

.....
 論 文

UDC 622.785.5 : 541.126

焼結プロセスにおける最高温度と Heat Wave の 移動速度に関する理論的解析*

堀尾 正毅**・大竹 敏幸***・鞭 巖****

Theoretical Analysis of Sintering Process Relevant to the Maximum Temperature and the Propagation Speed of Heat Wave

Masayuki HORIO, Toshiyuki OHTAKE, and Iwao MUCHI

Synopsis:

Two mathematical models are developed to get the useful information with regard to the rational determination of operating conditions of sintering process. The phenomena of drying, heat exchange between gas and solid particles, combustion of coke, decomposition of limestone and fusion of iron ore are considered in Model A. In Model B the fusion of iron ore and the decomposition of limestone are not involved.

By the use of these models, numerical simulations regarding the propagation of sintering zone are made. It has been found from the calculated results that since the heat wave reaches to the steady state within a short period, the basic characteristics of the heat waves may be represented by a few variables to be attained under a steady state; i. e., heat front speed, heat behind speed and the maximum temperature of sintering bed.

Furthermore, the approximate method is proposed to obtain the analytical solutions concerning three process variables mentioned above on the basis of the operating conditions. Solutions obtained by this method are in satisfactory agreement with the numerical results over the wide range of operating conditions. Since the necessary time for computation based on the approximate method are extremely shorter than the time for the case of the numerical methods, this method may be available for determining the operating conditions in actual process or for optimizing the sintering process.

(Received May 30, 1973)

1. 緒 言

焼結プロセスの理論解析は、数学的には双曲型偏微分方程式を解く問題に帰着するが、このような問題を解く場合には、通常、電子計算機を用いた数値解法が採用されている。しかし、GONZALEZ ら¹⁾が触媒再生操作の数値解法において示しているように、急激な熱の発生を伴いながら固気間で熱交換が行なわれるような系では、数値計算に必要な労力(とくに計算時間)の大きさに比べて解の精度は必ずしも良好ではない。このことは焼結プロセスの解析の場合にも当てはまるため、実用的な焼結プロセスの設計法としては、上述の数値解法よりもさらに簡便な解法を確立することが望ましい。

焼結操作における heat wave の挙動が焼結鉱の強度や被還元性に大きな影響を及ぼすことは、従来、広く認

められている。層内温度分布の基本的な特徴については、古く DAVIES ら²⁾によつて述べられているが、その後、さらに詳細な実測結果が多くの研究者によつて報告されている。すなわち、三本木ら³⁾⁴⁾は、コークス配合率、水分添加率、および、空気流量が粒子温度の時間的変化や heat front の進行速度に及ぼす効果を実測している。SIDROV ら⁵⁾は、空気の前熱が粒子温度の時間的変化や焼結鉱の品質に及ぼす効果について報告している。VOICE ら⁶⁾や浜田ら⁷⁾は、アルミナ粒子とコークスの充填層に着火して温度分布の推移を調べている。浜田ら⁷⁾は、通常

* 昭和48年4月本会講演大会にて発表
昭和48年5月30日受付

** 名古屋大学

*** 名古屋大学大学院(現在:極東貿易(株))

**** 名古屋大学 工博

の焼結原料の中におけるコークス、鉄鉱石、および石灰石粒子の温度変化を測定している。

heat wave の挙動について解析解を求める試みは、約 10 年前に Woods ら⁸⁾ や Beveridge⁹⁾ によつて行なわれている。しかし、これらの方法は総括収支だけに依存していたため、操作条件だけから解を決定することに成功しなかつた。なお、最近、Block¹⁰⁾ は粒子温度とガス温度を等しいとみなして解析解を提出しているが、この解は定積分を含んでいるため、実際には数値積分を避けることができない。解媒再生操作の場合については、Johnson ら¹¹⁾ による解析解が提出されているが、燃焼反応が粒内拡散律速の条件で進行するものと仮定し、速度定数を一定とみなして解を誘導しているため、焼結プロセスには適用できない。

なお、数学的モデルを展開して、操業諸因子が層内プロセス変数の挙動に及ぼす効果について数値解析を行なつた研究^{12)~14)} が発表されたが、塚本・樋口ら¹⁵⁾ は、この数学的モデルに石灰石の分解反応速度式と鉄鉱石の融解・凝固過程を表わす式を導入し、これらの因子が heat wave の進行に及ぼす効果について検討している。これら数学的モデルによる解析結果は、従来の実測から得られた多くの知見を理論的に説明するのに有用である。

焼結プロセスの実用的な設計に有用な簡便な解法を求めるためには、単に総括的な熱および物質収支だけでなく、反応や熱交換の速度過程についても考慮する必要があること、さらに、反応速度定数の温度変化も考慮する必要があることが推察される。また、従来の研究から焼結帯の熱的な特性は、基本的には、heat front の進行速度、heat behind の進行速度、および、粒子の最高温度の 3 種類のプロセス変数によつて表現できることが推察される。本研究では、数値計算によるシミュレーション (名古屋大学大型計算機 FACOM 230-60 を使用) から得られた heat wave に関する知見に基づいて、反応や熱交換の速度過程、および反応速度定数の温度変化を考慮した解析的な近似解法を提出する。この解法によれば、操作条件だけから、上記の 3 種類のプロセス変数を手軽に推算することが可能である。

2. 数 値 解 法

2.1 焼結プロセスの基礎式

これまでに報告されている数学的モデルでは、固気間の熱交換とコークスの燃焼反応、および、粒子の乾燥過程を考慮したもの^{12)~14)16)}、さらに石灰石の分解反応と融解・凝固の効果を加味したもの¹⁵⁾、コークス、鉄鉱石、および石灰石のそれぞれについて熱収支を行なつたもの⁷⁾ などがある。

の⁷⁾ などがある。

ここでは、従来のモデルに考慮されていた (i) コークスの燃焼反応、(ii) 石灰石の分解反応、(iii) 鉄鉱石の融解・凝固過程、(iv) 粒子の乾燥過程、(v) 鉄鉱石、コークス、石灰石の各粒子とガスとの間の熱交換のほかに、さらに、(vi) 鉄鉱石、コークス、石灰石の各粒子間の熱交換、(vii) 鉄鉱石の融解部分と固体状態の部分との間の熱交換、(viii) 石灰石の未分解部分と分解を終えた部分との間の熱交換を考慮して基礎式を誘導する。実際の焼結帯のなかでは、上に列挙した過程のほかに、鉄鉱石の還元や、ソリューション・ロス、水性ガス変換反応なども起こることが報告されているが、ここではこれら反応による熱的影響は小さいものとみなして無視する。

粒子側の基礎式は (1)~(7) 式のように表わされる。ただし、 A_{ij} 、 A'_{ij} 、 A''_{ij} は i 種の粒子と j 種の粒子との間の熱交換速度に関する係数である。このうち、 A'_{io} は i 種の粒子と、鉄鉱石の融解または凝固中の部分との間の熱交換速度を、また、 A''_{io} は i 種の粒子と未分解の石灰石との熱交換速度に関するものである。

(2)、(3) 式中の U_f および U_l は (8)、(9) 式で定義されるパラメータである。また、 R_c 、 R_l 、 R_f 、 R_d はそれぞれ、コークスの燃焼速度、石灰石の分解反応速度、融解・凝固速度、および、乾燥速度を示す。

$$\rho_s(1-\epsilon)c_s\gamma_e(\partial t/\partial\theta) = h_p a_c(T-t_c) + A_{oc}(t_o-t_c) + A_{lc}(t_l-t_c) - A'_{co}(t_c-t_{m1}) - A''_{cl}(t_c-t_{dec}) - \Delta H_c R_c \dots \dots \dots (1)$$

$$\rho_s(1-\epsilon)c_o\gamma_o(1-U_f)(\partial t_o/\partial\theta) = h_p a_o(1-U_f)(T-t_o) - A'_{oo}(t_o-t_{m1}) + A_{oc}(t_c-t_o) + A_{ol}(t_l-t_o) + \rho_s(1-\epsilon)c'_o\gamma_o(t_o-t_{m1})(\partial U_f/\partial\theta) \dots \dots \dots (2)$$

$$\rho_s(1-\epsilon)c_l\gamma_l(1-U_l)(\partial t_l/\partial\theta) = h_p a_l(1-U_l)(T-t_l) - A''_{ll}(t_l-t_{dec}) + A_{cl}(t_c-t_l) + A_{ol}(t_o-t_l) + \rho_s(1-\epsilon)c'_s\gamma_l(t_l-t_{dec})(\partial U_l/\partial\theta) \dots \dots \dots (3)$$

$$\partial r'/\partial\theta = -R_c/4\pi\rho_c n_c X_c r'^2 \dots \dots \dots (4)$$

$$\partial f_f/\partial\theta = R_f/(\pi/6)d_o^3\rho_o n_o \dots \dots \dots (5)$$

$$\partial f_l/\partial\theta = R_l/(\pi/6)d_l^3\rho_l n_l X_l \dots \dots \dots (6)$$

$$\partial W/\partial\theta = -R_d/\rho_b \dots \dots \dots (7)$$

$$U_f = \begin{cases} 1-f_f & (t_o \geq t_{m1}, \text{かつ}, T > t_o, \text{かつ}, f_f < 1 \text{ のとき}) \\ f_f & (t_o \leq t_{m1}, \text{かつ}, T < t_o, \text{かつ}, f_f > 0 \text{ のとき}) \\ 0 & (\text{上記以外の場合}) \end{cases} \dots \dots \dots (8)$$

$$U_l = \begin{cases} 1-f_l & (t_l \geq t_{dec}, \text{かつ}, T > t_l, \text{かつ}, f_l < 1 \text{ のとき}) \\ 0 & (\text{上記以外の場合}) \end{cases} \dots \dots \dots (9)$$

ガス側については、(10), (11)式が書ける.

$$Gc_g \partial T / \partial z = h_p a (T - \bar{t}) \dots \dots \dots (10)$$

$$G \partial x_{O_2} / \partial z = (M_g / M_C) R_c \dots \dots \dots (11)$$

ただし、(10)式中の \bar{t} は容積平均の粒子温度で、(12)式で定義される.

$$\bar{t} = \{U_f t_{m1} + (1 - U_f) t_o\} v_o + t_c v_c + \{U_l t_{dec} + (1 - U_l) t_l\} v_l \dots \dots \dots (12)$$

コークス粒子に関する(1)式の右辺第1項は、コークス粒子とガス間の伝熱速度を示している. 第2, 第3項は、それぞれ、コークス粒子と鉄鉱石粒子、および、コークス粒子と石灰石粒子との間の伝熱速度を示す項である. 鉄鉱石粒子は、融点に達してからは、各粒子のうちの U_f の部分は未融解のため融解温度に保持され、残りの $(1 - U_f)$ の部分はすでに融解が終わっているためさらに加熱されて温度上昇していく. 冷却帯においては、融解部分が凝固点*に達すると、 U_f の部分は未凝固のため凝固温度に保持され、残りの固体状態の部分 $(1 - U_f)$ はさらに冷却されていく. いずれの場合にも、周囲のガスや粒子との間の熱交換によつて連続的な温度変化を行なうのは、1個の粒子のうちの $(1 - U_f)$ の部分である. したがつて、 U_f の定義は、(8)式に示したように、融解が進行するときと凝固が進行するときとで区別される. (2)式の左辺、および、右辺第1項に $(1 - U_f)$ が乗ぜられているのはこのためである. さらに、(2)式の右辺第2項は鉄鉱石の凝固部分と未凝固部分との間の伝熱速度を示す項である. 石灰石についても、同様な考え方で(3)式を導出した.

(4)式中のコークスの燃焼速度 R_c は、表面だけで反応が起こると仮定すれば(13)式で示される.

$$R_c = 4\pi n_c r'^2 k_c p_{O_2} / Rt \dots \dots \dots (13)$$

また、融解・凝固、および、石灰石の分解反応が伝熱律速で進行し、乾燥がすべて恒率期間で行なわれるものとする(14)~(16)式が書ける.

$$R_f = \{h_p a_o U_f (T - t_{m1}) + A'_{oo} (t_o - t_{m1}) + A'_{oc} (t_c - t_{m1}) + A'_{ol} (t_l - t_{m1})\} / \Delta H_f \dots \dots (14)$$

$$R_l = \{h_p a_l U_l (T - t_{dec}) + A'_{ll} (t_l - t_{dec}) + A'_{el} (t_c - t_{dec}) + A'_{ol} (t_o - t_{dec})\} / \Delta H_l \dots (15)$$

$$R_d = h_p a (T - \bar{t}) U_d / \Delta H_d \dots \dots \dots (16)$$

ただし、(16)式中の U_d は、(17)式のように、乾燥が進行する条件の下では1、それ以外のときは0となるように定める.

$$U_d = \begin{cases} 1 & (T > \bar{t}, \text{かつ}, W > 0 \text{ のとき}) \\ 0 & (\text{上記以外の場合}) \end{cases} \dots \dots \dots (17)$$

* ここでは、融解温度と凝固温度は等しいものとする.

2.2 モデルA

2.1 で展開した基礎式には、推算法がまだ不明確なパラメータ A_{ij} , A'_{ij} , A''_{ij} が含まれているほか、モデル自体がやや複雑である. そこで、次のような仮定をして基礎式を簡単化し、これをモデルAと呼ぶことにする.

i) $A'_{ij} = A''_{ij} = 0,$

ii) $t_c = t_o = t_l = t$

ii) の仮定は従来の多くのモデルと同じである. また、焼結過程においては、ガスが熱媒体として大きな役割を果たすので、i) の仮定も近似的に許されるものと考えられる. 考えている温度範囲においてガスの比熱の温度変化は小さいので一定と見なす. 係数を無次元化すると、モデルAの基礎式は次の(18)~(24)式で示される.

$$\partial t / \partial \tau = \frac{N(T-t)(1-U_f v_o - U_l v_l) + 3\Delta T_c K r^2 x}{(c'_s / c'_{s1}) \{ - \{ df_f / d\tau | y_o(t-t_{m1}) + (df_l / d\tau) y_l(t-t_{dec}) \} \}} \dots \dots \dots (18)*$$

$$\partial r / \partial \tau = -Kx \dots \dots \dots (19)$$

$$\partial f_f / \partial \tau = N v_o U_f (T - t_{m1}) / \Delta T_f \dots \dots \dots (20)$$

$$\partial f_l / \partial \tau = N v_l U_l (T - t_{dec}) / \Delta T_l \dots \dots \dots (21)$$

$$\partial W / \partial \tau = -N U_d (T - t) / \Delta T_d \dots \dots \dots (22)$$

$$\partial T / \partial \zeta = N \{ (T - t) + v_o U_f (t - t_{m1}) + v_l U_l (t - t_{dec}) \} \dots \dots \dots (23)$$

$$\partial x / \partial \zeta = 3\gamma K r^2 x \dots \dots \dots (24)$$

(18)式中の c_s , c'_s はそれぞれ温度における粒子の真比熱および平均比熱を、また t'_{s1} は基準温度 t_1 における c'_s を意味している. さらに、(14), (15)式中の a_o , a_l は、それぞれ鉄鉱石と石灰石粒子の比表面積で、層の比表面積 a と上記の各粒子の容積分率 v_i を用いて(25)式のように表わされるものとした.

$$a_i = a v_i \quad (i = o, l) \dots \dots \dots (25)$$

(18)~(24)式中の独立変数 (τ, ζ) , 無次元のプロセス変数 (コークス半径, 含水率, および、酸素濃度), 無次元の係数 (N, K, γ) , および、温度の次元をもつ定数 $(\Delta T_c, \Delta T_f, \Delta T_l, \Delta T_d)$ の定義を、それぞれ、(26)~(29)式に示す.

$$\tau = \theta / \bar{\theta}, \quad \zeta = z / L \dots \dots \dots (26)$$

$$r = r' / (d_c / 2), \quad w = W / W^o, \quad x = x_{O_2} / x_{O_2,0} \dots \dots (27)$$

$$\left. \begin{aligned} N &= h_p a L / c_g G, \\ K(t) &= \{ \bar{\theta} x_{O_2,0} p / Rt (d_c / 2) \rho_c X_C \} k_c(t), \\ \gamma &= (\rho_b \gamma_c X_C L / G \bar{\theta} x_{O_2,0}) \cdot (M_g / M_C) \end{aligned} \right\} \dots (28)$$

$$\left. \begin{aligned} \Delta T_c &= (-\Delta H_c) \gamma_c X_C / c'_{s1}, \quad \Delta T_d = (\Delta H_d) W^o / c'_{s1}, \\ \Delta T_f &= (\Delta H_f) \gamma_o / c'_{s1}, \quad \Delta T_l = (\Delta H_l) \gamma_l X_l / c'_{s1} \end{aligned} \right\}$$

** ただし、簡単化のため、 $c_c \gamma_c + (1 - U_f) c_o \gamma_o + (1 - U_l) c_l \gamma_l = c_s (1 - \gamma_o U_f - \gamma_l U_l)$ を仮定した.

.....(29)

ただし、(27)式中の $\bar{\theta}$ は、層内を通過したガスの持つ熱容量の積算値が高さ L の粒子層の持つ熱容量に等しくなるのに要する時間で、(30)式で定義される。

$$\bar{\theta} = c'_{s1} \rho_b L / c_g G \dots\dots\dots (30)$$

2.3 モデル B (石灰石の分解反応および鉄鉱石の融解・凝固のないとき)

つぎに、焼結プロセスにおける heat wave の挙動に関する基礎的な知見を得るために、モデル A をさらに単純化して、石灰石の分解反応と鉄鉱石の融解・凝固が起こらない場合の基礎式を展開し、これをモデル B と呼ぶことにする。このような系は、すでに理論的にも取り扱われ、また、VOICE ら⁶⁾や浜田ら⁷⁾によつて実験されてきた系であつて、実際の焼結プロセスにかなり類似した挙動を示すことが知られている。この場合に対応する基礎式を得るには、モデル A の (18)~(24) 式において、 U_f と U_l が常に 0 であるとすればよい。したがつて、モデル B の基礎式は次の 5 個の式となる。

$$\partial t / \partial \tau = [N(T-t) + \Delta T_c \cdot Kr^2 x] / (c_s / c'_{s1}) \dots\dots (31)$$

$$\partial r / \partial \tau = -Kx \dots\dots\dots (19)$$

$$\partial w / \partial \tau = -N(T-t) U_d / \Delta T_d \dots\dots\dots (20)$$

$$\partial T / \partial \zeta = N(T-t) \dots\dots\dots (32)$$

$$\partial x / \partial \zeta = 3\gamma Kr^2 x \dots\dots\dots (24)$$

2.4 数値計算法

モデル A およびモデル B の数値解を求める際には、できるだけ短い計算時間で、できるだけ精度のよい解を得ることが望ましい。焼結プロセスにおいては、粒子の乾燥が終了すると直ちに粒子温度が急上昇するため、ガスの流れ方向についてのきざみの内部で粒子側プロセス変数の分布を直線近似してガス側の方程式 ((23), (24), (32) 式) を解析的に積分し、通常用いられている線形一階差分方程式よりも精度のよい非線形の差分方程式 ((34), (35) 式) を導びいておく。ここでは、モデル A よりも簡単なモデル B についてこの方法を示すが、モデル A の場合にも同様の方法が採用できる。

Fig. 1 に示すように、 τ 方向 (パレットの進行方向) の格子番号を j で、 $-\zeta$ 方向 (ガスの流れ方向) の格子番号を k で表わすとき、区間 $k \sim (k+1)$ の間で粒子温度を直線近似すると (33) 式が書ける。

$$t_j(\zeta) = t_{j,k} + (\zeta_k - \zeta) (t_{j,k+1} - t_{j,k}) / \Delta \zeta \dots\dots\dots (33)$$

(33) 式を (32) 式に代入して得られる方程式は T についての 1 階線形常微分方程式となるので容易に積分できる。 $\zeta = \zeta_k \sim \zeta_{k+1}$ の区間で定積分を行なうと、ガス温度に関する差分方程式として (34) 式が得られる。

$$T_{j,k+1} = (T_{j,k} - t_{j,k}) \cdot \exp(-N \cdot \Delta \zeta) + t_{j,k+1}$$

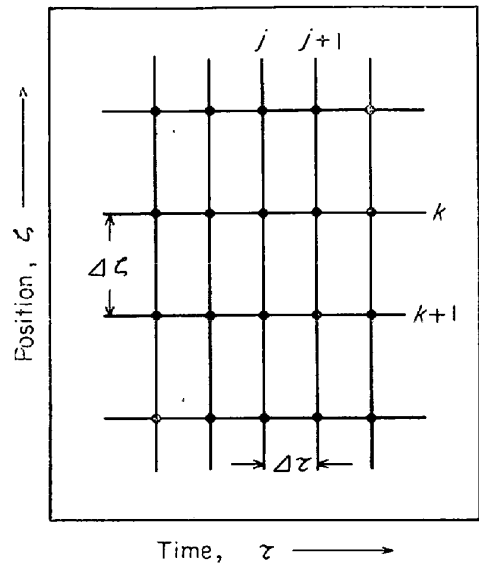


Fig. 1. Illustration of the computational grids.

$$- \{1 - \exp(-N \cdot \Delta \zeta)\} (t_{j,k+1} - t_{j,k}) / N \cdot \Delta \zeta \dots\dots\dots (34)$$

同様に、(24) 式は、 Kr^2 を区間 $k \sim (k+1)$ の間で直線で近似すると、(35) 式の差分方程式に書きかえられる。

$$x_{j,k+1} = x_{j,k} \cdot \exp[-(3\gamma \cdot \Delta \zeta / 2) \cdot (K_{j,k+1} r^2_{j,k+1} + K_{j,k} r^2_{j,k})] \dots\dots\dots (35)$$

τ 方向については、予測値を用いないかぎり上述のような近似的方法を適用することができないため、1 階差分方程式によることにする。

さて、焼結プロセスにおいては、heat wave の領域を除くと、他の領域でのプロセス変数はほとんど変化しないので、格子点の数が τ 方向に多数ある場合 (格子点の総数 k_t 個) でも、そのすべての格子点について数値計算を行なう必要はない。すなわち、格子点の番号が $1 \sim k_1$ の区間で $t_{j,k} < (T_0 + \delta)$, ($0 < \delta \ll 1$)、また、 $k_2 \sim k_t$ の区間で $T_{j,k} < (t^0 + \delta)$ が成立しているものとするれば、数値計算は $k_1 \sim k_2$ の区間についてだけ行なえばよいから、層の全格子点について計算する場合と比較すると計算時間の大幅な短縮が可能である。以下の計算では $\delta = 0.001^\circ\text{C}$ を採用した。

Table 1 のデータ、および、推算式を用いた計算例を以下に示す。Table 2 は、 ζ 方向のきざみ幅 $\Delta \zeta$ と τ 方向のきざみ幅 $\Delta \tau$ の値が結果と計算時間に及ぼす効果を、モデル B の場合について示したものである。(なお、モデル A の場合には、モデル B の場合の倍以上の計算時間が必要である。) Table 2 において、 t_p は後述する定常最高温度である。きざみ幅を細かくするにつれ

Table 1. Normal operating condition.

| | | |
|---|-------------------|----------------------------------|
| bed height | $L=30$ | (cm) |
| average diameter of solid particles | $d_p=0.3$ | (cm) |
| initial diameter of coke | $d_c=0.3$ | (cm) |
| initial coke content | $\gamma_c=0.0248$ | (-) |
| initial water content | $W^0=0.065$ | (g/g (solid)) |
| mass velocity of air | $G=0.0862$ | (g/cm ² (bed) · sec) |
| initial solid temperature | $t^0=300$ | (°K) |
| ignition conditions: | | |
| τ (-) | T_0 (°K) | x_0 (-) |
| 0~0.09 | 1 300 | 0.5 |
| 0.09~0.18 | 1 000 | 0.5 |
| 0.18~ | 300 | 1.0 |
| physical properties: | | |
| $c_g=0.2936$ | | (cal/g) |
| $c_s=0.1606+0.9221 \times 10^{-4}t-2570/t^2$ | | (cal/g) |
| $h_p=(k_g/\epsilon d_p)(2.0+0.75Pr^{1/3}Re_p^{1/2})^{22}$ | | (cal/cm ² · sec · °C) |
| $k_c=1/[1/k_f+(M_C/Rt)k_c']$ | | (cm/sec) |
| $k_f=(D_{O_2}/\epsilon d_p)(2.0+0.75Sc^{1/3}Re_p^{1/2})^{22}$ | | (cm/sec) |
| $k_c'=9.55 \times 10^6 \cdot \exp(-44\,000/Rt)\sqrt{t}^{21}$ | | (g/cm ² · sec · atm) |

Table 2. Effects of step sizes, $\Delta\zeta$, $\Delta\tau$, on calculated results.

| step sizes | | results | |
|-------------------|------------------|------------|-------------------------|
| $\Delta\zeta$ (-) | $\Delta\tau$ (-) | t_p (°K) | computation time ratio* |
| 1/1 000 | 1/1 000 | 1 869 | 0.742 |
| 1/500 | 1/5 000 | 1 820 | 4.580 |
| 1/500 | 1/2 000 | 1 835 | 1.402 |
| 1/500 | 1/1 000 | 1 860 | 0.410 |
| 1/200 | 1/5 000 | 1 794 | 0.910 |
| 1/100 | 1/5 000 | 1 752 | 0.424 |

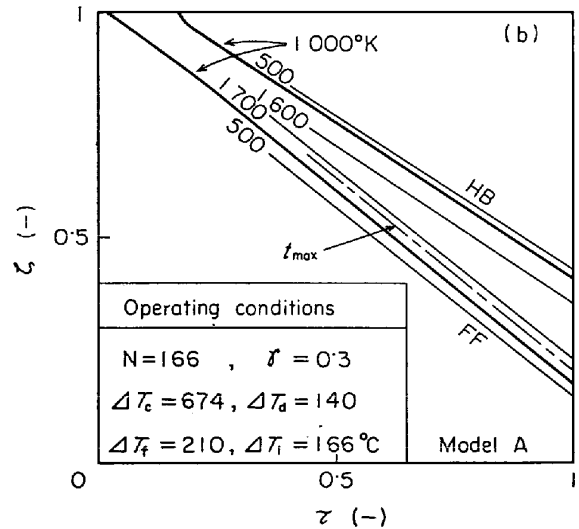
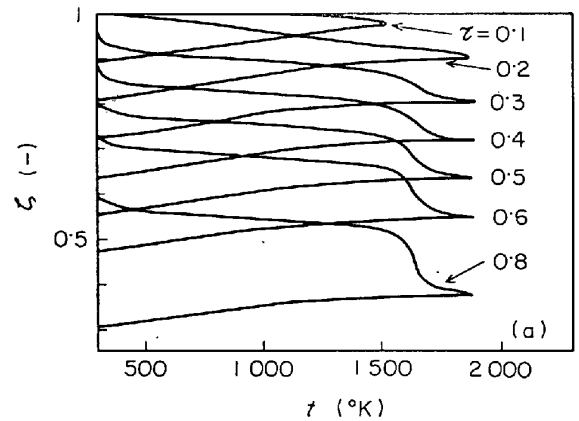
* ratio of computation time on FACOM 230-60 to real time (sec/sec).

て、差分近似による誤差 (truncation error) は減少するが、逆に、演算回数の増加とともにまるめの誤差 (round-off error) や、固気間温度差の計算に伴うけた落ちの効果が蓄積する可能性がある。このため、Table 2の結果だけからどの計算条件が最も精度のよい解を与えているのかを断定することはできないが、以下の計算は、Table 2の諸条件のうちでは計算時間が最も短くなる場合のきざみ幅 ($\Delta\zeta=1/500$, $\Delta\tau=1/1\,000$) を採用して行なうことにする、その場合、Table 2から、最高温度に $-50\sim+10^\circ\text{C}$ の誤差が含まれる可能性のあることが推察される。

3. 焼結プロセスにおける heat wave の特性

3.1 定常プロフィルの形成

Fig. 2 (a) に、モデルAによつて計算した層内粒子の温度分布の時間的推移の一例を示す。Fig. 2 (b)は、 (τ, ζ) 座標上に、このときの等温線を示したものであ



Operating conditions
 $N=166$, $\tau=0.3$
 $\Delta T_c=674$, $\Delta T_d=140$
 $\Delta T_f=210$, $\Delta T_i=166^\circ\text{C}$

Model A

FF : flame front
 HB : heat behind

Fig. 2. (a) Transient variations of heat wave and (b) contour lines obtained from Model A.

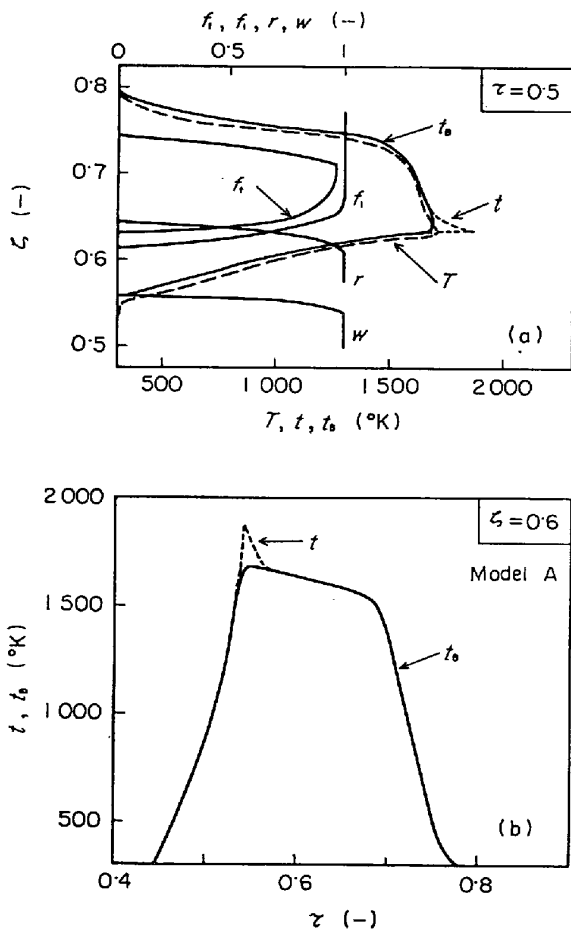


Fig. 3. (a) Vertical distribution of process variables and (b) temperature transients obtained from Model A.

る。Fig. 3 (a) には、 $\tau = 0.5$ の場合について、各種プロセス変数の z 方向分布の詳細を示す。また、Fig. 3 (b) には、 $z = 0.6$ における層内粒子温度の時間的変化を示す。これは、鍋試験のような回分式の実験において、温度検出端を固定して測定したときの結果に相当する。Fig. 3 における t_B は、固体状態の部分と融解した部分とを含めた粒子側の平均温度であり、(36)式から算出される。

$$t_B = t + U_f y_o (t_{ml} - t) + U_l y_l (t_{dec} - t) \dots \dots \dots (36)$$

Fig. 2 (a) から明らかなように、着火後一定時間を経たあとでは、heat wave の前面および後面の温度プロファイルは変化しなくなり、Fig. 2 (b) の等温線は平行になる。Fig. 2 (b) の等温線が直線的になることは、heat wave の前面と後面がそれぞれ等速度で進行することを示している。

モデルAでは、基礎式(18)~(23)式から明らかなように、heat wave の前面でコークスの燃焼によつて発生した熱は、いつたん、コークス、すでに分解を完了した石

灰石、および、すでに融解した鉄鉱石の部分に蓄積され、ガス相を経て、未分解石灰石および未融解鉄鉱石に伝えられる。このため、未分解石灰石および未融解鉄鉱石を除いた粒子の温度 t は急速に上昇し、温度分布の曲線に鋭い突起を生じている。これに類似の温度変化は、従来報告されている実測結果のうち、NYQUIST¹⁷⁾ による報告のなかに見い出される。

モデル B による計算例を Fig. 4, 5 に示す。モデル B では鉄鉱石の融解・凝固および、石灰石の分解を考慮していないために、最高温度は、モデルAにおける粒子平均温度 t_B の最大値よりも 100~200 $^{\circ}\text{C}$ 高い値になっている。また、モデルAの結果に見られるような粒子温度分布の突起は見られない。しかし、その他の傾向はモデルAの場合と同様で、着火後一定時間を経過すると、heat wave の前面と後面のそれぞれについて、温度のプロファイルに変化が見られなくなり、heat wave はほぼ定

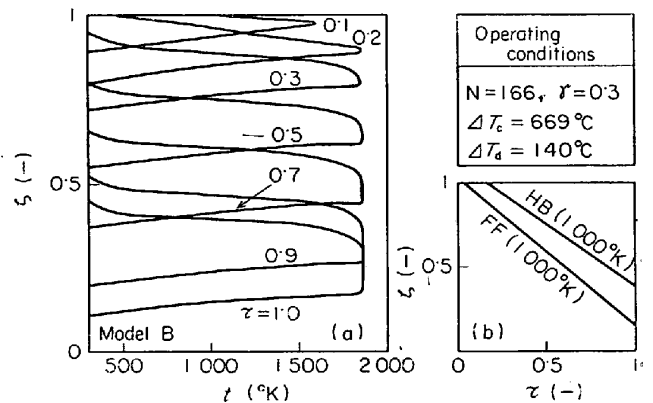


Fig. 4. (a) Transient variations of heat wave and (b) contour lines of 1000 $^{\circ}\text{K}$ obtained from Model B.

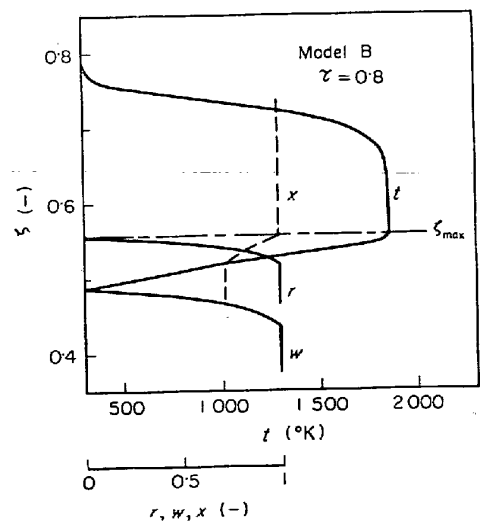
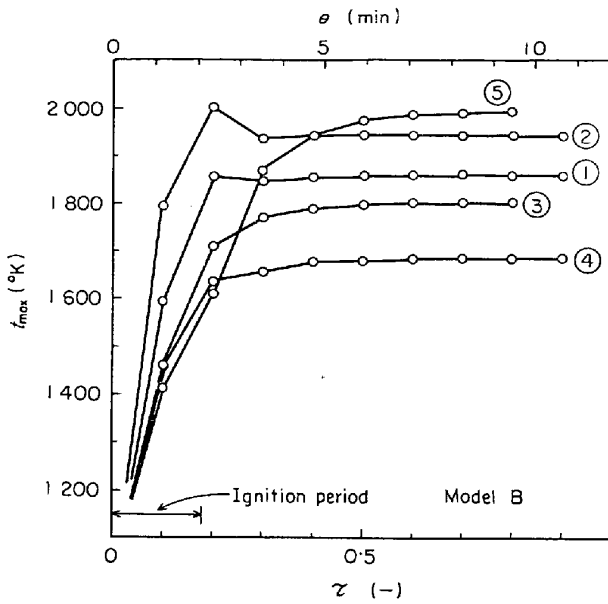


Fig. 5. Vertical distribution of process variables obtained from Model B.



| No | d_p (cm) | γ_c (-) | $x_{O_2,0}$ (-) |
|----|------------|----------------|-----------------|
| ① | 0.3 | 0.0248 | 0.21 |
| ② | 0.2 | 0.0248 | 0.21 |
| ③ | 0.4 | 0.0248 | 0.21 |
| ④ | 0.3 | 0.0165 | 0.21 |
| ⑤ | 0.3 | 0.0248 | 0.10 |

Fig. 6. Transient variations of the maximum temperature of bed. (The other conditions are maintained in the normal data given in Table 1).

常的な推移を示すようになる（本報では、このような状態に到達した場合を、簡単のために定常状態と呼ぶことにする）。

Fig. 6 に、層内粒子の最高温度の時間的変化を示す。定常状態に到達するのに必要な時間は操作条件によつて異なるが、比較的短いことがわかる。ただし、酸素濃度が極端に低い場合 ($\gamma > 1$) には、酸素が不足するために反応帯が heat behind の方にずれ、Fig. 2~5 の場合とは異なつたパターンが得られる。この場合、最高温度が上昇しつづけるために、定常的な温度分布は得られない。

heat behind の前面の速度は、一般に後面の速度よりも速い。このため、時間の経過とともに heat wave 内に熱が蓄積されるが、その際、heat wave の中央部分に温度変化の少ない台形状の部分が形成される。モデル B (Fig. 4, 5) においては、コークスの燃焼完了後は固気間の熱交換が行なわれるだけで、反応や融解・凝固による熱の発生・吸収がないため、中央部分の温度はほぼ一定値になる。モデル A の場合 (Fig. 2, 3) には、コークスの燃焼完了後も鉄鉱石の融解が進行するために、層内粒子の温度分布は上方に向かってゆるやかに下降している。コークスの燃焼による発熱の効果と、乾燥、融解、および、石灰石の分解などによる吸熱の効果とが等しくなつて、 $\Delta T_c = \Delta T_d + \Delta T_f + \Delta T_l$ となる場合には、heat wave 内への上述のような熱の蓄積は起こらず、heat wave の全体が定常的なパターンになる。Fig. 7 にモデル B の場合について、その一例を示す。

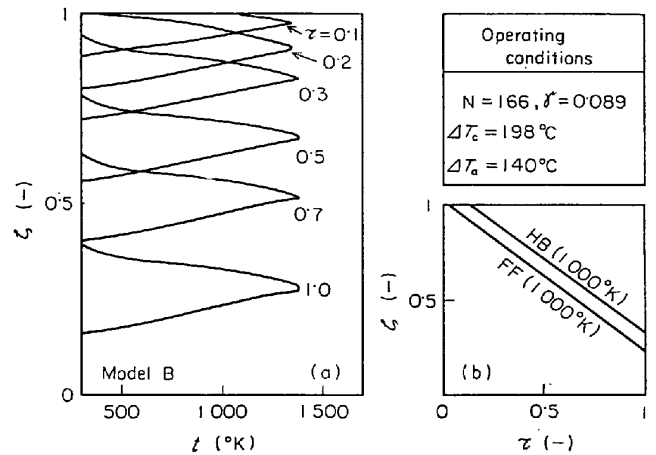


Fig. 7. (a) Transient variations of heat wave and (b) contour lines of 1000°C when the difference between ΔT_c and ΔT_d is small.

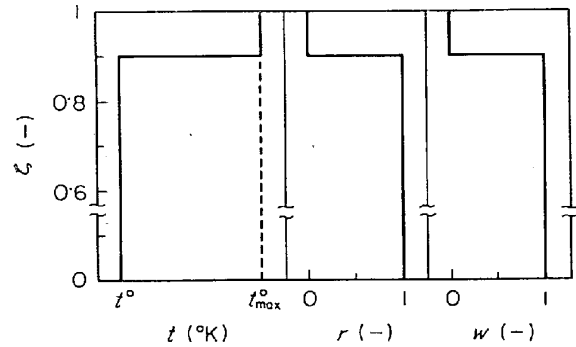


Fig. 8. Initial distribution of t, r and w to be used for the calculation.

3.2 定常状態の安定性

焼結プロセスの heat wave は、定常状態のプロセス変数に外乱が加えられても、操作条件に変更がない限りははじめの状態を回復する性質を持っている。これは、移動層で発熱反応操作を行なう際に、高温側定常状態が示す安定性⁽⁸⁾に類似の性質である。いま、 $\theta = 0$ においてプロセス変数が Fig. 8 に示すように分布しているものとする*。層内粒子の最高温度 t_{max} の初期値 t_{max}^0 を

* これは VOICE ら⁽⁹⁾の実験における着火方法に類似の初期条件であるが、プロセス変数に加えられた外乱と見なすこともできる。

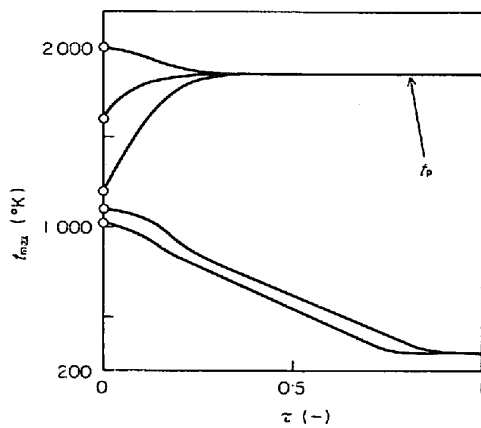


Fig. 9. Transient variations of t_{\max} from various initial values.

(○ : t_{\max}° as shown in Fig. 8)

種々に変えて、モデルBの系における t_{\max} の時間的変化を計算すると Fig. 9 が得られる。すでに、数学的モデルに基づいて点火炉内のガス温度を変化させた計算結果から、点火可能なガス温度に下限のあることが示されている¹³⁾が、 t_{\max}° が 1050°K 以下の場合には、いったん着火が行なわれる場合でも、次第に t_{\max} が下降し最終的には完全に冷却されてしまう。 t_{\max}° が 1100°K 以上のデータでは、いずれの場合にも t_{\max} は比較的急速に 1860°K の定常最高温度になることがわかる。さらに、Fig. 9 では、 1860°K よりも高い初期最高温度から出発した場合でも、 t_{\max} が 1860°K に復帰している。これらの結果から、焼結プロセスにおける定常状態は微小な外乱に対して安定であること、および、着火が完全に行なわれる場合には、着火の方法によらず同一の定常状態が得られることが推察できる。

このような定常状態は、ガス流による冷却速度と粒子側における発熱速度とのつりあいによつて得られるものと考えられる。すなわち、 t_{\max} が高いほどコークスの燃焼反応の速度定数の値が大きくなり、発熱速度が増加するため、 t_{\max} が上昇する。したがって、コークスの燃焼が、粒子温度のピークの位置よりも上方で完了する場合には、最高温度はさらに上昇する。しかし、燃焼するコークスの量には限界があるために、 t_{\max} がある温度以上になると、もはや発熱速度は増加することができなくなって、ガスによる冷却速度の方が大きくなる。したがって、粒子温度のピークの位置よりも下方でコークスの燃焼が完了する場合には、最高温度は下降する。このように、ある温度を境にして、それよりも高い温度では冷却され、低い温度では加熱されるために、安定な定常状態が出現する。モデルBに関する Fig. 5 の結果に見

られるように、コークス半径 r が 0 になつた位置で粒子温度が最高になつていることは、上述の推察を裏づけている。モデルAの場合にはコークスの燃焼完了点の付近で鉄鉱石の融解が併発するために、挙動はさらに複雑になる。

焼結プロセスにおける定常状態の安定性の理論的証明や安定限界の推定は、分布定数系の安定性を解析する問題に帰着するが、その解析は困難なため、ここでは以上のような定性的な考察にとどめておく。

3.3 層内最高温度と heat wave の進行速度との関係

Fig. 3 に見られるように、heat wave の中央部の温度勾配が比較的ゆるやかな領域において、融解率 f_f はほぼ 1 に近い値を示しており、この領域の大きさが焼結鉱の品質に大きく影響することが予想される。

すでに、heat front の進行速度 u_f と heat behind の進行速度 u_b の数値がわかっている場合に、パレット・スピードの最適値を求める方法が提出¹³⁾¹⁴⁾されているが、前述のように定常状態は比較的速やかに実現されるので、定常状態についての解を用いて焼結プロセスの最適化を行なうことも可能であると考えられる。

OLSON ら¹³⁾は、触媒再生操作について数値解法により定常状態の解を求め、厳密な非定常モデルの解と比較してよい一致を得ている。焼結プロセスの場合にこのような定常状態の解を得るには、 u_f と u_b を求めておく必要がある。 u_f 、 u_b が一定であるとすれば、後述(3.4)するように、基礎式から定常状態に関する常微分方程式を導びくことができる。ここでは、定常状態にあるheat wave の前部と後部のそれぞれの部分について総熱収支を行ない、粒子の最高温度がわかっている場合に u_f と u_b を推算する式を導出する。

定常状態における層内粒子の最高温度を過渡状態における最高温度から区別するために、定常最高温度と呼び t_p で表わす。さて、heat wave の前部におけるプロセス変数の分布が Fig. 3 または Fig. 5 のような定常状態にあるとき、観察者が u_f に等しい速度で下方に移動しながら観測を行なう場合を想定する。このとき、観測者にとって反応帯は静止しているように見えるが、粒子とガスはそれぞれ一定の速度で互いに逆向きに流れているように見える。すなわち、粒子は温度 t° 、速度 u_f で前方(層の下方)から供給され、ガスによつて乾燥されて後、 t_p まで温度上昇して反応帯から排出される。一方ガスは $T=t_p$ (無次元速度=1) で反応帯に入り、粒子との熱交換によつて $T=t^{\circ}$ まで冷却されて後に排出される。したがって、固定層内をガスの流れ方向に等速度で進行している反応帯は、BEVERIDGE⁹⁾も指摘している

ように、定常状態にある向流式移動層における反応帯に相当する。

$t=t_p$ の位置における f_f と f_l の値をそれぞれ f_{fp} , f_{lp} で表わすとき、乾燥開始から燃焼完了までの区間における吸熱の効果は $(\Delta T_d + f_{fp} \cdot \Delta T_f + f_{lp} \cdot \Delta T_c)$ となる。また、同じ区間における発熱の効果は ΔT_c で示される。 $t=t^0$, $t=t_p$ における粒子の平均比熱をそれぞれ c_s^0 , c_{sp} と書くとき、この区間についての総括熱収支から、(37)式が得られる。

$$u_f = (t_p - t^0) / [(c_{sp} t_p - c_s^0 t^0) / c_{sl} + \Delta T_d + f_{fp} \cdot \Delta T_f + f_{lp} \cdot \Delta T_c] \quad (\text{モデル A}) \dots\dots (37)$$

同様な収支を heat behind について行なうと、 u_b について(38)式が得られる。

$$u_b = (t_p - t^0) / [(c_{sp} t_p - c_s^0 t^0) / c_{sl} + f_{fp} \cdot \Delta T_f + (1 - f_{lp}) \cdot \Delta T_c] \quad (\text{モデル A}) \dots\dots (38)$$

融解・凝固および石灰石の分解反応のないモデル B の場合には、(37), (38)式で $\Delta T_f = \Delta T_c = 0$ とすることにより(39), (40)式が書ける。

$$u_f = (t_p - t^0) / [(c_{sp} t_p - c_s^0 t^0) / c_{sl} + \Delta T_d - \Delta T_c] \quad (\text{モデル B}) \dots\dots (39)$$

$$u_b = (t_p - t^0) c_{sl} / (c_{sp} t_p - c_s^0 t^0) \quad (\text{モデル B}) \quad (40)$$

粒子比熱の温度変化を無視して、 $c_{sl} = c_{sp} = c'$ と書ける場合には、(39), (40)式は(39)', (40)' 式のように簡単になる。

$$u_f = (t_p - t^0) / (t_p - t^0 + \Delta T_d - \Delta T_c) \quad (\text{モデル B, } c_s' = \text{一定のとき}) \dots\dots (39)'$$

$$u_b = 1 \quad (\text{モデル B, } c_s' = \text{一定のとき}) \dots\dots (40)'$$

(37)~(40)式に示した u_f , u_b は無次元の速度であるが、有次元の速度 u_f' および u_b' は(41)式に示すように、それぞれ u_f と u_b に $(L/\bar{\theta})$ をかければ計算できる。

$$u_f' = u_f \cdot (60L/\bar{\theta}), \quad u_b' = u_b \cdot (60L/\bar{\theta}) \quad (\text{cm/min}) \dots\dots (41)$$

比熱が一定で反応が起こらない充填層内の heat wave の速度が(40)' 式の u_b と同じになることについてはすでに知られている。すなわち、深川ら¹⁶⁾は、数値解析の結果から経験的に(40)' 式に相当する式を得ている。ただし、深川らはその理論的誘導は行なっていない。YOUNG²⁰⁾は、基礎式(偏微分方程式)のフーリエ解析の第1次近似として(40)' 式を得ている。また、WOODS ら⁸⁾は、層内熱伝導の効果を考慮したうえで(39)' 式の積分形に相当する heat front の位置と時間の関係式を導いている。さらに、BEVERIDGE⁹⁾は、乾燥過程を伴う一般的な気相反応系について、乾燥帯、熱交換帯、反応帯それぞれについての総括収支から(39)', (40)' 式に相当す

Table 3. Comparison between the values of u_f and u_b obtained from numerical simulation and those obtained from over-all heat balance.

| Model | Results of numerical simulation | Results of over-all balance equation |
|-------|---|--|
| A | $t_p = 1690^\circ\text{K}$ $f_{fp} = 0.4$ $f_{lp} = 0.74$ | $u_f = 0.85$ $u_b = 0.69$ $u_f = 0.87$ [Eq. (37)] $u_b = 0.67$ [Eq. (38)] |
| B | $t_p = 1860^\circ\text{K}$ | $u_f = 0.89$ $u_b = 0.71$ $u_f = 0.89$ [Eq. (39)] $u_b = 0.69$ [Eq. (40)] |

る式を展開している。

さて、 u_f と u_b の式(37)~(40)' の右辺には、(40)' 式を除いてすべての定常最高温度 t_p が含まれているから、 u_f , u_b を理論的に推算するためには t_p を知る必要がある。

本研究では、後述(4章)のように、 t_p の近似的推算法を展開するが、ここでは、(37)~(40)式の検証のために、数値計算結果から得られた t_p , f_{fp} , f_{lp} の値を(37)~(40)式に代入して u_f , u_b を推算し、数値解における u_f , u_b と比較する。モデル A の場合については、 t と t_B のいずれの最大値を t_p と見なすかに問題はあがあるが、ここでは粒子側の平均温度 t_B の最大値を t_p に代入し、その位置における f_f と f_l の値をそれぞれ f_{fp} , f_{lp} として計算した。結果は、Table 3 からわかるように、(37)~(40)式の妥当性を示している。

3.4 定常状態に関する基礎式

前述のように、WOODS ら⁸⁾や BEVERIDGE⁹⁾ の解析では、与えられた操作条件だけから u_f , u_b および t_p の値を決定することができなかつた。定常状態の形成と安定性に関する検討(3.1, 3.2)から明らかのように、焼結プロセスの定常特性はコークスの燃焼速度に強く支配されていることが推察できる。したがって、 t_p , u_f , u_b の解を確定するためには、heat wave, の前部について、反応および熱交換などの速度過程を考慮した解析が必要であると考えられる。そこで、以下に、heat wave の前面がすでに定常状態に達していて、等速度 u_f で進行しているものと仮定し、定常状態に関する方程式を誘導する。

まず、コークスの燃焼反応が開始される位置を $\zeta_{ig}(\tau)$ とおき、 ζ_{ig} を用いて新しい独立変数 ξ を(42)式で定義する。

$$\xi = \zeta - \zeta_{ig}(\tau) \dots\dots (42)$$

定常状態においては、燃焼開始の位置は等速度 u_f で進行するから、

$$d\zeta_{ig}/d\tau = -u_f = \text{const.} \dots\dots (43)$$

$$\therefore \left. \begin{aligned} d\xi &= u_f d\tau & (\zeta = \text{一定のとき}) \\ d\xi &= d\zeta & (\tau = \text{一定のとき}) \end{aligned} \right\} \dots\dots (44)$$

(44)式が書ける場合には、モデルAとモデルBの基礎式(18)~(24)式および(31), (32)式は(45)~(51)式に変換され、独立変数ξだけについての常微分方程式が得られる。

粒子側:

$$u_f (dt/d\xi) = \left\{ \begin{aligned} & \left[\frac{N(T-t)(1-U_f v_o - U_l v_l) + 3\Delta T_c \cdot Kr^2 x}{- \{ |df_f/d\xi| y_o(t-t_{ml}) + (df_l/d\xi) y_l(t-t_{dec}) \} v_f(c'_s/c'_{sl})} \right] \text{(モデルA)} \\ & \frac{(1-U_f y_o - U_l y_l)(c_s/c'_{sl})}{\{ N(T-t) + 3\Delta T_c \cdot Kr^2 x \} / (c_s/c'_{sl})} \text{(モデルB)} \end{aligned} \right\} \dots\dots (45-a)$$

$$\dots\dots (45-b)$$

$$u_f (dr/d\xi) = -Kx \quad \text{(モデルA, B)} \dots\dots (46)$$

$$u_f (df_f/d\xi) = N v_o U_f (T-t_{ml}) / \Delta T_f \quad \text{(モデルA)} \dots\dots (47)$$

$$u_f (df_l/d\xi) = N v_l U_l (T-t_{dec}) / \Delta T_l \quad \text{(モデルA)} \dots\dots (48)$$

$$u_f (dw/d\xi) = -N U_d (T-t) / \Delta T_d \quad \text{(モデルA, B)} \dots\dots (49)$$

ガス側:

$$dT/d\xi = \left\{ \begin{aligned} & N \{ (T-t) + v_o U_f (T-t_{ml}) + v_l U_l (t-t_{dec}) \} \text{(モデルA)} \dots\dots (50-a) \\ & N(T-t) \text{(モデルB)} \dots\dots (50-b) \end{aligned} \right.$$

$$dx/d\xi = 3\gamma Kr^2 x \quad \text{(モデルA, B)} \dots\dots (51)$$

粒子温度が $t=t_p$ となる位置とガス温度が $T=t^\circ + \delta$ ($1 \gg \delta > 0$) となるξの位置を、それぞれ ξ_p, ξ_d で表わすとき、境界条件は(52), (53)式で示される。

$$T=t^\circ, r=1, w=1, f_l=0, f_f=0 \quad (\xi=\xi_d \text{ で}) \dots\dots (52)$$

$$x=1, T=t_p, r=0, w=0, f_l=f_{lp}, f_f=f_{fp} \quad (\xi=\xi_p \text{ で}) \dots\dots (53)$$

4. 近似解法による t_p, u_f, u_b の決定

t_p を決定するためには、無次元反応速度定数 K の温度依存性を考慮して、基礎式(45)~(51)式をコークス半径 r が0になるまで積分しなければならない。この際、 t_p がわかっていないために u_f もまた未知であるから、計算法は試行錯誤計算となる。また、 u_f が与えられている場合でも、これらすべての微分方程式を厳密に解析的に解くことは困難であるが、以下に示すように比較的単純な近似によつて、精度が良好で計算の容易な解析解が得られる。

4.1 反応帯長さ $\Delta\zeta_R$

(46)式と(51)式から Kx を消去して、 $\xi=\xi \sim \xi_p$ の区間で積分すると、酸素濃度とコークス半径の間の関係式として(54)式が得られる。

$$x = 1 - \gamma u_f r^3 \dots\dots (54)$$

(54)式を(46)式に代入して積分すれば(55)式が書ける。

$$\int_0^1 \frac{u_f dr}{1 - \gamma u_f r^3} = - \int_0^{\Delta\zeta_R} K d\xi \dots\dots (55)$$

ただし、 $\Delta\zeta_R$ は反応帯の長さで、(56)式で定義する。

$$\Delta\zeta_R \equiv \zeta_p - \zeta_{ig} \dots\dots (56)$$

(55)式の積分を実行すると、 $\Delta\zeta_R$ は(57)式のように書ける。

$$\Delta\zeta_R = \frac{1}{K} \cdot \frac{1}{6\gamma\alpha^2} \left[\log \left| \frac{1+\alpha+\alpha^2}{(1-\alpha)^2} \right| - \frac{\pi}{\sqrt{3}} + 2\sqrt{3} \tan^{-1} \frac{2+\alpha}{\sqrt{3}\alpha} \right] \dots\dots (57)$$

ここで、 \bar{K} は燃焼帯における平均の反応速度定数で、(58)式で定義する。また、 α は(59)式で定義したパラメーターである。

$$\bar{K} \equiv \int_0^{\Delta\zeta_R} K d\xi / \Delta\zeta_R \dots\dots (58)$$

$$\alpha \equiv (1/\gamma u_f)^{1/3} \dots\dots (59)$$

4.2 最高温度 t_p

次の変数変換によつて変数 ϕ を導入する。

$$\phi = (at+b)t/c'_{sl} \dots\dots (60)$$

ただし、粒子の平均比熱 c'_s は、(61)式のように温度についての1次式で書けるものとした。

$$c'_s = at + b \dots\dots (61)$$

まず、解析の容易なモデルBの場合を検討する。モデルBで、粒子温度の(45-b)式は、発熱項 $\Delta T_c \cdot Kr^2 x$ に非線形性があるために積分が困難なので、解析の簡単化のために、この項を定数と見なし、(62)式で近似する。

$$3\Delta T_c \cdot Kxr^2 = \frac{\Delta T_c}{\gamma} \cdot \frac{dx}{d\xi} = \frac{\Delta T_c}{\gamma} \cdot \frac{1-x(\xi_{ig})}{\Delta\zeta_R} \dots\dots (62)$$

$\xi=\xi_{ig} \equiv 0$ では $r=1$ であるから、(54)式より、 $x(\xi_{ig}) = 1 - \gamma u_f$ となる。したがつて、(62)式は(63)式のようになる。

$$3T_c \cdot Kxr^2 = \Delta T_c \cdot u_f / \Delta\zeta_R \equiv q \quad \text{(モデルB)} \dots\dots (63)$$

(45-b)式を ϕ と q を用いて書きかえううえで、(50-b)式を適用して $N(T-t)$ の項を消去し、(49)式とともに境界条件(52)式を用いて積分すると、ガス温度 T について(64)式が得られる。

$$T = u_f (\phi + \Delta T_d) + (1 - u_f c'_s / c'_{sl}) t^\circ - q\xi \dots\dots (64)$$

(60), (63), (64)式により、(45-b)式は(65)式のよ

うに書きかえられる。

$$u_f(d\phi/d\xi) = N\{u_f\phi - t + u_f \cdot \Delta T_d + (1 - u_f c_s' / c_{sl}') t^\circ - q\xi\} + q \dots (65)$$

(65)式には ϕ と t が同時に含まれているので積分ができない。そこで、 t を ϕ また ξ については線形近似する。すなわち、

$$t = t_{ig} + A(\phi - \phi_{ig}) \quad (\text{近似解 A}) \dots (66)$$

$$t = t_{ig} + \{t_p - t_{ig} / \Delta \zeta_R\} \xi \quad (\text{近似解 B}) \dots (67)$$

(66)式の係数 A は、(60)式より(68)式のように定義すればよいことがわかる。

$$A \equiv \frac{t_p - t_{ig}}{\phi_p - \phi_{ig}} = \frac{c'_{sl}}{a(t_p + t_{ig}) + b} \dots (68)$$

ただし、 ϕ_{ig} は(60)式に t_{ig} を代入したときに得られる ϕ である。(66)式または(67)式を(65)式に代入するといずれの場合も(69)式の形の方程式になるので、(69)式を積分することによって(70)式の解が得られる。

$$d\phi/d\xi = B\phi + C - D\xi \dots (69)$$

$$\phi_p = t_{ig} e^{B \cdot \Delta \zeta_R} - (1 - e^{B \cdot \Delta \zeta_R}) \cdot (C - D/B) / B + \Delta \zeta_R \cdot D/B \dots (70)$$

ここで、 B, C, D は近似解 A, B それぞれの場合について、(71), (72)式で定義される

$$\left. \begin{aligned} B &= N(1 - A/u_f) \\ C &= [q + N\{\Delta T_d \cdot u_f + (1 - u_f c_s' / c_{sl}') t^\circ - (1 - A)t_{ig}\}] / u_f \\ D &= Nq/u_f \end{aligned} \right\} \quad (\text{近似解 A}) \dots (71)$$

$$\left. \begin{aligned} B &= N \\ C &= [q + N\{\Delta T_d \cdot u_f + (1 - u_f c_s' / c_{sl}') t^\circ - t_{ig}\}] u_f \\ D &= N\{q + (t_p - t_{ig}) / \Delta \zeta_R\} / u_f \end{aligned} \right\} \quad (\text{近似解 B}) \dots (72)$$

なお、 ϕ_p がわかれば、最高温度 t_p は(60)式を t_p について書きかえた(73)式から直ちに計算できる。

$$t_p = \{-b + \sqrt{b^2 + 4ac'_{sl}\phi_p}\} / 2a \dots (73)$$

さて、いま t_p を仮定すると、(39)式から u_f が求められ、つぎに(57)式から $\Delta \zeta_R$ が求められるから、これらの値を(71)式または(72)式に代入して B, C, D を決定したのち、(70), (73)式からふたたび t_p が得られる。したがって、これらの式を組み合わせることにより、 t_p と u_f を決定する試行錯誤計算が可能となる。

一方、融触・凝固および石灰石の分解を考慮するモデル A の場合には、(63)式の q の代りに(74)式*で定義される q を用いればよい。

$$q = (\Delta T_c - \Delta T_f f_{fp} - \Delta T_l f_{lp}) u_f / \Delta \zeta_R \quad (\text{モデル A})$$

* (45-a), (47), (48) 式から誘導できる

$$\dots (74)$$

f_{fp}, f_{lp} については、(47), (48)式を近似的に積分することによって、(75), (76)式が得られる。

$$f_{fp} = 1 - \exp[Nv_o(t_p - t_{mi}) \cdot \Delta \zeta_{mi} / u_f \cdot \Delta T_f] \dots (75)$$

$$f_{lp} = 1 - \exp[-(2/3)Nv_l(t_p - t_{dec}) \cdot \Delta \zeta_{dec} / v_f \cdot \Delta T_l] \dots (76)$$

ただし、 $\Delta \zeta_{mi}$ と $\Delta \zeta_{dec}$ は、それぞれ、融解および石灰石の分解が開始される位置と $t = t_p$ になる位置との間の距離を示しており、粒子温度について後述の(79)式の近似を用いれば、(77), (78)式のように書ける。

$$\Delta \zeta_{mi} = \Delta \zeta_R \sqrt{(t_p - t_{mi}) / (t_p - t_{ig})} \dots (77)$$

$$\Delta \zeta_{dec} = \Delta \zeta_R \sqrt{(t_p - t_{dec}) / (t_p - t_{ig})} \dots (78)$$

(75)式の誘導に際しては、 $\Delta \zeta_{mi}$ の区間でガス温度は $T = t_p$ と書けるものとし、(76)式の誘導においては、ガス温度は(79)式のように書けるものとした。

4.3 反応の平均速度定数 \bar{K}

さて、(58)式の積分の実行には燃焼帯における粒子の温度分布を仮定する必要がある。ここでは、粒子の層高方向での温度分布を(79)式のような ξ に関する2次式で近似的に表わす。

$$t = t_p - \beta (\Delta \zeta_R - \xi)^2 \dots (79)$$

$$\text{ただし、} \quad \beta \equiv (t_p - t_{ig}) / \Delta \zeta_R^2 \dots (80)$$

(79)式から、 $d\xi$ について(81)式が書けるから、(58)式は(82)式のように変形され、 \bar{K} が t_p だけの関数として表わされる。

$$d\xi = \Delta \zeta_R dt / 2\sqrt{(t_p - t_{ig})(t_p - t)} \dots (81)$$

$$\bar{K}(t_p) = \frac{1}{2\sqrt{t_p - t_{ig}}} \int_{t_{ig}}^{t_p} \frac{K(t)}{\sqrt{t_p - t}} dt \dots (82)$$

(82)式の積分は、図積分または数値積分法で求めることができるから、試行錯誤計算用として計算機に記憶させておけば計算する手間をはぶくことができる。Table 1の条件に基づいて計算した $K(t)$ と $\bar{K}(t_p)$ の温度変化を Fig. 10 に示す。ただし、 $t_{ig} = 1000^\circ\text{K}$ を採用した。また、以下の計算では、基準温度 t_l についても $t_l = t_{ig} = 1000^\circ\text{K}$ とおいた。

4.4 近似解に基づく焼結プロセスの計算法

以上の解析(4.1~4.3)により、定常最高温度 t_p と焼結帯の進行速度 u_f, u_b の計算が可能である。計算に使用する主な数式の番号と試行錯誤計算のフローチャートを Fig. 11 に示す。試行錯誤計算における t_p の仮定値の決定を挾撃法で行なった場合について、計算収束の過程を Table 4 に示す。収束に要する時間は大型計算機の場合には1秒以下であり、差分方程式に基づく数値解法を採用した場合の所要時間 (Table 2) と比較する

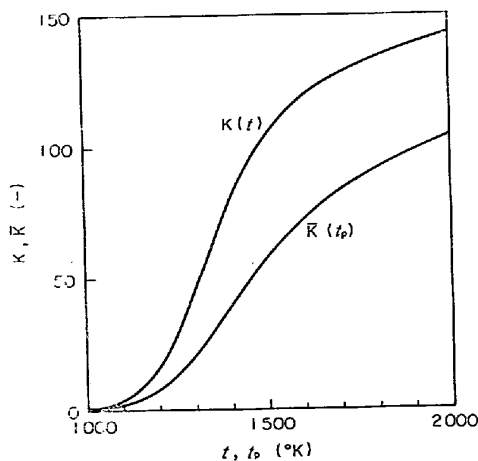


Fig. 10. Reaction rate constant $K(t)$ and its average within the combustion zone, $\bar{K}(t_p)$.

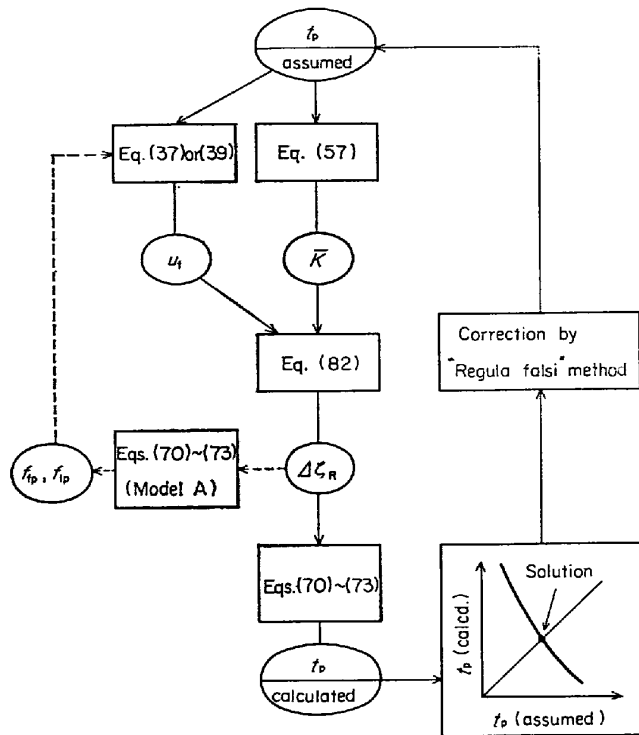


Fig. 11. Iteration algorithm for the calculation of u_f and t_p .

と極めて短時間の計算で解が得られることがわかる。なお、試行錯誤計算のかわりに図解法も可能であり、その原理は試行錯誤計算の場合と同じである。

4.5 近似解と厳密解の比較

近似解が有用であるためには、操業条件の広い範囲で厳密解とよく一致することが必要である。そこで、融解・凝固、および石灰石の分解の起こらないモデル B の場合について、Table 1 に示した基準条件のまわりで操業条件を変化させて、近似解が数値解法から得られる結果

Table 4. Example of regula-falsi calculation*.

| Trial step | Assumed t_p (°K) | Calculated t_p (°K) |
|------------|--------------------|-----------------------|
| 1 | 1800 | 2079 |
| 2 | 1900 | 1603 |
| 3 | 1849 | 1818 |
| 4 | 1844 | 1841 |
| 5 | 1843 | 1843 |

* Numerical computation was carried out by the use of approximate solution A for the case of model B.

などの程度まで追従するかについて比較し、その結果を Fig. 12 に示す。Fig. 12 には、(65)式を積分する際に採用した二種類の近似 ((66)式と(67)式) のそれぞれから得られた結果が同時に示されている。

u_f と u_b についての計算結果では、両近似解は数値解にほとんど完全に一致している。最高温度 t_p については、近似解 B から得られた結果の方が近似解 A よりも約 35°C 高い値を示しているが、両近似解の平均値は数値解に近く、妥当な結果となつている。

融解・凝固、および石灰石の分解を考慮したモデル A の場合についてコークス配合率 y_c を変化させて近似解と厳密解とを比較した結果を Fig. 13 に示す。Fig. 13 は、モデル B の場合よりも複雑なモデル A の方程式を、モデル B の場合と同様な簡単な仮定のもとで解いた結果であるが、近似解と数値解との一致はかなり良好である y_c の大きな領域では、 t_p について数値解と近似解の差が大きいが、これは数値解と近似解それぞれの誤差が原因と考えられる。(試みに、きざみ幅を τ 方向、 τ 方向それぞれについて 1/2 にした計算結果では、 $y_c=0.375$ のとき t_p は約 2000°K となり、約 60°C 低い値が得られた。)しかし、 u_f' と u_b' についての誤差は、 y_c の大きな領域でもきわめてわずかである。

なお、Fig. 12, 13 から種々の操業条件の場合について、heat wave の挙動を知ることができる。 u_f と u_b がほぼ等しくなるような条件で操業を行なうと、heat wave 全体がほぼ同じパターンのまま層内を移動していくので、層内の任意の高さにおける焼結鉾の熱履歴を等しくすることが可能である。

5. 結 言

鉄鉾石の融解・凝固過程と石灰石の分解反応のある場合とない場合とについて、それぞれ数学的モデル A, B を展開して数値解法により焼結プロセスのシミュレーションを行なつた。このシミュレーションによつて、モデル A, B いずれの場合にも、(1) heat wave は比較的急速に定常状態に到達するため、定常状態についての解析に基づいて heat wave の挙動を推算できること、およ

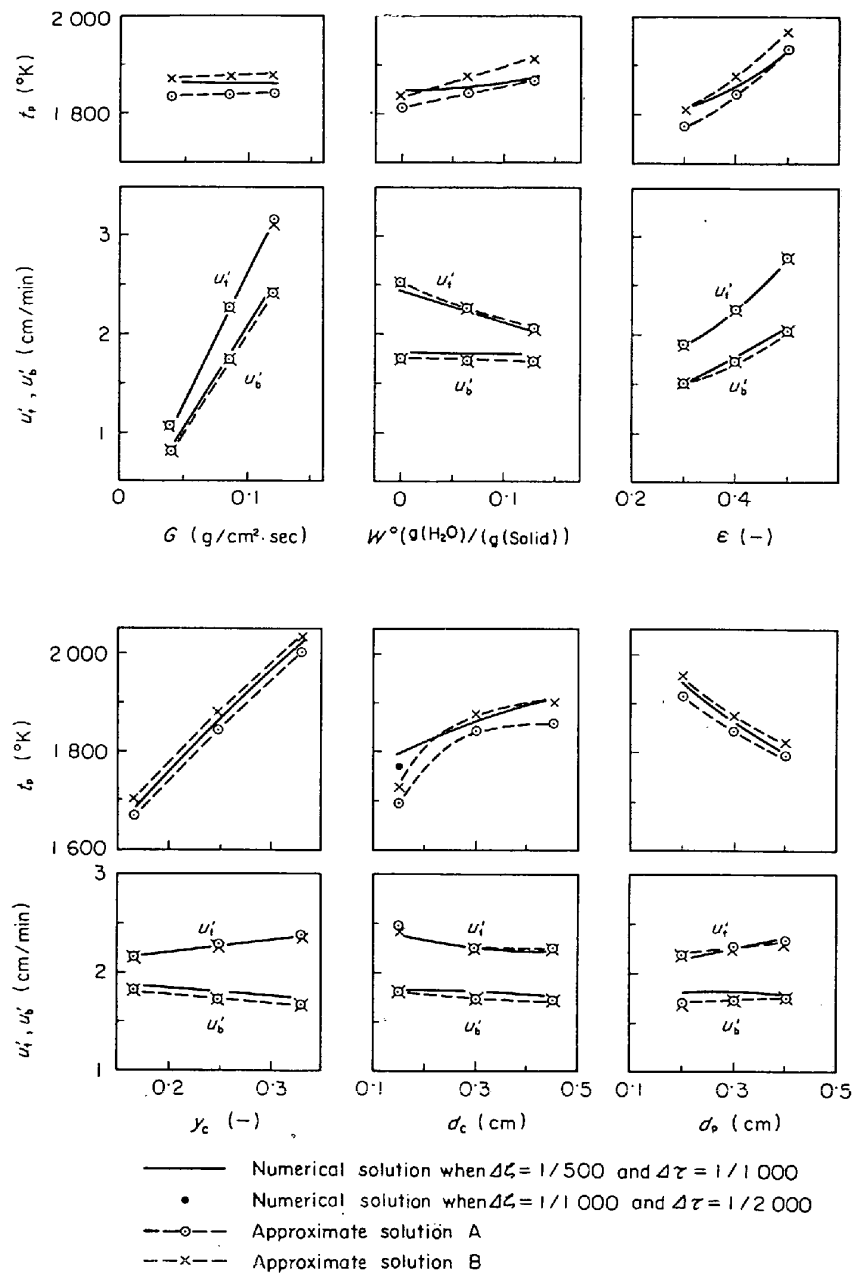


Fig. 12. Comparison between numerical solution and approximate solution for the case of Model B, under the various operating conditions which have been varied around the normal operating condition shown in Table 1.

び、(2)定常状態における heat wave は、 u_f, u_b, t_p の3個の変数によつて基本的に表現できることを示した。さらに、定常状態の安定性についても検討した。

つぎに、定常状態に関する3・4の基礎式に基づいて操作条件だけから上記の3変数を推算する近似的な解析的解法を提出し、数値解法で得られた結果と比較した。近似解は操作条件のかなり広い範囲にわたつて数値解によく一致した。近似解法には試行錯誤計算が含まれているが、その収束は迅速で、数値解法の場合とは比較にならない程の短時間で解が得られるために、ここで展開した

近似解法は焼結プロセスの設計や最適化に有用であると考えられる。

記号

- A : (68)式で定義されるパラメータ (—)
- $A_{ij}, A'_{ij}, A''_{ij}$: 粒子間伝熱のパラメータ (cal/cm³(bed) · sec · °C)
- a : 比表面積 (cm²/cm³(bed)), または(61)式の係数 (cal/g · °C · °K)
- a_c, a_o, a_l : 層単位体積中のコークス, 鉄鉱石, および石灰石粒子の表面積 (cm²/cm³(bed))

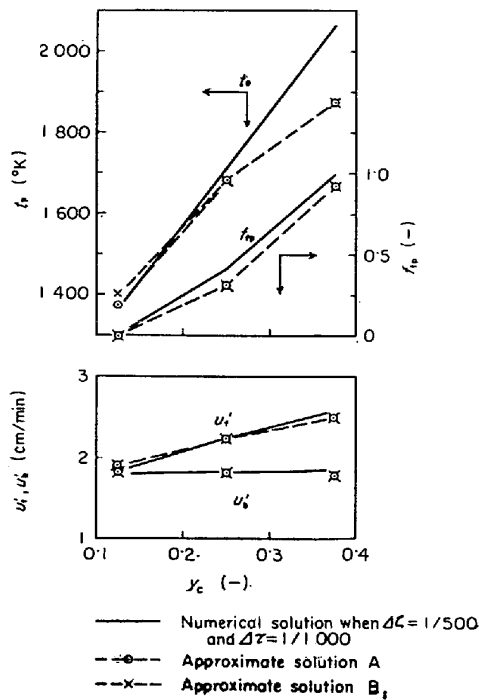


Fig. 13. Comparison between numerical solution and approximate solution for the case of Model A.

- B, C, D : (71), (72)式で定義されるパラメータ (—)
- b : (61)式の係数 (cal/g·°C)
- c_c, c_l, c_o, c_s : コークス, 石灰石, 鉄鉱石, および, 粒子層平均の真比熱 (cal/g·°C)
- c_g : ガスの比熱 (cal/g·°C)
- c_s' : 粒子層の平均比熱 (cal/g·°C)
- c'_{sl}, c'_s, c'_{sp} : $t = t_i, t^o, t_p$ における粒子の平均比熱 (cal/g·°C)
- d_c : コークスの初期平均粒径 (cm)
- d_p : 層内粒子の平均粒径 (cm)
- f_f, f_l : 鉄鉱石の融解率, および, 石灰石の分解率 (—)
- f_{fp}, f_{lp} : コークスの燃焼完了点における f_f と f_l (—)
- G : ガス質量速度 (g/cm²(bed)·sec)
- h_p : 粒子・流体間の伝熱係数 (cal/cm²·sec·°C)
- K : 無次元の速度定数 ((28)式で定義) (—)
- \bar{K} : 燃焼帯における K の平均値 ((58)式で定義) (—)
- k_c, k_c' : コークスの燃焼反応の速度定数 (cm/sec), (g/cm²·sec·atm)
- k_f : 境膜物質移動係数 (cm/sec)
- L : 層高 (cm)
- M_C, M_g : 炭素の原子量および, ガスの平均分子量 (g/atom(C)), (g/mol(gas))
- N : 修正スタントン数 ((28)式で定義) (—)
- n_c : 層単位体積中のコークス粒子の個数 (1/cm³(bed))
- p : 全圧 (atm)

- p_{O_2} : 酸素の分圧 (atm)
- q : 燃焼帯における平均発熱速度 ((63)式または(74)式で定義) (—)
- R : 気体定数 (atm·cm³/mol·°K)
- R_c, R_d, R_f, R_l : コークスの燃焼速度, 粒子の乾燥速度, 鉄鉱石の融解速度, および, 石灰石の分解速度 (g/cm³(bed)·sec)
- r : コークスの無次元半径 ((27)式で定義) (—)
- r' : コークスの半径 (cm)
- T, T_0 : ガス温度, および, 層上端でのガス温度 (°K)
- t, t^o : 粒子温度, および, 初期粒子温度 (°K)
- \bar{t}, \bar{t}_B : 容積平均の粒子温度, および, 質量平均の粒子温度 ((36)式で定義) (°K)
- t_b, t_{ig} : 係数の無次元化のための基準温度, および, 反応開始温度 (°K)
- t_c, t_l, t_o : コークス, 石灰石, および, 鉄鉱石の温度 (°K)
- t_{m1}, t_{dec} : 鉄鉱石の融解温度, および, 石灰石の分解温度 (°K)
- t_{max}, t_p : 層内粒子の最高温度, および, 定常状態における t_{max} (°K)
- U_d, U_f, U_l : (17), (8), (9)式で定義される係数 (—)
- u_f, u_b : heat front および, heat behind の無次元速度 (—)
- u_f', u_b' : heat front, および, heat behind の速度 (cm/min)
- v_c, v_l, v_o : コークス, 石灰石, および, 鉄鉱石各粒子の容積分率 (—)
- W, W^o : 粒子含水率, および, その初期値 (g(water)/g(dry solid))
- w : 無次元含水率 ((27)式で定義) (—)
- X_C, X_l : コークス中の C 質量分率, および, 石灰石中の CaCO₃ の質量分率 (—)
- x, x_0 : ガス中の酸素の無次元濃度 ((27)式で定義), および, 層上端における x (—)
- $x_{O_2}, x_{O_2,0}$: ガス中の酸素のモル分率, および, 点火炉外での層上端における酸素のモル分率 (—)
- y_c, y_l, y_o : コークス, 石灰石, および, 鉄鉱石の初期の質量分率 (—)
- z : 層底から上方への距離 (cm)
- γ : $\bar{\theta}$ 時間に流れたガス中の酸素の積算モル数と高さ L の粒子層内の炭素グラム原子数との比 ((28)式で定義) (—)
- $\Delta T_c, \Delta T_d, \Delta T_f, \Delta T_l$: コークスの燃焼, 粒子の乾燥, 融解・凝固, および, 石灰石の分解の熱的效果を表

わすパラメータ ((29)式で定義) (°C)
 $d\zeta$: 差分計算における ζ 方向のきざみ幅 (-)
 $d\zeta_{dec}, d\zeta_{ml}$: 石灰石の分解開始点からコークスの燃焼完了点までの距離, および, 融解開始点からコークスの燃焼完了点までの距離 (-)
 $d\zeta_R$: コークスの燃焼帯の幅 (-)
 $d\tau$: 差分計算における τ 方向のきざみ幅 (-)
 ε : 空間率 (-)
 ζ : 無次元の層内高さ ((26)式で定義) (-)
 ζ_{ij} : $t=t_{ig}$ になつている位置 (-)
 θ : 点火開始後経過した時間 (sec)
 $\bar{\theta}$: 層内を通過したガスの持つ熱容量の積算値が高さ L の粒子層の持つ熱容量に等しくなるのに要する時間 ((30)式で定義) (sec)
 $\xi = \zeta = \zeta_{ig}(\tau)$ (-)
 $\rho_c, \rho_l, \rho_o, \rho_s$: コークス, 石灰石, 鉄鉱石のみかけ密度, および, 層内粒子のみかけ密度の平均値
 ρ_b : 層のかさ密度 ($g/cm^3(\text{bed})$) (g/cm^3)
 τ : 無次元時間 ((26)式で定義) (-)
 (添字)
 接頭字 °: $\theta=0$, 接尾字 0: 層頂, c : コークス, または, 燃焼, d : 乾燥, f : 融解, または, heat front, l : 石灰石, o : 鉄鉱石

文 献

- 1) L. O. GONZALEZ and E. H. SPENCER: Chem. Eng. Sci., 18(1963), p. 753
- 2) W. DAVIES and D. W. MITCHELL: International Mineral Dressing Congress, Stockholm, (1958), p. 305 [Almqvist & Wiksell]
- 3) 三本木, 西田, 須沢: 鉄と鋼, 46(1960), p.1527
- 4) 三本木, 西田: ibid, 47(1961), p. 687
- 5) N. E. SIDROV, V. K. ANTONOV, N. M. MISHCHENKO, and F. F. PILIPAITIS: Stal in Engl., (1960), p. 715
- 6) E. W. VOICE and R. WILD: J. Metals, (1958), p. 105
- 7) 浜田, 小坂, 岡部: 鉄と鋼, 58(1972), p. 1567
- 8) S. E. WOODS and C. F. HARRIS: Symposium on Chem. Eng. in the Metallurgical Ind., (1963), p. 77 [The Instn. Chem. Engrs.]
- 9) G.S.C. BEVERIDGE: ibid, p. 87
- 10) F. R. BLOCK: Arch. Eisen., 43(1972), p. 83
- 11) B. M. JOHNSON, G. F. FROMENT, and C. C. WATSON: Chem. Eng. Sci., 17(1962), p. 835
- 12) 樋口, 鞭: 鉄と鋼, 53(1967), p. 1171
- 13) 鞭, 樋口: ibid, 56(1970), p. 371
- 14) I. MUCHI and J. HIGUCHI: Trans. ISIJ, 12 (1972), p. 54
- 15) 塚本, 嶋田, 田口, 樋口: 鉄と鋼, 56(1972), p. 661
- 16) 深川, 石川, 野口, 楯岡: ibid, 50(1964), p. 338
- 17) O. NYQUIST: Agglomeration, ed. by W. A. Knepper, (1962), p. 822, p. 926 [Interscience Publishers]
- 18) 堀尾, 森, 鞭: 化学工学第34年会講演要旨集 (1969), B108
- 19) K. E. OLSON, D. LUSS, and N. R. AMUNDSON: Ind. Eng. Chem., P. D. D., 7(1968), p. 96
- 20) P. A. YOUNG: Symposium on Chem. Eng. in the Metallurgical Ind., (1963), p. 33 [The Instn. Chem. Engrs.]
- 21) A. S. PARKER and H. C. HOTTEL: Ind. Eng. Chem., 28(1936), p. 1334
- 22) 白井: 流動層, (1958), p. 204, p. 207 [科学技術社]