

RÉPUBLIQUE FRANÇAISE

INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

PARIS

(11) N° de publication :
(A n'utiliser que pour les
commandes de reproduction).

2 467 241

A1

**DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION**

(21)

N° 80 22028

(54) Procédé d'utilisation d'un gaz contenant du méthane pour la réduction du minerai de fer.

(51) Classification internationale (Int. Cl. ³). C 21 B 13/02; B 01 J 8/08.

(22) Date de dépôt..... 15 octobre 1980.

(33) (32) (31) Priorité revendiquée : *EUA, 15 octobre 1979, n° 84 750.*

(41) Date de la mise à la disposition du
public de la demande..... B.O.P.I. — « Listes » n° 16 du 17-4-1981.

(71) Déposant : Société dite : HYLSA SA, résidant au Mexique.

(72) Invention de : Juan Federico Price-Falcon et Enrique Ramon Martinez-Vera.

(73) Titulaire : *Idem* (71)

(74) Mandataire : Cabinet Brot,
83, rue d'Amsterdam, 75008 Paris.

-1-

L'invention concerne la réduction gazeuse du minerai de fer dans un réacteur à couche mobile à cuve verticale pour la formation d'éponge de fer et plus particulièrement, un procédé utilisant, comme source de réducteur dans un tel
5 processus de réduction gazeuse, un gaz qui contient au maximum environ 30 % en volume de méthane, spécialement un gaz de cokerie.

Des systèmes typiques de réduction gazeuse comportant des réacteurs de réduction du minerai de fer à couche mo-
10 bile et à cuve verticale sont décrits dans les brevets US 3 765 872, 3 770 421, 3 779 741 et 3 816 102. Dans les systèmes de ce genre, la réduction du minerai est communément assurée par un gaz réducteur composé en grande partie de monoxyde de carbone et d'hydrogène et obtenu par reformage
15 catalytique d'un mélange de gaz naturel et de vapeur d'eau. Ces systèmes comprenant typiquement un réacteur à cuve verticale comportant une zone de réduction dans sa partie supérieure et une zone de refroidissement dans sa partie inférieure. Le minerai à réduire est amené au sommet du
20 réacteur et traverse celui-ci de haut en bas en passant d'abord par la zone de réduction où il est mis en contact avec du gaz réducteur chauffé venant de l'appareil de reformage, puis par une zone de refroidissement où il est refroidi par un agent de refroidissement gazeux avant d'être retiré
25 en bas du réacteur. On refroidit l'effluent gazeux venant de la zone de réduction pour en éliminer l'eau et dans la plupart des cas, on réchauffe la majeure partie de l'effluent gazeux refroidi et on le recycle à la zone de réduction. De façon similaire, il est courant de refroidir au moins
30 une partie du gaz de refroidissement retiré de la zone de refroidissement et de le recycler à la zone de refroidissement. A son extrémité inférieure, le réacteur est muni de moyens permettant de régler la sortie de l'éponge de fer refroidie, par exemple d'un tiroir rotatif d'évacuation,
35 d'un couloir vibrant, d'une courroie transporteuse etc.

On a récemment trouvé avantageux d'utiliser l'éponge de fer fabriquée dans un tel réacteur pour constituer une partie de l'alimentation d'un haut fourneau. En utilisant

-2-

l'éponge de fer pour constituer une partie de l'alimentation du haut fourneau, on peut augmenter la productivité de celui-ci et diminuer son besoin de coke. Ainsi, on peut réaliser des économies notables dans le fonctionnement des hauts four-
5 neaux.

Etant donné que les hauts fourneaux utilisent le coke à la fois comme combustible et comme réducteur et en quantités notables, ils sont communément situés près d'une batterie de fours à coke qui fabriquent à la fois du coke et, comme
10 sous-produit, un gaz de cokerie contenant des constituants réducteurs. Dans les cas où l'éponge de fer doit constituer une partie de l'alimentation du haut fourneau, il serait avantageux économiquement d'intégrer l'installation de fabrication d'éponge de fer, les hauts fourneaux et la co-
15 kerie, c'est-à-dire de placer l'appareil de fabrication d'éponge de fer près des hauts fourneaux. Cette juxtaposition physique de l'installation à éponge de fer et des hauts fourneaux assurerait plusieurs avantages. Ainsi, les manipulations de l'éponge de fer fabriquée seraient diminuées, ainsi que
20 la nécessité de refroidir ce produit. Il est connu qu'à des températures élevées, l'éponge de fer a tendance à se réoxyder lorsqu'elle est exposée à l'atmosphère. Par suite, dans les cas où l'éponge de fer doit être stockée un temps prolongé ou transportée à des distances considérables, un
25 refroidissement relativement complet de l'éponge de fer est un facteur important. Par contre, quand l'éponge de fer fabriquée doit être utilisée rapidement dans un four ou appareil similaire, la nécessité d'un refroidissement complet est éliminée.

30 Un autre avantage potentiel d'une telle installation intégrée est la possibilité d'utiliser le gaz de cokerie, qui est un sous-produit, comme source de constituants réducteurs pour le réacteur de réduction gazeuse de minerai de fer. Un problème qui se pose ici est dû au fait que le gaz de
35 cokerie brut n'est pas un réducteur très efficace du minerai de fer. Il est possible de traiter le gaz de cokerie pour augmenter son efficacité réductrice, par exemple par un processus de reformage catalytique mais les appareils de reformage catalytique existants nécessitent un investissement

-3-

considérable qui augmente notablement le prix de revient du gaz traité. En outre, le gaz de cokerie a une teneur en soufre relativement élevée qui a une action nuisible sur les catalyseurs habituellement employés dans les appareils connus de reformage catalytique. Par suite, si l'on veut reformer le gaz de cokerie dans un type connu d'appareil de reformage catalytique, il faut d'abord ramener à un très bas niveau la teneur en soufre du gaz. On a donc besoin d'un procédé perfectionné permettant d'améliorer l'efficacité réductrice du gaz de cokerie brut.

En conséquence, un but de l'invention est de fournir un procédé perfectionné de reformage d'un gaz de cokerie, en vue d'augmenter son efficacité en tant que réducteur du minerai de fer. Un autre but est de fournir un procédé de réduction du minerai de fer qui facilite l'intégration entre une installation de fabrication d'éponge de fer, un ou plusieurs hauts fourneaux et une batterie de fours à coke, de manière à réaliser un accroissement global de la productivité des hauts fourneaux et à améliorer l'économie de combustible. Un autre but est encore d'éliminer la nécessité d'un appareil séparé de reformage catalytique du gaz pour améliorer l'efficacité réductrice du gaz de cokerie. Plus largement, l'invention a pour but de fournir un procédé perfectionné utilisant, comme source de réducteur dans un processus de réduction du minerai de fer dans un réacteur à couche mobile à cuve verticale, un gaz contenant au maximum 30 % en volume de méthane. D'autres buts de l'invention sont évidents et d'autres encore seront indiqués ci-après.

On atteint de façon générale les buts de l'invention en utilisant un réacteur à couche mobile qui comporte, en plus de la zone de réduction de la zone de refroidissement qui sont usuelles, une zone intermédiaire de reformage de gaz à travers laquelle passe le minerai réduit avant d'entrer dans la zone de refroidissement. On préchauffe un mélange comprenant le gaz qui contient du méthane, par exemple un gaz de cokerie, et de la vapeur d'eau, on l'amène à cette zone de reformage, et le minerai réduit, c'est-à-dire l'éponge de fer, qui se trouve dans cette zone, catalyse efficacement la conversion de la teneur en méthane du gaz de cokerie en

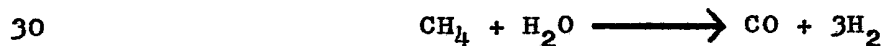
monoxyde de carbone et hydrogène. Le gaz de cokerie reformé monte alors dans la zone de réduction du réacteur.

On a trouvé que le gaz de cokerie d'alimentation n'a pas besoin d'être complètement désulfuré dans le présent procédé car le dépôt de soufre sur l'éponge de fer dans la zone de refroidissement n'a pas d'influence nuisible sur son activité et en tout cas, l'éponge de fer forme une masse catalyseur continuellement renouvelée. On peut facilement régler la quantité de soufre déposée sur l'éponge de fer au cours de l'étape de fabrication de l'acier qui vient ensuite. Ainsi, le coût de la désulfuration est diminué par le présent procédé.

Les buts et avantages de l'invention seront mieux compris grâce au dessin annexé qui représente schématiquement un système de réduction directe conçu pour servir à la mise en oeuvre d'un mode d'exécution préférentiel du procédé de l'invention.

Sur le dessin, la référence 10 désigne généralement un réacteur à couche mobile à cuve verticale comprenant une zone de réduction 12, une zone de reformage 14 et une zone de refroidissement 16. Le minerai de fer à réduire est introduit au sommet du réacteur 10 par l'entrée 18 et l'éponge de fer est retirée en bas du réacteur par la sortie 20.

Du gaz de cokerie entre dans le système par un tuyau 22 comportant un régulateur de débit 24 et se mélange à de la vapeur d'eau amenée par le tuyau 26 comportant un régulateur de débit 28. La vapeur d'eau est ajoutée en quantité suffisante pour réagir sur la teneur en méthane du gaz de cokerie et la convertir en monoxyde de carbone et hydrogène selon l'équation :



Avantageusement, on utilise un excès stoechiométrique de vapeur d'eau pour inhiber le dépôt indésirable de carbone dans le réacteur. Typiquement, le rapport molaire vapeur/méthane peut être compris entre 1:1 et 1,5:1.

Le mélange de gaz de cokerie et de vapeur d'eau afflue à un dispositif de chauffage 30 où il est chauffé par exemple à une température de 700 à 900°C, puis il arrive par le tuyau 32 au réacteur 10. Plus particulièrement, le réacteur 10 est

-5-

muni d'un déflecteur tronconique intérieur 34 qui, avec le côté du réacteur, forme un espacement annulaire 36 où arrive le mélange de gaz. En venant de l'espacement 36, le gaz contourne le bas du déflecteur 34 pour arriver dans la zone de reformage 14 où il entre en contact avec la couche descendante de minerai de fer qui, à ce niveau du réacteur, est en grande partie réduit à l'état d'éponge de fer. Comme indiqué plus haut, l'éponge de fer catalyse la réaction vapeur/méthane en donnant du monoxyde de carbone et de l'hydrogène qui sont des réducteurs efficaces du minerai de fer et le gaz reformé monte alors dans la zone de réduction 12 où il réduit le minerai de fer entrant.

Pour augmenter l'efficacité d'utilisation du gaz réducteur, on recycle une partie de celui-ci. Ainsi, du gaz quittant le haut de la couche de minerai de fer du réacteur 10 est retiré par le tuyau 38 et arrive à un refroidisseur 40 qu'il traverse et dans lequel il est refroidi de manière à en éliminer l'eau. Le gaz refroidi se rend alors, par le tuyau 42, la pompe 44 et le tuyau 46, au dispositif de chauffage 48 où il est réchauffé par exemple à une température de 750 à 1000°C. Le gaz chauffé venant du dispositif de chauffage arrive par le tuyau 50 à l'espacement annulaire 52 formé par le déflecteur intérieur 54 et la paroi latérale adjacente du réacteur, puis contourne le bas du déflecteur 54 pour revenir à la zone de réduction 12. Ainsi, le gaz réducteur s'écoule dans une boucle fermée comprenant le refroidisseur 40, la pompe 44, le réchauffeur 48 et la zone de réduction 12 du réacteur, du gaz réducteur frais étant amené de la zone de reformage 14 à la boucle.

Une certaine quantité du gaz réducteur recyclé est retirée de la boucle de gaz réducteur par le tuyau 56 contenant le régulateur de débit 57 et arrive à une boucle de refroidissement indiquée dans la partie inférieure du dessin. Ainsi, le gaz refroidi venant du tuyau 56 afflue au tuyau 58, puis au bas de la zone de refroidissement 16 du réacteur. Plus particulièrement, le gaz qui s'écoule par le tuyau 58 arrive à un espacement annulaire 60 formé par un déflecteur tronconique 62 et la partie adjacente des parois latérales du réacteur. Le gaz de refroidissement s'écoule alors par

-6-

dessous le déflecteur 62 et monte à travers la couche d'éponge de fer contenue dans la zone de refroidissement. Après avoir passé par la zone de refroidissement, le gaz arrive à un espacement annulaire 64 formé par le déflecteur tronconique 66 et la paroi latérale adjacente du réacteur, puis
5 sort du réacteur par le tuyau 68 pour arriver à un refroidisseur 70 qu'il traverse et dans lequel il est refroidi et déshydraté.

Du refroidisseur 70, le gaz refroidi se rend par des
10 tuyaux 72 et 74 à la pompe 76 d'où il est refoulé dans le tuyau 58 et ramené à la zone de refroidissement 16. Une partie du gaz de refroidissement recyclé est retirée de la boucle de refroidissement par le tuyau 78 contenant le régulateur de débit 80 et arrive à un point de stockage
15 approprié, ou à un point où il peut être utilisé comme combustible. Si on le désire, on peut retirer du gaz de cokerie du tuyau 22 par un tuyau 82 contenant un régulateur de débit 84 et l'amener au tuyau 58 pour amener du gaz frais à la boucle de refroidissement.

20 D'après la description ci-dessus, il est évident que l'invention fournit un moyen exceptionnellement efficace de préparer un gaz de cokerie reformé et de l'utiliser dans la réduction directe du minerai de fer pour la fabrication d'éponge de fer. Comme on l'a signalé plus haut, il est
25 connu que l'on peut avantageusement mélanger de l'éponge de fer à la couche de minerai de fer amenée à un haut fourneau pour améliorer la productivité de celui-ci. D'ailleurs, les hauts fourneaux sont communément placés en des endroits où l'on dispose d'un gaz de cokerie comme sous-produit. Bien que
30 ce gaz de cokerie puisse être et soit actuellement utilisé comme combustible, sa valeur dans le présent procédé est notablement accrue par le fait qu'on l'utilise comme l'une des matières premières d'une réaction chimique de réduction. En outre, en conduisant dans la zone de reformage 14 du
35 réacteur 10 la conversion catalytique du mélange de vapeur d'eau et de méthane, on élimine la nécessité d'un appareil séparé de reformage catalytique et on obtient une étape de reformage du gaz qui est exceptionnellement économique.

D'après la description ci-dessus, il est évident

-7-

que l'invention fournit un procédé et un appareil permettant d'atteindre les buts indiqués dans le préambule. Ainsi, on obtient un procédé exceptionnellement économique de reformage d'un gaz contenant du méthane en vue d'accroître son efficacité comme réducteur du minerai de fer. Dans les cas
5 où l'on utilise un gaz de cokerie, cette efficacité accrue est en partie due au fait que le gaz de cokerie obtenu comme sous-produit et qui pourrait autrement servir de combustible est utilisé comme une matière première chimique et en partie au fait que l'on effectue la réaction de reformage
10 au sein du réacteur de réduction et non dans un appareil séparé de reformage catalytique. Le présent procédé facilite aussi l'intégration d'une installation de fabrication d'éponge de fer à des installations existantes de hauts fourneaux et de fours à coke, réalisant un accroissement global
15 de productivité des hauts fourneaux et améliorant le bilan thermique.

Il est bien entendu que la description ci-dessus vise seulement à illustrer l'invention et que l'on peut apporter de nombreuses modifications au procédé et à l'appareil décrits sans sortir du cadre de l'invention. Par exemple, dans
20 les cas où le gaz que l'on fait circuler à travers la zone de refroidissement contient des réducteurs, il peut être désirable de faire fonctionner la zone de refroidissement de façon telle qu'une partie du gaz en circulation monte
25 dans la zone de réduction.

REVENDEICATIONS

1.- Procédé de réduction d'un minerai de fer en particules à l'état de particules d'éponge de fer dans un réacteur vertical 10 à couche mobile comportant dans sa partie supérieure une zone de réduction 12 dans laquelle on fait passer un gaz réducteur chaud à travers une partie de la couche pour réduire du minerai de fer de celle-ci à l'état d'éponge de fer, dans sa partie inférieure une zone de refroidissement 16 servant à refroidir l'éponge de fer et, entre les zones de réduction et de refroidissement, une zone intermédiaire 14, procédé caractérisé par le fait que l'on prépare un mélange de vapeur d'eau et d'un gaz contenant au maximum environ 30 % en volume de méthane, que l'on chauffe le mélange gazeux à une température de 700 à 900°C, que l'on fait passer le mélange gazeux chauffé à travers la zone intermédiaire 14, en contact avec la matière contenant du fer qui se trouve dans cette zone, pour reformer le gaz et accroître la proportion de constituants réducteurs qu'il contient et que l'on fait arriver le gaz reformé à la zone de réduction 12.

2.- Procédé selon la revendication 1, caractérisé par le fait que la zone de refroidissement 16 fait partie d'une boucle à travers laquelle on pompe un gaz de refroidissement, qu'on laisse échapper du gaz de refroidissement de cette boucle à un débit réglé et que l'on amène à cette boucle, comme gaz de complément, un gaz contenant au maximum environ 30 % en volume de méthane.

3.- Procédé selon la revendication 1, caractérisé par le fait que la zone de réduction 12 fait partie d'une boucle à travers laquelle on pompe le gaz réducteur, que l'on refroidit le gaz réducteur quittant la zone de réduction pour en éliminer de l'eau et qu'on le réchauffe ensuite avant sa rentrée dans la zone de réduction et que l'on transfère à la zone de refroidissement 16, en tant que gaz de complément, une partie du gaz réducteur refroidi en circulation qui vient de la boucle de gaz réducteur.

4.- Procédé selon l'une des revendications 1 et 2, carac-

-9-

térisé par le fait que le gaz contenant du méthane est un gaz de cokerie.

5 5.- Procédé selon la revendication 1, caractérisé par le fait que la zone de refroidissement 16 fait partie d'une
10 boucle à travers laquelle on pompe un gaz de refroidissement, qu'on laisse échapper du gaz de refroidissement de la boucle à un débit réglé et que l'on fournit à la boucle de refroidissement un gaz de complément comprenant à la fois du gaz de cokerie et du gaz réducteur refroidi provenant de la
15 zone de réduction.

6.- Procédé selon la revendication 1, caractérisé par le fait que la zone de refroidissement 16 fait partie d'une boucle à travers laquelle on pompe un gaz de refroidissement et que l'on amène du gaz de complément à la zone de refroidissement,
15 au débit voulu pour que du gaz monte de la zone de refroidissement à la zone intermédiaire.

7.- Procédé selon la revendication 1, caractérisé par le fait que le rapport vapeur d'eau/méthane dans le mélange gazeux est compris entre 1:1 et 1,5:1.

