

解説

研究会成果報告-8

低炭素製鉄の達成に向けた 高炉内の固気液流れの制御

Control of Solid-gas-liquid Flow for the Achievement of
a Low-carbon Blast Furnace Operation

植田 滋
Shigeru Ueda

東北大学 多元物質科学研究所
准教授

1 緒言

鉄鋼業から排出されるエネルギー起源CO₂の排出量は国内総排出量の約14%に相当する。製鉄工程で発生するCO₂が高炉を用いた製鉄プロセス全体のおよそ70%であることから、製鉄工程でのインプットカーボンおよびCO₂排出量の削減が強く求められてきた。これらの背景をもとに、近年、高炉からのCO₂排出削減を目的とした炭素・鉄鉱石の近接配置による反応の高速化技術、次世代高炉シミュレーション技術の構築による操業の最適化に関する研究が進められ、高反応性炭材であるフェロコークスの製造、水素の利用や炉頂ガス循環およびCO₂の分離回収を進める COURSE50、ULCOS 等のプロジェクトも実施されている。これらの中で効果的なCO₂排出削減方法として、

- ・炭材と鉄鉱石の近接配置による吸熱反応促進とそれに伴う、鉄酸化物の還元温度の低下による炭材利用率の向上
- ・炉頂ガスからCO₂を分離し Carbon Dioxide Capture and Storage (CCS) を行う分離回収とCO₂を除去したガスをシャフトから吹き込み再利用する技術
- ・炭素系から水素含有還元材への移行による水素の利用が提案されている。これらのプロジェクトは新しい高炉原料の創製、その利用方法、製鉄プロセス全体系の見直しを含んだ研究と技術開発から構成される。COURSE50は2050年に向けてCO₂排出量の約30%削減を目指しており、ここでCO₂排出削減は低炭素化によるインプットカーボンの低下に相当し、同時に高炉に導入するコークス、微粉炭など石炭由来の炭材使用の低下が進行する。

現状の操業では炉内の通気性を確保するために強度と粒度を管理したコークスを装入し、炉内の空隙を制御する。コー

クス比およびインプットカーボンが削減されると、炭材および鉄鉱石の反応条件が変化し、炉内全体の固体とガス流れ、還元、溶融挙動や融着帯位置の変動に伴う通気性の低下が予想される。CO₂削減可能な新たな技術の確立は、現状での鉄鉄1トン当たりの製造のために300kg前後から300kg台半ばのコークスを用いる操業に対して、水素含有ガスによる代替、ガス利用率の向上により250kg程度の低いコークス比での操業をもたらす、現状の操業方法では炉内の通気抵抗が上昇し、生産性が低下する可能性がある。シャフト部においては鉄石質量/コークス質量(以下、O/C)の上昇により通気抵抗が上昇し、軟化融着帯においてはガスがほとんど通過しない融着層の割合が増加し、コークススリット厚が相対的に低下する。この結果として、低コークス操業の進展と共に、装入物の組成や鉄物相、送風条件から炉内の通気を推定し制御することの重要性が増す。これに対して、半径方向のガス、液の流れ制御等の従来からの通気性向上のための技術のみでは将来の低炭素操業において十分な通気性が確保できない可能性がある。高炉の低炭素化を進行すると同時に、予熱、還元、溶融の要素現象に関し、新たな知見を得て、制御方法を検討していく必要がある。

これまでに、高炉の低還元材比化、CO₂排出削減を目指して、高炉炉下部機能強化研究会(1997-2000年)、CO₂排出量ミニマム化を目指した高炉限界現象の制御研究会(2002-2005年)が行われ、塊状帯や滴下帯部における液、固、粉の移動現象の研究が行われた。また、4流体の移動現象研究会(1997-2000年)では粉体を含む4相の移動現象の解析を、分散現象に基づく次世代高炉数式モデルの開発研究会(2007-2010年)では Discrete Element Method (DEM) を用いた固気流れの解析モデルを追求した。

低炭素高炉実現を目指した固気液3相の移動現象最適化研究会 (2011-2014年) では上記の視点に加え、還元、溶融の要素現象に関連する軟化、溶融現象や融体の物性に着目し、低炭素操業において充填層の配置と溶融物の物性制御から反応性、通気性、通液性を同時に確保する要素技術の確立を目指した。高炉の装入物制御の観点と、溶融制御の観点から、「固気液粉の挙動に対応した充填構造の高度制御と粉体の発生抑制」、「融着帯から滴下帯にかけての通気通液性向上のための溶融挙動、融体物性制御」を主要なテーマに研究を進展した。前者では、塊状帯、滴下帯における粉体の挙動制御や固気流れへの充填層構造のモデル化に関する研究、後者では溶融制御による融着帯の薄層化や滴下帯での液流れ促進に関する研究を行った。

これらの成果は高炉の通気性に関するレビュー^{1,3)}と ISIJ International 特集号 vol. 55 (6) において示した。本稿では研究全体の構成と各成果の位置づけについて説明し、研究会の低炭素化に対する成果に言及する。

2 低炭素化と通気性の関係

高炉内の装入物挙動の模式図を Fig.1⁴⁾ に示す。炉口より鉱石、コークスを層状に配置することにより、融着帯でコークススリットが形成される。溶融した鉱石はコークスベッドを滴下し、炉下部に到達する。一方、羽口から吹き込まれた熱風は充填層内を上昇する。低炭素化により O/C が増加すると、塊状帯における装入物の平均粒径の低下、融着帯におけるコークススリットの機能低下、コークスの劣化の進行による滴下帯における空隙率の低下等の直接的な通気性への影響

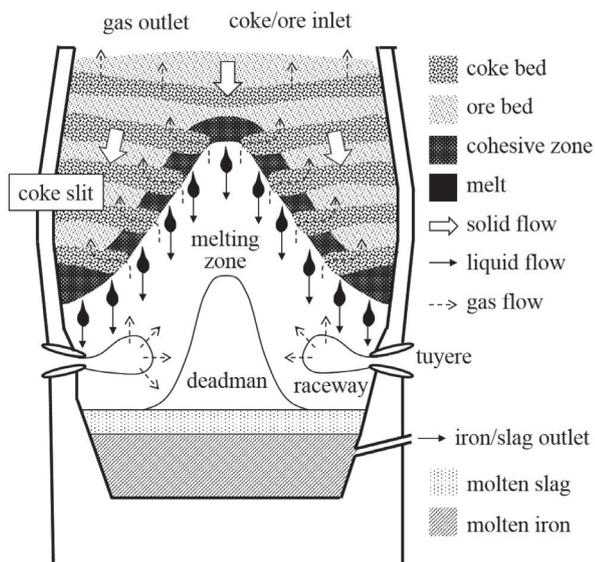


Fig.1 Melting and dripping phenomena of burden in blast furnace⁴⁾.

のほかに、粉の発生^{5,6)}や不均一なガス流れに起因する塊状帯と滴下帯での粉の蓄積の増加、滴下帯での液体のホールドアップの増加が通気性を低下する。

Fig.2にDEM-CFDモデルを用いて、350kg/thmから240kg/thmへとコークス比が低下した際の炉内の圧力分布を算出した結果を示す⁷⁾。融着帯位置では鉱石層の融着を想定して球状の装入物が軟化し、空隙率が低下したと仮定した。面は高炉内の炉頂圧に対する相対等圧力面を示す。コークス比の低下に伴い融着帯での圧損が著しく増加することが分かる。実際の低コークス比操業では塊状帯における低温還元粉化、滴下帯における未燃チャー、コークス粉、液体のホールドアップの影響が加わるため更に通気性が低下する可能性がある。Fig.3 a) に融着帯におけるガス流れの模式図を示す。通気性の低い融着した鉱石層の間にコークススリットが存在する場合、コークススリットを選択的にガスが通過できる。しかし、コークス層が薄層化し、さらに鉱石層から液相がコークス層に浸出しスリットが閉塞されると融着帯全体の通気性が極端に低下する。低コークス比操業では通気性を確保するためには液相の生成と動きに着目した制御が必要となる。

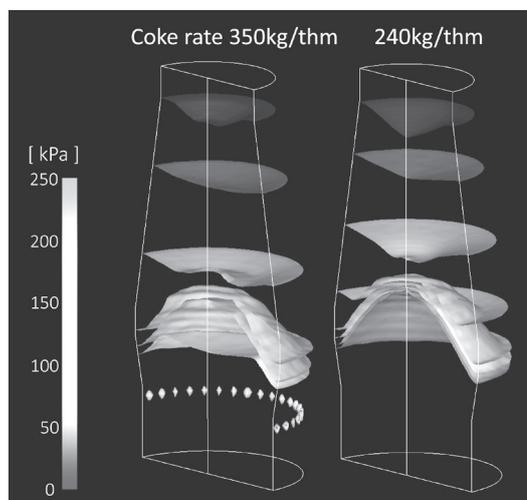


Fig.2 Iso-bar planes of moving bed in blast furnace.

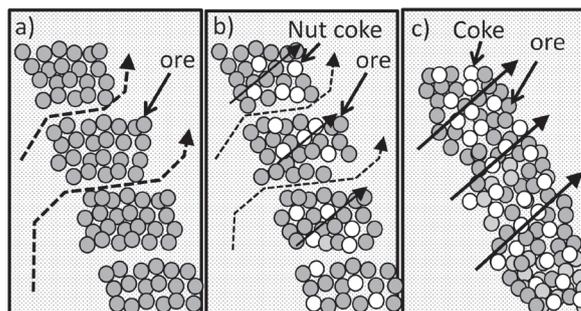


Fig.3 Structure of cohesive layer at low coke rate operation.

3 融着帯の通気性向上

高炉内の圧損の約1/2は融着帯に起因し、低コークス比条件では融着帯の通気性の影響がより大きくなる⁷⁾。これまでに、融着帯における通気性の評価法として、軟化溶融挙動に伴う通気抵抗の変化を総括的に評価できる荷重軟化試験が提案されており、装入物の性状管理に有効な手段として用いられている。しかし、軟化開始から溶け落ちまでの素現象は、鉱石の還元度および空隙の存在形態により変化するため詳細な溶融挙動に関連した検討例は少ない。そこで融着帯を固液共存状態の鉱石層とコークスにより構成される部分と考え、構造と融体物性の観点からの通気性の向上を検討した。融着層の通気性向上と融着帯の薄層化が低コークス比操業に向けた効果的な制御方針として考えられる。前者は装入物の分布制御によるマクロな通気性の制御で、後者は軟化、溶融、滴下に対する物性面からの制御である。

Fig.3 a) は低コークス比条件で層状装入、b), c) は混合装入を行った場合の層構成の概念図である。灰色粒子は鉱石、白色粒子は混合したコークスを表す。b) は二分の一のコークスを鉱石層に混合し、層を構成した場合、c) は混合装入を示す。鉱石層中のコークスは鉱石が軟化しても形状を保ち層の圧損を低下し、鉱石とコークス間にガスが流れる間隙を形成するため、層の通気性を向上することが期待される。等量のコークス比による操業でも a) - c) のように混合方法を変化することにより通気性を向上できる可能性がある。また、Fig.4に示すように軟化開始温度を上昇して融着帯上面の位置を低下、溶融滴下温度を低下して融着帯下面の位置を上昇すれば、融着層自体が薄層化し通気抵抗が低下する。

Fig.5 にDEM-CFD法による混合装入、薄層化の効果を試算した結果を示す⁷⁾。5000m³級の高炉におけるコークス比240kg/thm操業での炉頂からの相対圧力を示す。細線と太線はそれぞれ融着帯の縦方向の厚みが4、2mの場合を示す。軟化開始から溶け落ちまでの温度域が広い場合を4m、狭い場合を2mと想定した。層厚の低下により相対圧損が低下していることが判る。塊状帯を示す羽口の11m以上では、条件によらずほとんど同じ圧力変化を示す。羽口上11mあるいは9mから7mまで、即ち融着領域では急激に相対圧が上昇

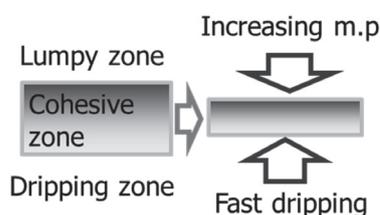


Fig.4 Decreasing thickness of cohesive zone.

することが判る。その下部では鉱石層の溶融により、コークスベッドのみとなるためほぼ同様の圧力の上昇を示す。従って、装入方法および融着層の層厚が融着部の通気性に影響し、高炉全体の圧損の主因となる。層状装入では融着帯厚みと比例するように、2mの融着帯部での相対圧力の変化は4mのほぼ1/2となった。2mでは50%混合において鉱石層の圧損低下とコークススリットによる通気の両方の効果が得られ、最も通気抵抗が小さい値となった。以上の様に融着帯の厚みを低下することは、融着帯の通気抵抗を効果的に削減でき、コークス混合装入との組み合わせにより効果的に通気性を向上できることが推算された。

3.1 装入物軟化の高温化、溶融の低温化

融着層は鉱石の軟化から溶け落ちまでの固液共存相からなる。相平衡図における共晶、液相線温度と炉内の酸化物の軟化、溶融にはそれぞれ相関があると考えられる。しかし、焼結鉱などの多元系における共晶温度は報告値が少なく、液相率と軟化の関係など操業条件から通気性を予測するための研究課題は多い。高炉雰囲気中に保持した焼結鉱内で初期液相が生成する際に、接触する相の組み合わせにより固相固相反応に速度差があり非平衡な状態で液相が生じることが指摘されている。三木らは焼結鉱を構成する成分系中ではAl₂O₃に対してCaO、FeOの反応速度が速くCaO-FeO系の融液が生じやすい⁸⁾こと、一方、林らはオリビン系融体が初期に生成することを指摘している⁹⁾。鉱石の軟化、溶融温度とコークスベッドへの浸透温度を測定するためにコークスベッド上で加熱した酸化物の形状変化を観察した。(Fig.6¹⁰⁾) まず、酸化物試料の固相線温度から数十度以内の温度域で液相生成に伴い収縮と外形の変化が観察されるが、上記で指摘されて

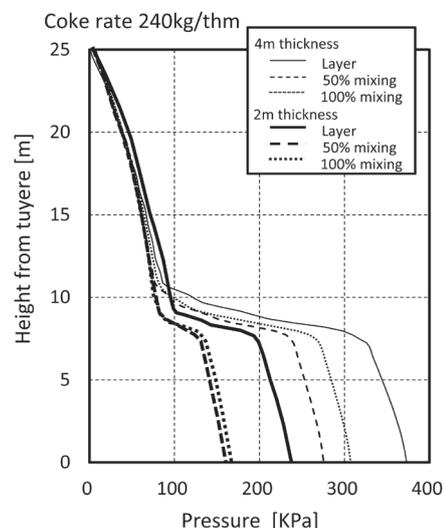


Fig.5 Moving bed structure and pressure loss of whole BF.

いるように液相生成が固相線とは異なる。非平衡な状態で液相が生成するため鉱物相の接触状態を加味した固相線温度と軟化の関係を一層明らかにする必要がある。また、溶融温度は、液相線温度よりも低温であり液相率がおよそ50-80%程度になると液滴となる。溶融は液相率で整理することが可能であるが、還元により鉄が生成するに伴い組成が変化するので、炉内での還元履歴も影響され複雑である。観察では溶融後もコークスとぬれずにコークスベッド上にしばらく留まることが確認され、溶融とコークスベッドへの浸透に相関がないことが分かった。

4 滴下帯の通気の向上

4.1 融着帯下部と滴下帯での液相の滴下促進

融着帯下部では、コークス-溶融スラグ、溶銑間のぬれ性を向上し、滴下を促進することが望ましい。一方、滴下帯においては溶融したスラグ、銑鉄が充填層の空隙率を低下させるため、通気性向上のためには滴下の高速度を考える必要がある。充填層内の液のホールドアップに関しては多くの研究が行われており、フラッキングと融体の粘度やぬれ性の関係などが報告されている²⁾。スラグおよび溶銑の粘度及びコークスとのぬれ性は温度や組成により広い範囲で変化する。Moving Particle Semi-implicit Method (MPS法)を用いた充



Fig.6 Shape of oxide tablet at softening and melting temperature.

填層内の液流れシミュレーターを用いて、溶銑と同等の粘度に設定した液体を、ぬれ角を60, 90, 120度に制御しながらφ20 mmの固体球体で構成された充填層に滴下した。この計算結果をFig.7¹⁾に示す。滴下後0.3 sにおいて、ぬれ角が60度の場合液(黒点)は充填層(白丸)内に存在するが、ぬれない120度では既に通過している。また、1秒後でも60度と90度では液滴が残っている。このようにぬれ性が液のホールドアップに影響することが判る。また粘度に応じて動的ホールドアップ量も変化する。滴下帯に留まる液体量を低下するためには、粘度およびぬれ性を低下することが効果的である。

4.2 滴下帯における粉体の蓄積

低コークス化のために、羽口からの水素系還元材の利用が検討されている。しかし水素系還元材は羽口前温度を低下すると考えられており、同時に吹き込む微粉炭の燃焼性を低下する可能性がある。このように低コークス比操作では微粉炭から発生する未燃チャーやコークスから発生する粉の蓄積に

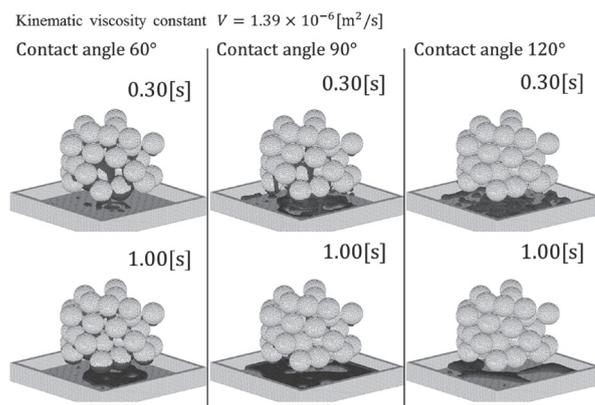


Fig.7 Permeation behavior of oxide melt into coke bed.

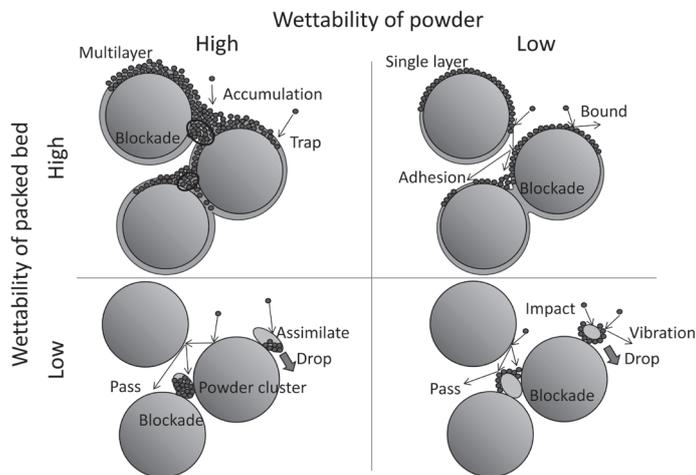


Fig.8 Schematic sketch of powder clogging and accumulation in a packed bed which have different wettability.

よる通気性の低下が懸念される。埜上ら、夏井らはDEM法により充填層内における粉体の原理的な蓄積挙動について検討を行った。充填物の狭窄部に粉体粒子が同時に到達した場合、少数粒子が起点となり閉塞が発生し¹²⁾、蓄積の原因となる。この時粉体粒子の形状および摩擦係数が閉塞の発生に影響する¹³⁾ことが示された。

実際の高炉内では上部から液体が滴下するコークスベッド内を粉体が流動することを考える必要がある。湿潤充填層内における粉体の蓄積挙動が実験的に検討された。液体が共存しない場合に比べ粉体の蓄積は発生しやすい。Fig.8¹⁴⁾に示すように、液体に対して充填物と粉のぬれ性により蓄積挙動が変化することが示された。植木らは未燃チャーの物性に対して検討を行い微粉炭の初期条件と燃焼条件の変化により、未燃チャー表面のアッシュの状態が変化することを示した¹⁵⁾。未燃チャー表面の炭素、アッシュの露出状態は液体に対するぬれ性に影響するため燃焼と蓄積挙動の関係の検討が必要であろう。

滴下帯における粉の蓄積を抑制するためには、粉体の発生を低減することはもちろん、粉体のみでなく液体の物性の面から閉塞の発生低減の検討が有効である。

4.3 ぬれ性

上記の様に炉内の液体のぬれ性は融着帯の位置、滴下帯での液ホールドアップ、粉体蓄積に顕著に影響する。これまでに、炭材表面におけるスラグのぬれ性は多くの系に対する測定が報告されている²⁾が、報告されたぬれ角は、スラグの組成、接触時間、炭材の種類によって異なる。大野らはスラグ炭材間における炭素溶解反応がぬれに与える影響について検討を行い、炭素溶解反応によりスラグと炭材の初期の接触角に対して安定後の接触角が小さい値となる¹⁶⁾と報告した。またコークス中のアッシュはぬれ性に直接影響するのみでなく、有効反応面積を変化するため、ぬれ角と炭素溶解反応に影響することを示した。助永らは気孔率の異なる炭素基板とスラグ組成のぬれ角への影響を定量し、気孔率とスラグの表面張力がぬれに影響することを確認した¹⁷⁾。スラグ組成全域を対象にしたぬれや表面張力の定量データは十分に報告されていないため今後の測定値の報告が望まれる。

高炉充填層内の液流れの促進を対象とする場合、コークス表面でのスラグおよび溶銑の動きを考慮し、非平滑面上での液滴の動的接触角の変化と固体表面から移動する液滴にかかる力の評価が必要である。そこで、任意の粗さを与え、ぬれ性を制御した基板あるいは、コークス上での液滴の前進および後退接触角を測定し、表面の凹凸の液滴の移動に対する影響を観察した¹⁸⁾。ぬれ角が90°程度より小さい場合、固体表面の粗さにより固気液3相界面の移動の抗力が増大し、液

滴が移動しにくくなる。一方、ぬれ角が90°より大幅に大きい場合、表面粗さにより固液の接触界面が縮小し、3重点の移動の抗力が低下する。高炉内では溶融スラグ、溶銑どちらも反応に伴いぬれ性が変化するため、上部では融体の反応の進行とコークス表面の粗さの影響でよりぬれ易くなり、反応が進んだ下部ではよりぬれにくくなる。充填層内の液体の物性と液流れの定量的な関係の評価は今後の課題であり、通気性の制御を目的とした溶液の物性制御の方針の提示、またその基礎となる物性値の整備が望まれる。

4.4 数値シミュレーションによる溶融の扱い

コークス比の大幅低下など操業条件の変更による炉内反応の変化の予測には数値シミュレーションが有効であり、近年Fig.5に示したような離散的手法による高炉数式モデルの開発が活発に行われており¹⁹⁾、任意の物性を持った固体粒子の移動や軟化挙動を表すことが可能になった。現状の鉬石の軟化を扱うモデル⁷⁾では炉内の温度分布や鉬石の組成、反応率に応じた軟化、溶融挙動を経時的に反映するには至っていないため、融着帯における軟化、溶融は予め決定した融着帯の位置において粒子のヤング率を低下するなどの方法により表現されている。

またMPS法やDEMを用いたモデルの様に充填層内の液や粉の移動解析に特化したモデルは提案されているが、液や粉の物性からの確かな数値を付与する方法は未開拓である。溶融挙動を表現可能なモデルの構築を試みる場合、軟化挙動と通気性の関係、融体物性と滴下の関係等実現象の物理的現象解明と数式化を進める必要がある。操業中の実炉内の溶融挙動を詳細に観察することは困難であるため、高炉融着帯、滴下帯形成の初期値を与える初期融液の生成、軟化発生、溶け落ち時の素現象を実験的に解析することが有効である。この知見を総括し従来の高炉操業条件よりも広い条件範囲においても鉬石層の軟化、滴下を的確に表す方法を開発する必要がある。

5 まとめ

低炭素高炉実現を目指した固気液3相の移動現象最適化研究会では、高炉の装入物制御の観点と、溶融制御の観点から、「固気液粉の挙動に対応した充填構造の高度制御と粉体の発生の制御」、「融着帯から滴下帯にかけての通気通液性向上のための溶融挙動、融体物性制御」をテーマに研究を進行した。まず、これまでの通気性と固気液の挙動に関する研究の到達点を確認するとともに、今後の低炭素化に伴う新たな問題や研究の課題について取り上げた。微視的な反応や物性などの基礎研究の結果を実操業に有効な形態で供することを念頭に、マクロな装入物制御から、溶融現象、融体物性、粉体の発

生、液相を含む固気液挙動のモデル化に至るまで一連の研究を行った。低炭素による製鉄は普遍的テーマであり継続的に研究を進める必要がある。

謝辞

本研究成果は日本鉄鋼協会低炭素高炉実現を目指した固気液3相の移動現象最適化研究会 (H23-25) の研究活動に寄っている。本研究会の活動を支援していただいた皆様、参加して頂いた委員、顧問の皆様に謝意を表する。

参考文献

- 1) 植田滋, 三木貴博, 村上太一, 埜上洋, 佐藤健: 鉄と鋼, 99 (2013), 1.
- 2) 林幸, 助永壮平, 大野光一郎, 植田滋, 砂原公平, 齊藤敬高: 鉄と鋼, 100 (2014), 211.
- 3) 埜上洋, 植木保昭, 村上太一, 植田滋: 鉄と鋼, 100 (2014), 227.
- 4) S.Natsui, T.Kikuchi, R.O.Suzuki, T.Kon, S.Ueda and H.Nogami: ISIJ Int., 55 (2015), 1259.
- 5) T.Muakami, T.Kodaira and E.Kasai: ISIJ Int., 55 (2015), 1181.
- 6) T.Murakami, T.Kodaira and E.Kasai: ISIJ Int., 55 (2015), 1197.
- 7) S.Matsuhashi, H.Kurosawa, S.Natsui, T.Kon, S.Ueda, R.Inoue and T.Ariyama: ISIJ Int., 52 (2012), 1990.
- 8) T.Miki and Y.Fujita: ISIJ Int., 55 (2015), 1206.
- 9) M.Hayashi, K.Suzuki, Y.Maeda and T.Watanabe: ISIJ Int., 55 (2015), 1223.
- 10) 植田滋, 昆竜矢, 菊地辰, 埜上洋: 材料とプロセス, 27 (2014), 3.
- 11) T.Kon, S.Natsui, S.Ueda and H.Nogami: ISIJ Int., 55 (2015), 1284.
- 12) M.Fukuda, J.Suzuki, H.Kawai and H.Nogami: ISIJ Int., 55 (2015), 1291.
- 13) S.Natsui, S.Ueda, H.Nogami, J.Kano, R.Inoue and T.Ariyama: Chemical Engineering Science, 71 (2012), 274.
- 14) S.Kikuchi, S.Ueda, T.Kon, R.Inoue, S.Natsui and H.Nogami: ISIJ Int., 54 (2014), 1244.
- 15) Y.Ueki, R.Yoshiie and I.Naruse: ISIJ Int., 55 (2015), 1305.
- 16) K.Ohno, S.Tsurumaru, A.Babich, T.Maeda, D.Senk, H.W.Gudenau and K.Kunitomo: ISIJ Int., 55 (2015), 1245.
- 17) S.Sukenaga, T.Higo, H.Shibata, N.Saito and K.Nakashima: ISIJ Int., 55 (2015), 1299.
- 18) S.Ueda, T.Kon, S.Kikuchi, S.Natsui, S Sukenaga and H.Nogami: ISIJ Int., 55 (2015), 1277.
- 19) 有山達郎, 夏井俊悟, 昆竜矢, 植田滋, 菊地辰: 鉄と鋼, 100 (2014), 198.

(2015年6月23日受付)