}^*}{F_{31} + F_{32} + F_{33}}$$

$$F_{31} = \frac{A_2 \cdot A_3}{W_3}, \quad F_{32} = \frac{A_3(A_1 + B_1)}{W_3}, \quad F_{33} = \frac{A_2 B_2 + (A_1 + B_1)(A_2 + B_2)}{W_3}$$

$$W_3 = (A_1 + B_1) \{ A_3(A_2 + B_2 + B_3 + F) + (A_2 + B_2)(B_3 + F) \} + A_2 \{ A_3(B_2 + B_3 + F) + B_2(B_3 + F) \}$$

$$A_1 = \frac{1}{x^2 \cdot k_{c1} (1 + 1/K_1)}, \quad A_2 = \frac{1}{y^2 \cdot k_{c2} (1 + 1/K_2)},$$

$$A_3 = \frac{1}{z^2 \cdot k_{c3} (1 + 1/K_3)}$$

$$B_1 = \frac{y-x}{xy} \cdot \frac{r_0}{D_{e1}}, \quad B_2 = \frac{z-y}{yz} \cdot \frac{r_0}{D_{e2}}$$

$$B_3 = \frac{1-z}{z} \cdot \frac{r_0}{D_{e3}}$$

$$F = 1/k_f$$

ii) 2界面モデル

$$v^*(\bar{f}_p, p) = \sum_{i=1}^2 v_i = \frac{P_0 \cdot 4\pi r_0^2}{RT} \cdot \alpha_2 \cdot (p - \beta_2)$$

$$\text{ここで } \alpha_2 = F_{21} + F_{22},$$

$$\beta_2 = \frac{F_{21} \cdot p_{e_1}^* + F_{22} \cdot p_{e_2}^*}{F_{21} + F_{22}}$$

$$F_{21} = \frac{A_2}{W_2}, \quad F_{22} = \frac{A_1 + B_1}{W_2}$$

$$W_2 = A_2(A_1 + B_1 + B_2 + F) \\ + (A_1 + B_1)(B_2 + F)$$

$$A_1 = \frac{1}{x^2 \cdot k_{c_1} (1 + 1/K_1)}, \quad A_2 = \frac{1}{y^2 \cdot k_{c_2} (1 + 1/K_2)}$$

$$B_1 = \frac{y-x}{xy} \cdot \frac{r_0}{D_{e_1}}, \quad B_2 = \frac{1-y}{y} \cdot \frac{r_0}{D_{e_2}}, \quad F = 1/k_f$$

iii) 1界面モデル

$$v^*(\bar{f}_p, p) = \frac{p_0 4\pi r_0^2}{RT} \cdot \alpha_1 \cdot (p - \beta_1)$$

$$\text{ここで } \alpha_1 = \frac{1}{A_1 + B_1 + F}$$

$$\beta_1 = p_{e_1}^*$$

$$A_1 = \frac{1}{x^2 \cdot k_{c_1} \cdot (1 + 1/K_1)}, \quad B_1 = \frac{1-x}{x} \frac{r_0}{D_{e_1}},$$

$$F = 1/k_f$$