



Title	多流体高炉シミュレータによる水素吹き込み操作の解析
Author(s)	埜上, 洋; 柏谷, 悦章; 山田, 大祐
Citation	鉄と鋼, 100(2), 251-255 https://doi.org/10.2355/tetsutohagane.100.251
Issue Date	2014-02
Doc URL	https://hdl.handle.net/2115/75637
Rights	著作権は日本鉄鋼協会にある
Type	journal article
File Information	Tetsu to Hagane 100(2) 251.pdf



多流体高炉シミュレータによる水素吹き込み操業の解析

埜上 洋¹⁾・柏谷 悦章^{2)*}・山田 大祐³⁾

Simulation of Blast Furnace Operation with Hydrogen Injection

Hiroshi NOGAMI, Yoshiaki KASHIWAYA and Daisuke YAMADA

Synopsis : Recent years various trials to decrease carbon dioxide emission from iron and steelmaking industries have been made. One of these trials is utilization of hydrogen in blast furnace process, and this study performed numerical simulation of blast furnace operation with hydrogen injection through tuyere. The simulations were carried out under the conditions of constant bosh gas flow rate, adiabatic flame temperature and hot metal temperature. The simulation results showed that the temperature level in the stack part was decreased with increase in the hydrogen injection ratio. This resulted in the lowering of the top gas temperature and retarded the reduction of iron oxide especially one of magnetite. The injection of the hydrogen remarkably decreased the coke rate. The converted reducing agent rate, that is sum of coke rate and six times (molecular weight ratio of carbon to hydrogen gas) as hydrogen rate showed small change. Although this decrease in coke rate deteriorated the permeability of the burden materials in the furnace, pressure drop in the furnace was reduced. Since the molar flow rate of the reducing gas was kept constant, the decrease in the gas density due to the increase in the hydrogen content was mainly considered to lead the decrease in the pressure drop. The water gas shift reaction played an important role in the generation of the field of gas composition, thus this reaction has to be carefully discussed for further utilization of hydrogen in blast furnace.

Key words : blast furnace; hydrogen; numerical simulation; injection.

1. 緒言

近年、鉄鋼業界はCO₂排出削減に対する強い社会的要請を受けている。鉄鋼業における主な還元材およびエネルギー源は石炭であり、この石炭に含まれる炭素が最終的にCO₂として大気中に放出されることになる。鉄鋼の一貫製造工程においては鉄鉱石中の酸化鉄を還元して金属鉄とする製鉄プロセスに約70%のエネルギーが投入されている。このため、製鉄プロセスにおける消費エネルギーの低減を目指した研究開発に多大な努力が行われてきた。CO₂の排出量を低減するための方策の一つに還元材としての水素の有効利用が挙げられる。COガスによる酸化鉄の還元反応がCO₂を発生するのに対して、水素による還元生成物はH₂Oであり、炭素系の還元剤から水素系の還元剤への移行はCO₂の排出削減に多大な効果を及ぼすものと考えられる。著者らは反応速度論的数学モデルを用いて高炉への含水素物質吹き込み操業¹⁾の解析を行い、またその結果を製鉄システムに関する熱・物質収支解析²⁾に適用し、含水素物質の吹き込み操業が二酸化炭素排出量を大幅に削減可能であることを示した。

一方で、COによる酸化鉄の還元が発熱反応 ($\text{Fe}_2\text{O}_3 + 3\text{CO} \rightarrow 2\text{Fe} + 3\text{CO}_2$ $\Delta H = -23.5\text{kJ at } 298\text{K}$) であるのに対して、水素による還元は吸熱反応 ($\text{Fe}_2\text{O}_3 + 3\text{H}_2 \rightarrow 2\text{Fe} + 3\text{H}_2\text{O}$ $\Delta H = 100\text{kJ at } 298\text{K}$) である。また製鉄プロセスで水素を利用した際には還元反応によって生成した水蒸気と固体炭素の反応である水性ガス反応 ($\text{C} + \text{H}_2\text{O} \rightarrow \text{CO} + \text{H}_2$) が生じることが予想されるが、この反応も吸熱反応である。このため、水素を利用した製鉄プロセスでは、この吸熱を補償するため、より多くのエネルギーを投入する必要があることが予想されることから、水素の利用は製鉄プロセスの操業効率の低下要因となり得る。また高炉においては還元剤であるコークスと鉱石が交互に装入され、層状の充填構造を形成している。コークス層は鉱石層と比較して気流に対する流通抵抗が小さいことが知られているが、水素による還元剤置換量が増加すると、コークス層が薄層化し、炉内の流通性が低下する可能性がある。このような背景の下、本研究では高炉羽口への水素吹き込みが高炉の操業状態に及ぼす影響を高炉操業の速度論モデルを用いて検討した。

原著論文: ISIJ Int., Vol.52 (2012), No.8, pp.1523-1527

平成25年5月31日受付 平成25年8月12日受理 (Received on May 31, 2013; Accepted on Aug. 12, 2013; originally published in ISIJ Int., Vol.52, 2012, No.8, pp.1523-1527)

1) 一関工業高等専門学校 (現: 東北大学) (Ichinoseki National College of Technology, now Tohoku University, 2-1-1 Katahira Aoba-ku Sendai 980-8577)

2) 京都大学エネルギー科学研究科 (Graduate School of Energy Science, Kyoto University, Yoshida Honmachi Sakyo-ku Kyoto 606-8501)

3) 北海道大学大学院工研究科 (現: 日本製鋼所) (Graduate School of Engineering, Hokkaido University, now Muroran Plant, the Japan Steel Works, LTD)

* Corresponding author: E-mail: kashiwaya@energy.kyoto-u.ac.jp

DOI: http://dx.doi.org/10.2355/tetsutohagane.100.251

2. 高炉操業解析法

2・1 数学モデルの概要

羽口への水素吹き込みが高炉操業に及ぼす影響を検討するため、多相流体力学、反応速度論および移動現象論に基づく高炉操業シミュレータ³⁻⁶⁾を用いた。本シミュレータは、気体、装入物、溶銑、溶滓および粉体に関する連続の式および運動量、熱、化学物質の収支式からなる連立偏微分方程式群から構成されている。すべての収支式は、異相間の相互作用、即ち物質、熱および運動量の交換を考慮している。これらの方程式群の解は、出銑量、還元材比やガス利用率といった高炉の総括的な操業パラメータばかりでなく、温度、速度、圧力、各種化学物質の濃度や反応速度などの炉内分布を算出することができる。本シミュレータで使用する水性ガス反応およびソリューションロス反応の反応速度パラメータには水素燃焼による高温化に対応可能なパラメータ⁷⁾を用いた。

2・2 解析条件

解析の基準としたオールコークス操業の条件の概要をTable 1に示す。基準条件における衝風の流量、温度および酸素富化率は、それぞれ7897Nm³/min、1200℃および2.5%であり、出銑量およびコークス比はそれぞれ10400t/dおよび499kg/thmである。羽口からの水素吹き込み量の影響を検討するに当たり、送風条件を以下のように調整した。まず、衝風中（水蒸気39g/Nm³含有）の空気の一部を水素に置き換え、レースウェイにおける燃焼温度が基準条件と同一（2597K）となるように酸素富化率を変更して衝風の組成を変更した。また、衝風の流量はボッシュガスの物質基準の流量が基準条件と同一となるように変更した。ボッシュガスに含まれる各成分の熱容量は同程度であり、この条件設定により、高炉内部の反応領域に供給される熱エネルギーがほぼ一定に保たれることになる。この熱供給速度は、単に時間基準であり、生産量基準では無い。このようにして決定した衝風の流量と組成およびボッシュガスの組成をまとめてFig.1に示す。本研究で対象とした組成範囲における最大の水素含有量は約43mol-%であり、衝風の流量は水素吹き込み量増加と共に僅かに増加している。ボッシュガスについては、流量はいずれの条件も7.414kmol s⁻¹であり、組成については水素吹き込み量の増加と共に窒素濃度が減少し、またCO濃度が僅かに減少している。尚、装入条件については、溶銑温度（解析領域の底面から流出する溶銑の平均温度）が1500℃となるように鉬石対コークス比をトライアルアンドエラー法により調整した。

3. 結果

Fig.2に水素吹き込み量による炉内温度分布の変化を示す。シャフト領域の温度レベルは水素吹き込み量の増加に

Table 1. Major operating conditions for standard case.

Inner volume	4359 m ³
Productivity	10400 t/d
RAR (CR)	498 kg/thm
Blast volume	7897 Nm ³ /min
Blast temp.	1200 °C
O ₂ enrichment	2.5 %

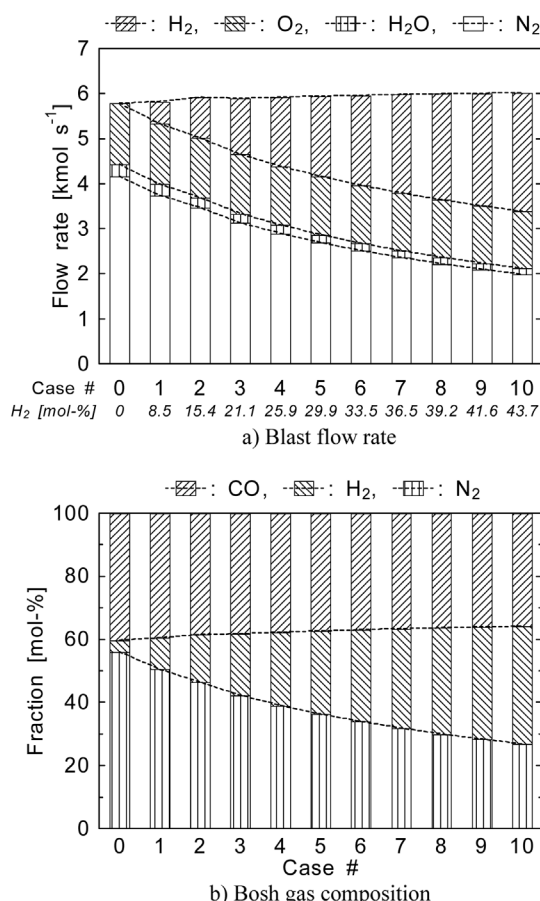


Fig. 1. Blast and bosh gas conditions.

伴って低下しており、特に200から600℃の等温線の下方向への移動が顕著である。その一方で、本解析では1200から1400℃の温度領域で定義される融着帯の高さには大きな変化は見られなかった。その結果として、水素吹き込み量の増加と共に融着帯直上の温度勾配の急峻化が生じている。このような温度変化に伴ってFig.3に示すように炉頂ガス温度が低下し、出銑量は増加する傾向が見られた。

Fig.4に水素吹き込み量による、鉬石の総括還元率分布の変化を示す。水素吹き込み量の増加に伴って、シャフト部における等還元率線が下方に移行しており、特に10%と20%の等還元率線の間隔が増大している。なお、10%の等還元率線の位置は水素吹き込み量にかかわらずほぼ一定の位置にあることから、Fe₃O₄の還元が遅れが生じていることが分かる。炉内を流通する還元ガス（COとH₂）の総濃

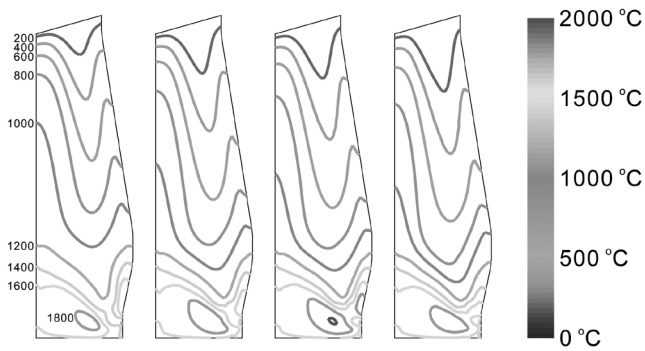


Fig. 2. Variation of solid temperature distribution with hydrogen injection ratio.

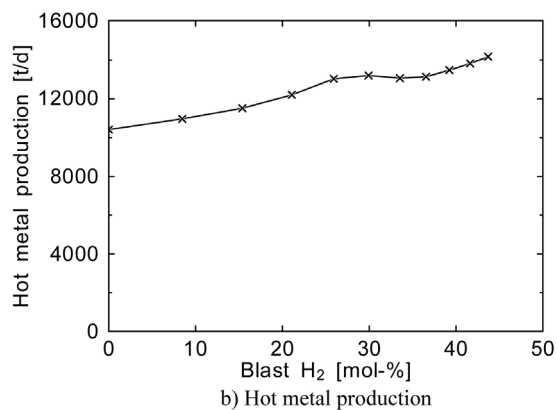
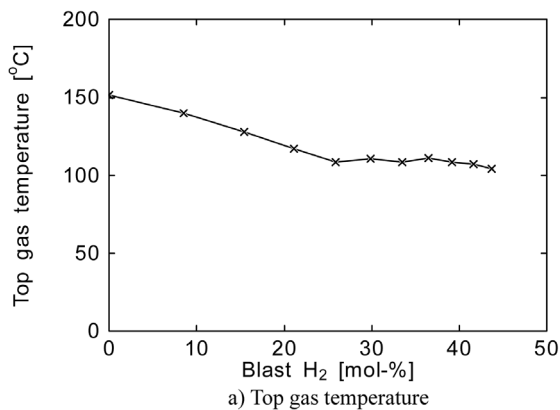


Fig. 3. Variations of top gas temperature and hot metal production with hydrogen injection ratio.

度はFig.1 (b) に示したように水素吹き込み量の増加と共に増加する傾向があり、ガス側の還元ポテンシャルは増加していることから、シャフト部における還元の遅れは主にFig.2に示した温度低下に起因しているものと考えられる。一方、融着帯直上領域においては等還元率線の間隔が狭くなっており、水素多量吹き込み条件においてはこの領域の還元の進行の迅速化が生じていることが分かる。

Fig.5に鉱石の還元量に占める水素還元を割合を酸化鉄還元の各段階毎に示す。いずれの還元段階においても水素還元を割合は水素吹き込み量と共に増加している。 Fe_2O_3 の還元段階については、水素吹き込み量が少ない条件にお

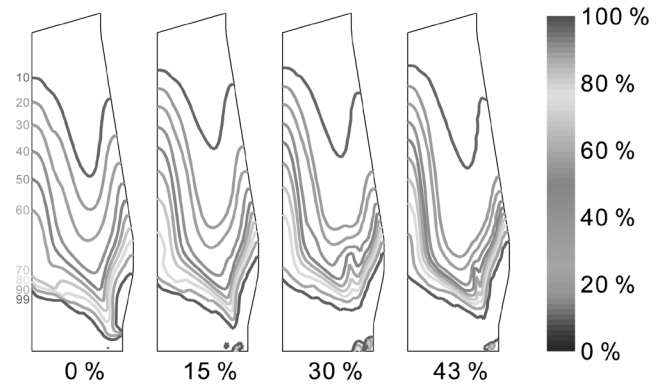


Fig. 4. Variation of distribution of overall reduction degree with hydrogen injection ratio (Contours from 10 to 90% with 10% interval and 99%).

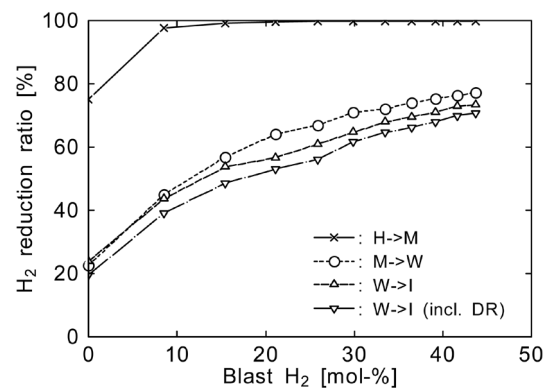


Fig. 5. Variation of hydrogen reduction ratio.

いても鉱石中の Fe_2O_3 の大部分は水素により還元されている。これはこの還元段階の反応速度パラメータ、即ち化学反応速度定数および粒内有効拡散係数⁸⁾はCO還元と比較して水素還元の方が約二桁大きな値となっているためであると考えられる。これ以外の二つの還元段階については、水素還元を割合は水素吹き込み量の増加と共に上昇し、衝風中の水素含有量約40%の条件においては水素による還元割合は70-80%に達している。

Fig.6に水素吹き込み量の増加に伴う炉頂ガス組成およびガス利用率の変化を示す。炉頂ガス中の窒素含有量は、Fig.1に示したように水素吹き込み量の増加と共に衝風中の窒素含有量が低下するため、減少する傾向にある。炉頂ガス中の含水素成分、即ち水素および水蒸気の含有量は水素吹き込み量の増加と共に増加するが、その炉頂ガス中の水素の含有割合の増加率は水蒸気のそれよりも大きくなっている。COと CO_2 に関しては、これらのガスの総量については水素吹き込み量の影響は僅かであるが、その内訳は水素吹き込み量の増加と共にCO濃度が減少し、 CO_2 濃度が増加する傾向にある。このような炉頂ガス組成の変化を受けてFig.6 (b) に示したガス利用率は、水素吹き込み量の増加に伴ってCO利用率が増加し、 H_2 利用率が減少する傾向となっている。これらのガス利用率の変化の傾向はFig.5に

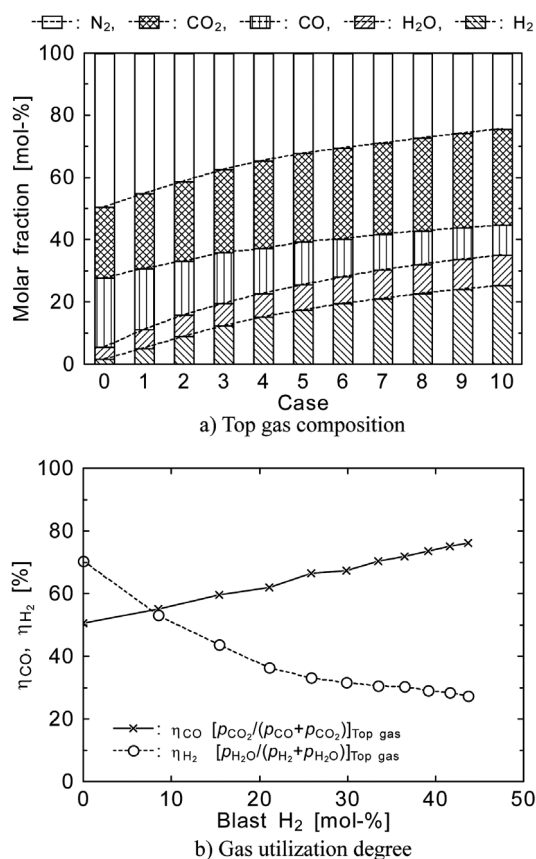


Fig. 6. Variations of top gas composition and gas utilization degree with hydrogen injection ratio.

示した還元における水素還元の割合の変化とは逆の傾向となっている。したがって、炉頂ガス組成の変化に関しては還元以外の反応が強く寄与しているものと推察される。高炉内でCOおよびH₂が関与する反応として、ソリューションロス反応 ($\text{CO}_2 + \text{C} \rightarrow 2\text{CO}$)、水性ガス反応 ($\text{H}_2\text{O} + \text{C} \rightarrow \text{CO} + \text{H}_2$) および水性ガスシフト反応 ($\text{CO}_2 + \text{H}_2 \rightleftharpoons \text{CO} + \text{H}_2\text{O}$) が挙げられる。これらの内、ソリューションロス反応および水性ガス反応は反応生成物としてCOを生成するため、反応が進行するとCOガス利用率を低下させる。水性ガスシフト反応は高炉内の局所的な温度およびガス組成条件と平衡組成との関係でいずれの方向にも進行する。水性ガスシフト反応が上記の反応式において左向きに進行すると水素および二酸化炭素を生成するため、水素ガス利用率を低下させ、COガス利用率を増加させる。各所におけるガス組成と平衡定数の比較は、約1000℃から融着帯までの領域において、水性ガスシフト反応が右向きに進行することを表している (COとH₂Oの生成)。この領域の低温側の温度は、水素の吹込み量の増加とともに減少する。つまり、基準の条件では、1100℃であるが、43%水素の場合は、900℃である。一方、この領域の高温側の温度は、ほとんど変化していない。この領域の上部の塊状帯においては、水性ガスシフト反応は、左側に進行し、CO₂とH₂を生成している。

Fig.7に水性ガスシフト反応によるガス転換の割合に対

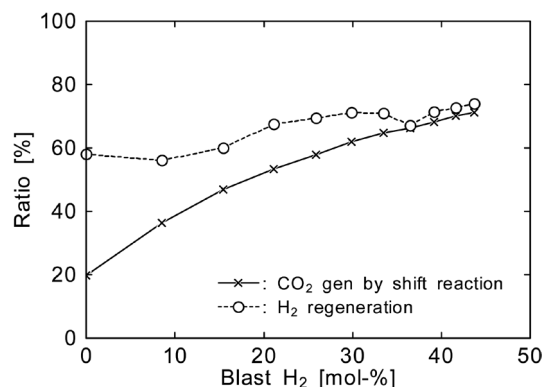


Fig. 7. Variations of gas conversion ratio with hydrogen injection ratio.

する水素吹込み量の影響を示す。図中に示したCO-CO₂およびH₂-H₂Oのガス転換率は、それぞれシフト反応および還元によるCO₂発生量に対するシフト反応により生成した正味のCO₂の割合、および酸化鉄の水素還元により生成したH₂O量に対するシフト反応による正味のH₂O消費量の割合として定義している。水性ガスシフト反応によるCOからCO₂へのガス転換の割合は、水素吹込み量の増加と共に増大し、最大の水素吹込み割合である水素比43%の条件では約70%に達している。即ち、水素多量吹込み条件下においては、炉頂から排出されるCO₂の大半がシフト反応により生成されていることが分かる。シフト反応によるH₂OからH₂へのガス再生については、水素吹込み量の増大に伴って徐々に増加する傾向があり、還元によって発生した水蒸気の半分以上がシフト反応によりH₂に再生されている。従って、本解析によって得られた水素多量吹込み時の炉頂ガス組成は、水性ガスシフト反応の影響を強く受けており、今後さらに定量的な検討のためには水性ガスシフト反応の反応速度について十分に検討する必要がある。

その他の反応は以下のような変化を示す。カーボンソリューション反応と直接還元の量は水素吹込み量の増加とともに減少する。前者の反応の減少は、融着帯上部の急激な温度分布によってもたらされる反応帯の減少によるもので、後者の反応は、水素による間接還元の速い速度によるものである。水素吹込み量に対するこれらの反応の減少率は、水素吹込み量が30%以上で小さくなる。水性ガス反応の量は、水素吹込み量の増加とともに、一旦増加した後減少に転じる。これらの結果は、吸熱反応の減少が還元反応の進行と装入物の昇温を支える一方で、水素吹込み量の増加とともに、温度が減少すると還元反応が抑制されることに関係していると思われる。

Fig.8に水素吹込み量に伴う還元材比の変化を示す。還元材比として単純に単位質量の銑鉄を製造するのに使用した水素の質量をコークス比に加算して比較することはできないが、還元に対しては物質1molのH₂が1molの酸素原子を酸化鉄から除去する点はCOと同じであることから、こ

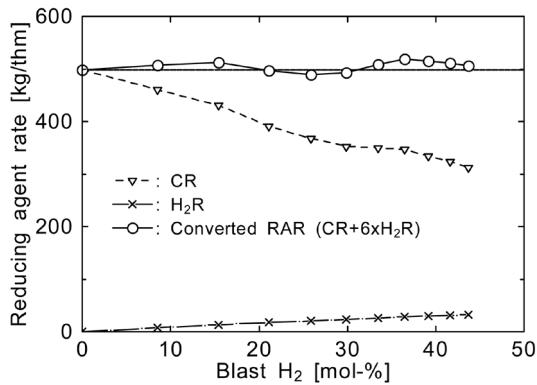


Fig. 8. Variation of reducing agent rates with hydrogen injection ratio.

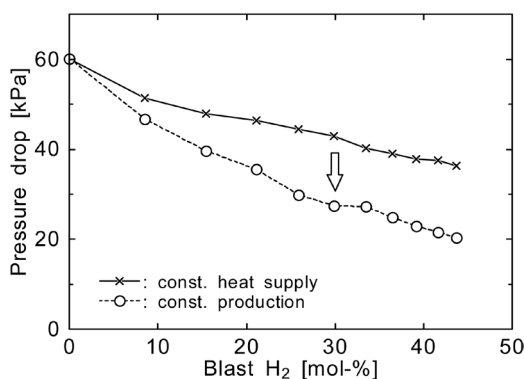


Fig. 9. Variation of pressure drop with hydrogen injection ratio.

ここでは吹き込み水素の質量に水素と炭素の分子量比である6を乗じてコークス比に加算したものを換算還元材比と定義した。この換算還元材比は水素吹き込み量によらずほぼ一定の値となっている。その一方で、コークス比は水素吹き込み量に対してほぼ線形に減少していることから、水素利用により高炉からのCO₂排出量が減少することが示唆された。

Fig.9に水素吹き込み量による高炉内の圧力損失の変化を示す。図中に示された圧力損失は、炉頂の装入物表面と炉内の羽口前の圧力差として定義されており、羽口や送風管における圧力損失は含んでいない。ここまでで示した一連の解析結果における圧力損失は×印のマークで点綴している。水素吹き込み量を増加させると、Fig.8示したようにコークス比が減少して、ガスの透過性の高いコークス層の炉内存在割合が低下するにもかかわらず圧力損失は低下する傾向にある。また解析の条件設定から、炉内を流通する還元ガスのモル流量は、水素吹き込み量に拘わらずほぼ一定である。よって、水素吹き込み量の増加に伴う炉内圧力損失減少の理由として、Fig.2に示したシャフト部の温度低下によるガス流速低下および炉内流通ガス中の水素含有量増加によるガス密度の低下が挙げられる。炉内圧力が融着帯部分で大きく損失し、また融着帯の位置や温度が条件によらず大きな変化がないことから、水素吹き込みによる圧力損失低減の主要因はガス密度の低下にあるものと考えられる。

ここまでで示した解析においては、Fig.3 (b) に示したように水素吹き込み量の増加に伴って出鉄量が増加している。従って、出鉄量を基準条件と同一に保つ操作を行えば、必要ガス流量が低下して、圧力損失の更なる低減が見込める。衝風の水素含有割合が変化しても出鉄量および出鉄温度を一定に保つように調整した条件下における圧力損失をFig.9中に丸印で点綴した。その操作条件下における圧力損失はボッシュガス量一定（熱供給量一定）の条件下と比較して圧力損失低減の度合いが大きく、ボッシュガス量一定の場合、水素吹き込み割合40%での低減幅が0.2atm程度であったのに対して、出鉄量一定の条件下では同じ水素吹き込み割合での圧力損失低減幅は約0.4atmとなっており、より大きな圧力損失の低減が見込めることが示された。

4. 結言

本研究では羽口への水素吹き込み操業下の高炉操業状況を速度論的数学モデルにより検討した。全ての吹き込み条件で、ボッシュガス量、理論燃焼温度は、送風量と酸素添加量を調整することで、水素吹き込みに関係無く一定に保たれた。その結果、羽口への水素多量吹き込み条件下において以下のことが明らかになった。

- 1) シャフト部の温度レベルが低下し、これが炉頂ガス温度の低下とシャフト部の還元反応の遅れを引き起こす。
- 2) コークス比は水素吹き込み量の増加に対してほぼ線形に減少する。但し、換算還元材比の変化は僅かであった。
- 3) 炉内を流通する還元ガス中の水素含有量増加によるガス密度の減少に起因して、低流通抵抗のコークス層の炉内割合の低下にも拘わらず炉内の圧力損失が低減する。
- 4) 炉内ガス組成に対する水性ガスシフト反応の影響が顕著になるため、より詳細な検討のためにはシフト反応の特性を十分に検討する必要がある。

謝辞

本研究の一部は、日本学術振興会 科学研究費補助金 基盤研究B (No.21310061) によるサポートによって行われたものである。

文 献

- 1) M.Chu, H.Nogami and J.Yagi: *ISIJ Int.*, **44**(2004), 801.
- 2) H.Nogami, S.Kitamura, J.Yagi and P.R.Austin: *ISIJ Int.*, **46**(2006), 1759.
- 3) J.A.Castro, H.Nogami and J.Yagi: *ISIJ Int.*, **42**(2002), 1203.
- 4) P.R.Austin, H.Nogami and J.Yagi: *ISIJ Int.*, **38**(1998), 697.
- 5) P.R.Austin, H.Nogami and J.Yagi: *ISIJ Int.*, **38**(1998), 239.
- 6) P.R.Austin, H.Nogami and J.Yagi: *ISIJ Int.*, **37**(1997), 748.
- 7) Y.Kashiwaya, D.Yamada and H.Nogami: *CAMP-ISIJ*, **22**(2009), 299, CD-ROM.
- 8) R.Takahashi, Y.Takahashi, J.Yagi and Y.Omori: *Ironmaking Conf. Proc.*, **43**(1984), 485.