

# 鉄鉱石焼結プロセスにおける事前処理技術

## Pretreatment Technology for Iron Ore Sintering

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)  
竹原 健太 TAKEHARA Kenta 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)

### 要旨

焼結プロセスでは、原料充填層の通気性を確保しながら燃焼反応を進行させるため、適正量の水分を添加しながら原料を均一混合・造粒し、適正な造粒粒度分布を実現する必要がある。JFE スチールでは、鉄鉱石資源の微粉化や品質変化に対応するために、鉄鉱石と水分の相互作用のメカニズムを検証し、鉄鉱石特有の気孔構造によって水分の浸透挙動が説明されることを明らかにした。さらに、水分を含む湿った鉄鉱石造粒物の性質を詳細に検討し、微粉鉄使用時に問題となる高水分の微粉凝集体の崩壊メカニズムを明らかにした。

### Abstract:

In sintering process, in order to proceed the combustion reaction while keeping the permeability of raw material packed bed, it is necessary to mix the raw materials uniformly and make granules by proper moisture contents. In order to cope with the reduction of iron ore size and quality change of resources, JFE Steel has verified the behavior of moisture infiltration into ore particles and developed a new moisture infiltration model taking account of pore size distribution and pore structure which is unique to each individual iron ore. This model enables us to estimate the amount of moisture that the ore particles can hold inside the particle. In addition, the mixing rate of wet aggregate particles was formulated, and the collapse mechanism of the aggregate of high moisture which becomes a problem in the usage of fine iron ores was clarified.

## 1. はじめに

近年、鉄鉱石の品位は徐々に変質しており、一部の鉄石では、脈石や微粉比率が徐々に増加している。焼結操業の安定化および高生産性の実現には、鉄石性状の把握とそれに対応する事前処理技術が必須である。焼結プロセスでは、原料充填層の通気を確保しながら、混合原料中の粉コークス燃焼により塊成化反応を進行させるため、原料充填層の構成粒子である造粒物の粒度管理が重要である。焼結原料の造粒現象は、ドラムミキサーにおける調湿・混合状態に支配される。ミキサー内部で添加された水分の一部は、鉄石粒子内に速やかに吸収され、吸収しきれない水分は粒子表面に残存し、粒子同士の付着に寄与する。水分の適正量は鉄鉱石の気孔構造、比表面積、濡れ性等に依存し、同一銘柄の鉄鉱石であっても、成分や粒度分布の違いにより、適正な水分量は変化する。また、平均粒径の小さい鉄鉱石は、比表面積が大きいため水分を保持しやすく、焼結用の高品位鉄鉱石は微粉が一般的であることから、高水分となり粗大な凝集体 (“だま”) を形成しやすい。平均粒径の小さい鉄石粒子が焼結機に多量に装入されると、通気の偏流や未焼成領域の発生を引き起こし生産性が低下する。

このような原料品位の変化に対して、適正な事前処理を行うためには、鉄鉱石と水分の相互作用や、湿潤凝集体の混合特性を把握する必要がある。従来、造粒時の添加水分に関する種々の検討事例<sup>1,2)</sup> は報告されているが、水分の移動メカニズムに着目した検討はほとんど行われていない。また、混合現象に関しては、離散要素法による混合挙動の解析例などが報告されているが<sup>3)</sup>、湿潤凝集体の物性と攪拌エネルギーの関係に着目した基礎検討はなされていない。

そこで、本稿では鉄石の気孔構造、および鉄物学的特性を考慮して粒子内の水分移動挙動を明らかにした<sup>4)</sup>。実験には、実機で使用される代表的な鉄石と組織別に選別した粒子を用いて浸透試験を行い、水分の移動挙動を検討した。混合挙動に関しては、ラボ試験で高速攪拌機により湿潤原料の混合挙動を評価し、水分や粒度分布の変化速度を定式化した<sup>5)</sup>。これより粒度分布変化のマトリクス解析により混合操作にともなう凝集体の崩壊度合いを指標化し、崩壊挙動に及ぼす攪拌力の関係を明らかにした。

## 2. 鉄石粒子内部への水分移動挙動

### 2.1 鉄鉱石の組織評価

原料には豪州産鉄石 (鉄石 A および鉄石 B)、およびブラジル産鉄石 (鉄石 C および鉄石 D) を用いた。図 1 に、水

2021 年 9 月 16 日受付

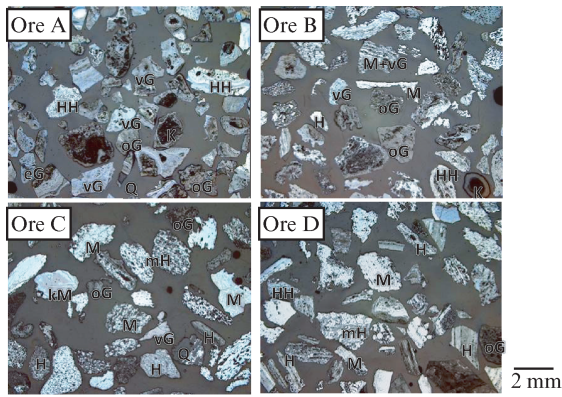


図1 鉄鉱石の断面写真 (粒径-2.0+1.0 mm)

Fig. 1 Typical cross sectional images of samples tested (particle size: -2.0+1.0 mm)

洗後の鉱石粒子断面 (-2.0+1.0 mm) の顕微鏡写真を示す。鉱石 A は、緻密質のゲーサイト組織を主体とするピソライト鉱石である。鉱石 B はマラマンバおよびブロックマン系の鉱石である。鉱石 C および鉱石 D は、緻密質ヘマタイト粒子で構成される。鉱物組織の影響を見るために鉱石分類群に従い<sup>6)</sup>、鉱石 A および鉱石 C の -4.75+2.8 mm 粒度の水洗後サンプルを、顕微鏡観察下で組織ごとに分別した。

## 2.2 浸透試験

本試験では、-4.75+2.8 mm に篩分けた粒子を十分に洗浄し、105℃で24時間乾燥させ、水洗・乾燥後の粒子約50gを深さ20mmの水浴中に浸漬させた。浸漬後の粒子を水浴から取り出して表面水分を除去し含水率を測定した。乾式自動密度計を用いてヘリウムガスによる定容積膨張法により粒子の骨格密度を、ピーズ容積置換法により粒子の見掛け密度を測定した。全気孔率は、これらの骨格密度と粒子見掛け密度より算出した。また、水銀ポロシメーターを用いて微細気孔分布を評価した。

## 2.3 鉄鉱石粒子内部への水の移動挙動

図2に、浸透時間 $1 \times 10^5$  sにおける各鉱石および鉱石組織毎の最終飽和水分と空隙率の関係を示す。鉱石 A, B は鉱石 C, D と比較して、同様の空隙率の割に最終飽和水分値が高くなった。鉱物組織については、ゲーサイト組織 (vG) の飽和含水率は、ヘマタイト組織 (mH, M, HH) よりも高い。鉱石 A, B はゲーサイト組織を多く含み、鉱石 C, D はヘマタイト組織を多く含むことから、含有する鉱物組織の吸水特性により、水分飽和特性に違いが生じるものと考えられる。

図3に水分飽和度 (気孔体積に対する吸収水分の体積比) の浸漬時間依存性を示す。浸漬時間の増加に伴い飽和度は急激に増加した。浸透 $1 \times 10^5$  sにおける飽和度は、鉱石 A, B, D では80%以上となったが、鉱石 C では浸透が極めて

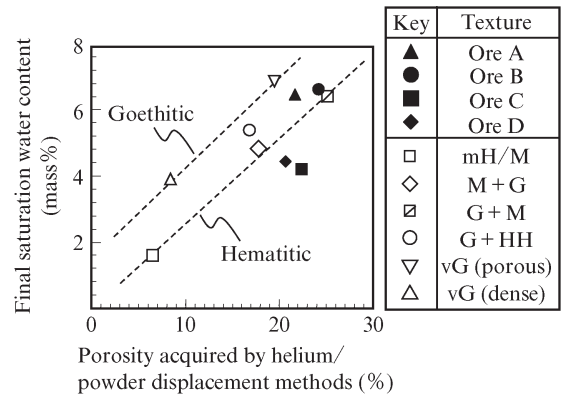


図2 最終飽和水分値と空隙率の関係

Fig. 2 Relationship between final saturation water contents and porosity

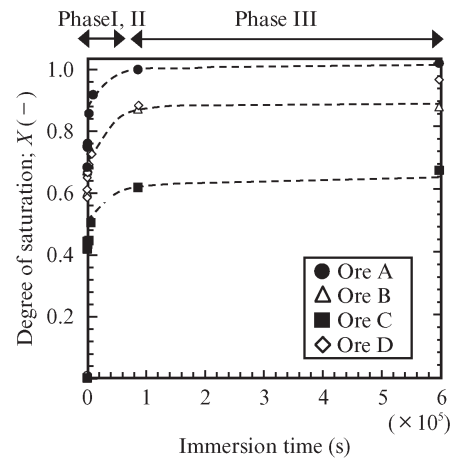


図3 水分飽和度の経時変化

Fig. 3 Change in degree of saturation with immersion time for various ores

遅く、飽和度は61%となった。

このような粒子内部への水分浸透挙動の違いを解析するために、鉄鉱石粒子を毛細管の集合体と仮定してモデルを構築した。毛細管下部が水に浸漬し、上部が開放された系を考えると、水が毛細管内を移動する速度は、上昇方向を正として、Lucas-Washburn (LW式) の式 (1), (2) で表される<sup>7,8)</sup>。

$$\frac{dV}{dt} = \frac{\pi \cdot \Delta P \cdot R^4}{8\eta L} \dots\dots\dots (1)$$

$$\Delta P = \frac{2\gamma \cos\theta}{R} - \rho_w g L \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 $V$ : 移動水量 ( $m^3$ ),  $L$ : 毛細管上昇 (m),  $R$ : 毛細管半径 (m),  $\Delta P$ : 毛細管上端と下端の圧力差 (Pa),  $\gamma$ : 表面張力 (N/m),  $\eta$ : 粘度 ( $Pa \cdot s$ ),  $\theta$ : 接触角 ( $^\circ$ ),  $\rho_w$ : 水の密度 ( $kg/m^3$ ),  $g$ : 重力加速度 ( $m/s^2$ ) である。

式 (2) では、毛細管力と重力の差 ( $\Delta P$ ) が浸透の駆動力

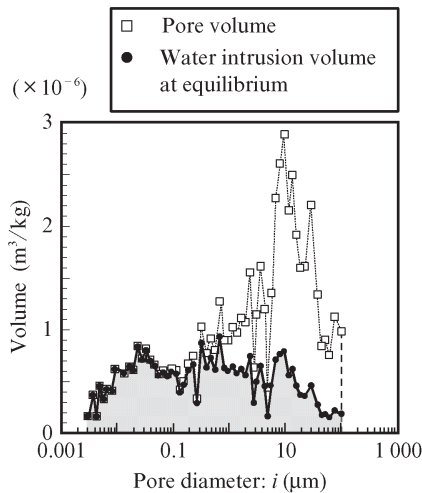


図4 気孔径分布と平衡浸透水分

Fig. 4 Comparison of pore volume intruded by mercury and water at equilibrium for Ore C

と定義されるが、式 (1) に示されるとおり、毛細管半径が大きいほど、浸透速度が大きいことを示している。図3の結果に関して、最も浸透の遅い鉱石 C の平均気孔径は  $3.5 \mu\text{m}$  であり、鉱石 A ( $37 \text{ nm}$ )、鉱石 B ( $224 \text{ nm}$ ) に比べて粗大な気孔径を有していることから、従来の LW 式では浸透速度の遅さを説明できない。これは、従来式では気孔の全てを開気孔として取り扱っており、実際の鉱石組織で見られるような閉気孔などの影響が考慮されていないためである。

そこで、気孔径の分布と閉気孔による内圧<sup>9)</sup>の影響を考慮するために、気孔を全て閉気孔と仮定し、式 (3) に修正した。

$$\Delta P_{iU} = \frac{2\gamma \cos\theta}{R_{iU}} + P_{air}$$

$$\Delta P_{ij} = \frac{2\gamma \cos\theta}{R_{ij}} - P_{air} \frac{V_{(p)ij}}{V_{(p)ij} - V_{ij}} + P_{air} \quad (j = S, B) \quad \dots (3)$$

ここで、 $\Delta P_{ij}$  は浸透面  $j$  の気孔径  $i$  における毛細管圧力差 (Pa)、 $P_{air}$  は大気圧 (Pa)、 $R_{ij}$  は浸透面  $j$  の気孔径  $i$  (m)、 $V_{(p)ij}$  は浸透面  $j$  の気孔径  $i$  の体積 ( $\text{m}^3$ )、 $V_{ij}$  は移動水量 ( $\text{m}^3$ ) である。

粒子上面への浸透に関しては、閉気孔内の空気が速やかに置換されて浸透すると仮定した。また粒子側面と下面への浸透に関しては、気孔内への水の浸透に対して内圧が抵抗力として働き、内圧が毛細管力を上回ると浸透が停止 (平衡) すると仮定した。本モデルによれば、微細気孔では毛細管力が大きいため空気内圧に打ち勝って浸透するが、粗大気孔では内圧に打ち勝つ十分な毛細管力を有しないため、低飽和度で浸透が平衡する。

図4に、鉱石 C の気孔径分布と気孔径毎の平衡時の浸透水分体積の計算値を示す。気孔径が  $0.1 \mu\text{m}$  以下の微細な気孔内には水分は概ね浸透するが、気孔径が  $1 \mu\text{m}$  以上の気孔については、途中で浸透が止まる。鉱石 C は、 $10 \mu\text{m}$  近傍

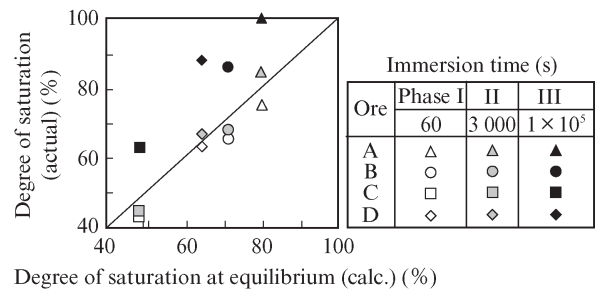


図5 浸透水分モデルと実測値の比較

Fig. 5 Comparison of saturation degree of calculation and experiment

の気孔径を多く有していることから、本モデルでは浸透せずに未飽和状態になりやすいと予測している。

図5に、本モデルを用いて水分飽和度の関係を再検証した結果を示す。鉱石 A~D において、計算と実績値に相関が見られ、浸漬約 1 時間後 (3000 s) の水分飽和度が平衡飽和度と同程度の値となった。浸透初期から最終的な飽和まで、水分飽和度の大小関係は変わっていないことから、鉱石の気孔径分布が短時間から長時間にわたる水分移動のダイナミクスを支配していることがわかる。

以上より、鉄鉱石粒子内部への浸透メカニズムをまとめると以下ようになる。

- (1) 浸漬初期 (~10 s) : 水分は全ての気孔から侵入し気孔内の内圧も急激に増加する。その結果、粗大気孔は低飽和度のまま浸透平衡状態に到達する。微細気孔では毛細管力が優勢のため、飽和度の増加は継続する。
- (2) 浸透中期 (~1 時間) : 微細気孔への水分移動は順次停滞し、閉塞空気の内圧と毛細管力がバランスし、気孔内は水で部分的に満たされる。本モデルで算出される平衡飽和度とほぼ等しい値となる。
- (3) 浸透後期 (1 時間~) : 浸透は緩慢に進行するが、浸透メカニズムは従来の LW 式には従わない。閉塞空気が徐々に水中に溶解・拡散しながら水と空気の置換が進行する。空気の溶解速度は水中の溶存空気濃度、内圧、温度に依存し、いずれの鉱石も浸透速度は同様の変化を示す。

### 3. 湿潤鉱石の混合メカニズム

#### 3.1 混合試験

2 種類のヘマタイト鉱石 E, F を用い、返鉱、副原料及び粉コークスを配合した Sinter Mix を用意した。微粉配合率の影響を検討するため、ベース (T1) に対して微粉配合率を高くした Sinter Mix (T2, T3) を用意した。調湿試料は、乾原料 60 kg を 5 等分し、平均水分値 5.2 mass% に対して、低水分から高水分となるように水分を添加して作製した。装置には高速攪拌機 (内径 750 mm, 内容積  $0.075 \text{ m}^3$ ) を用

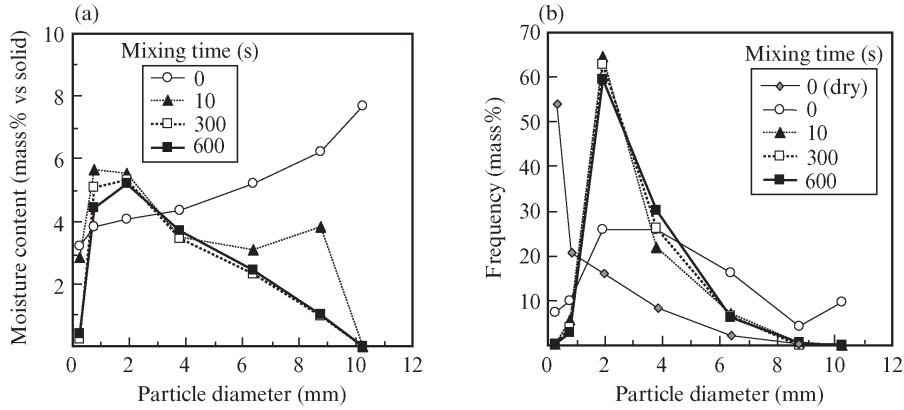


図6 混合過程における潤滑粉体の粒度毎水分 (a), 重量比率の変化 (b)

Fig. 6 Changes in (a) moisture content and (b) size distribution at various mixing time (Water content=5.2 mass% , Rotation speed=500 rpm)

い, 攪拌回転数 (0~1 000 rpm), 混合時間 (0~600 s) を変更して混合時間ごとにサンプルを採取し, 粒度分布および粒径毎の水分を測定した。

### 3.2 粉体および水分の混合移動挙動

図6に, 攪拌後試料の粒度分布および粒径毎の水分変化を示す。混合時間の増加に伴い粗大粒子の水分は著しく減少し, 細粒の水分は増加した。また, 混合時間の増加にともない粗大粒子が減少し細粒が増加した。これは, 混合前に存在した微粉凝集体が攪拌操作により崩壊し, 低粒度側にシフトしたことを示している。

このような, 攪拌にともなう粒度または水分分布の変化速度を議論するため, 混合前の分布と, 混合時間  $t$  における分布の乖離度合い  $\sigma$  (バラつき) を定義した。例えば, 粒度分布のバラツキについては, 式 (4) で表される。

$$\sigma(j)^2 = \frac{1}{N} \sum_{i=1}^N (C(j)_a - C(j)_f)^2 \dots\dots\dots (4)$$

$$= (C(j)_a - C(j)_f)^2$$

ここで,  $\sigma(j)$  は粒度  $j$  のバラつき (mass%),  $C(j)_a$  は粒度  $j$  の重量比率 (mass%),  $C(j)_f$  は粒度  $j$  の混合前の重量比率 (mass%),  $N$  はサンプリング回数である。

これを全粒度  $j$  に渡って積算し, 混合時間  $t$  におけるバラつき  $\sigma_t$  を定義した。 $\sigma_r$  をバラツキの基準値とし, 混合度  $M$  を式 (5) で定義した。

$$M = 1 - \frac{\sigma_t}{\sigma_r}$$

$$= \exp(-kt) \dots\dots\dots (5)$$

ここで,  $k$  は混合速度係数 (1/min) である。

図7に, 混合度の経時変化を示す。混合時間 50 s 程度で混合度が急激に減少し, 攪拌回転数が多いほど, 混合の進行速度が速くなる。

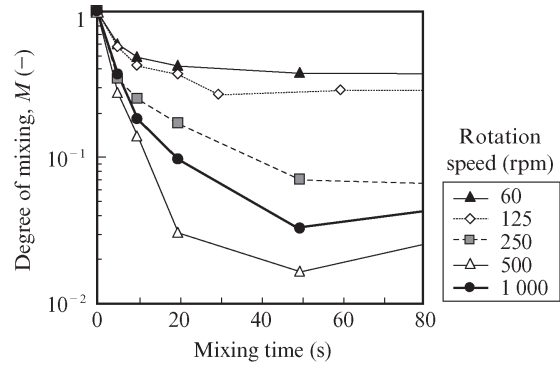


図7 混合度の攪拌回転数依存性

Fig. 7 Changes in degree of mixing at various rotation speed

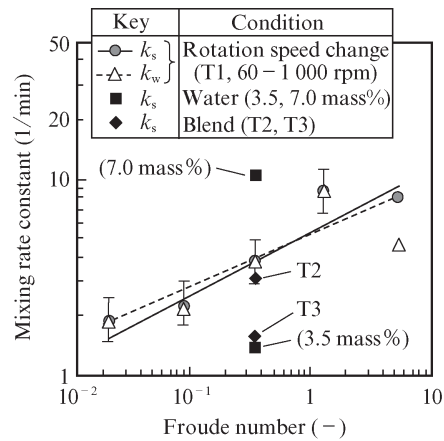


図8 混合速度係数のフルード数依存性

Fig. 8 Comparison of mixing rate constants and Froude number

図8に, 粉体 ( $k_s$ ) 及び水分 ( $k_w$ ) の混合速度係数と Froude 数の関係を示す。いずれの場合も, 混合速度係数は Froude 数のべき乗に比例して上昇し<sup>10)</sup>, 微粉と水分の均一化は同様の速度で進行することが分かる。微粉比率が増加 (T1→T3) すると, 水分と粒子の接触比率が減少するため混

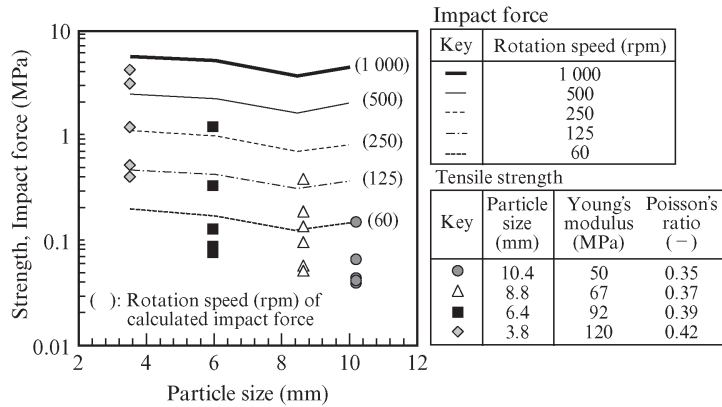


図9 湿潤粉体の凝集強度と攪拌衝撃力の関係

Fig. 9 Comparison of tensile strength of wet particles and calculated impact force by impeller

合速度係数が低下する。また、水分が増加(3.5→5.2→7.0 mass%)すると、水分と粒子の接触確率が上昇し、水分の分散速度が速まるため、混合速度係数が上昇する。

### 3.3 湿潤粉体の崩壊メカニズム

図9に、凝集体の引張強度及び攪拌衝撃力の計算結果を示す。凝集体の引張強度は圧壊強度試験機で測定した。攪拌衝撃力は、Hongoらのモデル<sup>11)</sup>より式(6),(7)で算出した。

$$P_{max} = -\frac{K}{\pi r^2} \left( \frac{5M}{8K} V_0^2 \right)^{3/5} \dots\dots\dots (6)$$

$$K = \frac{4\sqrt{r}}{3} \left( \frac{1-\nu_s^2}{E_s} + \frac{1-\nu_w^2}{E_w} \right)^{-1} \dots\dots\dots (7)$$

ここで、 $M$ は粒子重量(kg)、 $r$ は粒子半径(m)、 $V_0$ は衝突時相対速度(m/s)、 $\nu$ はポアソン比(-)、 $E$ はヤング率(Pa)、 $s$ は粒子、 $w$ は攪拌羽根である。

凝集粒子径の増加に伴い引張強度は低下し、細粒と粗粒の強度差は100倍近くになる。攪拌回転数の増加に伴い衝撃力は増加し、1000 rpmの衝撃力は凝集粒子全体の引張強度値を上回るが、回転数が60 rpmまで低下すると、衝撃力は粒径3.8 mmの引張強度値を下回った。

攪拌による粒度分布の変化をポピュレーションバランスモデル<sup>12)</sup>で解析し、着目する凝集粒子の崩壊度合い(崩壊度:  $S_{Dj}$ )を定義した。崩壊度が0.5を超えれば粒度が減少し細粒側にシフトしていることを示す。図10に、攪拌衝撃力と引張強度の比(強度比:  $P_{max}/S$ )と崩壊度の関係を示す。強度比と崩壊度には一定の相関が見られ、強度比が1~20の範囲で崩壊度は急激に上昇し、強度比が20以上となると崩壊が優勢となる。

以上より、湿潤鉄鉱石微粉の混合挙動に関し、

- (1) 高水分の微粉凝集体として粉体と水分が同時に分散移動し、混合速度係数は攪拌羽根のFroude数のべき

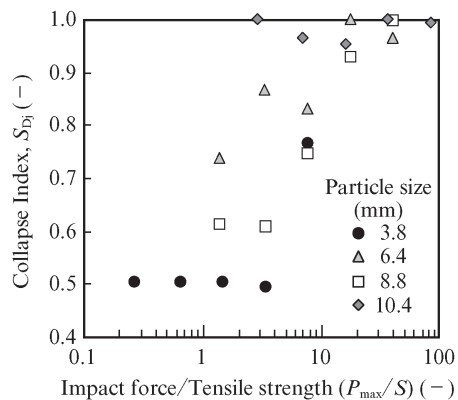


図10 湿潤粉体の崩壊度と引張強度/攪拌衝撃力の関係  
Fig. 10 Relationship between collapse index and ratio of impact force and tensile strength of wet particle

乗に比例して上昇する。

- (2) 凝集粒子は粒径ごとに異なる強度を有し、付与される攪拌衝撃力の大きさに応じて崩壊することを明らかにした。

## 4. おわりに

今後予想される鉄鉱石の劣質化・微粉化への対応および新たな鉄鉱石資源の戦力化には、適正な予備処理技術の確立が不可欠である。本検討では、鉱石性状の変化にともなう水分浸透メカニズムを明らかにし、評価すべき物性のポイントを明確化した。また、微粉鉱で構成される焼結原料の混合のメカニズムを明らかにし、微粉鉱の強度物性と、混合機の攪拌力の関係を定量評価した。このような基礎検討を通じて、従来活用が困難とされてきた鉄鉱石資源の活用および高品位微粉鉄鉱石の効率的な活用により、焼結プロセスでのエネルギー削減、高品質焼結鉄製造による高炉CO<sub>2</sub>削減に寄与することが期待される。

## 謝辞

鉱石中の水分移動挙動の基礎検討にあたり、貴重なご意見と多大なるサポートを頂いた CSIRO Mineral Resources の Liming Lu 博士、東北大学大学院環境科学研究科 葛西栄輝教授に厚く謝意を表します。

## 参考文献

- 1) Khosa, J.; Manuel, J. Predicting Granulating Behaviour of Iron Ores Based on Size Distribution and Composition. ISIJ International. 2007, vol. 47, no. 7, p. 965-972.
- 2) Matsumura, T.; Maki, T.; Amano, S.; Sakamoto, M.; Iwasaki, N. Effect of Moisture Absorption Behavior on Optimal Granulation Moisture Value of Sinter Raw Material. ISIJ International. 2009, vol. 49, no. 5, p. 618-624.
- 3) 加納純也, 葛西栄輝, 齋藤文良, 川口尊三. 離散要素法シミュレーションによる鉄鉱石造粒過程の解析. 鉄と鋼. 2006, vol. 92, no. 12, p. 742-747.
- 4) Higuchi, T.; Lu, L.; Kasai, E. Intra-Particle Water Migration Dynamics during Iron Ore Granulation Process. ISIJ International. 2017, vol. 57, no. 8, p. 1384-1393.
- 5) 樋口隆英, 竹原健太, 廣澤寿幸, 岩見友司, 山本哲也, 松野英寿, 大山伸幸. 鉄鉱石の造粒および崩壊過程に及ぼす機械的攪拌操作の影響. 鉄と鋼. 2017, vol. 103, no. 6, p. 262-271.
- 6) Clout, J. Upgrading processes in BIF-derived iron ore deposits: implications for ore genesis and downstream mineral processing. Trans. Inst. Min. Metall. B. 2003, vol. 112, B89-95.
- 7) Washburn, E. The dynamics of capillary flow. Physical Review. 1921, vol. 17, no. 3, p. 273-283.
- 8) Newman, S. Kinetics of Wetting of Surfaces by Polymers; Capillary Flow. Journal of Colloid Interface Science. 1968, vol. 26, p. 209-213.
- 9) Iveson, S.; Rutherford, K.; Biggs, S. Liquid penetration rate into submerged porous particles: theory, experimental validation and implications for iron ore granulation and sintering. Trans. Inst. Min. Metall., Sect. C. 2001, vol. 110, no. 3, C133-143.
- 10) 久保輝一郎, 水渡英二, 中川有三, 早川宗八郎, 粉体, 6th ed., 丸善, 1970, 932 p.
- 11) 本江哲行, 佐藤秀紀, 岩田佳雄, 小松崎俊彦, 本郷陽子. 球と平面からなる衝突系のモデル化と解析. 日本機械学会論文集 C編. 1999, vol. 65, no. 634, p. 2287-2293.
- 12) Sakamoto, N. Iron Ore Granulation Model Supposing the Granulation Probability Estimated from Both Properties of the Ores and Their Size Distributions. ISIJ International. 2002, vol. 42, no. 8, p. 834-843.



樋口 隆英



竹原 健太