

焼結プロセスにおける気体燃料と酸素による 温度制御技術の開発

Development of Temperature Control Technology by Gaseous Fuel and Oxygen in Iron Ore Sintering Process

岩見 友司 IWAMI Yuji JFE スチール スチール研究所 製鉄研究部 主任研究員 (副課長)
樋口 隆英 HIGUCHI Takahide JFE スチール スチール研究所 製鉄研究部 主任研究員 (副部長)・博士 (環境科学)
山下 勝宏 YAMASHITA Katsuhiko JFE スチール 東日本製鉄所 (京浜地区) 製鉄部 製鉄技術室 主任部員 (課長)

要旨

近年、SDGs に代表されるように CO₂ 排出量の削減が喫緊の課題となっており、鉄鋼業においても製鉄プロセスからの CO₂ 排出量削減が強く求められている。JFE スチールでは 2009 年に焼結機への気体燃料吹込み技術 (Super-SINTER[®]) の実用化に成功した。本技術は焼結層の表面から所定量の炭化水素系気体燃料を吹き込むことで、層内で液相が生成する 1 200℃以上の保持時間を延長するものである。本技術を導入した工場では、焼結・高炉工程でのコークス使用量削減により、年間最大 60 000 トンの CO₂ 排出量削減を達成した。また、気体燃料と酸素の併用吹込み技術によりコークスと気体燃料の燃焼速度を制御し、1 200℃以上の保持時間をさらに延長させた。

Abstract:

Reduction of CO₂ emissions has become an urgent issue as represented by the SDGs in recent years, and at the same time, the iron and steel industry is also strongly required to reduce CO₂ emissions from the ironmaking process. In JFE Steel, the gaseous fuel injection technology (Super-SINTER[®]) was developed and installed to actual sintering machine in 2009. In this technology, the predetermined amount of hydrocarbon gaseous fuel injection from bed surface extended holding time over 1 200°C at which liquid phase sintering occurs. This technology was applied to a plant, and by the reduction of coke usage in sintering and blast furnace process, a maximum CO₂ reduction of 60,000 t/y was achieved. Moreover, by controlling combustion rate of coke and gaseous fuel with gaseous fuel and oxygen injection technology (Super-SINTER[®] OXY), improvement of further extension of holding time over 1 200°C was successfully achieved.

1. はじめに

近年、気候変動への具体的な対策として、CO₂ 排出量の削減技術開発が急務となっている。鉄鋼業における CO₂ 排出量の約 60%以上は焼結と高炉で発生するため¹⁾、焼結機で使用する粉コークスと、高炉で使用する塊コークスの削減が強く求められている。粉コークス比と塊コークス比の低減には、焼結鉱の強度と被還元性の改善が有効であることが一般的に知られている²⁾。焼結プロセスでは約 1 200℃から原料が溶融を開始し、生成した融液が鉱石間に浸透・凝固することで塊成化が進行する。この液相からは高強度のカルシウムフェライト組織³⁾が生成し、約 1 400℃で分解する。したがって、高強度焼結鉱の製造には、反応温度を 1 200~1 400℃に保つことが有効である。

これまでに、粉コークス比を増加させずに強度を向上させる技術がいくつか提案されている。例えば焼結機の主排ガス

循環システムは、その顕熱により冷却速度を低下させることが報告されている⁴⁾が、一方で循環主排ガスの酸素濃度が低く湿分が高い場合は生産性が低下することも報告されている⁵⁾。また、予熱した空気を吹き込む方法も提案されている⁶⁾が、予熱空気は粉コークスの燃焼には影響を及ぼさないという点で適用限界があることも報告されている⁷⁾。これらの理由から、いずれの技術も焼結機への適用は限定的である。

JFE スチールでは、粉コークスの一部代替として、焼結層の表面から所定量の炭化水素系気体燃料を吹込むことで、1 200~1 400℃の保持時間を延長する技術を開発した⁸⁾。本技術により、粉コークス比を低減しつつ、強度を改善することが可能となった。さらに気体燃料と酸素の複合吹込み^{9,10)}によりコークスと気体燃料の燃焼速度を制御することで、1 200~1 400℃の保持時間をさらに延長し、気体燃料吹込みの効果を向上させる技術を開発した。

本報では気体燃料吹込み技術および酸素との併用技術の、基礎検討と実機適用について述べる。

2021年9月29日受付

2. 気体燃料吹込みの検討

2.1 実験方法

2.1.1 焼結鍋試験

まず、焼結鍋試験装置で、層内温度に及ぼす気体燃料吹込みの影響について調査した。石英ガラス鍋 (300 mmφ×400 mmH) に焼結原料を充填し、点火後 60 秒から焼結完了まで液化天然ガス (以下、LNG; CH₄/C₂H₆/C₃H₈=89/5/6 vol.%) を空気に混合して吹込んだ。吸引負圧は 6.9 kPa で一定とし、床敷層厚は 20 mm とした。石英ガラス鍋側面からサーモグラフィを用いて熱画像を撮影した。

返鉱配合比率が 20 mass%, SiO₂ が 4.8 mass%, 塩基度 (CaO/SiO₂) が 1.9 となるように配合を調整した。従来法では粉コークス比を 5.0 mass% とし、LNG 吹込み法では LNG を吸引空気に対して 0.4 vol.% となるように設定し、投入熱量が一定となるように粉コークス比を 4.6 mass% まで低減した。

シャッター強度、被還元性 (JIS-RI), および還元粉化性 (JIS-RDI) の測定に加え、粉末 X 線回折法により、組織中のヘマタイト、カルシウムフェライト、マグネタイト、スラグ組織を定量化した¹¹⁾。

2.1.2 実機試験

実験室で観察された効果について、東日本製鉄所 (京浜地区) 第 1 焼結工場 (以下、京浜第 1 焼結工場) で実機試験により検証した。下層よりも強度が低くなる傾向の上層部の温度履歴改善を目的とし、上層に反応帯が存在すると思われる、機長の前方約 1/3 の範囲にフードを設置し、LNG を 250 Nm³/h で吹込んだ。造粒水分は 7.6 mass%, 層厚は 650 mm に設定した。パレットスピードは、BTP (Burn Through Point; 焼結完了点) が一定になるように制御した。LNG 吹込み前後でのタンブラー強度、JIS-RI, JIS-RDI を計測した。また、焼結機パレット台車のサイドウォールに穴を設け、R 型熱電対 (3.2 mmφ×1 000 mmL) を 500 mm 挿入し、層内温度履歴を計測した。

2.2 焼結特性に及ぼす気体燃料吹込みの影響

表 1 に焼結鉱の品質および生産性に関する、従来法と LNG 吹込み法の比較を示す。写真のとおり、LNG 吹込み法では従来法と比較して赤熱領域が大幅に拡大していた。LNG 吹込み法では焼結時間はわずかに延長したが、シャッター強度が 2.2% 改善し、焼成歩留が 3.8% 改善した。通常、JIS-RI は強度と背反する傾向にあるが、LNG 吹込み法ではシャッター強度が改善した一方で、JIS-RI も 5.9% 改善した。また、JIS-RDI は 7.8 mass% 改善した。これは、焼結鉱の強度向上によるものと考えられる。

2.3 温度履歴に及ぼす気体燃料吹込みの影響

表 2 に点火後 250 秒のビデオカメラとサーモグラフィによる燃焼挙動の観察結果を示す。サーモグラフィ観察結果の赤色斜線部は 1 400℃ 以上を計測した温度領域である。従来法では 1 200℃ 以上の温度領域が狭いにも関わらず 1 400℃ 以上の温度領域が存在しているのに対し、LNG 吹込み法では 1 200℃ 以上の温度領域が上方に拡大し、1 400℃ 以上の温度領域が消失していた。これは、LNG の燃焼開始温

表 1 焼結鉱の品質および生産性に関する従来法と LNG 吹込み法の比較

Table 1 Comparison of sinter productivity and quality between call coke method and LNG injection method

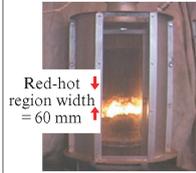
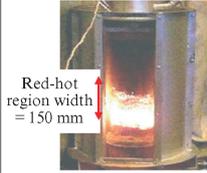
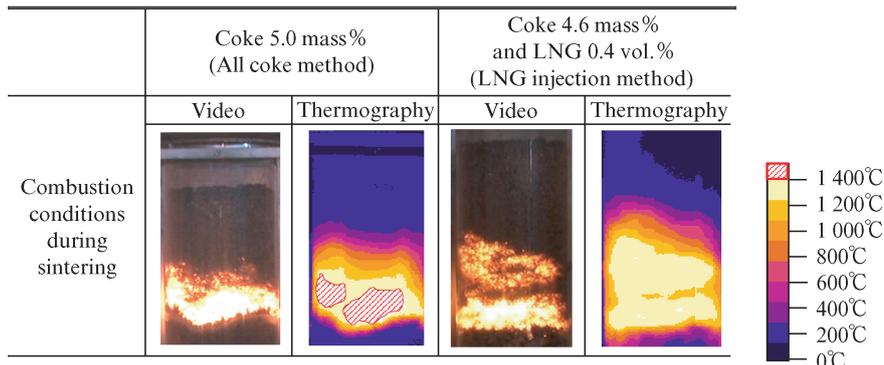
	Coke 5.0 mass% (Conventional method)	Coke 4.6 mass% and LNG 0.4 vol.% (LNG injection method)
Macroscopic image of red-hot region with quartz glass pot		
Sintering time (min.)	16.0	16.7
Shatter index (%)	70.7	72.9 (+2.2)
Sinter yield (%)	69.0	72.8 (+3.8)
Productivity (t/h·m ²)	1.56	1.64 (+0.08)
JIS-RI (%)	64.5	70.4 (+5.9)
JIS-RDI (mass%)	36.1	28.3 (-7.8)

表 2 点火後 250 秒におけるビデオカメラとサーモグラフィによる燃焼挙動の観察結果

Table 2 Effect of gaseous fuel injection method on temperature distribution measured by thermography at 250 s after ignition



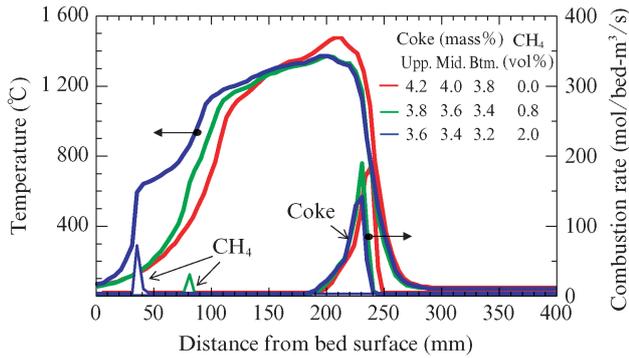


図1 点火後600秒での温度分布に及ぼす気体燃料吹き込み技術の影響

Fig. 1 Effect of gaseous fuel injection method on temperature distribution with mathematical model at 600 s after ignition

度が650~750℃であるため、焼結層の上部から吹込まれたLNGが粉コークスの燃焼位置に到達する前に燃焼し始め、粉コークス燃焼後の、上層から流入する空気による冷却が緩和されたためと考えられる。ここで650~750℃はLNGの約90%を構成するメタンの燃焼温度範囲である。また、LNG吹き込み法では粉コークスを低減していることから、これにより1400℃以上の温度領域が消失したのと考えられる。

著者らは、気体燃料吹き込み技術の原理を確認するため、結層内の温度分布を推定する数学モデルを開発した。本モデルでは、物質質量、熱量、運動量の保存則に基づいた微分方程式により圧力、温度、ガス流速を計算した。本モデルには、焼結層内における一般的な反応についての速度式を考慮した上で、メタンの燃焼速度式を新たに追加した。

図1に点火後600秒での温度分布に及ぼす気体燃料吹き込み技術の影響を示す。計算結果と実験結果はよく一致しており、気体燃料吹き込み技術により1200~1400℃の領域が拡大していた。また、粉コークスと異なる位置でメタンが650~700℃で燃焼していることも確認できた。

2.4 鉱物組織形成に及ぼす気体燃料吹き込みの影響

図2に焼結鍋試験におけるLNG吹き込み法による鉱物組成の変化を示す。LNG吹き込み法により、従来法と比較してカルシウムフェライト組織比率が1.6倍に増加し、低強度のスラグ組織が減少した。LNG吹き込み法では、最高温度が1400℃以下に低下したことにより、カルシウムフェライトの分解が抑制されたため、スラグ組織が減少したと考えられる。Kissinら³⁾は、カルシウムフェライト組織が強度と被還元性に優れ、スラグ組織は劣っていると報告している。このことから、カルシウムフェライト組織比率の増加とスラグ組織比率の減少が、LNG吹き込み法による強度と被還元性の改善理由の一つであると考えられる。

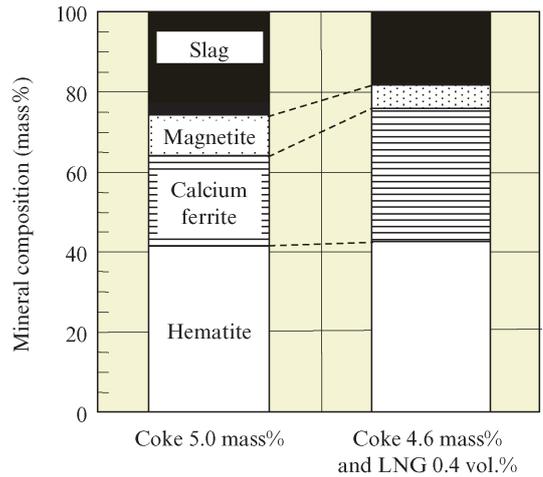


図2 LNG吹き込み法による鉱物組織の変化

Fig. 2 Change of mineral texture with LNG injection method

2.5 実機での操業結果に及ぼす気体燃料吹き込みの影響

京浜第1焼結工場で気体燃料吹き込みが温度分布に与える影響を評価した。図3(a)に上層の温度分布を、図3(b)に下層の温度分布を示す。図3(a)に示すとおり、LNG吹き込み法により、上層の最高温度は上昇せず、1200℃以上の保持時間が134秒から258秒に延長した。一方、図3(b)に示すとおり、LNG吹き込み法により下層の最高温度が1437℃から1370℃に低下した。これは、粉コークス原単位が3.0 kg/t-s減少したためと考えられる。したがって、LNG吹き込みにより脆弱な上層部の強度が改善し、粉コークス原単位の削減により下層のJIS-RIが向上したと言える。このことから、最高温度を上げず1200℃以上の保持時間を延長する「C型焼結法²⁾」の温度分布を、LNG吹き込み法によって達成できたと考えられる。

図4に従来法とLNG吹き込み法の操業結果と品質の変化を示す。LNG吹き込み法では、従来法と比較して、同じ生産性でタンブラー強度が約1%向上した。また、このタンブラー強度の向上に伴い、粉コークス原単位が3.0 kg/t-s低減した。JIS-RIも徐々に向上し、最終的に4%改善した。この試験結果に基づいて熱収支を計算した。入熱は点火炉内のコークス炉ガス、粉コークス、およびLNGの燃焼熱とした。LNG吹き込み法では、従来法と比較し、熱量原単位が約60 MJ/t-s減少した。各燃焼熱はコークス炉ガス：17.6 MJ/Nm³、粉コークス：27.1 MJ/kg、LNG：41.6 MJ/Nm³を用いた。LNG吹き込み法は、従来法と比較して、同じ生産性で熱量原単位が低減し、併せてタンブラー強度と被還元性が改善した。

	LNG (Nm ³ /h)	BAR (mass%)
—	0	5.3
⋯	250	5.0

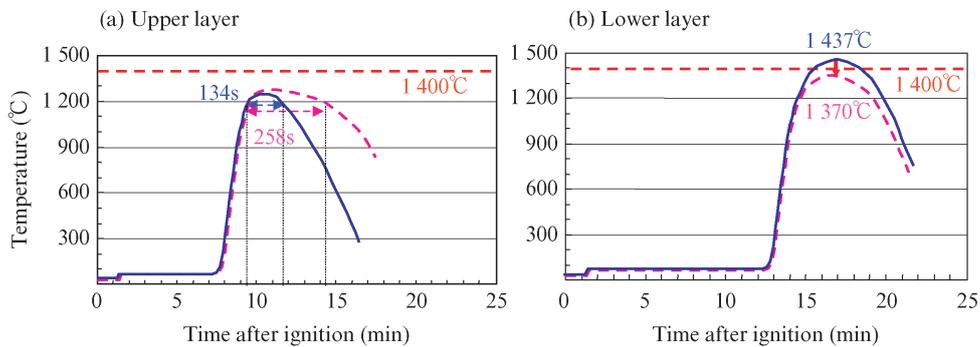


図3 層内温度分布に及ぼす LNG 吹き込みの影響 (京浜第1 焼結工場)

Fig. 3 Effects of LNG injection method on temperature distribution at Keihin No.1 Sinter Plant

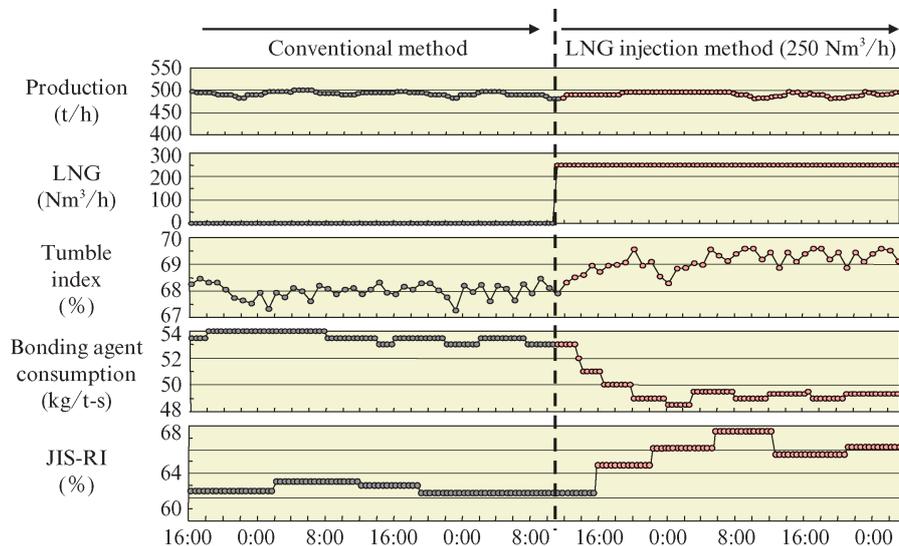


図4 京浜第1 焼結工場における操業結果と焼結鉱品質に及ぼす LNG 吹き込みの影響

Fig. 4 Change in operational result and quality with LNG injection method in comparison with all coke method

3. 気体燃料と酸素の併用吹き込み

3.1 実験方法

3.1.1 焼結鍋試験

著者らは、次に、LNG と酸素の併用吹き込みにより粉コークスと LNG の燃焼挙動を制御することで、1200~1400°C の保持時間のさらなる延長を試みた⁹⁾。

まず、焼結鍋試験装置で、LNG 吹き込みにおける、温度分布に及ぼす酸素吹き込みの影響を調査した。Case A は LNG、酸素を吹き込まないベース条件である。Case B では LNG を 0.4 vol. %、点火後 60 秒から 300 秒間吹き込んだ。Case C では吸引空気の酸素濃度を 28 vol. % まで富化した。Case D では LNG と酸素を併用して吹き込んだ。LNG を吹き込む条件で

は、吹き込む LNG と等熱量相当の粉コークスを削減した。試験では 2.1.1 項に示した石英ガラス鍋を使用し、ビデオカメラとサーモグラフィにより赤熱領域を撮像した。返鉱配合比率が 20 mass %、SiO₂ が 4.8 mass %、塩基度 (CaO / SiO₂) が 1.9 となるように配合を調整した。

3.1.2 実機試験

LNG と酸素の併用吹き込みの実機試験は、東日本製鉄所 (千葉地区) 第 4 焼結工場で行った。LNG 吹き込みのフード内に酸素配管を敷設し、酸素富化した。実験では LNG と酸素のいずれも吹き込まない条件をベースとし、他の条件では一律 LNG を 0.4 vol. % で吹き込み、その 4 倍相当の熱量に相当する粉コークスを削減した。酸素は 21 vol. % から 30 vol. % の範囲とした。2.1.2 項と同様に、層内温度履歴を計測した。

表 3 各条件における赤熱帯観察結果

Table 3 Observation results of combustion behavior in sintering bed by video camera and thermography

	Case A		Case B		Case C		Case D	
Coke (mass%)	5.0		4.7		5.0		4.7	
O ₂ (vol.%)	21		21		28		28	
NG (vol.%)	-		0.4		-		0.4	
	Video	Thermo-graphy	Video	Thermo-graphy	Video	Thermo-graphy	Video	Thermo-graphy
Temperature (°C)	Air		Air + LNG		Air + O ₂		Air + LNG + O ₂	

3.2 温度履歴に及ぼす気体燃料と酸素の併用吹込みの影響

表 3 に各 Case の赤熱領域，および層内温度分布の観察結果を示す。LNG 吹込みのみの Case B では，ベース条件である Case A よりも赤熱領域が拡大した。これに対し，酸素吹込みのみの Case C における赤熱領域は Case A よりも狭くなった。一方，LNG と酸素の併用吹込みの Case D では，Case B よりもさらに赤熱領域の面積が拡大した。

粉コークスと LNG (CH₄) の酸化速度式は，一般に温度と酸素濃度の関数として表され，温度と酸素濃度の上昇に伴い酸化速度は速くなる。前述のとおり LNG は大気中 (O₂: 21vol.%) で 650~750℃ で燃焼するので，650℃~750℃ で酸化速度は燃焼する値に達している。酸素濃度が 21 vol.% を超えると，酸化速度が燃焼する値に達する温度は 650~750℃ より低くなるため，粉コークスと LNG は低温で燃焼を開始する。

図 5 に各 Case の燃焼位置と温度分布の模式図を示す。粉コークスのみの燃焼位置が存在する Case A と比較し Case B では粉コークスの燃焼位置の上方に LNG の燃焼位置が存在し，その結果温度履歴における高温領域は上方に向かって拡大する。これは 2.3 節で述べたとおりである。一方，Case C では，酸素濃度の上昇に伴い粉コークスの燃焼開始温度が低下し，その結果粉コークスの燃焼位置は下層に移動する。これに対して Case D では，粉コークスと LNG の両者が酸素濃度の上昇に伴い低温で燃焼を開始することから，粉コークスの燃焼位置が下方に移動し，LNG の燃焼位置が上方に移動する。この各燃焼位置の移動により互いの燃焼位置の間隔が拡大し，温度分布における高温領域が拡大したものと考えられる。

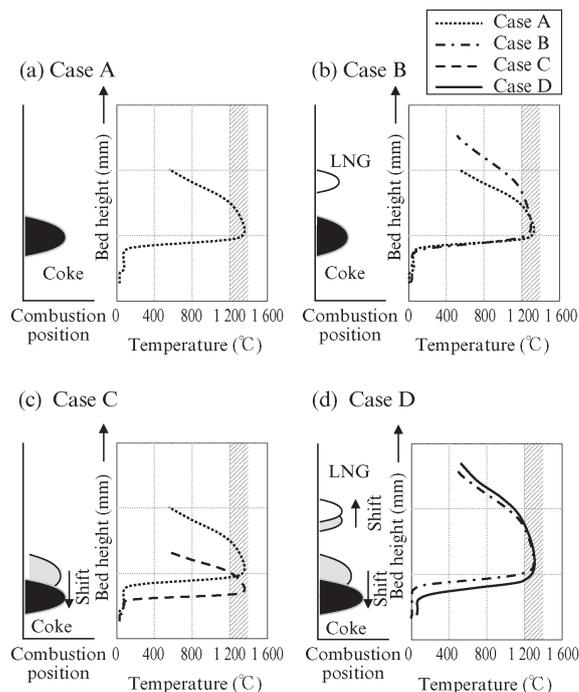


図 5 各条件における燃焼位置と温度分布の模式図

Fig. 5 Schematic diagram of heat pattern and ignition behavior with each case

図 6 に鍋試験における生産性と強度の関係を示す。Case B では LNG 吹きみにより 1 200~1 400℃ の保持時間が延長され，焼結強度が向上した。また，Case C では酸素富化により焼結時間が短縮され，生産性が向上した。Case D では，LNG と酸素の相乗効果により Case B の焼結強度と Case C の生産性のいずれをも上回っており，焼結強度と生産性が大幅に向上した。

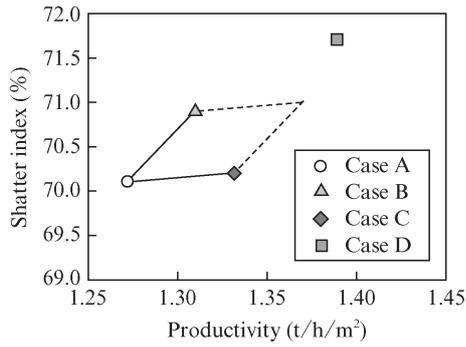


図6 鍋試験における生産性と強度の関係

Fig. 6 Relationship between productivity and cold strength in pot test

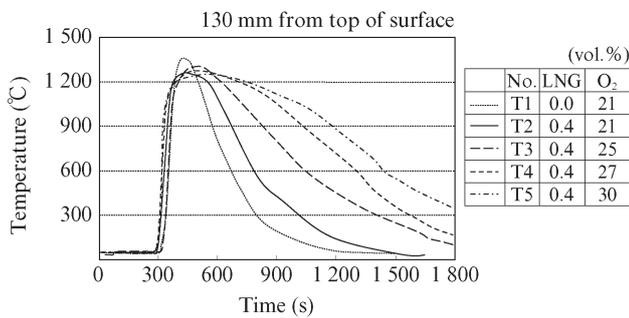


図7 LNG 0.4 vol.%一定条件下における温度に及ぼす酸素濃度の影響

Fig. 7 Effects of O₂ concentration on temperature with constant LNG concentration: 0.4 vol. %

3.3 実機での操業結果に及ぼす気体燃料と酸素の併用吹込みの影響

図7に温度履歴の測定結果を示す。前述のとおり、1200～1400℃の保持時間が焼結鉱の品質改善に有効であることから、1200～1400℃の保持時間を計測した。ベース条件であるT1に対し、LNGを吹込んだT2では1200～1400℃の保持時間が60秒増加した。酸素濃度を25 vol.%まで富化したT3では、T2と比較して100秒増加し、27 vol.%まで富化したT4では、T3よりもさらに116秒増加した。一方で、30 vol.%まで富化したT5は、T4と比較しあまり増加しなかった。これは粉コークスとLNGの燃焼位置が大きく離れすぎたために、1200～1400℃の保持時間延長に寄与しなかったと考えられる。

図8に操業試験の結果を示す。この試験期間ではLNGを0.4 vol.%吹込む条件をベースとし、27 vol.%まで富化して酸素吹込みを行った。塊粉の生産性一定（パレットスピード一定）の条件のもと、酸素吹込みによりタンブラー強度が63.1%から64.3%に向上した。さらに酸素濃度が上昇したことで焼成速度が向上し、生石灰原単位が10 kg/t-sから8 kg/t-sまで低減した。

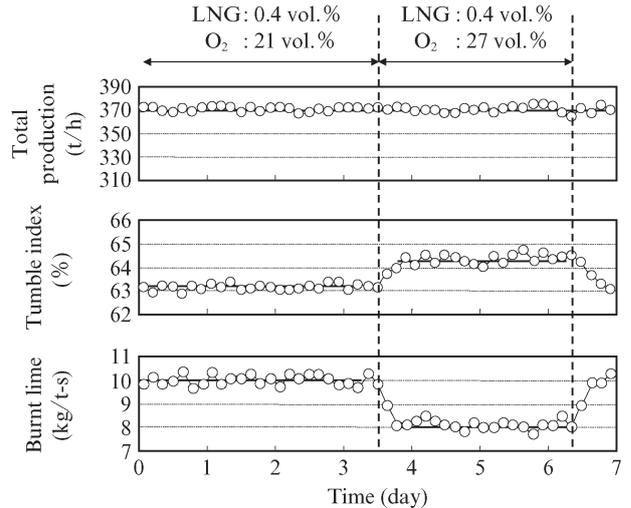


図8 適用前後における焼結強度の比較

Fig. 8 Comparison of sinter strength between before and after application

4. おわりに

JFE スチールでは、CO₂ 排出量削減を目的として、焼結機への気体燃料吹込み技術（Super-SINTER[®]）および気体燃料と酸素の併用吹込み技術（Super-SINTER[®] OXY）を開発した。

- (1) 気体燃料吹込み技術は、焼結層の表面から吹込まれた気体燃料を粉コークスの燃焼位置に到達する前に燃焼させることで、1200～1400℃の保持時間を延長する技術である。
- (2) 気体燃料と酸素の併用吹込み技術は、酸素富化により粉コークスと気体燃料の燃焼開始温度を低温化させることで燃焼位置同士の間隔を拡大させ、1200～1400℃の保持時間をさらに延長させる技術である。
- (3) 1200～1400℃の保持時間の延長により、カルシウムフェライトが増加しスラグ組織が減少したことで、強度が改善したと考えられる。
- (4) 両技術は実機への適用を完了し、強度改善効果を確認した。京浜第1焼結工場では、Super-SINTER[®]の導入により、年間最大60000トンのCO₂排出量削減を達成した。

謝辞

本研究の成果は九州大学大学院工学研究院との共同研究の成果を含むものであり、ご指摘・ご指導いただいた清水正賢元九州大学教授および関係各位に深く謝意を表します。

参考文献

- 1) 半明正之. 環境調和を目指した鉄鋼技術の進歩発展と今後の展望. ふえらむ. 2007, vol. 12, no. 7, p. 456-462.
- 2) 佐々木稔, 肥田行博. 焼結反応からみた焼結鉱の組織と品質. 鉄と鋼. 1982, vol. 68, no. 6, p. 563-571.
- 3) Kissin, D. A.; Litvinova, T. I. Mechanism of mineral formation in sintering fluxed sinter, STAL. 1960, May, no. 5, p. 318-323.
- 4) 佐藤武夫, 中野皓一郎, 黒沢信一, 野沢光男, 澤田輝俊. 焼結主排ガス循環設備. 鉄と鋼. 1985, vol. 71, S38.
- 5) 安本俊治, 福留正治, 山田孝雄, 児玉琢磨, 為井章, 今井由次, 灰谷政彦, 北沢孝次. 焼結実排ガスを吸引した場合の焼結性について. 鉄と鋼. 1978, vol. 64, S483.
- 6) 石光章利, 若山昌三, 戸村聡吉, 佐藤勝彦. 予熱空気による焼結実験. 鉄と鋼. 1962, vol. 48, no. 11, p. 1266-1267.
- 7) 田代清, 相馬英明, 柴田充蔵, 今野乃光, 細谷陽三. 予熱焼結法のメカニズムと効果. 鉄と鋼. 1980, vol. 66, no. 12, p. 1603-1611.
- 8) Oyama, N.; Iwami, Y.; Yamamoto, T.; Machida, S.; Higuchi, T.; Sato, H.; Sato, M.; Takeda, K.; Watanabe, Y.; Shimizu, M.; Nishioka, K. Development of Secondary-fuel Injection Technology for Energy Reduction in the Iron Ore Sintering Process. ISIJ International. 2011, vol. 51, no. 913, p. 913-921.
- 9) Iwami, Y.; Yamamoto, T.; Higuchi, T.; Nushiro, K.; Sato, M.; Oyama, N. Effect of Oxygen Enrichment on Sintering with Combined Usage of Coke Breeze and Gaseous Fuel. ISIJ International. 2013, vol. 53, no. 9, p. 1633-1641.
- 10) 岩見友司, 山本哲也, 樋口隆英, 大山伸幸, 佐藤道貴, 曾谷保博. 気体燃料吹込みでの焼結鉱組織に及ぼす酸素富化の影響. 鉄と鋼. 2015, vol. 101, no. 3, p. 177-183.
- 11) 大山伸幸, 主代晃一, 小西行雄, 井川勝利, 反町健一. 焼結ケーキの強度に及ぼす基質強度と気孔構造の影響. 鉄と鋼. 1996, vol. 82, no. 9, p. 719-724.



岩見 友司



樋口 隆英



山下 勝宏