

予備還元流動層における 粉鉄鉱石の流動化および粉化挙動

有山 達郎*・磯崎 進市*²・松原 真二*²・川田 仁*²・小林 勲*³

Fluidization and Degradation Characteristics of Iron Ore Fines in Prereduction Fluidized Bed

Tatsuro ARIYAMA, Shinichi ISOZAKI, Shinji MATSUBARA, Hitoshi KAWATA and Isao KOBAYASHI

Synopsis : The integrated test plant, consisting of a prereduction fluidized bed and in-bath smelting furnace characterized by high post combustion, was installed at NKK's Fukuyama Works, and the operation was started in 1988. The prereduction fluidized bed uses iron ore fines as feed, and the fluidizing condition and pressure fluctuation characteristics to keep the stable fluidizing were clarified by the operation of the integrated test plant. The classification behavior of fines was analyzed by the measurement of the elutriation rate constant. Then, the degradation phenomena of iron ore fines were observed during the preheating and prereduction of iron ore fines in the fluidized bed, and it was quantitatively analyzed by the application of Rittinger's law for size reduction. The model including classification and degradation behavior was constructed so as to estimate the operating condition. These results were considered to be available in the scale-up of the prereduction fluidized bed.

Key words : smelting reduction ; fluidized bed ; prereduction ; iron ore fines ; degradation.

1. 緒言

現在、溶融還元法の研究開発は活発化しており、多くのプロジェクトがすすめられている¹⁾²⁾。NKKの福山において100t/d規模の溶融還元一貫設備が建設された。このプロセスは高2次燃焼、高着熱効率を指向した溶融還元炉とFeOまでの予熱予備還元を行う流動層の組み合わせからなる。予備還元流動層ではシンターフィードすなわち8mm程度の粉鉄鉱石を事前処理なしに直接、原料として用いる。粉鉄鉱石は流動層の原料としては粒度範囲が広く、かつ数mm程度の粗粒を含むやや処理にくい原料であるが、筆者らは基礎的な実験を行い、粉鉄鉱石を流動層で予備還元する際の適正な流動化、予備還元条件を明らかにし、既に報告した³⁾。福山の一貫プロセスにおける予備還元流動層はこれらの知見に基づいて設計され、全系としての運転は1988年4月に開始された。その後のテストランを経て1988年10月から日本鉄鋼連盟による溶融還元研究開発の一環としての本格的な試験に入った。その結果、予備還元流動層においては、スケールアップした際の粉鉄鉱石の流動化と分級特性が明らかになると同時に、予熱予備還元の結果として粉鉄鉱石の粉化挙動が無視できないことがわかった。著者らは、このような大型の装置を対象に基本的な流動化特性を明確に

するとともに、粉化、さらに分級挙動について定量化を行い、新たな予測モデルを構築したので報告する。なお、本研究は通産省の石炭利用技術振興補助事業に基づく共同研究として実施されたものである。

2. 福山溶融還元設備における予備還元流動層

2・1 設備概要

福山溶融還元の一貫設備⁴⁾における予備還元流動層設備本体をFig.1に示す。原料の粉鉄鉱石は広範囲粒度の原料であり、このような原料に対する設備対策として、基本的にはバブリング型として流動層下部に濃厚層を形成させ、フリーボードの空塔流速で決まる分級点以下の粒子は濃厚層内にある程度保持し、完全にキャリーオーバーされた微粒系粒子に対してはその滞留時間調整用に外部循環装置を設けた設備とした。このような設備設計の考えは基礎研究の結果³⁾に基づくものである。流動層下部の部分は内径φ0.98m、フリーボードはφ1.22mである。原料の粉鉄鉱石は予熱予備還元されたのち、フリーボードの空塔流速で決まる分級点以上の粒径の粗粒系粒子 (coarse particles) は分散板中央の抜き出し管より排出され、微粒系粒子 (fine particles) は循環装置 (circulating device) から排出される。循環装

平成5年3月23日受付 平成5年9月10日受理 (Received on Mar. 23, 1993; Accepted on Sep. 10, 1993)

* (社)日本鉄鋼連盟 (現:NKK総合材料技術研究所) (The Japan Iron & Steel Federation, now Materials & Processing Research Center, NKK Corporation, 1-1 Minamiwatarida-cho Kawasaki-ku Kawasaki 210)

* 2 (社)日本鉄鋼連盟 (現:NKK) (The Japan Iron & Steel Federation, now NKK Corporation)

* 3 (社)日本鉄鋼連盟 (現:(株)神戸製鋼所) (The Japan Iron & Steel Federation, now Kobe Steel, Ltd.)

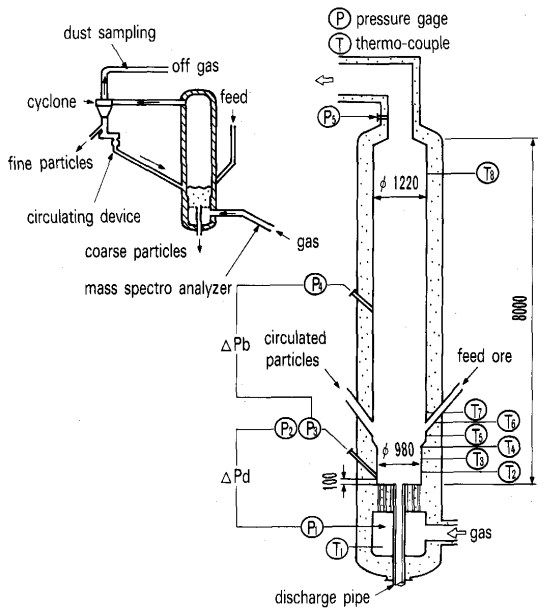


Fig. 1. Prereduction fluidized bed in Fukuyama smelting reduction test plant.

置はニューマチックバルブを用いた。分散板ノズルは流入する還元ガスが高含塵ガスでありダストの付着成長による閉塞を防ぐため、直管の大口径タイプのものを用いた（ノズル径φ26mm、開口比3.5%）。

2・2 操業方法

まず溶融還元炉から発生した高温の還元ガスを予備還元流動層に導き、炉内が粉鉄鉱石の流動化に必要なガス流速を得るに十分な条件になり、かつ分散板ノズルガス流速が落鉱限界流速以上の流速に達した後、流動層に原料を投入した。滞留量は濃厚層内の圧損で管理し、所定の滞留量になるように給鉱量と抜き出し量を調整した。使用した粉鉄鉱石は4種であり、その粒度分布をTable 1にしめす。また主要な操業条件をTable 2に示す。

Table 1. Size distribution of feed(mass%).

Ore	A	B	C	D
+5 mm	20	6	3	3
5~3 mm	17	16	30	19
3~1 mm	25	26	37	30
1~0.5 mm	7	14	12	10
0.5~0.25 mm	8	11	8	9
0.25~0.125mm	12	20	6	14
-0.125 mm	11	7	4	13

Table 2. Main test conditions of prereduction fluidized bed.

Feed rate	2~6t/h
Hold-up in bed	700~2800kg
Bed temp.	400~820°C
Gas velocity	2.8~5.5m/s (bed) 1.8~3.5m/s (free board)
Pressure in free board	0.14~0.27MPa
Oxidation degree of inlet gas	33~58%

$$\text{Oxidation degree} = (\text{CO}_2 + \text{H}_2\text{O}) / (\text{CO} + \text{CO}_2 + \text{H}_2 + \text{H}_2\text{O}) \times 100$$

3. 流動化特性

本流動層は通常のパブリック流動層より高いガス流速の条件で操業される。しかし粗粒を含む流動層は一般に、大気泡径系で流動化が不活発になりやすい⁵⁾。その結果、粒度偏析を生じ、スティッキングを起こす可能性もある。

そこで、長時間安定に活発な流動化が維持される条件を検討した。一連の実験から濃厚層を形成する粗粒系の調和平均径と層内の空塔流速との関係を求め、その結果をFig. 2に示す。本図にはWen-Yuの式⁶⁾によって求めた各粒子径に対応する最小流動化速度 U_{mf} と層内の空塔速度 U_0 との比も破線で同時に示した。前報³⁾で示したように U_0/U_{mf} の値は粒度偏析を避け均一流動化を維持するための指標となり、下限値があると考えられる。よって本図の各プロットと等 U_0/U_{mf} 線との関係から本指標で示す操業範囲の下限に近い $U_0/U_{mf}=5.6$ と8.2の二つのケースを選択し、高さ方向の層内圧損分布に注目した。具体的には層内圧損を層内下部圧損(分散板下の風箱と分散板上100mmの間の圧損, Fig. 1の ΔP_d)

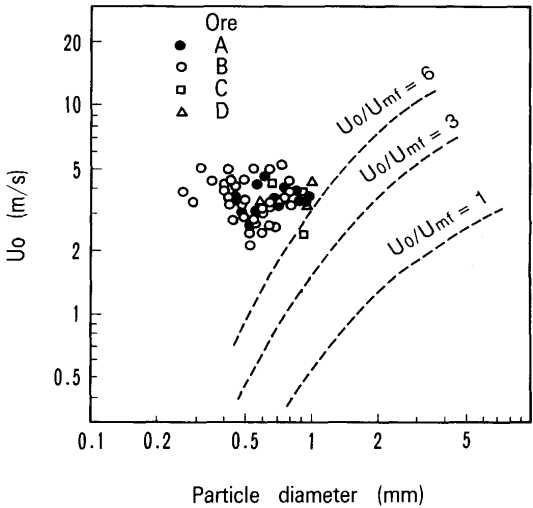


Fig. 2. Relation between harmonic mean diameter of coarse and superficial gas velocity in bed.

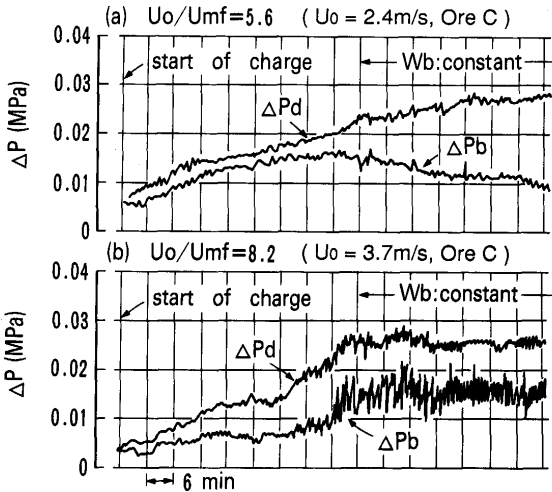


Fig. 3. Change of pressure drop in lower part and upper part of bed during fluidized bed operation.

と上部圧損(分散板上100mm位置とフリーボード間の圧損, Fig. 1 の ΔP_b)に分けて, 上記二つのケースにおける圧損の経時変化に着目した。その測定結果をFig. 3 に示す。いずれのケースもガス量と原料の供給, 排出量のバランスから求めた全滞留量 W_b は測定の間, ほぼ一定である。 $U_0/U_{mf}=8.2$ の場合, 上下二つの部分の圧損は経時的にはほぼ一定値を示すのに対し, 5.6の場合, 時間とともに下部圧損が増加し上部圧損が減少している。すなわち層内の高さ方向で徐々に粒度偏析が生じ流動化状態が変化している様子がうかがえる。また $U_0/U_{mf}=5.6$ では全体に圧力の変動が緩慢であり流動化が不活発であるように推定される。この結果から層内が均一で活発な流動化を確保するためには U_0/U_{mf} の値が少なくとも6以上必要と思われる。内径 $\phi 200\text{mm}$ のバッチの小型コールドモデルでは $U_0/U_{mf}=2$ から4以上の条件で均一流動化が確保できた³⁾, この差異は分散板ノズルの大口径化(約10倍)に伴いノズルピッチが拡大していることによるとと思われる。よって本流動層の分散板型式, 操作条件を基本にスケールアップを行う場合, 粒度偏析を避け, 活発な流動化を確保するためには, U_0/U_{mf} に関し, 上記の条件を満足していくことが必要と考えられる。

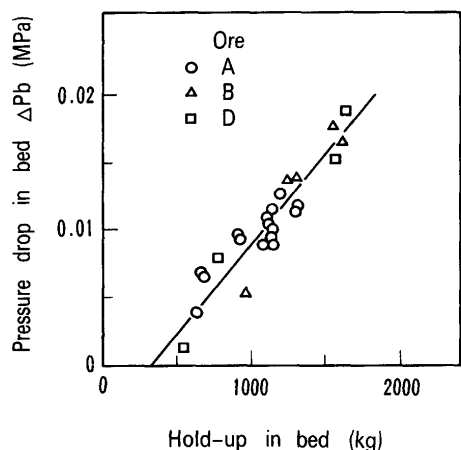


Fig. 4. Relation between hold-up in bed and pressure drop.

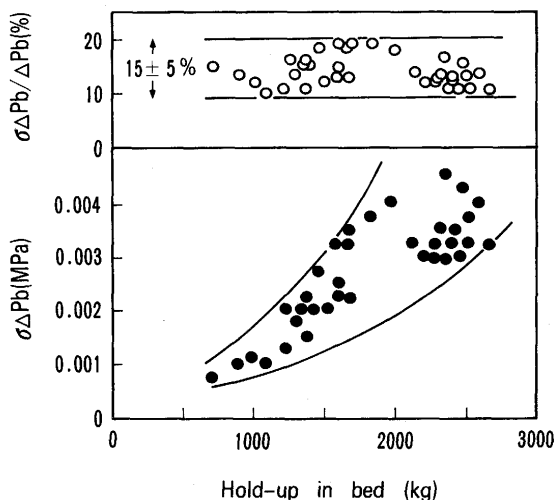


Fig. 5. Fluctuation of pressure drop in bed and relative fluctuation.

次に層圧損の特性と圧力変動に注目した。本流動層はバブリング型としては高流速の形式であり, 流動化に伴う圧力変動が大きいと全系の圧力バランスに影響する。まずFig. 4に流動層の原料の収支から求めた滞留量と層圧損の関係を, Fig. 5にその変動値を示す。Fig. 4からわかるように滞留量と層圧損は直線関係にあり, 通常のパブリング流動層とまったく同様な傾向を示し, 圧損で濃厚層全体の滞留量を管理できることがわかる。本図で滞留量と圧損の関係が原点を通過していないのは圧損の検出端下部が分散板上100 mmに設けられているためである。また圧力変動に関してはFig. 5からわかるように, 変動値は層内圧損に対し $15 \pm 5\%$ 内に収まっている。したがってその変動値は溶融還元炉の操作圧力の $0.27 \sim 0.29\text{MPa}$ に比較し小さく, 流動化に伴う圧力変動は無視できることがわかる。

4. 粉化分級挙動

4.1 分級挙動

本流動層はフリーボード部で原料を微粒系, 粗粒系に分離して排出する。分級点は本来, フリーボード部の空塔速度で決まる終末速度に対応した粒子径になるのが理想的である。フリーボード高さが不十分であれば流動層表面からスプラッシュされた粒子がガスに同伴され, 循環装置の負荷を増大させる。また必要以上の高さは設備が過大となり経済的でない。一般には最低必要高さはTDH (Transport Disengaging Height) と呼ばれており, 各種の推定式がある。しかし本流動層は従来のバブリング流動層より高流速であり既存の推定式, たとえばZenz-Weilの式⁷⁾(主に空塔流速 1.5m/s 以下が適用範囲)が使用できない。福山の予備

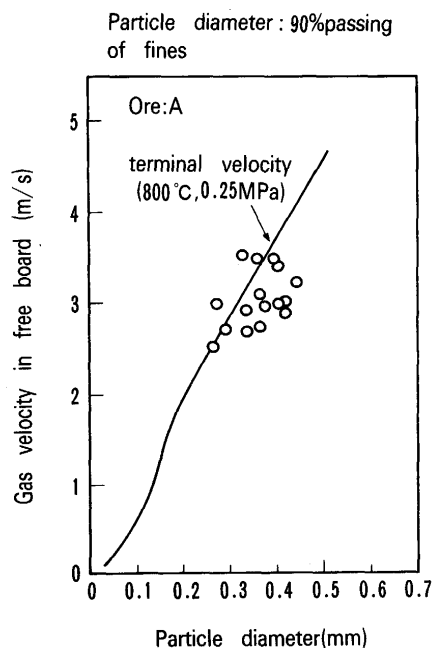


Fig. 6. Relation between 90% passing diameter of fines and terminal velocity.

還元流動層の設計の際には、小型モデルで経験的に決めたが塔径の効果もあるため、本流動層で分級粒子の粒度分布から必要高さを調査した。Fig. 6 に分級された微粒子の累積重量分布での累積90%径をフリーボード部のガス流速に対しプロットし、同時に圧力0.25MPa、温度800℃の条件下の終末速度 U_t の計算値を表示した。本結果からわかるように微粒子の累積90%径がほぼ U_t の線上に位置している。すなわち、現在の塔高8mはスプラッシュなど流動層表面から吹き出る粒子が沈降するに十分な値となり、最低必要高さTDHを満足していると考えられる。ただし今後、高流速のバブリング流動層のTDH推算式の体系化など、さらにこれらの結果を一般化するような試みも必要と思われる。

4・2 粉化挙動

流動層において粒子同士の衝突により粉化が進行することは従来から知られており、流動化条件に関わる重要な現象であるため、定量化も試みられている^{8)~10)}。本実験の場合の原料の粒度分布と予備還元された製品 (Products) の粒度分布の関係をFig. 7 に示す。この製品の粒度分布は微粒子、粗粒子の粒度分布をその分配比で重み付けして求めた。各銘柄によって粉化の程度は異なるが、予備還元流動層の操作により、原料の粉鉄鉱石の粉化が大きいたことがわかる。この粉化の進行は本流動層形式の特徴である微粒子、粗粒子の分配に影響し、濃厚層の安定流動化条件の設定、循環量の決定、集塵装置への負荷など影響は特に大きく、また今後のスケールアップのためにも、その予測ができることが望ましい。流動層内における粉化への影響因子の検討に関しては、Shamlouら⁸⁾、Konoら¹⁰⁾によれば、粉化のエネルギーは基本的には空塔流速 U_0 と U_{mf} の関係、すなわち最小流動化速度に対する過剰流速に比例するとされている。また流動層高も粒子同士の衝突回数に効くため、大きな要因であると報告されている⁸⁾。これらの因子を含めた粉化の速度定数も導出されているが、一般的な定式化までは至っていない。そこで本流動層の結果をもとに定量化を試みた。

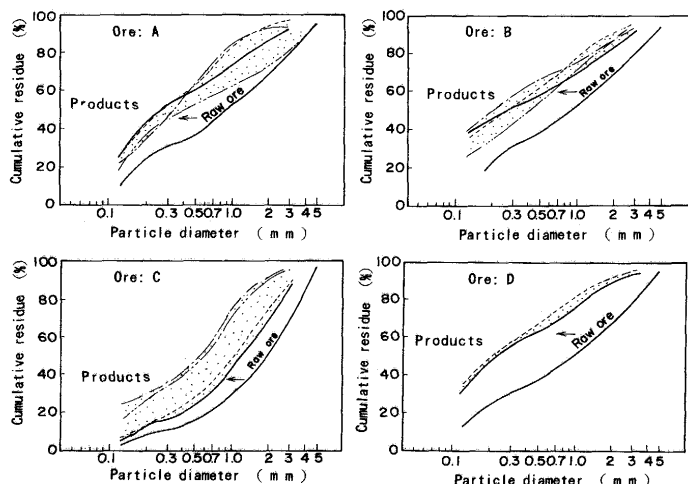


Fig. 7. Size distribution change of iron ore fines prereduced in prereduction fluidized bed.

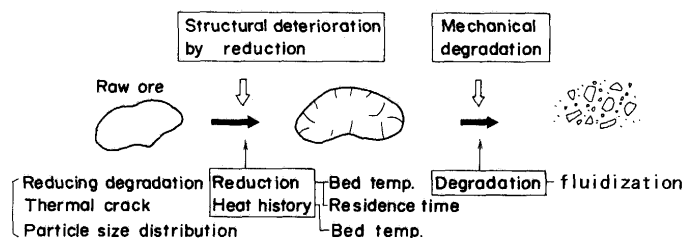


Fig. 8. Degradation phenomena of iron ore fines in prereduction fluidized bed.

粉鉄鉱石の予備還元の場合、前述の外部エネルギーの他に粉鉄鉱石自身の組織変化の影響も大きな影響因子と考えられる。全体としてFig. 8 に示すような粉化の進行が考えられる。まず予熱予備還元により粉鉄鉱石の組織脆弱化が起こる。この組織変化に加え、流動化に伴う外部エネルギーにより粉化が生じる。すなわち粉化の基本要因として①各鉱石固有の性状 (還元粉化指数RDI, 熱割れ性など)、②還元条件 (層内温度、ガス組成) の二つが組織の劣化を左右し、最終的に③流動化による外部エネルギーの条件 (ガス流速、流動層高など) が粉化を決定づけるとした。

以上の考えから粉化と上述の要因との関係を検討し、粉化の進行を定量化して予測する試みを行った。従来より、粉化を表現するためにRittingerあるいはKickの粉砕則¹¹⁾が提唱されている。流動層内の粉化も粉砕現象と見なし、さらに層内では衝撃力支配の微粉砕が主体であると考え、Rittinger則を流動層内の粉化現象に適用した。すなわち粉砕の仕事量は比表面積の増大に対応するとした次式を用い、粉化の尺度とした。

$$\text{粉砕エネルギー} \propto \Delta S = 1/d_n - 1/d_{n0} \quad (1)$$

ここで d_n は粉化後の (粗粒子+微粒子) の調和平均径を、 d_{n0} は原鉱石の調和平均径を示す。そして粉砕エネルギーに対応する ΔS と粉化に関わる因子との関連を検討した。まず層内温度との関係をFig. 9 に示す。層内温度の上昇とともに ΔS は顕著に増加する。ただしこの結果には温度の上昇に伴う還元の進行とガス流速の効果も同時に表れており、各要因の影響を個別に検討できない。すなわち前述の①②の影響は流動層内で粒子が予熱還元されることにより現れるため③の要因による効果と明確に寄与を区別できない。よってここでは統計的手法を用い①②③の要因をRDI, 層内温度 T_b , 空塔流速 U_0 で代表し ΔS の関係を重回帰分析した。この際、用いたRDIは各鉱石の組織の特性値であると考え、通常の15~20mmの鉱石に対する値を用いた。鉱石A, Bは13.0, Cは3.5, Dは19.7である。以上の各因子との重回帰を行うと、その回帰式は次のようになる。

$$\Delta S = 0.085 \times \text{RDI} + 0.0056 \times T_b + 0.274 \times U_0 - 2.34 \quad (2)$$

本回帰式で計算した ΔS と実測値との関係をFig. 10 に示す。この回帰式の結果と実測値は±30%の精度で一致し、粉化

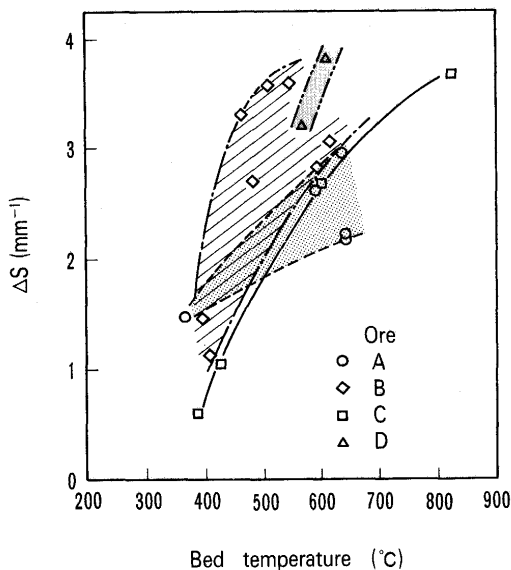


Fig. 9. Influence of bed temperature on degradation of prereduced iron ore fines.

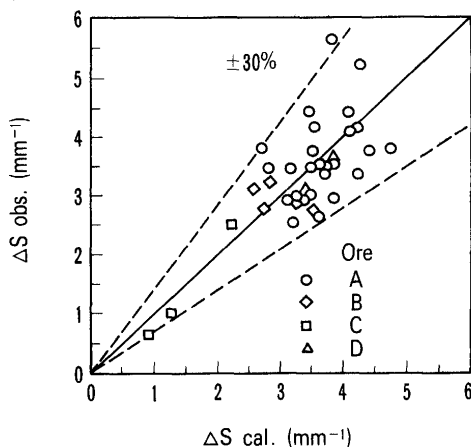


Fig. 10. Comparison of calculated specific surface area index with measured one.

の進行程度を示す ΔS はRDI, 層内温度 T_b , および層内空塔速度 U_0 の値から推定できることがわかる。ところで本回帰式により鉱石銘柄, 流動層の操作条件が与えられれば ΔS が推定できるが, ΔS は粉化後の粒度の調和平均径に対応するもので粒度分布まで直接求められない。そこでFig. 7に示した各銘柄の粉化後の粒度分布に注目すると, 原鉱石の粒度分布をそのまま平行移動した形に近い。よってFig. 7の原鉱石の粒度分布に対し式(2)で ΔS の平均粒度変化量を求め, その変化量を原鉱石粒度分布曲線の平行移動量として, 粉化後の粒度分布を求めた。以上のように原鉱石の粒度分布と式(2)による予備還元流動層の操作条件と粉鉄鉱石の特性値を考慮した粉化後の調和平均粒度変化から, 粉化後の粒度分布を予測可能となる。

4・3 飛び出し速度による分級速度

前報³⁾で本形式の流動層では分級される微粒系の粒子は瞬時にガスによって分級されるのではなく, 濃厚層内に粒度に応じ一定時間滞留することを示した。すなわち, 本流動層での微粒系の挙動も飛び出し速度の概念¹²⁾で説明される。こ

の現象は分級後の微粒系の粒度分布, 滞留時間を支配するため, 操作条件の決定, 設備諸元の検討用に予め予測できるのが望ましい。微粒分級の数値定数となる飛び出し速度定数 K^* の推算には多くの式があるが, 対象粒子, 操作条件によって結果が異なる。実際に使用する粒子, 装置を用いて決定すべきと思われる。そこでFig. 11に示した流動層全体の収支をもとに, 飛び出し量は濃厚層内の注目粒子の濃度に比例すると考えた次式(3)に実測の粒度分布を与え, 飛び出し速度定数 K^* を実験的に求めた。

$$A_t K^* (d_p) P_b (d_p) = F_2 P_2 (d_p) \quad (3)$$

次に飛び出し速度定数と操作条件との相関に関しては矢木-青地¹³⁾の式に見られるように飛び出しの推進力を空塔速度と終末速度の差, すなわち $(U_0 - U_t)$ に取った。本実験の結果をもとに式(3)で求めた K^* と $(U_0 - U_t)$ の関係をFig. 12に示す。 $\log K^*$ と $(U_0 - U_t)$ にはほぼ直線関係が得られ, 回帰式として次式を得る。

$$\log K^* = 1.05(U_0 - U_t) - 1.98 \quad (4)$$

ここで終末速度 U_t は

$$U_t = [4g\phi_s d_p (\rho_p - \rho_g) / 3\rho_g C_D]^{1/2} \quad (5)$$

より算出した。粒子径の効果はこの式(5)で考慮される。以上の式(4)(5)で注目した粒子径に対し K^* が求められる。

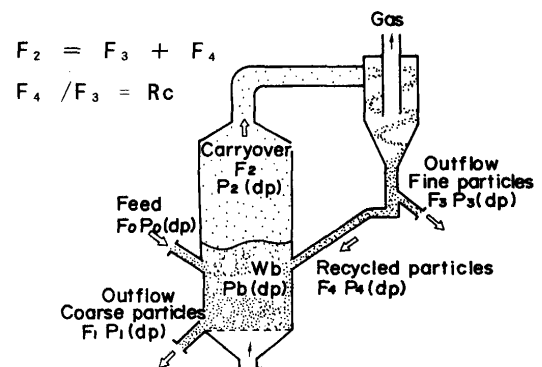


Fig. 11. Material balance of fluidized bed.

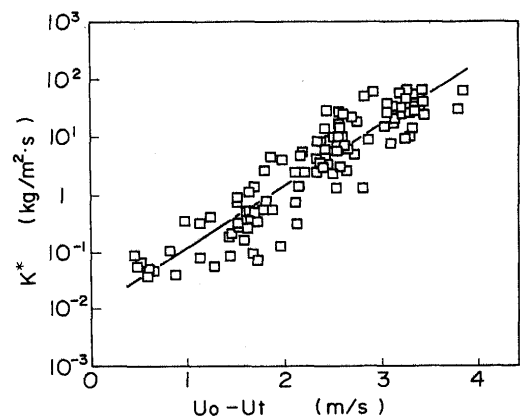


Fig. 12. Elutriation rate constant in prereduction fluidized bed.

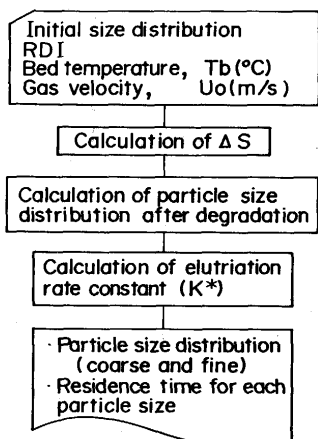


Fig. 13. Flow sheet of calculation for ore degradation and classification.

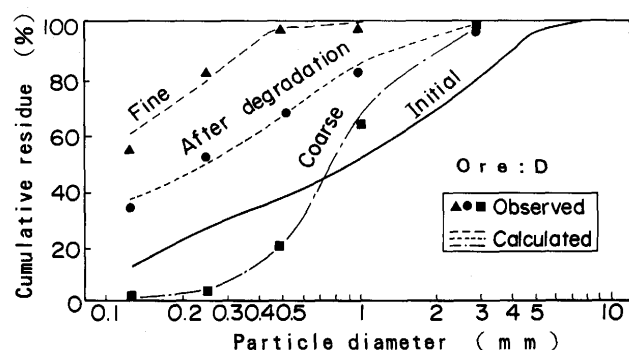


Fig. 14. Estimation of particle size distribution after degradation and classification.

4・4 粉化分級の予測計算モデル

上述の定式化により粉化と分級を個別に計算できるが、両者を連結すれば、流動層での粉鉄鉱石の予熱予備還元に伴う粉化と分級現象を総合的に定量的に予測可能となる。計算フローをFig.13に示す。まず原料の粉鉄鉱石の特性値として粒度分布、RDI、想定している流動層の層内温度、ガス流速を式(2)に与え、粉化後の粒度分布を推定する。次にこの粒度分布をもとに飛び出し速度に基づく式(3)～(5)により微粒系、粗粒系の分配比と、各粒度分布を求めることができる。実際には粉化と分級は同時に進み、上述のように独立した事象として扱えないとも考えられるが、4・2、4・3で解析に用いた微粒系、粗粒系の粒度には各々粉化と分級の影響が反映されており、結果的に相互作用効果を含んだ定式化となっている。

以上の考えに基づく実際の計算例と実測値の比較をFig.14に示す。本図には原料の粒度分布、本計算と実測による粉化後の製品全体、および分級後の粗粒系、微粒系の粒度分布の両者の比較を示す。粗粒系と微粒系の粒度分布計算値と実測値はほぼ一致しており、粉化と分級を合わせた一連の本予測モデルの有効性が確認できた。よって種々の原料鉄鉱石に対し濃厚層内の粒度分布も推定でき、 U_0/U_{mf} に関する均一流動化条件と合わせて流動層の操業条件の決定、さらには本形式の流動層をスケールアップする場合の設備検

討に役立てることができる。

5. 結論

— 8 mm程度の粉鉄鉱石を原料として用いた福山の100t/d規模の溶融還元一貫設備における予備還元流動層の運転により、粉鉄鉱石の流動化、粉化、分級に関し次の結論を得た。

1) 数mm程度の粗い粒子を含む粉鉄鉱石に対し U_0/U_{mf} がほぼ6以上であれば、本規模の流動層においては均一で活発な流動化が得られることが判明した。

2) 本流動層は従来のバブリング流動層に比べ高流速であるが圧力変動は小さく、濃厚層の圧損で滞留量を管理可能である。さらに微粒系の分級の観点から、塔の必要高さについて検討した。

3) 粉鉄鉱石の予熱予備還元、および流動化現象により粉化が大きく進行する。そのため、粉化を予測する経験式を作成し、さらに分級現象における飛び出し速度を求め、両者を連結した粉化分級の予測モデルを構築した。

記号

A_t : 塔断面積 (m^2), C_D : 粒子抵抗係数 (—), d_h : 粉化後の粒子調和平均径 (mm), d_{h0} : 原料の粒子調和平均径 (mm), d_p : 粒子径 (m), F_i : 鉱石量 (kg/s) ($i=0$: 原料, 1: 粗粒系, 2: 分級粒子, 3: 微粒系, 4: 循環粒子), g : 重力加速度 (m/s^2), K^* : 飛び出し速度定数 ($kg/m^2 \cdot s$), P_i : 粒度の確率分布 (—) ($i=0$: 原料, 1: 粗粒系, 2: 分級粒子, 3: 微粒系, 4: 循環粒子, b : 層内粒子), R_c : 循環比 (—), RDI : 還元粉化指数 (%), S : 比表面積指数 (mm^{-1}), T_b : 層内温度 ($^{\circ}C$), U_0 : 空塔速度 (m/s), U_t : 終末速度 (m/s), W_b : 滞留量 (kg), ρ_g : ガス密度 (kg/m^3), ρ_p : 粒子密度 (kg/m^3), ϕ_s : 粒子形状係数 (—)

文 献

- 1) E. Aukrust: Iron and Steel Engineer, **67** (1990) May, p.23
- 2) J. V. Keogh, G. J. Hardie, D. K. Philip and P. D. Burke: Ironmaking Conference Proceedings, **50** (1991), p.635
- 3) 有山達郎, 磯崎進市, 岩崎敏彦, 熊坂 晃: 鉄と鋼, **78** (1992), p.1650
- 4) 有山達郎, 磯崎進市, 松原真二, 川田 仁, 近藤國弘, 小林 勲: 鉄と鋼, **79** (1993), p.1323
- 5) 筒井俊雄, 野崎泰彦: 化学工学, **49** (1985), p.344
- 6) C. Y. Wen and Y. H. Yu: AIChEJ., **12** (1966), p.610
- 7) F. A. Zenz and N. A. Weil: AIChEJ., **4** (1958), p.472
- 8) P. A. Shamlou, Z. Liu and J. G. Yates: Chem. Eng. Sci., **45** (1990), p.809
- 9) Y. Ray, T. Jiang and C. Y. Wen: Powder Technology, **49** (1987), p.193
- 10) H. O. Kono, A. Soltani-Ahmadi and M. Suzuki: Powder Technology, **52** (1987), p.49
- 11) 粉体工学便覧 (粉体工学会編), (1986), p.495 [日刊工業新聞社]
- 12) D. Kunii and O. Levenspiel: Fluidization Engineering, (1969), p.312 [John Wiley & Sons]
- 13) 矢木 栄, 青地哲男: 化学工学協会秋季前刷, (1956), p.3