

## 充填層型部分溶融還元プロセス解析モデルの開発

研究代表者 東北大学 多元物質科学研究所 助教 丸岡伸洋  
共同研究者 東北大学 多元物質科学研究所 教授 埜上 洋

### 1. 緒言

日本の鉄鋼業はエネルギー多消費産業で、その CO<sub>2</sub> 排出量は日本全体の年間排出量の約 13% をしめる。今後さらなる CO<sub>2</sub> 削減が求められることが予想され、鉄鋼業全体の約 7 割のエネルギーを消費する鉄鉱石主還元プロセスである高炉からの CO<sub>2</sub> 排出削減の波及効果はきわめて大きい。現在までに高炉装入物の性状・分布、微粉炭や炭材代替の吹き込みなどの実験的検討とともに種々の数値計算による解析が行われており、コークス比など理論限界を達成しつつある。さらなる CO<sub>2</sub> 排出削減のためには新規鉄鋼製造プロセスの開発が必要で、近年「物質リサイクル型の持続可能な製鉄システム」(SMART)<sup>1,2)</sup>が提案された。ここでは、鉄および炭素の循環に着目しており、鉄源として鉄鉱石だけではなくスクラップ、炭素源としてコークスだけでなくプロセスから排出される CO<sub>2</sub> を還元再生して得た CO や C を想定している。プロセスのイメージ図の一例を Fig.1 に示す。スクラップ、鉄鉱石、コークスを積層し、炉下部や炉腹から各種ガスを吹き込むことで溶銑（または溶鋼）を得る「充填層型部分溶融還元プロセス」である。しかしながら、炉内反応機構は全く明らかになっていない。本研究では、鉄源として鉄鉱石およびスクラップを併用する

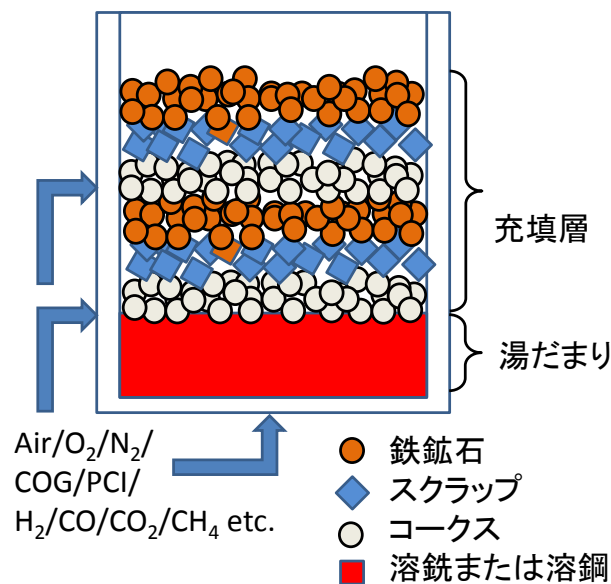


Fig.1 Packed bed type Partial Smelting Reduction process<sup>3)</sup>

PSR 炉 (Packed bed type Partial Smelting Reduction process)<sup>3)</sup>への SMART システムの適用を想定し、反応速度論的数学モデルを開発し、炭素循環時の炉内反応挙動を解析し、

その実現性を評価した。モデルには一定領域における物質・熱の流入・流出と反応などによるわきだしを考慮して追跡する Euler 法を採用し、固相、液相、気相、微粉の 4 相を考慮した、いわゆる 4 流体モデル<sup>4,5)</sup>をベースとしたモデル開発および解析を行った。

## 2. 反応速度論的数学モデルおよび解析条件

PSR 炉は、試験転炉 (10 t/heat) の炉頂にシャフト部を付加した充填層型製鉄炉で、炉頂より原料としてスクラップ、鉄鉱石、コークス、石灰石、珪石を装入し、炉下部の 3 段羽口 (炉底および炉腹部 2 段) から酸素、LPG、および微粉炭を吹き込むことで約 5 t/h の生産能力を有する<sup>3)</sup>。本研究では、まず PSR 炉の炉内解析用の反応速度論的数学モデルを構築し、次に CO ガス循環時の炉内反応挙動を解析した。

反応速度論的数学モデルは、P. R. Austin らが開発した高炉モデル<sup>5)</sup>を元に開発した。このモデルは、炉頂より固相、炉下部の羽口から気相および粉体相が装入され、固相および液相が下方へ、気相および粉体相が上方へ移動する際の、炉体内の物質移動および反応挙動を連続流体モデルで解析するものである。本研究で検討した PSR 炉は高炉同様に向流型の反応器で、気体と固体は互いに異なる方向に流動する。また特に炉下部においては、それらの運動は上下方向ばかりでなく水平方向の運動も加わる。このため、解析は多次元で行うものとする。また、気体と固体は言うまでもなく、炉内に存在する液体や粉体もあわせて、これらの物質は互いに異なる流動機構で流通している。流動機構が異なれば、流通経路が異なり、反応や熱的現象の履歴も独自のものとなる。さらに、これらの物質の流動は、物質・運動量・熱などの交換により相互に影響を及ぼすため、その影響を考慮した解析手法が必要となる。

上述の状況を考慮して、本研究で開発した PSR 反応解析モデルの概要は以下のようにとまとめることができる。

- 1) 炉内に存在する物質の変化は Euler 法により定式化する。
- 2) 反応、伝熱、物質移動などについては速度論的に定式化する。
- 3) 炉内を流通する存在相として、固相 (装入物)、気相 (還元ガス)、液相 (溶銑および熔融スラグ) および粉体相 (未燃微粉炭チャーおよび微粉コークス) の 4 相を考慮する。
- 4) 各相の運動を追跡する際には他相との双方向の相互作用を考慮する混相流の手法を用いる。

PSR は多様な固体原料が装入される点、および純酸素吹き込みである点が高炉と異なる。これらに対応させるため、既存モデルに対し以下の 2 点の開発を行った。

### 1) 多様な装入物への対応

スクラップ、鉄鉱石、コークス、石灰石、および珪石の 5 種の炉頂からの装入物に対応させた。なお、石灰石 ( $\text{CaCO}_3$ ) は生石灰 ( $\text{CaO}$ ) として計算した。

## 2) 各種物性値の高温対応

PSR は純酸素吹き込みのため羽口前温度が既存数値計算モデルの適用温度範囲を大幅に超える。Fig. 2 に一例として CO<sub>2</sub> ガスの比熱の比較を示す。既存モデルに使用されていた比熱の温度関数は約 1600°C までは温度上昇に従い増加し、文献値と良い一致を示すが、それ以上の温度では減少に転じ、文献値との乖離が大きくなることが分かる。つまり、従来モデルでは温度上昇に従い比熱が小さくなるため温度が過剰に高くなる傾向を有する。従来の高炉解析では炉内最高温度部である羽口前が 2000°C 程度のため大きな影響を及ぼさない。一方、本研究で対象とする PSR プロセスでは炉内温度が 2000°C を超えると報告<sup>3)</sup>されており、その影響は大きいと考えられるため、同図中に示すような温度関数に変更した。物性値の他のガス種でも高温域で乖離が生じるため同様の変更を施した。

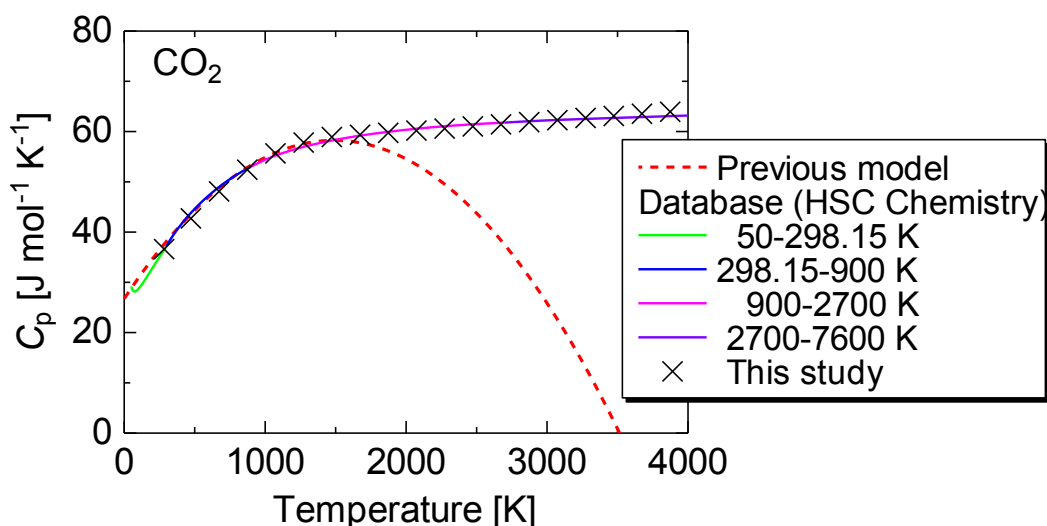


Fig.2 Comparison of CO<sub>2</sub> specific heat between used in previous model, present model, and database<sup>6)</sup>

計算に使用した炉体形状および計算格子を Fig. 3 に示す。高さ 5.0 m、炉底半径 0.92 m、炉頂半径 0.62 m の円筒形状の炉体で、円筒座標系を用いて高さおよび半径方向に 60 および 25 分割した BFC 格子を使用した。炉頂から 25°C の鉄鉱石、スクラップ、珪石、石灰、コークスの 5 種の固体原料を装入する。送風用の羽口は 2 段あり、下段の羽口から 25°C の酸素、微粉炭および LPG を、上段の羽口から 25°C の酸素および LPG を吹き込み、燃焼、溶融、還元等の各種反応を経て炉下部より排出溶銑および溶融スラグが排出される。

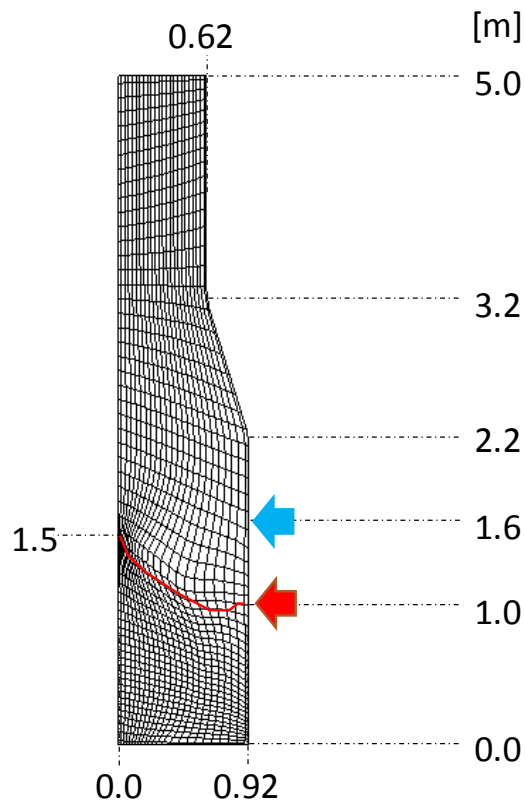


Fig. 3 Calculation mesh for analyzing PSR

まず、基準条件として実操業値（5 t/h、Scrap 比 65%）に基づく条件で計算を行い、炉内の反応・物質移動状況を解析した。次に、基準条件の総送風  $O_2$  から発生する CO ガスの 10 および 20%に相当する CO ガスを 1 段目の羽口に 25°C で添加した場合の炉内の反応・物質移動状況を解析し、その還元材比削減に及ぼす効果を検討した。

### 3. 結果および考察

開発した数値計算モデルによる炉内温度分布の解析結果を Fig. 4 a) に示す。炉下部が高温、炉頂部が低温の典型的な向流型充填層の温度分布を示した。1 段目羽口の出口は炉壁から 0.2 m の位置に設定したため、炉壁より若干内側に高温部位が存在し、この位置を起点に下部に渡り高温領域が存在した。羽口出口近傍から炉中心に向かって 1200-1400°C の融着帯に相当する領域が存在している。一般的な充填層型反応器の場合は、中心にガス流れが偏流するため、炉中心の温度が高くなるが、本研究で解析した炉体は 2 段目の羽口からも酸素を吹き込んでいるため、炉中腹の壁側の温度が上昇し、800°C の領域が炉中心よりも炉壁側へ広がる様子が観察された。この炉体に基準条件で供給した酸素から化学量論的に得られる CO ガスの 10% および 20% を 1 段目羽口から吹き込んだ時の炉内温度分布解析結果を同図 b) および c) に示す。吹き込みにより炉中腹～上部の温度が低下している事が分かる（図中点線部）。解析対象の炉体内の気相は後述の Fig. 5 に示すとおり

CO ガスが支配的である。このような環境下では  $\text{CO} + \text{O}_2 \rightarrow \text{CO}_2$  の発熱反応が起こらないため、 $20^\circ\text{C}$  の CO ガス吹き込みは炉の低温下を引き起こすことが分かる。なお、CO ガス 30%以上の吹き込み条件では計算が収束しなかったことから、温度低下による操作不全が引き起こされる可能性が示唆された。

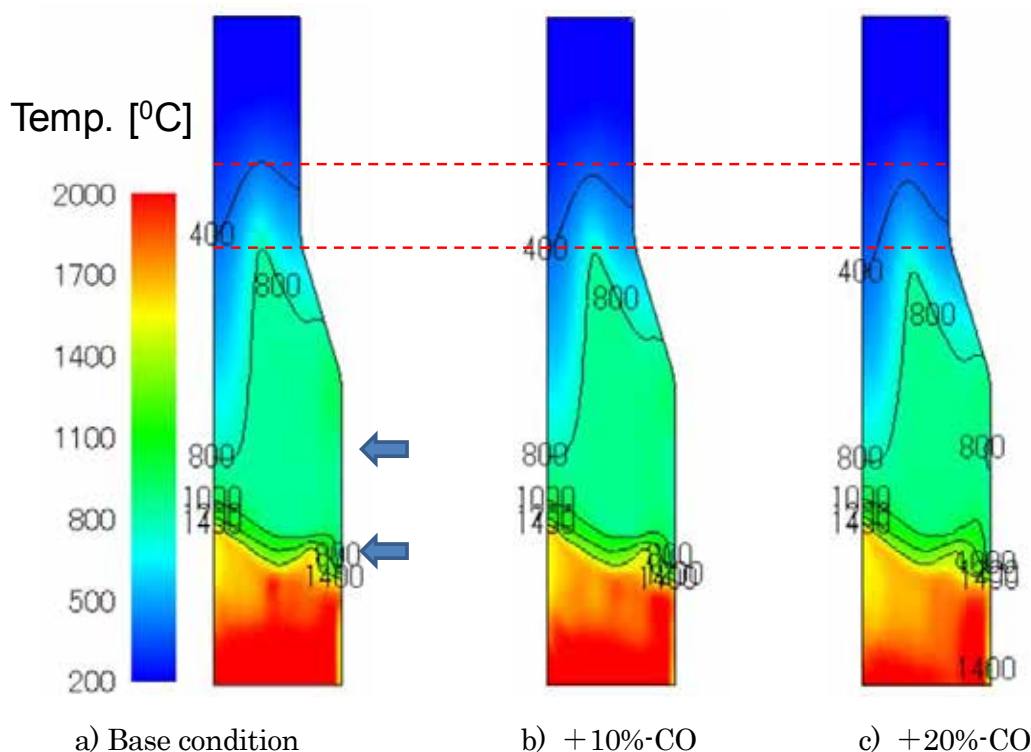
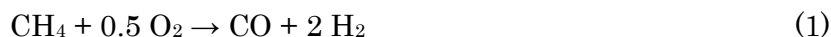


Fig.4 Effect of CO recirculation on the gas temperature distribution in furnace

次に、CO 濃度分布を Fig. 5 に、 $\text{CO}_2$  濃度分布を Fig. 6 に、 $\text{H}_2$  濃度分布を Fig. 7 に示す。基準状態では 1 段目および 2 段目の羽口近傍は  $\text{H}_2$  濃度が高く、CO および  $\text{CO}_2$  濃度は低い。本モデルにおける羽口前反応は、次の順に生じるものとした。まず、衝風中の酸素とメタンが反応する。



引き続き、衝風中の酸素は微粉炭の燃焼を生じる。



衝風中に残存する酸素および送風湿分はすべてコークス中の炭素と反応する



この順に反応が進行するため、メタン吹き込み条件下では、羽口前の  $\text{H}_2$  濃度が増加する。CO 吹き込みにより、羽口前の CO 濃度が増加し、相対的に  $\text{H}_2$  濃度が減少する傾向が得られた。羽口近傍以外の領域は、融着帯より下の領域は約 90%、上の領域は約 80%を CO ガスが占めており、前述の通りこの環境下では吹き込んだ CO ガスは不活性ガスと同等の

挙動を示し、還元速度や溶解速度への影響はほとんどないことが示唆される。なお、現行高炉のような、空気、つまり窒素を 80%含有する酸素を吹き込んで鉄鉱石を還元する条件下では、CO 吹き込みにより炉内の CO 濃度が増加するため、還元速度の向上が期待できる。

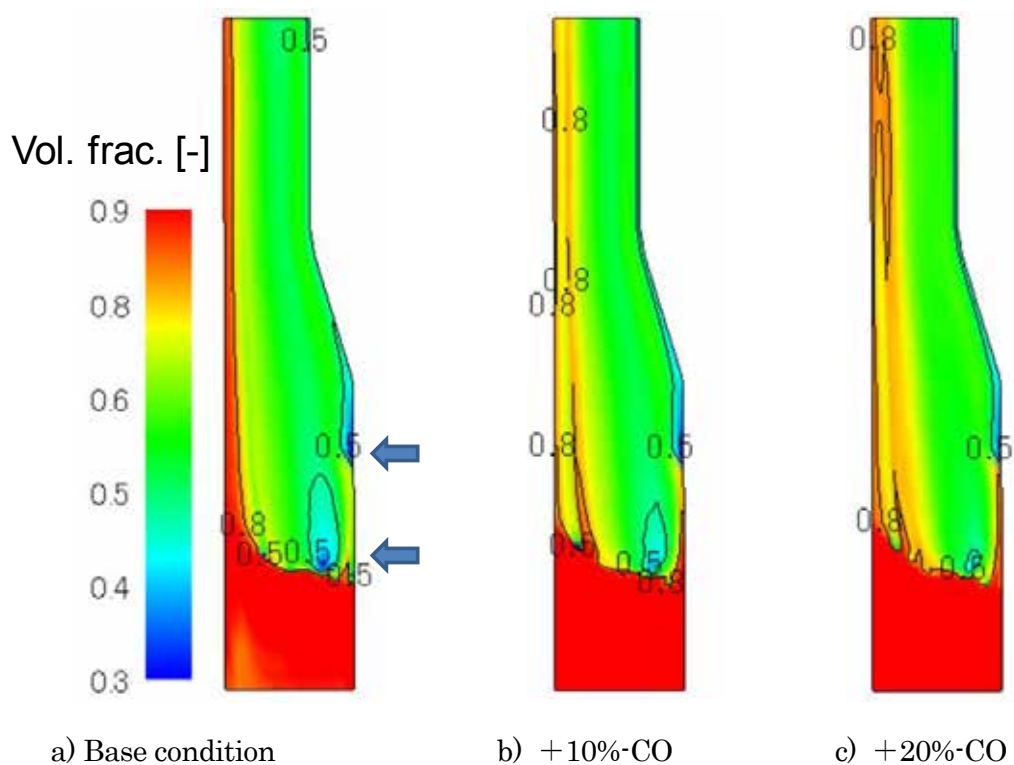


Fig. 5 Effect of CO recirculation on the CO gas distribution in furnace

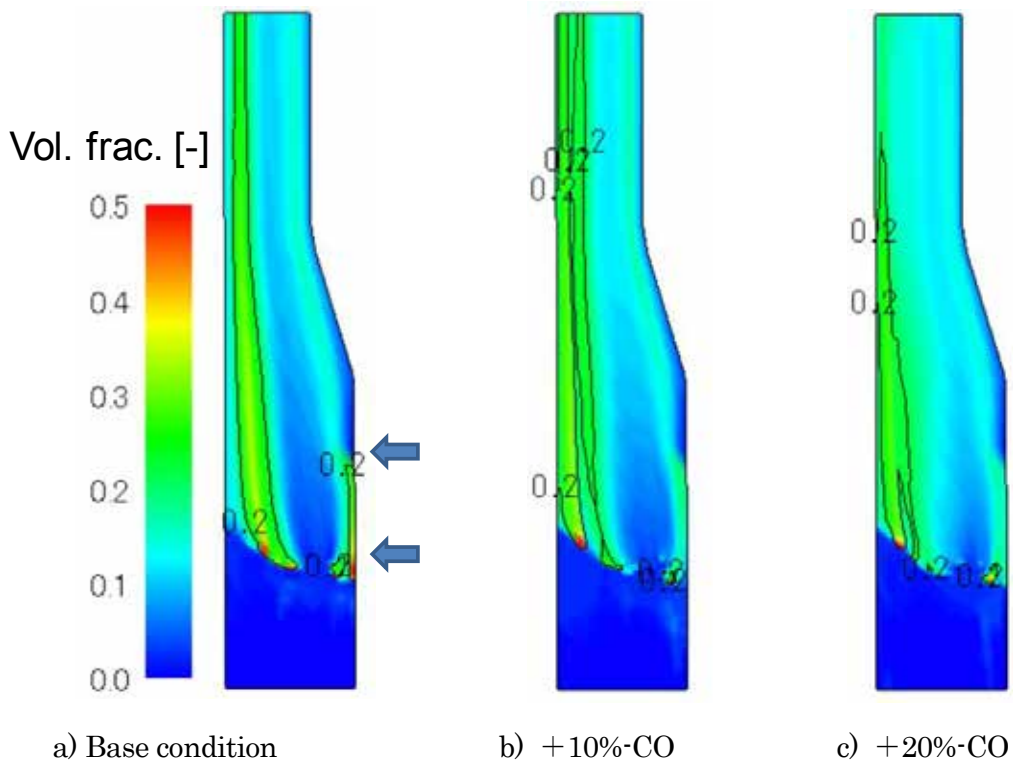


Fig. 6 Effect of CO recirculation on the CO<sub>2</sub> gas distribution in furnace

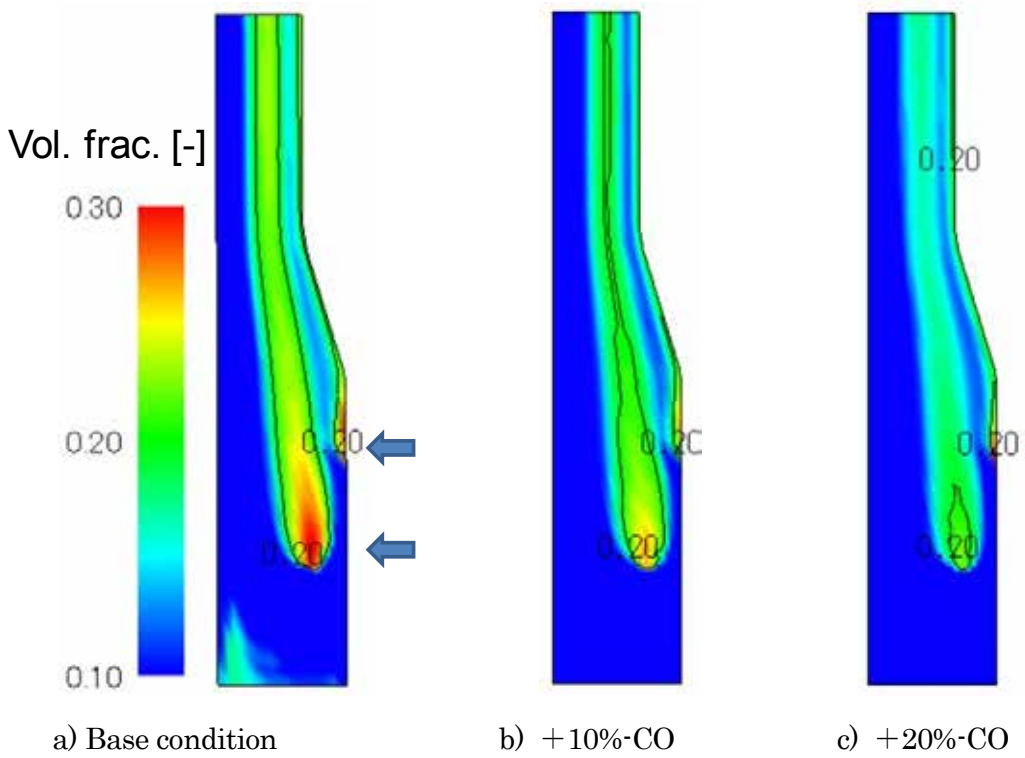


Fig. 7 Effect of CO recirculation on the H<sub>2</sub> gas distribution in furnace



次に還元材比に及ぼす CO ガス再循環の影響を Fig.8 に示す。本検討では還元材としてコークス、微粉炭、メタンを使用しており、溶銑 1 t あたりの使用量を CR、PCR、LPG と表記し、これらの合計を還元材比 RAR とした。RAR は一般的な高炉で 500~520 kg/thm だが、本プロセスでは約 300 kg/thm と約 60%の値を示した。これは、鉄源に鉄鉱石だけでなくスクラップを約 65%使用しているため、スクラップ利用の RAR 低減、CO<sub>2</sub>排出削減効果の大きさを示している。PCR および LPG は送風条件で決まる条件のため、CO ガス再循環の影響は受けず、一定値を示した。一方、RAR および CR は CO ガス再循環量の増加にともない減少した。これはコークス燃焼で生成し鉄鉱石の還元に使われていた CO ガスが再循環 CO に置き換わったためと推察できる。従って、CO の再循環は還元材比の低減に有効である。ただし、CO ガスは炉内で見かけ上不活性なガスとして振る舞うため、予熱していない CO ガス吹き込みは炉内温度低下を引き起こす要因になることから、吹き込み量と炉内反応状況の把握は重要である。

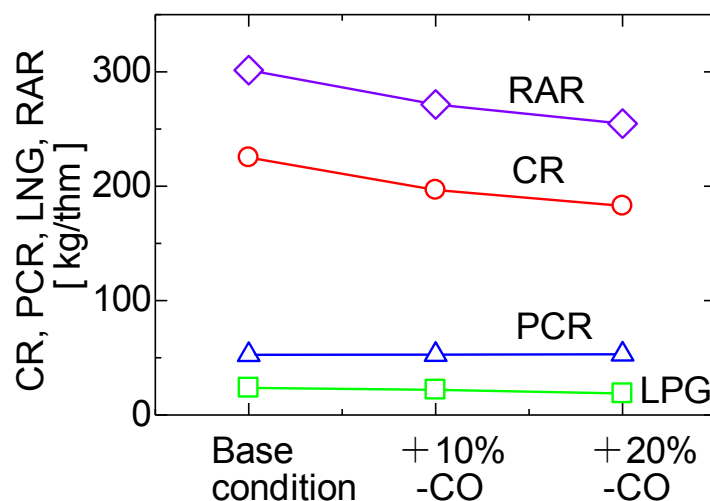


Fig. 8 Effect of CO recirculation on the CR, PCR, LNG and RAR

#### 4. まとめ

鉄源として鉄鉱石およびスクラップを使用する「充填層型部分溶融還元プロセス」の数値解析モデルを開発し、CO ガス再循環の可能性を試算し、以下の知見を得た。

- ・ CO 再循環により還元材比は低減する。
- ・ 予熱しない CO ガス再循環は炉内温度低下を引き起こすため、循環可能量には上限が存在する。

#### 謝辞

本研究は、公益財団法人 JFE21 世紀財団より技術研究助成 (2015 年度) の支援を受けて遂行されました。記して深甚なる謝意を表します。



## 参考文献

1. Y. Kato, *ISIJ Int.*, **50**(2010), 181.
2. Y. Kato, T. Obara, I. Yamanaka, S. Mori, A. L. Dipu, J. Ryu, Y. Ujisawa, and M. Suzuki, *Prog Nucl Energ*, **53**(2011), 1017.
3. 山本高郁: '充填層型スクラップ溶解および部分溶融還元プロセスの開発に関する研究', 東北大学, 2004.
4. J. Chen, T. Akiyama, H. Nogami, J. Yagi, and H. Takahashi, *ISIJ Int.*, **33**(1993), 664.
5. P. Austin, H. Nogami, and J. Yagi, *ISIJ Int.*, **37**(1997), 458.
6. Outotec, *HSC chemistry 7* Pori, Finland.