

論文

UDC 669.162.263.42

高炉羽口先の燃焼反応モデル*

桑原 守**・謝 裕生**・鞭 嶽***

A Kinetic Model of Coke Combustion in the Tuyere Zone of Blast Furnace

Mamoru KUWABARA, Yu-sheng HSIEH, and Iwao MUCHI

Synopsis :

A mathematical model is developed to describe the behaviours of coke combustion in the tuyere zone of blast furnace. The model is based on the reaction kinetics, the differential balances of heat and mass, and the mechanics of gas flows.

Regarding the axial distribution of gas composition in the tuyere zone, good agreement is obtained between the model prediction and the data observed in a working furnace by the other investigators. Calculated results show that the maximum consumption of coke occurs at the intermediate region of the race-way.

At the blowing of oxygen-enriched or high-humidity blast, the position at which the maximum consumption of coke occurs is shifted toward tuyere nose. Similar effect is accompanied with the decrease in particle diameter of coke in the tuyere zone.

1. 緒言

高炉の羽口先燃焼帯は、炉内で必要とされる還元ガスと熱の主要な供給源であるばかりでなく、炉内における装入物の降下を駆動する役割を果たしている。また、羽口先は炉頂部とともに、装入物分布の制御に有効なアクションを加え得る重要な領域でもある。さて、従来、燃焼帯に関しては、実験的調査を中心とした数多くの研究が発表されている。そして、羽口覗穴を通しての光学的観察^{1)~4)}、ガス組成^{5)~18)}、温度^{5)14)~17)}およびガス圧力¹¹⁾¹⁶⁾¹⁷⁾の各半径方向分布の羽口ゾンデによる直接測定、コークスサンプリング^{19)~21)}、さらには、吹き止め後の炉内解体調査¹⁹⁾²²⁾²³⁾などが実施され、しだいに燃焼帯で起こる反応の実態が解明され始めている。しかしながら、高炉の羽口先は複雑な高温系であるため、燃焼反応の速度論的検討は少ない。

従来、燃焼帯の反応について報告された下間¹⁴⁾、INATANI ら¹⁶⁾、田村²⁴⁾、および中村ら²⁵⁾の速度論的モデルは、基本的には MAYERS²⁶⁾による火格子炭層の燃焼反応理論に類似している。しかし、上記の研究¹⁴⁾¹⁶⁾²⁴⁾²⁵⁾では、羽口から吹き込まれたガスは自由噴流になると仮定しているが、燃焼空間内に存在する粒子や拘束されたレースウェイ境界のために、実際のガス流れは異なつた流

れになると考へられる。

燃焼反応の速度定数は、従来、次の二通りの方法で推算されている。まず、微分物質収支に基づくモデルを利用して、見かけの速度定数を未知パラメータとして推定する方法¹⁶⁾²⁵⁾がある。この場合に得られる速度定数は、反応温度やコークスの反応性など、各高炉に固有な諸因子の影響を受けることになる。次に、燃焼帯が高温であるために、コークスの燃焼は反応ガスの流体境膜内拡散によつて支配されると仮定する方法¹⁴⁾²⁴⁾である。しかし、たとえば、高炉シャフト下部の条件下における Bouduard 反応の速度は、約 2100K 以下の温度では境膜内拡散律速とみなすことはできない²⁷⁾²⁸⁾。さらに、羽口先端部では、ガス流速は 150~200 m/s と非常に大きいこと、および、コークス粒径はシャフト部より細かくなつていることを考慮すると、上述の仮定は検討をする。むしろ、1273K 程度の送風ガス温度によるコークスの燃焼反応では、反応の初期段階の速度は、化学反応と細孔内拡散の複合律速になつていると推察される。

本研究では、ガス流れとコークスのガス化速度式について上述の問題点に留意して、燃焼帯内における物質および熱の微分収支に基づいた燃焼帯の反応モデルを開発した。燃焼帯内では、燃焼反応の進行に伴つてガスの組成と温度が急速に変化するので、種々の物性定数はこれ

* 昭和 55 年 3 月 27 日受付 (Received Mar. 27, 1980)

** 名古屋大学工学部 (Faculty of Engineering, Nagoya University, Furo-cho Chikusa-ku Nagoya 464)

*** 名古屋大学工学部 工博 (Faculty of Engineering, Nagoya University)

Table 1. Observed diameter of coke in combustion zone.

Observers (year)	Ref.	Method of observation	d_{pc} (cm) and Note
WAGSTAFF (1953)	1)	High speed camera	Daily change is larger than hourly one. 1.8 (Furnace A) 2.5 (Furnace B)
TAJIMA et al. (1978)	4)	High speed camera	Daily or hourly change is small. 2.0 (harmonic mean) 2.5-3.0 (arithmetical mean)
ISHIKAWA et al. (1979)	21)	Cokes sampling with steel tube after shutdown	Harmonic mean diameter at the distance x from tuyere nose. 1.2 ($x=0\text{-}0.5\text{m}$) 1.0 ($x=0.5\text{-}2\text{m}$)
KONDO et al. (1979)	23)	Cokes sampling after dissection	2.0-2.5 (in raceway) 2.5-3.0 (around raceway)

らの関数として評価した。得られた反応モデルの数値計算によつて、ガスの組成と温度、および、コークスの燃焼速度の燃焼帶奥行き方向における分布を推算し、これらの分布に及ぼす操作条件の効果について検討した。

2. 燃焼帶の反応モデル

2.1 燃焼帶空間の物理的状態

GREUEL²⁾ はエンドスコープを用いて羽口先状態を観察した結果、羽口前方には Fig. 1 に示すようなジェット状の空間が形成されることを見いだしている。WAGSTAFF¹⁾ の研究以来、この燃焼帶の空間の奥行き D_r の推算は、主として、 D_r と羽口径 D との比で定義される Penetration Factor と Raceway Factor との間の相関式に基づいて行われてきた。しかし、Raceway Factor の定義は各研究者^{1) 17) 29)} によって異なつておる、 D_r の推算については、反応の影響も含めて、今後なお検討する必要があるよう考えられる。羽田野ら¹⁷⁾の推算によれば、実炉では $D_r=1.0\text{-}1.7\text{m}$ 程度であり、大型高炉ほど D_r は増大する傾向がある。

このジェット状の燃焼空間内には、一定量の粒子が存在することが知られている。燃焼帶での空隙率 ϵ あるいは粒子の容積比率については、ホットモデルによる羽口先コークスの燃焼実験結果に基づいて、中村ら²⁹⁾は、 $\epsilon=0.70\text{-}0.75$ であり、また、近藤ら³⁰⁾は $0.4\text{-}0.5$ であることを見いだしている。 ϵ の値はレースウェイ境界の定め方によつても若干異なるが、燃焼帶の空間内における粒子の容積比率が従来考えられていた以上に大きいことは、高速度カメラを用いた最近の実炉羽口先の観察においても認められている。

従来発表された燃焼帶内コークスの平均粒径の実測値を Table 1 に示す。このうち、石川ら²¹⁾の測定結果

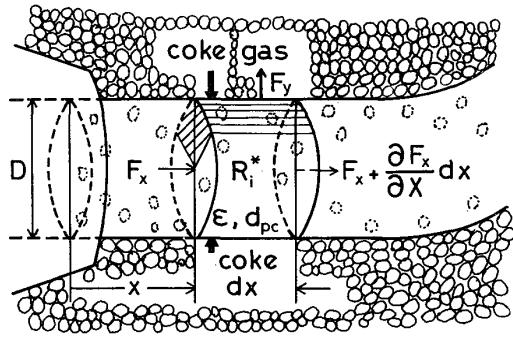


Fig. 1. Shematic view of combustion zone in front of a tuyere.

は、休風時の羽口先にコークス採取用の鋼管を打ち込んだ際にコークスが細粒化し、送風時に比べて小さめになつていると推察される。近藤ら²⁸⁾によるレースウェイ部のコークスの平均粒径は、吹きおろし時に落下したレースウェイ周辺部のコークスのために若干大きめになつていることが考えられる。これらを考慮すると、燃焼帶内におけるコークスの平均粒径は、各高炉によつて多少の差異はあるが、約 2 cm 程度であると推察される。

2.2 燃焼帶回りのガス流れ

最近、高炉内に複雑な抵抗配列を与えた場合のガス流れの数値解析^{31)~34)}が行われている。その場合の流れの基礎方程式は、(1)式の連続の式と多次元に拡張した(2)式の Ergun 式である。

$$\operatorname{div} \vec{F} = 0 \quad \dots \dots \dots \quad (1)$$

$$\operatorname{grad} P = -(f_1 + f_2 |\vec{F}|) \vec{F} \quad \dots \dots \dots \quad (2)$$

ここで、

$$f_1 = 150(1-\epsilon)^2 \mu M_g / \rho (\phi d_{pc})^2 \epsilon^3, \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

$$f_2 = 1.75(1-\epsilon) M_g^2 / \rho (\phi d_{pc}) \epsilon^3 \quad \dots \dots \dots \quad (3)$$

ここでは、羽口先の燃焼空間を空隙率の大きい充填層であるとみなして、その回りの軸対称流れを(1), (2)式

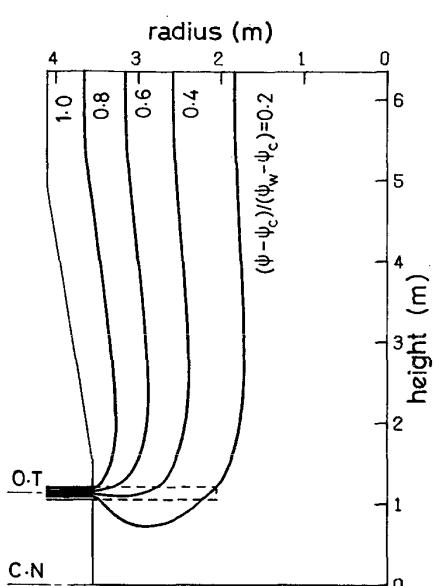
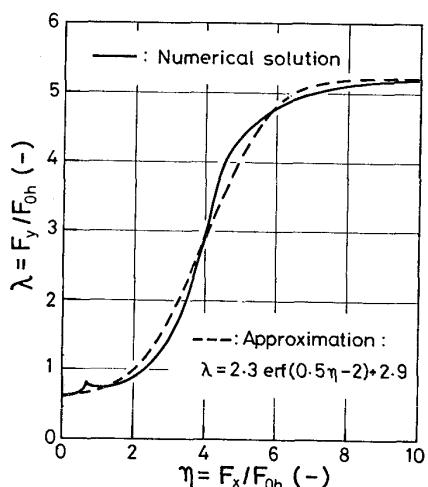


Fig. 2. Gas streamlines around combustion zone.

Fig. 3. Variations of F_y and F_x during the lateral percolation of gas through bed.

に基づいて解析する。計算手法の詳細は他報³⁵⁾に示すことにして、以下には、主に計算結果について述べる。

流れの解析にあたつて、以下のような計算条件を設定する。前節の検討結果に基づいて、Fig. 2 の破線に示すように、羽口前方には羽口径と同一の径をもつたジェット状の燃焼帯が奥行き 1.5m まで伸びており、その中では、 $d_{pe}=0.02\text{m}$, $\epsilon=0.6$, その周りでは $d_{pe}=0.04\text{m}$, $\epsilon=0.4$ のコークス充填層であるとする。

羽口から吸き込まれるガスのモル流量は

$$F_{0,1}=F_b\{1000(1+w_{O_2})/22.4+w_{st}/18\} \quad (4)$$

一方、羽口先での燃焼完了後のガスのモル流量は

$$F_{0,2}=F_b\{1000[0.79+2(0.21+w_{O_2})]/22.4+2w_{st}/18+w_{oil}\beta_H/2\} \quad (5)$$

いま、(4), (5)式の相加平均に相当する流量のガスが羽口から吹き込まれると仮定すると、炉床断面平均のガスのモル流束は次式で示される。

$$F_{oh}=2(F_{0,1}+F_{0,2})/\pi D_h^2 \quad (6)$$

なお、ガスの送風条件と炉体形状については、C1 高炉のデータ¹⁶⁾を基準条件として採用した。なお、同高炉は、後述の燃焼反応の解析の際にも対象にする炉である。

Fig. 2 は、羽口から流入するガスの流線についての数值計算結果を示している。同図から、側面から吹き込まれたガスは大部分が燃焼帶上部より流出することがわかる。この場合、燃焼帶上部の境界に沿う上方向流束 F_y と水平方向流束 F_x の間には Fig. 3 の実線で示すような関係がある。すなわち、 F_x の大きい炉の周壁部では F_y もある一定の大きな値になるが、 $F_x=0$ となる炉の中心軸近傍では、 F_y は炉床断面平均流速の 60% 程度で一定となつていて、Fig. 3 の破線は次の(7)式で表される誤差関数であり、この関数は実線についてのよい近似となつていて。

$$F_y/F_{oh}=2.3 \operatorname{erf}(0.5 F_x/F_{oh}-2)+2.9 \quad (7)$$

燃焼反応を考慮した場合にも、羽口先端からの距離ごとに、 F_y と F_x の間には近似的に(7)式の関数が成立すると仮定する。前述のように、燃焼帶の周囲からのガスの流出は上下方向で非対称であるが、さらに周方向のガスの流出の不均一性をも考慮して、燃焼帶の全外表面積に対するガスの有効流出面積の比を ξ で表す。従来のレースウェイ境界の安定条件についての力学的モデルでは $\xi=1/2\pi=0.16^{36)}$ あるいは $\xi=3/8=0.38^{37)}$ と仮定されている。ここでは、 $\xi=0.25$ と仮定することにし、後述の燃焼帶反応モデルでは、 ξ の感度についても検討する。

2.3 燃焼反応機構

Fig. 1 に示すように、羽口先端から断面積が不变のまま水平方向に伸びたジェット状の燃焼帶空間を想定する。その燃焼帶内では、次の(8-1)～(8-4)式に示す反応が、それぞれ独立に起こつていると仮定する。



上記の反応以外には、水性ガス変換反応 ($\text{CO}+\text{H}_2\text{O} \longrightarrow \text{CO}_2+\text{H}_2$) が考えられるが、この反応による水蒸気の還元速度は、シャフト部のような低温域では(8-3)の反応より速い³⁸⁾が、羽口先のような高温域では、赤熱コークスによる(8-3)の反応の方が優勢となる。また、水性ガス変換反応では金属酸化物の触媒が必要とされる

が、燃焼帯回りではガス流の作用によつて融液が排除されは、いわゆるドライゾーンが形成される³⁹⁾ために、燃焼帯へ流入する酸化鉄触媒はごく微量であると推察される。上記の理由により、ここでは、水性ガス変換反応を無視する。

燃焼帯内の各ガス成分： O_2 ， CO_2 ， H_2O ， CO ， H_2 ， N_2 のモル濃度とモル分率を、それぞれ、 C_i ， y_i ($i=1 \sim 6$) とするとき、反応による消失速度 r_i は反応 (8-1) ～ (8-4) の総括反応速度 R_i^* ($i=1 \sim 4$) を用いて次式で表される。

$$r_i = -\varepsilon dC_i/d\theta = -\varepsilon d(\bar{P}y_i/RT_g)/d\theta, \quad (i=1 \sim 5),$$

$$r_1 = R_1^* + (1/2)R_4^*, \quad r_2 = -R_1^* + R_2^*,$$

$$r_3 = -r_5 = R_3^* - R_4^*, \quad r_4 = -2R_2^* - R_3^* \dots (9)$$

ここで、 R ：気体定数 ($J/mol \cdot K$)， \bar{P} は燃焼帯内の平均のガス圧力である。羽口先奥行き方向へのガス圧力の変化は、STARSHINOV ら¹¹⁾ や INATANI ら¹⁶⁾ の測定では小さく、 \bar{P} としては羽口先圧力を採用して差し支えないと思われる。しかし、比較的大きな変化が観測された場合¹⁷⁾ があるので、なお検討の余地があるものと推察される。

反応 (8-1) ～ (8-3) の平衡定数は、羽口先の条件下では非常に大きいために、各反応は常に正方向へ進行すると考えてよい。これらの反応は各反応ガスに関する 1 次不可逆反応として表されることが、それぞれ、HOTTEL ら⁴⁰⁾， HEDDEN⁴¹⁾， 功刀ら⁴²⁾ によって報告されている。

したがつて、

$$R_i^* = k_i C_i, \quad (i=1 \sim 3) \dots (10)$$

ここで、 k_i は化学反応、細孔内拡散、流体境膜内拡散の各抵抗を考慮した総括反応速度定数 ($1/s$) であり、その推算式は次節で示す。

一方、(8-4) 式に示す水素ガスの燃焼は気相連鎖反応であり、通常は他の (8-1) ～ (8-3) 式の反応に比べて極めて迅速に進行する。そのため、(8-3) 式の反応で生成した H_2 は瞬間に水蒸気に転化すると考えられる。ただし、この反応の平衡定数 K_4 は燃焼の焦点のような高温になると急激に低下する。すなわち、燃焼帯内での O_2 がある臨界濃度 y_1^* 以下に減少すると、 $K_4 \leq y_3/y_5 (\bar{P}y_1)^{1/2}$ の関係を満足して、 H_2 の燃焼は停止すると考えられる。実際、従来報告された燃焼帯内の H_2 濃度の調査結果^{6) 7) 10) 11) 13) 16)} では、いずれも、 O_2 が約 5% 以下になつた後に H_2 が検出され始めるこことを示している。そこで、反応 (8-4) の反応速度を次式で与える。

$$y_1 \geq y_1^* \text{ では } R_4^* = R_3^*, \quad y_1 < y_1^* \text{ では } R_4^* = 0 \dots (11)$$

2.4 総括反応速度定数の推算

(10) 式で表すような 1 次反応を伴う多孔質固体の充填

層では、総括反応速度定数は次式で示される。

$$k_i = 1/(1/k_{f,i}a + 1/\eta_i k_{m,i} \rho_{bc}), \quad (i=1 \sim 3) \dots (12)$$

ここで、 η_i ：触媒有効係数 ($i=1 \sim 3$) (−)，燃焼体内コーカスの比表面積 $a (m^2/m^3(\text{bed}))$ と充填層のかさ密度 $\rho_{bc} (kg/m^3)$ は、それぞれ、

$$a = 6(1-\varepsilon)/\phi d_{pc}, \quad \rho_{bc} = \rho_{pc}(1-\varepsilon) \dots (13)$$

で表される。なお、コーカスの形状係数 ϕ (−) は 0.64 程度⁴³⁾ である。

(1) 境膜物質移動係数

(8-1) ～ (8-3) 式の反応において、境膜内拡散によつてコーカス表面に到達する反応ガスの物質移動係数 $k_{f,i}$ は次式から求められる。

$$k_{f,i} = (D_i/\phi d_{pc}) Sh, \quad (i=1 \sim 3) \dots (14)$$

シャーワッド数 Sh の推算には次の実験式²⁷⁾ を採用する。

$$Sh = 1.5 Re_p^{0.55} \dots (15)$$

ここで、燃焼帯内の粒子レイノルズ数は次式で与える。

$$Re_p = \phi d_{pc} |\vec{F}| \sum_{i=1}^6 M_i C_i / \mu \sum_{i=1}^6 C_i,$$

$$|\vec{F}| = (F_x^2 + F_y^2)^{1/2} \dots (16)$$

混合ガスの粘性係数 μ は、各ガス成分についての粘性係数 μ_i ($i=1 \sim 6$) を用いて、次の(17)式⁴⁴⁾ から推算できる。

$$\mu = \sum_{i=1}^6 \mu_i y_i M_i^{1/2} / \sum_{i=1}^6 y_i M_i^{1/2} \quad (kg/m \cdot s) \dots (17)$$

なお、 μ_i には SUTHERLAND⁴⁵⁾ の温度関数式を適用した。

反応ガスの拡散係数は次の(18)式⁴⁶⁾ で与える。

$$D_i = A_{d,i} \times 10^{-15} T_m^{b_i} / \bar{P} \dots (18)$$

ここで、各反応ガス成分： O_2 ， CO_2 ， H_2 ごとの係数の組 ($A_{d,i}$ ， b_i) は、それぞれ、(9.59, 1.75)，(1.83, 2.0)，(11.8, 1.75) となる。

(2) 化学反応速度定数

(8-1) 式の反応速度定数としては、HOTTEL ら⁴⁰⁾ が単一の炭素粒子について得た燃焼速度式を、充填層単位容積当たりの速度に換算することにより次の(19)式が得られる。

$$k_{m,1} = 6.53 \times 10^5 (a/\rho_{bc}) \sqrt{T_m} \exp(-22140/T_m) \dots (19)$$

(8-2) 式の反応については、HEYNERT ら²⁷⁾ はコーカス充填層での Boudouard 反応速度を測定して、その速度式を提出した。彼らの測定による活性化エネルギーは $3.3 \times 10^5 J/mol$ であるが、PETER⁴⁷⁾ によれば、工業用コーカスではより小さく、 $(2.1 \sim 2.9) \times 10^5 J/mol$ であ

る。したがつて、HEYNERT の速度式の活性化エネルギーに工業用コーカスでの平均値を適用すると次式が書ける。

$$k_{m,2}=8.31 \times 10^9 \exp(-30190/T_m) \dots\dots\dots(20)$$

(8-3) の反応速度については、著者ら²⁸⁾は功刀ら⁴²⁾の測定データを整理して次式を提出している。

$$k_{m,3}=13.4 T_m \exp(-17310/T_m) \dots\dots\dots(21)$$

(3) 触媒有効係数

コーカスに関する不均一反応 (8-1)～(8-3) 式は、(10)式に示すように1次反応の形で表されるので、触媒有効係数 η は次のように示される。

$$\eta_i=3(m_i \cdot \cot m_i - 1)/m_i^2, (i=1 \sim 3) \dots\dots\dots(22)$$

ここで、Thiele modulus(m_i) は

$$m_i=(\phi d_{pc}/2)(\rho_{bc} k_{m,i}/\varepsilon_c \xi_c D_i)^{1/2} \dots\dots\dots(23)$$

迷宮度 ξ_c は次の(24)式²⁸⁾から推算できる。

$$\xi_c=0.04+0.238\varepsilon_c \dots\dots\dots(24)$$

ただし、HEYNERT ら²⁷⁾は(8-2)式の反応速度を有効係数を考慮した(12)式に基づいて検討しているのに対し、HOTTEL ら⁴⁰⁾は(8-1)式の反応速度を $\eta_1=1$ として検討して速度定数を求めている。また、功刀ら⁴²⁾も後者の立場から反応速度を検討している。したがつて、ここでは、Boudouard 反応の場合を除き有効係数は 1 ($\eta_1=\eta_3=1$) と仮定する。

2.5 物質および熱移動過程

ここでは、前述のように、燃焼帯は羽口前方へ断面一定のまま伸びたジェット状の空間であり、その中に含まれるコーカスの平均粒径は約 0.02m、空隙率は 0.6 程度の粗な充填層であると仮定する。なお、Fig. 1 に示すように、羽口先端からの距離が $x \sim (x+dx)$ の区間に内にある微小燃焼帯部分について、物質および熱の保存則を適用する。

(1) 物質収支

Fig. 1 に示すように、羽口から吹き込まれたガスは反応しながら、燃焼帶奥行き方向へとモル流束 F_x （空塔基準）で流入してゆくが、その一部は燃焼空間の回り、とくに上部へモル流束 F_y で流出している。燃焼帯の全外表面積に対するガスの有効流出面積の比 ξ は、2.2 節で前述したように $\xi=0.25$ と仮定する。このとき、混合ガスについての微分物質収支から次式が得られる。

$$-dF_x/dx=4F_y\xi/D+\sum_{i=1}^5 r_i \dots\dots\dots(25)$$

ここで、 F_y と F_x の間には近似的に(7)式の関係が成立すると仮定する。

次に、各ガス成分について物質収支を行うと

$$-d(y_i F_x)/dx=(4F_y\xi/D)y_i+r_i, (i=1 \sim 5) \dots\dots\dots(26)$$

が書ける。(25)式と(26)式から、羽口先奥行き方向に

おけるガス組成分布に関する基礎式として(27)式が得られる。

$$dy_i/dx=(y_i \sum_{i=1}^5 r_i - r_i)/F_x, (i=1 \sim 5) \dots\dots\dots(27)$$

(2) 熱収支

燃焼带回りでは、反応消失によつて起こるコーカスの降下とガスの流れに伴つて顯熱が移動する。このような物質移動に伴う顯熱移動に加えて、コーカス粒子とガス間の熱交換、および、反応熱を考慮して微分熱収支を行うと次の(28)式が得られる。

$$-d(c_g T_g F_x)/dx=4F_y\xi c_g T_g /D \\ -c_e T_e \sum_{i=1}^3 R_i^* - \sum_{i=1}^4 R_i^* (-\Delta H_i) + h_p a (T_g - T_e) \\ \dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots(28)$$

(25)式と(28)式から、温度分布に関する基礎式として(29)式が得られる。

$$dT_g/dx=\{c_g T_g \sum_{i=1}^5 r_i + c_e T_e \sum_{i=1}^3 R_i^* + \sum_{i=1}^4 R_i^* (-\Delta H_i) \\ - h_p a (T_g - T_e)\} / F_x (c_g + T_g d c_g / d T_g) \dots\dots\dots(29)$$

燃焼帯へ流入するコーカスの温度 T_e について、RAMM⁴⁸⁾は羽口先の理論燃焼温度の推算式を作成する際、 $T_e=0.75T_g$ と仮定した。しかし、最近になつて、羽口先コーカスの粒子温度を黒鉛化度から推定した結果^{19)～21)23)}、燃焼帯には 2273K のような高温の粒子が存在する場合があることが見いだされた。このことは、 T_e と T_g の間に線形的な関係があると仮定するとき、その比例係数は 0.75 より大きくなることを示唆している。そこで、ここでは、任意の奥行き x において、次の関係を仮定する。

$$T_e=0.80T_g \dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots(30)$$

(3) 热的物性値の推算

羽口先におけるコーカスの燃焼過程の一つの特徴は、急速な反応進行とともに大きな発熱あるいは吸熱を伴うことである。そのため、燃焼帯の反応モデルを開発する場合、比熱、反応熱などの熱的物性値は、温度またはガス組成の関数として表現しておく必要がある。混合ガスの平均比熱 c_g は、各ガス成分の平均比熱 $c_{g,i}$ を用いて次式で表される。

$$c_g=\sum_{i=1}^6 y_i c_{g,i} \dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots\dots(31)$$

ここで、 $c_{g,i}$ の温度関数式は、PERRY⁴⁹⁾の真比熱データを温度区间(273K～ T_g)にわたつて積分平均して求めた。コーカスの平均比熱 c_g は、グラフアイトについての PERRY の真比熱データから平均比熱を求め、これを近似式として採用したが、コーカス灰分が 10% 程度

以下の場合にはこの近似は許される。PERRY⁴⁹⁾の比熱と生成データを用いて、反応熱 ($-4H_i$) ($i=1 \sim 4$) の温度関数式を得た。

なお、 h_p の推算には、充填層についての白井⁵⁰⁾の(32)式を使用した。

$$\epsilon Nu = 2.0 + 0.75 Pr^{1/3} Re_p^{1/2} \quad \dots \dots \dots (32)$$

ここで、 Nu ：ヌッセルト数、 Pr ：プラントル数である。

(4) 境界条件

7元連立の一階非線形常微分方程式、(25)、(27)、(29)式の数値解を求める際、必要とされる羽口先端 ($x=0$)での境界条件を以下に示す。各羽口先端でのガスのモル流束 F_{x0} は、(4)式に示した吹き込みガスのモル流量 $F_{0,1}$ および羽口本数 $n(-)$ を用いて表すと

$$F_{x0} = F_{0,1}/(\pi D^2 n/4) \quad \dots \dots \dots (33)$$

羽口先ガス組成 y_{i0} ($i=1 \sim 5$) についての条件は、

$$y_{10} = (1 - y_{30})(0.21 + w_{O_2})/(1 + w_{O_2}), \\ y_{20} = y_{40} = y_{50} = 0, \quad y_{30} = w_{st}/\{w_{st} \\ + 1000(1 + w_{O_2})/1.244\} \quad \dots \dots \dots (34)$$

羽口先端でのガス温度には送風温度を与える。

$$T_{g0} = T_b \quad \dots \dots \dots (35)$$

2.6 コーカスの消費速度

各羽口先で燃焼するコーカスの全消費速度は、送風ガスに含まれる酸素原子の炉内供給速度によって決定され、次式で与えられる。

$$w_t = (F_b/n) \{2(0.21 + w_{O_2})/0.0224 \\ - w_{oil}\beta_c/12 + w_{st}/18\} \quad \dots \dots \dots (36)$$

一方、燃焼帯の単位容積当たりのコーカスの消費速度は

$$w = \sum_{i=1}^3 R_i^* \quad \dots \dots \dots (37)$$

のように表される。(37)式からコーカスの消費速度の羽口先の奥行き方向分布が求められる。

3. 計 算 結 果

前節に記述したモデルを Runge-Kutta-Gill 法によつて解いた。(計算には名古屋大学大型計算機センター M-200 電子計算機を使用した。)

以下の計算において、下記のような C1 高炉での操業条件¹⁶⁾を基準条件として採用した。

$$F_b = 24.7 \text{ Nm}^3/\text{s}, \quad T_b = 1273 \text{ K}, \quad w_{oil} = 0 \text{ g/Nm}^3, \\ w_{O_2} = 0, \quad w_{st} = 24 \text{ g/Nm}^3, \quad \bar{P} = 0.188 \text{ MPa}, \\ n = 16, \quad D = 0.16 \text{ m}, \quad \rho_{pc} = 1000 \text{ kg/m}^3$$

C1 高炉の炉床径は 7.2m であり、Fig. 2 にはその炉下部形状が示されている。

INATANI ら¹⁶⁾は、C1 高炉の羽口先で、水蒸気を除い

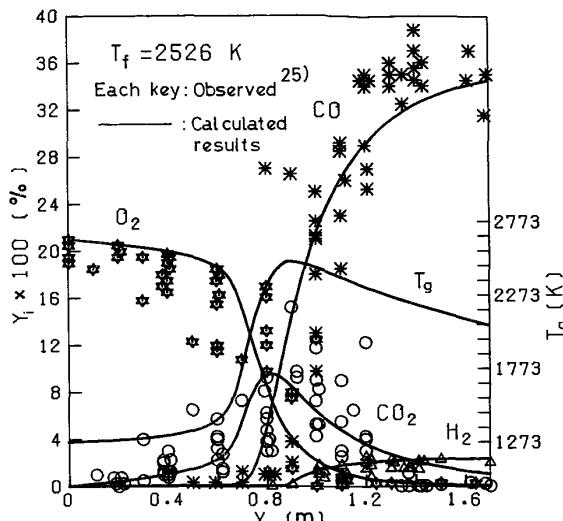


Fig. 4. Variations of gas composition and gas temperature in the axial direction of tuyere zone. Plotted data were observed by INATANI et al.²⁵⁾.

たガス組成の分布を測定しており、それらの実測値を Fig. 4 にプロットした。その分布の傾向は、たとえば、 LENNINGS⁶、 MENUET·GUILBAUD⁷、 RYAZANOV ら⁹の実測結果とも類似している。実測データのばらつきは、主に、レースウェイ境界壁の不安定性や、燃焼帶内のコーカスの平均粒径の時間的変動 (Table 1 参照) に帰因すると考えられる。Fig. 4 の実線は、本モデルから推算した C1 高炉のガス組成とガス温度の分布であり、計算値と実測値はかなりよく一致している。

物質収支に基づいて燃焼反応完了後の CO_2 、 CO 、 H_2 の組成を推算すると、それぞれ、 $y_2=0$ 、 $y_4=0.354$ 、 $y_5=0.024$ となる。一方、燃焼モデルから計算した $x=1.7$ m におけるガス組成をこれらの組成と比較すると、 H_2 についてはほとんど一致するが、 CO_2 が若干高め、 CO が逆に若干低めになっている。この傾向は、 $x \geq 1.2$ m において認められる。このことは、燃焼带の奥でガスの燃焼能力が低下したこの領域では、Boudouard 反応の速度が実際には計算値より若干速いことを示唆している。

O_2 ガスによるコーカスの燃焼が活発になると、吹き込まれたガスの温度は急激に上昇するが、引き続いて起こる Boudouard 反応の吸熱作用のために燃焼帶の奥では再度低下するために、ガス温度の最高値 (T_{max}) が現れる。燃焼帶に関する従来の測温結果のうち、KORNER ら¹⁵と羽田野ら¹⁷は、Fig. 4 と同様に、 T_{max} の前後で温度が急激に変化することを見だしている。一方、羽口先から急速に温度が上昇し、高温域が拡大した測定例¹⁴⁾¹⁶⁾もあるが、この場合には、羽口プローブを用いて測温する際に T_{max} の領域からの放射伝熱が影響してい

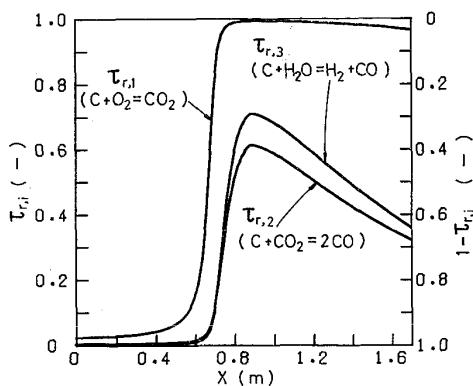


Fig. 5. Variations of rate-determining step of coke combustion process in the axial direction of tuyere zone.

た可能性もある。Fig. 4 の図中に示した T_f は理論燃焼温度であり、次式⁵¹⁾によつて算出した。

$$T_f = 1603 + 0.839 T_b - 6.033 w_{st} - 4972 (w_{o11}/1000 - w_{o2}) \quad \dots \dots \dots (38)$$

Fig. 4 から、 T_f は近似的に T_{max} に等しくなると推定される。

(8-1)～(8-3)式に示したコークスの各燃焼反応において、総括的な反応抵抗に対する境膜内拡散抵抗の比率を(39)式で定義する。

$$\tau_{r,i} = (1/k_{f,i}a) / (1/k_{f,i}a + 1/\eta_i k_{m,i} \rho_{bc}), \quad (i=1 \sim 3) \quad \dots \dots \dots (39)$$

したがつて、 $(1-\tau_{r,i})$ は、細孔内拡散を含む化学反応の抵抗比率を表していることになる。Fig. 5 は、コークスとの各反応についてこれらの値の燃焼帶の奥行き方向への分布を示している。どの反応においても、境膜内拡散抵抗は羽口先端に近い領域で無視できる程度に小さいが、 T_{max} で現れる付近で急激に増大し、その後再び低下するような分布を示している。 $C + O_2$ の反応の場合は、 T_{max} の領域より奥では境膜内拡散律速を仮定しても差し支えないが、 H_2O や CO_2 との反応では、 T_{max} の近傍でも境膜抵抗の比率は 60～70% にすぎない。

Fig. 6 は、燃焼帶内におけるコークスの消費速度 $w(x)$ 、 w に対するコークスの各燃焼反応寄与率 $\tau_{w,i}$ 、および、燃焼帶において消費される全コークス量 w_t に対する羽口先端からの累積のコークス消費量 $\tau_{w,t}$ の各分布を示している。ただし、 $\tau_{w,i}$ と $\tau_{w,t}$ は次のように定義する。

$$\tau_{w,i} = R^*/w, \quad (i=1 \sim 3) \quad \dots \dots \dots (40)$$

$$\tau_{w,t} = \{(\pi D^2/4) \int_0^x w dx\} / w_t \quad \dots \dots \dots (41)$$

ここで、 R^* 、 w 、 w_t は、それぞれ、(10)式、(37)式、(36)式で示されている。 w の分布から、コークスの消費は T_{max} 近傍の比較的狭い領域において活発に起こること

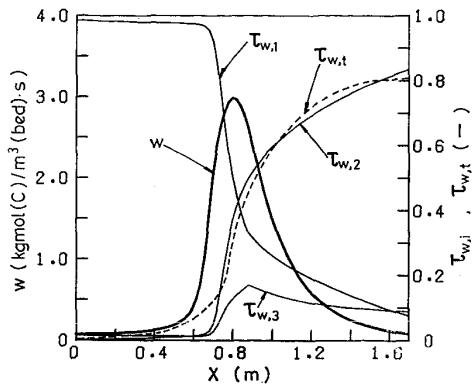


Fig. 6. Variations of coke consumption in the axial direction of tuyere zone and the fractional contribution of each reaction to coke consumption.

とがわかる。燃焼帶で消滅したコークスは、ほとんどが上部から供給されると考えられるので、燃焼帶中間部の比較的狭い領域で降下速度が大きくなることが推察される。羽田野ら¹⁷⁾は、実物大の実験炉における石灰石マーカーの動きから、類似した現象を見いただしている。 $\tau_{w,i}$ の分布から、羽口から吹き込まれたガスによるコークスの消費は、前半は主に O_2 によって、後半は CO_2 による Boudouard 反応によつて行われ、両者の寄与がほぼ等しくなる位置付近で w は最大となることがわかる。

燃焼帶で水蒸気によつてガス化したコークス量とガス化した全コークス量との比率を総括物質収支に基づいて計算すると、この場合には 6.6% になるが、水蒸気による反応は後半に活発となるために、 $\tau_{w,3}$ は後半に 0.10 程度にまで達してほぼ一定となつてゐる。 $\tau_{w,t}$ の分布が燃焼帶の奥で 0.80 程度となつて飽和することは、羽口から供給された酸素原子のうち約 20% は燃焼帶周囲のコークス充填層で消費されることを示している。

Fig. 7 は、酸素富化送風がガス組成とガス温度の分布に及ぼす効果を示している。図中の実線は、基準条件(破線)に対して酸素富化率を 2% 上昇させた場合の分布を示している。この場合、理論燃焼温度 T_f は基準条件の場合に比べて約 100K 上昇することになるが、 T_{max} の領域より奥では一様に、この程度の温度上昇がみられる。酸素富化率の増加に伴つてコークスの燃焼速度が増すために、ガス組成が変化する位置と T_{max} の領域は 0.15～0.20m 程度羽口側へ近づいてゐる。このような傾向は、羽田野ら¹⁷⁾の実測結果とも一致する。また、LUKASHOV ら⁵²⁾は、酸素富化をするとレースウェイが若干小さくなると述べている。

Fig. 8 は、増湿送風におけるガス組成と温度の分布を示している。ここでは、水蒸気添加率を 14 g/Nm³ だけ上昇させ、 T_f を基準条件の場合と同一水準に維持する

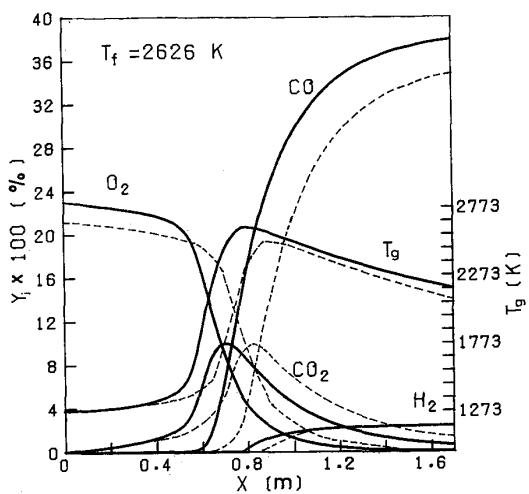


Fig. 7. Effect of oxygen enrichment on the variations of gas composition and gas temperature in the axial direction of tuyere zone.

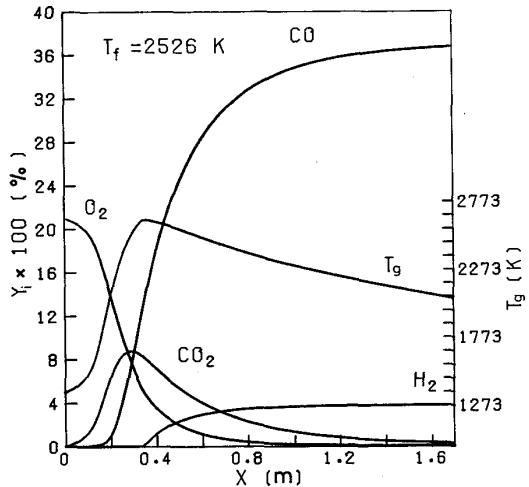


Fig. 8. Variations of gas composition and gas temperature in the axial direction of tuyere zone at high-temperature and high-humidity blowing operation.

ために送風温度を基準条件よりも 100K だけ増加させている。この場合、Fig. 8 に示されるように、羽口直前から急激に反応が進行しており、 T_{\max} の領域が羽口にかなり近づいている。Fig. 8 の分布と、送風温度だけを 100K 上昇させた場合の結果とを比較したところ、両者の間の差異は H_2 の分布を除いて小さかつた。このことから、増湿送風では送風温度上昇の効果が顕著であることが推察される。高温送風において T_{\max} の領域が羽口に近づく現象は、KOVAL⁸⁾ や中村ら⁵⁾ によつても観測されている。KOTOV ら¹³⁾ は、送風湿分だけを変化させた場合には燃焼帯内のガス組成分布の変化が小さいことを認めている。

Fig. 9 は、送風条件の変更が燃焼帯におけるコークス

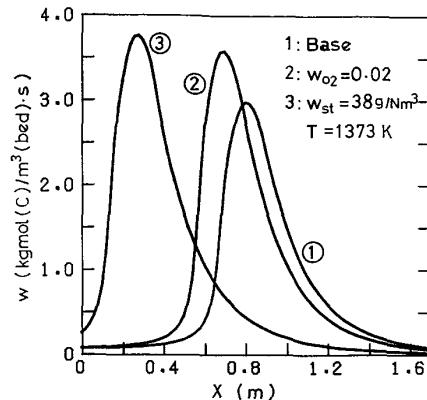


Fig. 9. Effect of blast conditions on the variations of coke consumption in the axial direction of tuyere zone.

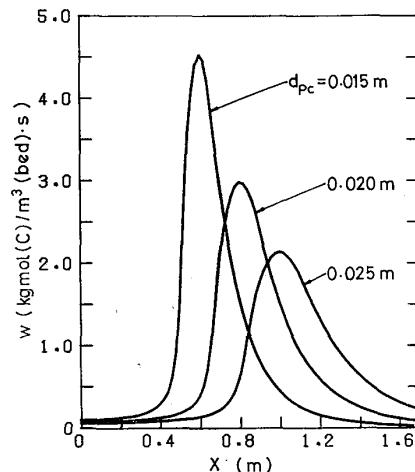


Fig. 10. Effect of coke diameter on the variations of coke consumption in the axial direction of tuyere zone.

の消費速度 w の分布に及ぼす効果を示している。基準条件における w の分布に比べて、酸素富化送風や増湿送風では w が最大となる位置が羽口側へ移行するため、炉内周辺部における装入物の降下速度が増加することが推察される。この効果は、増湿送風において特に顕著であるが、コークスの消費が活発に起こる領域は狭くならない。これは H_2O によるガス化反応が燃焼帯奥でのコークス消費を補償するためである。

Fig. 10 は、送風条件を一定とするときに、燃焼帯内コークスの平均粒径 d_{pc} が w の分布に及ぼす効果を示している。同図から、 d_{pc} が 5 mm 低下すると、 w が最大となる位置が羽口側へ約 0.2m 移行することがわかる。なお、 d_{pc} の減少に伴つて、コークスの消費は一層狭い領域で促進されている。微粉が発生しやすい反応性の高いコークスを使用した場合にはレースウェイ深さが減少するという実験結果^{12) 19)}は、このようなコークスでは燃焼帯内で d_{pc} が小さくなつて上述のような効果が現れることと関係づけられる。

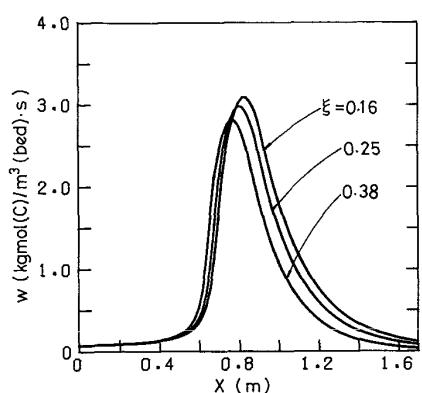


Fig. 11. Effect of parameter (ξ) on the predicted coke consumption in the axial direction of tuyere zone.

4. 結 言

本研究では、羽口先燃焼帯で不均一ガス流れを考慮した熱と物質の微分収支に基づいて、燃焼反応モデルを開発した。そして、従来他の研究者によつて燃焼帯のガス組成が測定されている実用高炉について解析を行つた結果、実測値と計算値はよく一致した。本モデルによる数値解析結果から次のことが明らかとなつた。

(1) 燃焼帯の反応では、各反応抵抗を考慮する必要があり、通常、境膜内拡散律速とみなすことはできない。

(2) コークスの消費は、主に、燃焼帯中間部の比較的狭い領域で起こる。

(3) 酸素富化送風や増湿送風を行う場合には、最高のガス温度の位置、および、コークスの消費速度が最大となる位置は、ともに羽口に近づく。

(4) 燃焼帯内のコークスの粒子径が減少すると、コークスの消費速度が最大となる位置が羽口側へ近づく。

本モデルは、所要の計算時間が短い（大型電算機で一計算例につき約 1 s）ので、本モデルは羽口先燃焼状況の診断モデルとして、また、燃焼帯を組み込んだ高炉プロセスモデルの構成要素として利用できると推察される。

[付録] 燃焼帯からのガスの有効流出面積比 ξ の感度 ξ はモデルパラメータというより本来は正確に測定されるべき物理量であるが、前述（2.2 節）のように、不確実性があるため、ある代表値を設定せざるを得ない現状であり、本モデルでは $\xi=0.25$ を採用した。燃焼反応モデルの計算結果に及ぼす ξ の感度を Fig. 11 に示す。この図から、 ξ が減少すると、コークスの消費速度やガス組成の分布が燃焼帯の奥の方へ移行するが、 ξ の値の変化から判断して、移行の程度は比較的小さいものと推察される。

記 号

C_i : ガス成分 i のモル濃度	(mol/m ³ (bed))
c_e : コークスの平均比熱	(J/mol·K)
c_g : 混合ガスの平均比熱	(J/mol·K)
$c_{g,i}$: ガス成分 i の平均比熱	(J/mol·K)
D : 羽口径	(m)
D_h : 炉床径	(m)
D_i : ガス成分 i の拡散係数	(m ² /s)
d_{pe} : レースウェイ内のコークスの平均粒子径 (m)	
\vec{F} : ガスのモル流束ベクトル	(mol/m ² ·s)
F_b : 乾送風量	(Nm ³ (dry air)/s)
F_{bh} : 炉床断面平均のガスのモル流束 (mol/m ² ·s)	
F_x : 羽口軸方向のガスのモル流束 (mol/m ² ·s)	
F_y : 羽口軸に垂直な方向のガスのモル流束 (mol/m ² ·s)	
h_p : 粒子・流体間の伝熱係数 (W/m ² ·K)	
$k_{f,i}$: 境膜物質移動係数 (m/s)	
$k_{m,i}$: 化学反応速度定数 (m ³ /kg·s)	
M_g : 混合ガスの分子量 (kg/mol)	
M_i : ガス成分 i の分子量 (kg/mol)	
P : ガス圧力 (Pa)	
\bar{P} : レースウェイ内のガスの平均圧力 (Pa)	
R^* : 総括反応速度 (mol/m ³ (bed)·s)	
r_i : i 成分の消失速度 (mol/m ³ (bed)·s)	
T_b : 送風温度 (K)	
T_c, T_g : コークスとガスの温度 (K)	
T_f : 理論燃焼温度 (K)	
T_m : 境膜内の平均温度 ($T_m=(T_g+T_c)/2$) (K)	
w : 炭素の消費速度 (mol(C)/m ³ (bed)·s)	
w_{O_2} : 酸素富化率 (Nm ³ (O ₂)/Nm ³ (dry air))	
w_{oil} : 重油添加比 (g(oil)/Nm ³ (dry air))	
w_{st} : 送風湿度 (g(H ₂ O)/Nm ³ (dry air))	
w_t : 羽口一本当たりの炭素の全消費速度 (mol(C)/s)	
x : 羽口先端からの距離 (m)	
y_i : ガス成分 i のモル分率 (—)	
β_C, β_H : それぞれ、重油中の炭素、水素の重量分率 (—)	
ρ_{pe} : コークスのみかけ密度 (kg/m ³)	
$\tau_{r,i}, \tau_{w,i}, \tau_{w,t}$: それぞれ(39)式、(40)式、(41)式で定義した因子 (—)	
ϕ : 流れの関数 (—)	
ϕ_c, ϕ_w : それぞれ、炉軸、炉壁上の流れの関数	
[添字] 0 : 羽口先端, i : ガス成分 ($i=1: O_2, 2: CO_2, 3: H_2O, 4: CO, 5: H_2, 6: N_2$)	

文 献

- 1) J. B. WAGSTAFF: J. Metals, 5 (1953), p. 895
- 2) M. GREUEL, F. W. HILLNHÜTTER, and H. KISTER: Stahl u. Eisen, 94 (1974), p. 553
- 3) 館充、桑野芳一、鈴木吉哉、張東植、呉平男、松崎幹康: 鉄と鋼, 62 (1976), p. 495
- 4) 田島治、佐野和夫、宮崎孝雄、西尾浩明、有山達郎: 学振 54 委提出資料, No. 1445 (1978)

- 5) G. S. PEROTT and S. P. KINNEY: Trans. AIME, 69 (1923), p. 543
- 6) W. LENNINGS: Arch. Eisenhüttenw., 1 (1928), p. 549
- 7) B. MENUET-GUILBAUD: Rev. Met., 54 (1957), p. 217
- 8) F. KOVAL': Stal in Eng., (1959), p. 421
- 9) F. F. RYAZANOV, P. G. NETREBKO, V. L. POKRYSHKIN, D. S. YALOVOI, L. P. BRUSOV, and G. B. RABINOVICH: Stal in Eng., (1959), p. 642
- 10) Z. I. NEKRASOV and F. N. MOSKALINA: Stal in Eng., (1962), p. 664
- 11) B. N. STARSHINOV, V. D. SINITSKII, M. V. LAVRENT'EV, and I. V. KOTEL'NIKOV: Stal in Eng., (1962) p. 749
- 12) 児玉惟孝, 重見彰利, 緒方年満, 堀尾竹弘: 鉄と鋼, 48 (1962), p. 1551
- 13) K. I. KOTOV, M. D. ZHEMBUS, and V. Yu. TSYMBALYUK: Stal in Eng., (1965), p. 85
- 14) 下間照男: 鉄と鋼, 52 (1966) 3, p. 323
- 15) V. K. KORNEV, A. A. FOFANOV, B. L. LAZAREV, Yu. S. BORISOV, A. E. PAREN'KOV, B. D. YANTSEN, and N. F. FROLOV: Stal in Eng., (1967), p. 279
- 16) T. INATANI, T. FUKUTAKE, and K. OKABE: Der Hochofenprozess Hersg. Vom Verein Deutscher Eisenhüttenleute, Düsseldorf, (1973), p. 114
- 17) 羽田野道春, 平岡文章, 福田充一郎, 増池 保: 鉄と鋼, 62 (1976), p. 505
- 18) 清水政治, 長井 保, 岡部俠児, 近藤幹夫, 稲谷 稔宏: 鉄と鋼, 58 (1972), p. 589
- 19) N. NAKAMURA, Y. TOGINO, and M. TAKEOKA: Ironmaking & Steelmaking, 5 (1978), p. 1
- 20) 西 徹, 原口 博, 美浦義明, 桜井 哲: 鉄と鋼, 65 (1979), S 80
- 21) 石川 泰, 稲垣憲利, 山田寛之, 木村 淳, 矢動 丸成行: 鉄と鋼, 65 (1979), S 529
- 22) 神原健二郎, 萩原友郎, 重見彰利, 近藤真一, 金山有治, 若林敬一, 平本信義: 鉄と鋼, 62 (1976), p. 535
- 23) 近藤幹雄, 小西行雄, 森岡恭昭, 富田貞雄, 橋爪 繁幸: 鉄と鋼, 65 (1979), S 597
- 24) 田村健二: 製鍊化学工学演習, 鞭巖編著, (1974), p. 81 [養賢堂]
- 25) 中村正和, 杉山 喬, 鵜野建夫, 原 行明: 鉄と鋼, 62 (1976), S 336
- 26) M. A. MAYERS: Trans. ASME, 59 (1937), p. 279
- 27) G. HEYNERT and J. WILLEMS: Stahl u. Eisen, 79 (1959), p. 1545
- 28) 鞭 巖, 八木順一郎, 田村健二, 森山 昭: 日本金属学会誌, 30 (1966), p. 826
- 29) 中村正和, 杉山 喬, 鵜野建夫, 原 行明, 近藤 真一: 鉄と鋼, 63 (1977), p. 28
- 30) 近藤真一, 中村正和, 杉山 喬, 鵜野建夫: 学振54委提出資料, No. 1316 (1974)
- 31) 桑原 守, 近松栄二, 立川真司, 鞭 巖: 鉄と鋼, 64 (1978), S 5
- 32) 大野陽太郎, M. S. SHNEIDER: 鉄と鋼, 64 (1978), S 31
- 33) 武田幹治, 八木順一郎, 大森康男: 鉄と鋼, 65 (1979), S 566
- 34) M. A. PROPSTER and J. SZEKELY: Ironmaking and Steelmaking, (1979), p. 209
- 35) 桑原 守, 近松栄二, 立川真司, 鞭 巖: 鉄と鋼, 投稿予定
- 36) J. SZEKELY and J. J. POVEROMO: Met. Trans., 6B (1975), p. 119
- 37) I. N. ZAKHAROV, Yu. V. YAKOVLEV, and V. S. NOVIKOV: Izv. VUZov, Cher. Met., (1977), p. 15
- 38) N. L. GOL'DSHTEIN and N. S. KHROMCHENKO: Stal in Eng., (1965), p. 172
- 39) 中込倫路, 桑野芳一, 館 充: 鉄と鋼, 61 (1975), S 385
- 40) A. S. PARKER and H. C. HOTTEL: Ind. Eng. Chem., 28 (1936), p. 1334
- 41) K. HEDDEN: Chem. Ing. Tech., 30 (1958), p. 125
- 42) 功刀雅長, 神野 博, 鳥居秀雄: 工業化学雑誌, 56 (1953), p. 46
- 43) 桑原 守, 鞭 巖: 鉄と鋼, 61 (1975), p. 301
- 44) F. HERNING and L. ZIPPERER: Gas-Wasserfach, 79 (1936), p. 49, p. 69
- 45) W. SUTHERLAND: Phil. Mag., 36 (1893), p. 507
- 46) 佐藤一雄: 物性定数推算法, (1968), p. 129 [丸善]
- 47) W. PETER: Stahl u. Eisen, 84 (1964), p. 979
- 48) A. N. RAMM: Byull. TsIINChM, (1958), (8): Symposium "Modern Problems of metallurgy" (Sovremennye Problemy mettallurgii), M, (1958), AN SSSR
- 49) J. PERRY, C. H. CHILTON, and S. D. KIRKPATRICK: Chemical Engineers' Handbook, 4, (1963), 3-16, [McGraw Hill]
- 50) 白井 隆: 化学工学と化学機械, 1 (1956), p. 216
- 51) 研野雄二: 学振54委提出資料, No. 1361 (1975)
- 52) G. G. LUKASHOV, N. I. SAVELOV, and S. T. PLISKANOVSKII: Stal in Eng., (1963), p. 173
- 53) 中村正和, 杉山 喬, 鵜野建夫, 原 行明: 鉄と鋼, 61 (1975), S 383