

予備還元流動層における 粉鉄鉱石の還元挙動および微粒循環特性

有山 達郎*・磯崎 進市*²・松原 真二*²・川田 仁*²・近藤 國弘*²・小林 勲*³

Reduction Behavior of Iron Ore Fines and Circulation Characteristics of Fines
in Prereduction Fluidized Bed

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

Synopsis : The operation of prereduction fluidized bed combined with an in-bath smelting furnace was performed in NKK Fukuyama Works. Iron ore fines, such as sinter feed are directly charged into the fluidized bed. This fluidized bed was so designed as to form a dense bubbling bed and equip the circulating device. The reduction characteristics of iron ore fines were clarified through the operation in the integrated test plant. According to the above results and the simulation model based on the elutriation behavior, the appropriate residence time of coarse became 30-60 min to reduce the iron ore to 20-25% reduction degree in 800°C bed temperature. The effect of circulation of fines was not quantitatively clear in the test, but the favorable circulation ratio was estimated with a mathematical model. Moreover, it was found that the collection efficiency of cyclone was closely related to the yields of prereduced ore and the circulation ratio influenced on the losses of products.

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

1. 緒言

溶融還元法は粉鉄鉱石、一般炭の直接利用が可能で焼結機、コークス炉を省略でき環境対策上好ましいだけでなく、生産弾力性にも富むなど現行の高炉による製鉄法に対し多くの優位性を持つ。NKKの福山において高2次燃焼、高着熱効率の溶融還元炉と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100t/d規模の溶融還元一貫設備が建設され、1988年4月から運転に入った¹⁾。1988年10月からは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を行った²⁾。本予備還元流動層ではシンターフィードすなわち約8mm程度の粉鉄鉱石を原料として用いる。この粉鉄鉱石を流動層で予熱予備還元するに適した流動化、還元条件についての基礎検討結果は既に報告した³⁾。溶融還元プロセスへの適用を目指した予備還元流動層の研究は近年多いが⁴⁾⁵⁾、実際に溶融還元炉との一貫系で鉄鉱石の還元特性を評価、検討したものは少ない。本予備還元流動層はバブリング流動層を基本とし、分級される微粒鉄鉱石を再度、循環する機能も合わせ持つことを特徴とするが、筆者らは本一貫プロセスにおいて粉鉄鉱石を連続的に予備還元し、粉鉄鉱石の還元特性を確認すると同時に微粒鉄鉱石循環の効果を解析した。さらに循環操作が予備還元流動層のサイク

ロンの集塵効率、鉄鉱石歩留まりに大きく影響することを見いだすなど、今後のスケールアップの上で重要な知見を得たので報告する。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. 予備還元流動層設備および操業条件

福山における溶融還元一貫設備全体をFig. 1に示す。溶融還元炉(SRF: Smelting Reduction Furnace)で発生した高温の還元ガスはホットサイクロンで除塵され、流動層(PRF: Prereduction Furnace)の風箱を経て多孔ノズルから成る分散板から層内に導入される。流動層入口ガスの組成はホットサイクロンと流動層風箱間でガスを吸引し、質量分析計で連続測定した。また溶融還元炉には出鉄滓設備が設けられており、全系の長時間連続操業が可能となっている。

次に予備還元流動層設備をFig. 2に示す。本設備の詳細は別報⁶⁾に記したが、特徴を簡単に述べる。粉鉄鉱石は広範囲粒度の原料であり、このための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、約0.3mm以上の粒度の粗粒系の粒子はここで処理する。フリーボードで分級される微粒系粒子はサイクロンで捕集後、

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.)

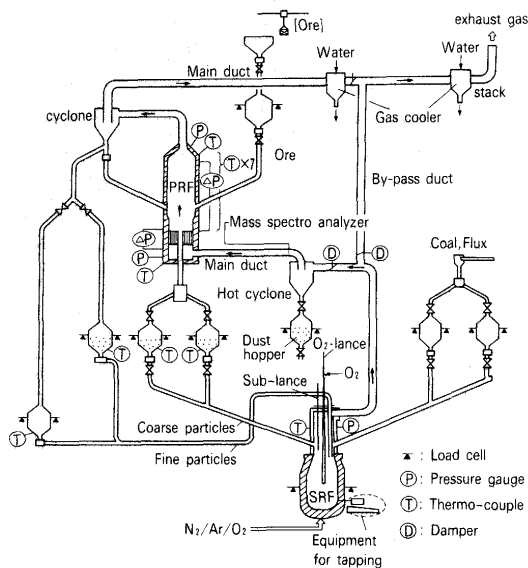


Fig. 1. Flow sheet of smelting reduction test plant in NKK Fukuyama Works.

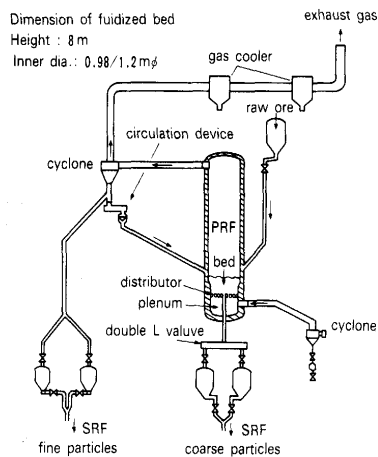


Fig. 2. Prereduction fluidized bed in Fukuyama test plant.

ニューマチックLバルブを用いた外部循環系に導入され、循環操作によって滞留時間が調整される。よってFig. 2に示すように粗粒系粒子 (coarse particles) は分散板中央の抜き出し管より対になったダブルLバルブにより排出され、微粒系 (fine particles) は循環系 (circulation device) から排出される。そして各々、貯留タンクで秤量管理された後、溶融還元炉に投入される。

実験手順は溶融還元炉からのガス量が流動化を維持するのに十分な量に達した後、流動層に粉鉄鉱石を投入し、所定の滞留量になった時点から各種測定を開始した。溶融還元炉と流動層間の還元ガスダクト、および流動層本体の予熱の時間を要するため、以降、徐々に層内温度は変化していくが、各出鉄滓間 (約90min) の測定値を平均して代表値とし、同時にその間に一回予備還元鉱石のサンプリングを行った。一連の試験の主な操作条件をTable 1に示す。流動層の主要な操作条件として濃厚層内の滞留時間があるが、これは濃厚層の滞留量と粗粒系として排出される量の比とし

Table 1. Test conditions of prereduction fluidized bed.

Feed rate	2~6t/h
Mean residence time of coarse	26~127min
Gas volume	7000~9300Nm ³ /h
Pressure at plenum	0.16~0.28MPa
Bed temperature	520~820°C
OD of inlet gas	40~58%
Gas velocity	3.1~5.1m/s (bed) 2.1~3.5m/s (free board)
Fines/Coarse ratio	25/75~50/50
Circulation ratio	0~3.0

Table 2. Size distribution of ore A (mass%).

+5 mm	20
5~3 mm	17
3~1 mm	25
1~0.5 mm	7
0.5~0.25 mm	8
0.25~0.125mm	12
-0.125 mm	11

Table 3. Chemical composition of ore A (mass%).

T.Fe	FeO	SiO ₂	Al ₂ O ₃	MgO	P	S	Ig.Loss
67.8	1.81	1.08	0.65	0.13	0.057	0.006	1.28

て計算した。また微粒系の滞留時間制御は循環量を変えることによって行うが、これは微粒系として排出される量に対して流動層内に循環粒子として戻される量の比として定義した循環比で示した。また一連の試験で用いた粉鉄鉱石Aの粒度分布と組成をTable 2, 3に示す。

3. 一貫系での予備還元流動層の操業

本設備は溶融還元の一貫系設備であり、連続操業を可能にするために高炉と同様な出鉄滓設備を設けてある。当初、出鉄滓作業に伴い溶融還元炉の溶鉄およびスラグレベルの変動などによりガス量などが変化し、流動層の流動化状態に影響がでることが懸念された。しかしながらFig. 3に連続操業の初期における操業経過の例に示すように、大型設備であり熱的定常に達するのに時間を要しているものの、出鉄滓時にもガス量変動はなく、流動層の操業は安定に行われた。また本流動層では直管タイプの大口径ノズルから

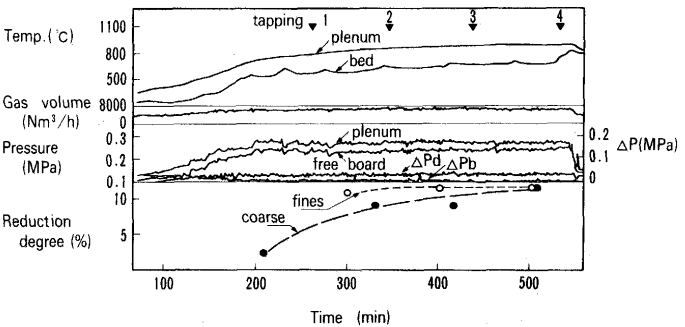


Fig. 3. Example of operational results of prereduction fluidized bed in Fukuyama test plant.

成る分散板を用いており、流動化に伴う粒子の激しい上下動により分散板からの落鉱量が注目されたが、層内の安定流動化の条件を満たすような条件である限り、落鉱は皆無であった。さらにFig. 1, 2に示すように、流動層で予熱予備還元された粉鉄鉱石をLバルブ、ホッパーを経由して定量的に溶融還元炉に移送するが、途中で粉鉄鉱石が凝集し、移送が停止するような問題は生じず溶融還元炉との連結運転で流動層の連続操業を順調に実施できた。

4. 還元特性

4・1 シミュレーションモデルによる還元特性

本流動層の特徴に合った還元モデルを次のように作成した。基本的に流動層内の固体粒子は完全混合状態にあり、濃厚層から排出される粗粒系粒子は一定の平均滞留時間を持つ。一方、微粒系の粒子は濃厚層内に一旦、滞留して飛び出し、粒径毎に異なった滞留時間を持つと考えられる³⁾。すなわち飛び出し速度(Elutriation Rate)の概念⁷⁾を用いて粒度に依存する滞留時間を求め還元挙動の推定を行った。まず滞留時間を決定する飛び出し速度定数は操業結果⁶⁾に基づく次の実験式を用いた。

$$\log K^* = 1.05(U_0 - U_t) - 1.98 \quad \dots\dots\dots (1)$$

また微粒系の循環を考慮した粒度別の滞留時間は次のようになる³⁾。

$$\theta_h(d_p) = W_b / \{F_c + A_t \cdot K^*(d_p) / (1 + R_c)\} \quad \dots\dots\dots (2)$$

式(2)に式(1)を代入し、福山の予備還元流動層の標準的な条件を与え、微粒循環がない場合の粒度別の滞留時間を求めるとFig. 4のようになる。本図には滞留量を変えることにより粗粒系の滞留時間を30, 60minとした場合の微粒系の滞留時間を示したが、分級点以下の粒子は粒度の減少とともに滞留時間は急減する。ただし循環がなくとも微粒系の大半は濃厚層に保持されて少なくとも数分の滞留時

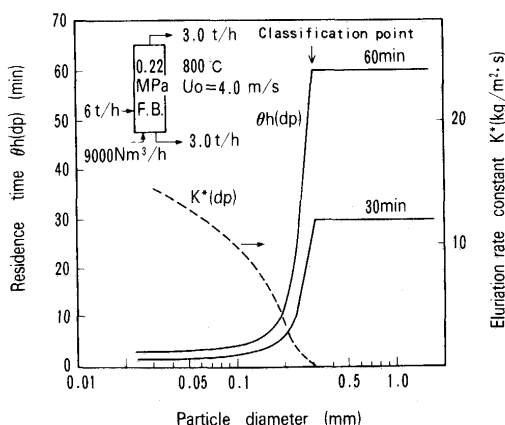


Fig. 4. Elutriation rate constant calculated in pre-reduction fluidized bed and residence time change with particle size.

間を保持できることがわかる。次に各粒度について化学反応律速とし、完全混合による滞留時間分布を考慮すると粒度 d_p の Fe_2O_3 から FeO への部分還元率 R_w は次のようにあらわされる³⁾。反応速度定数は前報³⁾と同様とした。

$$R_w(d_p) = \int_0^\infty \left\{ 1 - \left(1 - \frac{\theta}{\theta_c} \right)^3 \right\} \cdot \frac{1}{\theta_h(d_p)} \cdot \exp \left\{ -\frac{\theta}{\theta_h(d_p)} \right\} d\theta \quad \dots\dots\dots (3)$$

ここで

$$\theta_c = r_0 d_0 / \{ (C_A - C_A^*) k_r (1 + 1/K_e) \} \quad \dots\dots\dots (4)$$

となる。ただし $\theta > \theta_c$ では $R_w(d_p) = 1$ である。

以上の式で層内の還元ガスの濃度推進力と還元率の両者が未知数となるが、まず濃度推進力を仮定して粒度別の第一近似の還元率を求めた。次に粒度別の酸素収支の積算値から成る全体収支より、再度、濃度推進力を計算し還元率を求め、収束するまで式(3)(4)の計算を繰り返した。層内の還元ガスの濃度推進力は入口、出口の対数平均として与えた³⁾。そして粗粒系、微粒系の平均還元率を求める場合には、各粒度に対応する還元率を実際の各粒度分布で重み付けして導出した。

4・2 一貫操業による還元特性

粉鉄鉱石の還元挙動に影響する因子として①層内温度、②ガス組成、③還元ガス原単位(還元ガス流量/給鉱量)④滞留時間がある。このうち②③は全系の物質収支から決まり、本プロセスの試験が高2次燃焼の条件を中心に行われたため本試験では影響の度合は少ない。④の滞留時間は本来、流動層の主要な操作条件であるが、本一連の試験では中途での溶融還元炉への給鉱量変更など操業条件変更もあり、結果的に全体の傾向が明確でない。そこで、以上の①②③④の中では層内温度が還元挙動に最も影響していると考えられ、層内温度と還元率の関係をFig. 5に示す。試験開始当初は、操業時間が短く全系の温度が熱的定常状態に至らず、層内温度は700°C付近に留まっていたが、操業時間が長くなるにつれ溶融還元炉と予備還元流動層間のダクトおよび流動層本体の昇温による熱損失が減り目標とする800

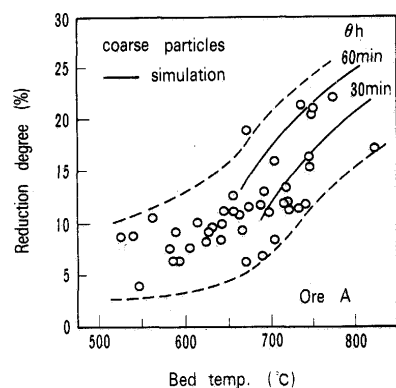


Fig. 5. Influence of bed temperature on reduction behavior of coarse particles and reduction degree calculated by simulation model.

℃前後に達するようになった。よって、このように温度条件が広く変化している。同時に4・1に基づくシミュレーションによる計算結果も示す。本実験での粗粒系の平均的な滞留時間は約60minであるが実測値は計算値と全体の傾向がほぼ一致し、シミュレーションモデルで本流動層の還元挙動の傾向を予測できることがわかる。そのモデル計算結果を前提にすれば800℃の層内温度でこのプロセスの目標として、予備還元率20～25%を達成するには粗粒系の滞留時間は30～60minと推定される。

4・3 微粒系の還元に対する循環の効果

Fig. 6には層内温度と微粒系の還元率との関係を示す。さらに上述のシミュレーションによる循環比が0と3の場合の微粒還元率計算結果も示す。一連の試験では、循環比は0～3.0の範囲であるが、4・2に述べたような中途での操業条件変更に伴う滞留時間の変動もありシミュレーションの循環比0から3の範囲に実験値が概略入るものの、循環比の定量的効果は明確でない。そこで4・1に述べたシミュレーションモデルを前提に循環の効果を定量的に検討した。循環比と微粒系粒子の還元率の関係はFig. 7のようになる。このシミュレーション計算の結果より、循環比の増加とともに微粒系の粒子は滞留時間が大になり還元率は向上し、その効果は循環比が3程度まで認められるが、それ以上では効果は減少することなどがわかる。また粗粒系と同程度の還元率を得るためには循環比は1～2で十分とな

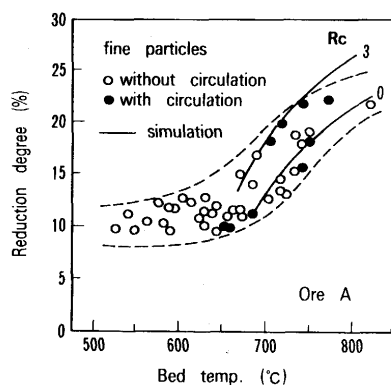


Fig. 6. Influence of bed temperature and circulation of fines on reduction degree of fine particles.

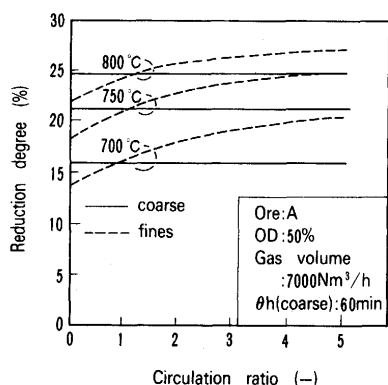


Fig. 7. Effect of circulation on reduction degree of fine particles.

る。以上のように本予備還元流動層の特徴に合ったシミュレーションモデルにより粗粒系と同時に、微粒系の還元挙動も推測できる。

5. 循環操作と集塵効率

予備還元流動層では粉鉄鉱石を予熱予備還元した後、最大限全量、熔融還元炉に移送する必要がある。しかし流動層ではサイクロンで微粒系粒子とガスを分離した後、移送するためサイクロンの集塵特性が原料の移送効率に大きく影響する。特に循環操作は還元率制御に一定の効果を持つが、同時に循環量の増加は集塵系への負荷を増大させるなど懸念すべき点を含む。そこで操業結果をもとに集塵系の考え方を検討した。

5・1 ダストロス量とサイクロン分級性能の検討

まずサイクロンから排出されるダスト量と粒度分布を実測した。サイクロン入口と出口含塵濃度との関係をFig. 8に示す。ただし入口含塵濃度はガス中の含塵量が高く試料採取が困難であったため微粒系の分級量と循環比から求めた計算値である。本図には循環の影響も付記した。まず循環が無い場合においても出口含塵量は30～90g/Nm³と高く、ガス原単位(合計ガス流量/給鉱量)を1700Nm³/t. Oreとするとサイクロンからのダストロスは給鉱量の5～15%となり無視できない量となっている。また注目すべき現象として微粒循環を行うにつれ、出口含塵濃度、すなわちダストロスも増加する傾向にあることがあげられる。

以上のような結果から本流動層で用いているサイクロンの基本分級性能を検討するため、部分分級効率を求めた。部分分級効率 $\eta(d_p)$ は注目粒度 d_p に関する捕集効率である。Fig. 8で示した循環の無い場合のサンプリングデータの粒度分布を図示すると、Fig. 9のようになる。図中にはサイクロン入口、出口の粒度分布、および原鉄石、サイクロンダストを含む全製品の粒度分布も示す。まず流動層による予熱予備還元により粉化の進行が大きいことがわかる。次にサイクロン入口、出口の粒度分布と収支から部分分級効

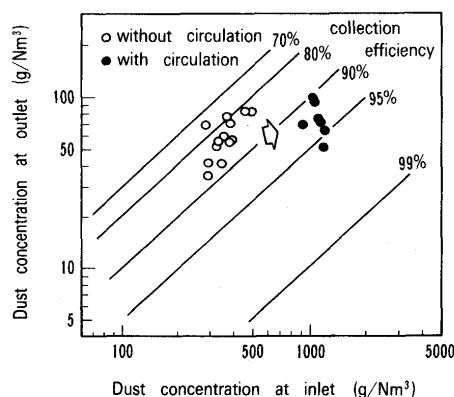


Fig. 8. Dust concentration measured at inlet and outlet of cyclone.

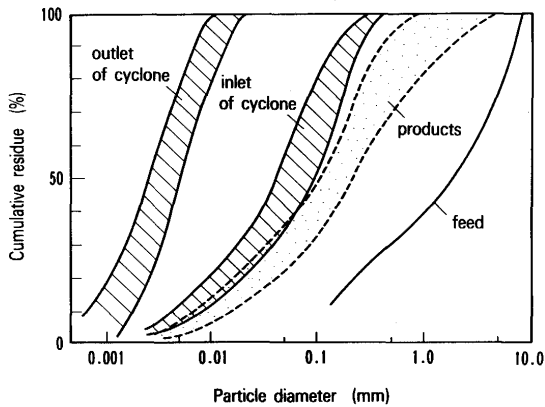


Fig. 9. Size distribution of product and cyclone dust in Fukuyama prereduction fluidized bed.

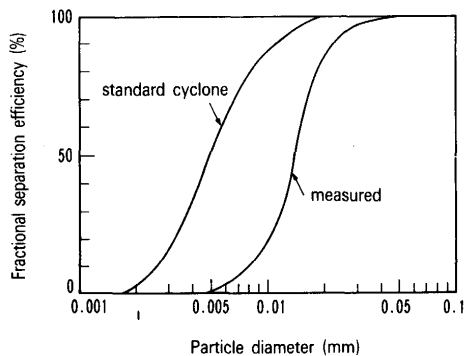


Fig. 10. Fractional separation efficiency of cyclone in Fukuyama prereduction fluidized bed and standard cyclone.

率 $\eta(d_p)$ を求め、Fig. 10に示す。本図には比較のため一般に用いられている標準的なサイクロンの部分分級効率⁸⁾も示した。その比較によると部分分級効率50%に対応する分級粒度は一般のサイクロンより3～4倍大きい値を示し、分級性能が明らかに低下していることがわかる。この要因は熔融還元炉において高2次燃焼の維持と炭材の飛散量減少を目的に全系の圧力を当初の設計条件より上げ⁹⁾、結果的によりサイクロンの入口ガス速度が低下したこと(20m/sが15m/sになる)が大きく影響していると思われる。入口ガス流速はサイクロンの性能を大きく左右するため、ダストロスが多大な理由はこの入口ガス速度の低下にまずあり、さらにFig. 9に示した粉鉄鉱石の粉化により、その傾向がさらに助長されたと考えられる。

5・2 サイクロン捕集モデルによる微粒循環の集塵効率への影響解析

以上で本流動層のダストロス大の主因は検討できたが、循環量を上げた場合にダストロスが増大する傾向は微粒系の還元率制御の点からさらに検討を要する。そこで循環を考慮したサイクロンの物質収支モデルを作成し、定量的に解析した。Fig. 11中に示したサイクロンの収支をもとに次のような捕集モデルを作成した。仮定として、サイクロンに流入する各粒度の粒子は部分分級効率にしたがって分級され、互いに干渉しないものとし、捕集挙動をモデル化し

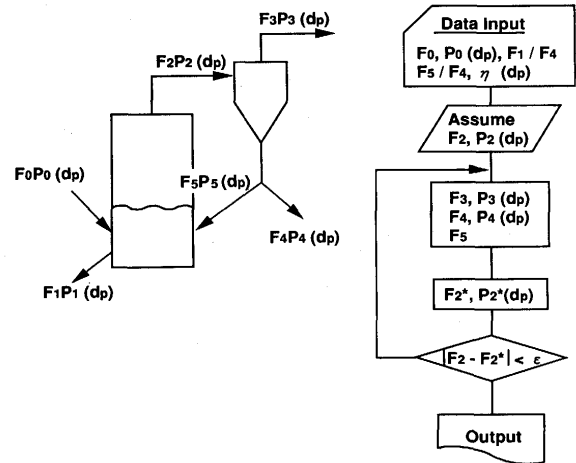


Fig. 11. Material balance model of cyclone.

た。

まず全体の収支として

$$F_0P_0(d_p) = F_1P_1(d_p) + F_3P_3(d_p) + F_4P_4(d_p) \quad \cdots \cdots (5)$$

となる。また循環比 R_c は

$$R_c = F_5P_5(d_p) / F_4P_4(d_p) \quad \cdots \cdots (6)$$

である。さらに部分分級効率から粒度毎の分級効率は次のようになる。

$$\eta(d_p) = \{1 - F_3P_3(d_p) / F_2P_2(d_p)\} \times 100 \quad \cdots \cdots (7)$$

また集塵効率と製品歩留まりは次のようになる。

$$\text{集塵効率} = (F_4 + F_5) / F_2 \times 100 \quad \cdots \cdots (8)$$

$$\text{製品歩留まり} = (F_4 + F_1) / F_0 \times 100 \quad \cdots \cdots (9)$$

計算の前提として、予め粉化した粒度分布を $P_0(d_p)$ に与え、以降、Fig. 11に示すように第一近似として分級される微粒系量 F_2 と粒度分布 P_2 を仮定し、式(5)～(7)で決まる全体の収支が収束するまで計算を繰り返した。部分分級効率は実績として求めたFig. 10の曲線を与えた。以上の方法で求めた集塵効率とダストロスの計算値と実際の操業結果との比較をFig. 12に示す。本図から両者は良く一致していることがわかる。よって、このような部分分級の考えで予備還元流動層におけるサイクロンの捕集性能を良く表現できる

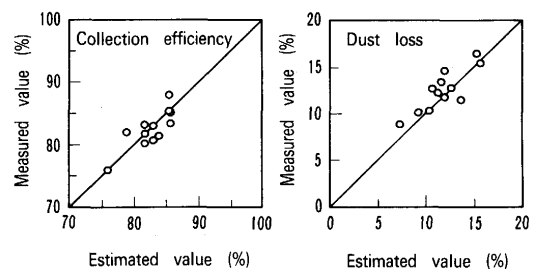


Fig. 12. Comparison of measured collection efficiency and dust loss with estimated values by material balance model.

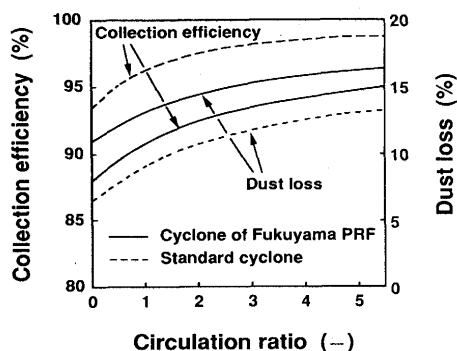


Fig. 13. Influence of circulation on collection efficiency and dust loss calculated by material balance model.

ことがわかる。

次に本モデルを用い、微粒系の循環比と集塵効率、ダストロスとの関係を検討した。Fig. 9の粉化後の製品粒度を前提に、Fig. 10中の本流動層のサイクロンと標準サイクロンの二つの部分分級効率に対し、式(6)で循環比を与え、循環比がダストロスと集塵効率へ与える影響を求めるとFig. 13のようになる。循環比の増加とともにダストロス、集塵効率の両者が増え、Fig. 8に示した結果と傾向が一致する。標準サイクロンでもダストロス絶対量は低減するものの、その量は微粒循環時に10%を越える。

この現象の機構として次のように考えられる。分級点付近の粒子はサイクロンからダストとして系外に排出されると同時にその分級効率にしたがって一定割合捕集される。よって循環を行うと分級点付近の粒子は部分分級効率に応じて一定割合が系内に蓄積する。しかし、各粒度の部分分級効率は不変であるため、循環比の増加につれダストロス量は徐々に増えることになる。また、循環とともにサイクロンに流入する分級点付近の粒子の量は相対的に減少するため全体効率としての集塵効率は向上することになる。入口ガス流速の増加などによる部分分級効率の向上はこの傾向を緩和できるが、同時にサイクロン圧損の増大にもなり、必ずしも得策ではない。

以上より微粒系の循環は還元率の調整に一定の効果があるが、同時にサイクロンからのダストロスを増やし、鉄鉱石の歩留まりを低下させる傾向を持つことがわかる。

6. 結論

福山に建設された100t/d規模の溶融還元一貫設備の操業の結果、予備還元流動層の特性として次のことが明らかになった。

1) 溶融還元炉との一貫操業で間欠的に出鉄を行い、流動

層に変動をきたすことなく長時間操業を実施できた。

2) 還元ガスの酸化度40~58%の範囲、層内温度520~820℃で操業を行い、還元特性に関し、分級と飛び出しを考慮したシミュレーションモデルの傾向と操業の結果は比較的良好な対応を見た。

3) 本操業では微粒循環の効果は明確でないが、シミュレーションモデルにより定量的に検討し、粗粒系と同程度の還元率を得るためには循環比を1~2に設定すれば良いと推測された。

4) 集塵系からのダストロスに注目し、サイクロンの部分分級効率により基本性能を検討するとともに、微粒系の循環がダストロスに影響することを見だし、サイクロンの物質収支モデルによりその関係を定量的に解析した。

記号

A_t : 塔断面積(m^2), C_A : 濃厚層内還元ガス濃度($kmol/m^3$), C_A^* : 濃厚層内還元ガス平衡濃度($kmol/m^3$), d_o : 被還元酸素濃度($kmol/m^3$), d_p : 粒子径(m), F_c : 粗粒系鉱石流量(kg/s), F_i : 鉱石流量(kg/s) ($i=0$: 原料, 1: 粗粒系, 2: 分級粒子, 3: サイクロンダスト, 4: 微粒系, 5: 循環粒子), K^* : 飛び出し速度定数($kg/m^2 \cdot s$), K_e : $CO-CO_2$ 系 Fe_3O_4/FeO 平衡定数(-), k_r : 化学反応速度定数(m/s), OD : 還元ガス酸化度(%), ($OD = \{ (CO_2 + H_2O) / (CO + CO_2 + H_2 + H_2O) \} \times 100$), P_i : 粒度の確率分布(-) ($i=0$: 原料, 1: 粗粒系, 2: 分級粒子, 3: サイクロンダスト, 4: 微粒系, 5: 循環粒子), R_c : 循環比(-), R_w : Fe_2O_3 から FeO の部分還元率(-), r_o : 粒子半径(m), U_o : ガス空塔速度(m/s), U_t : 終末速度(m/s), W_b : 滞留量(kg), ΔP_b : 層内圧力損失(MPa), ΔP_d : 分散板圧力損失(MPa), η : 部分分級効率(%), θ : 時間(s), θ_c : 反応完結時間(s), θ_n : 平均滞留時間(s)

文 献

- 1) H. Tanabe, K. Takahashi, T. Ariyama, T. Kitagawa, A. Ozeki and M. Yamaga: Ironmaking Conference Proceedings, 48 (1989), p.89
- 2) 宮崎富夫: 鉄と鋼, 78(1992), p.1238
- 3) 有山達郎, 磯崎進市, 岩崎敏彦, 熊坂 晃: 鉄と鋼, 78(1992), p.1650
- 4) 佐藤和彦, 板谷 宏, 田口整司: 鉄と鋼, 78(1992), p.1266
- 5) H.W. Gudenau, J. Fang, T. Hirata and U. Gebel: Steel Research, 60(1989), p.138
- 6) 有山達郎, 磯崎進市, 松原真二, 川田 仁, 小林 勲: 鉄と鋼, 79(1993), p.1317
- 7) D. Kunii and O. Levenspiel: Fluidization Engineering, (1969), p.312 [John Wiley & Sons]
- 8) 化学工学便覧第5版(化学工学協会編), (1988), p.771 [丸善]
- 9) 川田 仁, 川上正弘, 有山達郎, 田辺治良, 高橋謙治, 北川 融, 亀井康夫: 材料とプロセス, 3(1990), p.1071