

## 談話室

## 反応を伴うプロセスの数値解析について

栗田 興一\*

## 1. はじめに

鉄鋼分野におけるプロセスは原料処理プロセス、製鉄プロセス、製鋼プロセス、熱延・冷延プロセス、表面処理プロセス等から成り立っているが、反応を伴うプロセスが、その大部分を占めている。例えば、焼結、コークス、高炉、転炉等の各プロセスはもちろん、加熱炉のバーナー燃焼も、反応を伴うプロセスの一つである。

この内、上工程といわれる製鉄、製鋼プロセスは冶金反応を主体に、流動と伝熱がからみあつた複雑なプロセスであると同時に、高温であるため、実炉計測が難しいプロセスでもある。それ故、従来までは、冷間模型実験、または、るつば実験などで得られた知見をもとに、総合的に判断して、炉内状態を推定していた。

しかし、最近のスーパーコンピュータに代表される計算処理能力の飛躍的な向上は、単位操作ごとに得られている知見を、複合して組み立て、全体のプロセスを数値解析することを可能にした。このような、数値解析技術は、数値実験(Numerical experiment)と言われ、一分野を形成しつつある。

しかし、これらの数値解析の結果は、現実と異なる結果をあたえることもあるから、常に結果の妥当性について、現実のものとの対比、チェックしていく必要がある。万一、数値解析結果が、現実の実測結果と違っている場合には、それは、数値解析で考慮していないロジックが現実の現象の中に潜んでいることを示しているのであるから、その差異を追求し、明らかにしていくことによつて、ものの本質を解明していくことができる。

もう一つ別の数値解析の使い方として、世の中にまだない新プロセスの能力とか、自然界にまだない物質の挙動を数値解析によつて事前予測する使い方がある。

以上のように、数値解析の利用分野は、これからの技術開発の手段としてますます拡大していくものと考えられるが、ここでは、著者の、反応を伴うプロセスの数値解析の経験の中から、得られた知見を述べてみたい。

## 2. 反応を伴うプロセスの数値解析

反応を伴うプロセスの数値解析の例を、鉄と鋼に発表された論文を中心に見てみると、図1に示すような、高

炉内部状態のシミュレーション<sup>1)</sup>、PCI 燃焼シミュレーション<sup>2)</sup>、転炉の2次燃焼シミュレーション<sup>3)</sup>、RH 炉内流動および濃度分布シミュレーション<sup>4)</sup>等がある。いずれも、従来までの冷間実験だけでは、解析が困難な流れと反応との同時解析結果を示している。

このような反応を伴うプロセスの数値解析は、次のステップを経て進歩してきた。すなわち、最初は、反応容器をブラックボックスとみなし、入り側と出側の物質収支と熱収支を取ることから始まり、次の段階では、反応容器を反応別に部分分割し、その部分ごとに、熱収支と物質収支をとるようになった。さらに、進歩すると、反応容器を微小部分に分割し、微小部分ごとにおこり得る反応すべてについて、熱および物質の連立微分収支をとるようになった。現在では、反応物質の3次元的な流動も考慮し、熱、反応挙動を、その反応物質の動きに合わせて記述するようになってきている。

上述のように、最近の反応を伴うプロセスの数値解析は、流動解析技術の進歩と共に急速に発展しつつある。

## 2.1 流動解析手法

反応を伴うプロセスにおいては、反応物質は何らかの形で容器内を流動しており、この流動している物質は、気体または液体から成り立っている場合が多い。

充填物などが詰まっていない反応容器内を流動物質が流れる場合には、この運動は、次の Navier-Stokes の運動方程式に従い、この式と連続の方程式とを連立させることにより、流速と圧力が求まる。

[Navier-Stokes の運動方程式]

$$DV/Dt = -1/\rho \cdot \nabla P + \nu \cdot \nabla^2 V + F \quad \dots (1)$$

ここで、

$$D/Dt \equiv \partial/\partial t + u \cdot \partial/\partial x + v \cdot \partial/\partial y + w \cdot \partial/\partial z$$

$$\nabla \equiv \partial/\partial x \cdot i + \partial/\partial y \cdot j + \partial/\partial z \cdot k$$

[連続の式]

$$\partial\rho/\partial t + \nabla(\rho V) = \sum R_i \cdot M_i \quad \dots (2)$$

上式の数値解析方法については、圧力と流速を交互に収束させる SOLA 法<sup>5)</sup>が簡便で分かりやすく、かつ、3次元への拡張が簡単なことから多く使われており、詳しい参考書<sup>6)</sup>も出版されている。

一方、充填塔型反応容器内での単相流の運動方程式には、S. ERGUN の実験式に基づき、次式を用いる。

充填層の圧力損失式

$$-\nabla P = (a|V| + b) \cdot V; a = 1.75 \cdot \rho/d_p \cdot (1 - \epsilon)/\epsilon^3$$

$$\dots (3)$$

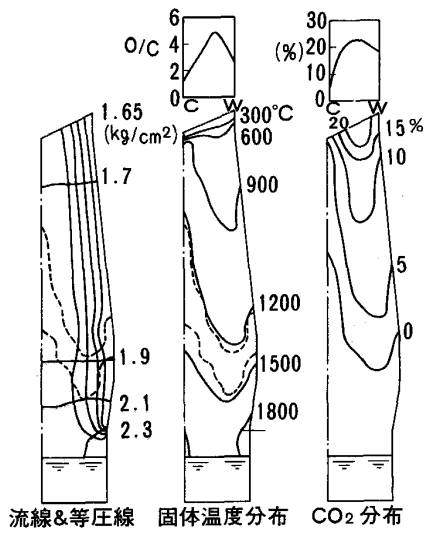
$$b = 150 \cdot \mu/d_p^2 \cdot (1 - \epsilon)^2/\epsilon^3$$

上式の数値解析手法としては、有限要素法による方法<sup>7)</sup>、流れの関数による方法<sup>8)</sup>が既に報告されている。

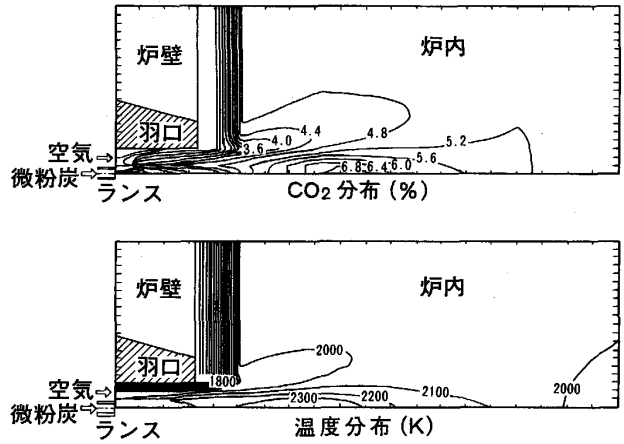
この気体または液体の単相流動についての数値解析手法は、計算流体力学として、確立しつつある。

反応を伴うプロセスの数値解析の大部分は、伝熱・反応現象をこの流れに乗って解析することとなる。

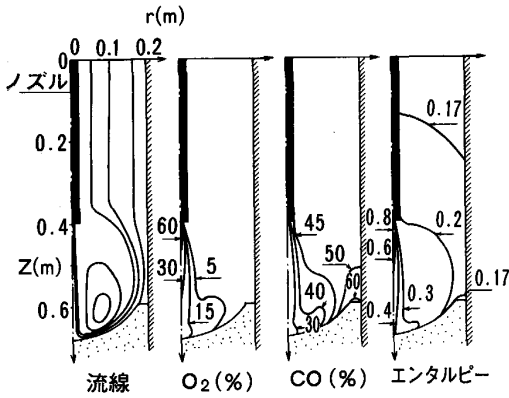
\* 住友金属工業(株)総合技術研究所 工博



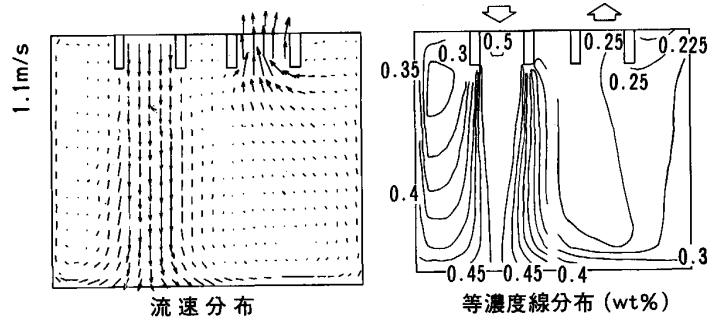
a: 高炉内部状態シミュレーション例<sup>1)</sup>



b: PCI 燃焼シミュレーション例<sup>2)</sup>



c: 転炉2次燃焼シミュレーション例<sup>3)</sup>



d: RH 炉内状態シミュレーション例<sup>4)</sup>

図1 反応を伴うプロセスシミュレーション例

2.2 反応と伝熱の流動の同時解析

反応と伝熱の基礎式は、一般に次のように表される。

[反応に関する基礎式]

$$D/Dt(\rho\xi_i) + (\rho\xi_i) \cdot \nabla V = \nabla \cdot \{D_i \nabla (\rho\xi_i)\} + R_i(\xi_1 \dots \xi_n) \cdot M_i \dots (4)$$

[伝熱に関する基礎式]

$$D/Dt(\rho c T) + (\rho c T) \cdot \nabla V = \nabla \cdot (k \nabla T) + \sum_k \{h_k / \delta \cdot (T - T_k)\} + Q \dots (5)$$

質量保存則(2)式を用いると、(4)、(5)式は、次のように簡単になる。

[反応に関する基礎式]

$$D/Dt(\xi_i) = 1/\rho \nabla \cdot \{D_i \nabla (\rho\xi_i)\} + R_i \cdot M_i / \rho \dots (6)$$

[伝熱に関する基礎式]

$$D/Dt(cT) = 1/\rho \nabla \cdot (k \nabla T) + 1/\rho \sum_k \{h_k / \delta \cdot (T - T_k)\} + Q/\rho \dots (7)$$

(6)、(7)式の左辺は、対流項と言われ、物質移動に伴う反応物質移動量、熱移動量を表す項である。反応を伴うプロセスのうち鉄鋼関連の焼結、高炉、転炉、RH 炉、

燃焼炉等のプロセスは、いずれも、気体、液体または固体の運動を伴うので、この対流項の影響を考慮する必要がある。逆に、物質移動を伴わない場合には、(6)、(7)式において  $D/Dt \equiv \partial/\partial t$  となるので、(6)、(7)式はよく知られた、拡散方程式、熱伝導方程式となる。

従つて、物質の移動速度が大きい場合には、(6)、(7)式の左辺が支配的となり、逆に、物質の移動速度が小さい場合には、右辺の第1項が支配的となる。このことは、数値解析を行う場合の、重要なポイントとなる。

すなわち、対流支配の場合には、一階偏微分方程式の解法を用いるが、拡散または、熱伝導支配の場合には、楕円型の二階偏微分方程式の解法を用いる必要がある。一階偏微分方程式の解法は、図2に示すように特性曲線にそつて積分する解法であるが、二階偏微分方程式の解法は、よく知られた加速緩和法等となり、両者の解法が異なることに注意する必要がある<sup>9)</sup>。

例えば、高炉の解析のように、反応に関する対流項が拡散項に比して、 $10^3$  程度大きく、伝熱に関する対流項が熱伝導項に比して、 $10^2$  程度大きい場合には、入り口

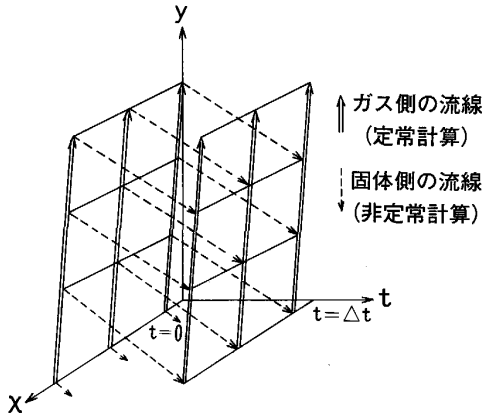


図 2 ガス側・固体側の反応・伝熱計算経路の図

側の物質の組成および温度を初期条件として物質の移動経路(流線)にそつて、出口側に向かつて、反応および伝熱に関する積分計算を実行していくことになる。この場合には、拡散項または、熱伝導項は、反応量または発熱量の項と同様に扱う。

対流項と拡散項が同じ程度の大きさの場合には、拡散項の解法である加速緩和法に対流項の効果を風上差分で近似した解法を使用する。この風上差分近似は、流線にそつて風下の方に積分していくことと同じ意味を持っている。

また、(6)、(7)式とも非定常項(時間の項)を含んでいるが、解析対象によつては、定常化しておく必要がある。例えば、高炉を対象とした解析で考えてみると、羽口から吹き込まれたガスは、約 30 s で炉頂まで達するのに対し、炉頂から装入した固体は羽口レベルに到達するのに約 8 h を要するので、通常の炉内状態の変化(固体の変化)を対象にしたような解析では、ガス側は定常と考えてよい。すなわち、図 2 に示したような特性曲線(流線)に沿つて反応・伝熱計算を実施していくことになる。しかし、脈動流を対象としたような数値解析の場合にはガス側の非定常項を残した解析が必要となる。

### 2.2.1 反応計算上の注意点

このような、反応物質の流れにそつて、反応・伝熱計算を実行するが、反応については、相変化を伴う場合、または、アレニウスプロットに代表されるように、ある反応温度に達すると急激に反応が進行する場合に、数値解析上工夫する必要がある。以下に、これらの点について述べる。

#### (1) 相変化を伴う反応

ここでは、固体から液体へ相変化する溶融現象を例に述べる。溶融物質が溶融温度に達した場合、その温度以上の熱量が溶融に使用されるものとして計算する。この溶融温度および融解熱は溶融すべき物質の組成に応じて変化させて与える。

#### (2) 反応速度が大きい場合

反応速度が大きい場合には、メッシュ間の反応量がそのメッシュ上に存在する反応物質の量を上回ってしまうようなことも、数値解析では起こり得る。このような状態を防止するため、メッシュ間隔を短くしたり(6)式に高精度積分法(例えばルンゲ・クッタ・ジル法)<sup>9)</sup>を使つたりするが、物質の移動速度が遅い場合には、もはや速度論的な取扱いが不可能となるので、化学熱力学的平衡状態を越えては反応が進まないよう制約条件をプログラムロジックに加えておく必要がある。

#### (3) 反応速度が早く、かつ、反応熱が大きい場合

反応吸熱が極めて大きい場合には、反応物質の温度が極端に低下するので、差分近似による解法を使う場合、温度律速で反応速度を与える必要がある。例えば、溶融ウスタイトのカーボンによる還元反応の場合には、還元反応が進むと、その吸熱のため溶融ウスタイトは凝固温度以下に低下する。しかし、凝固温度以下では反応が進まないで、凝固温度以上の熱量に相当する分だけ還元反応が進むと言つたように、温度律速で反応速度を決めてやる必要がある。

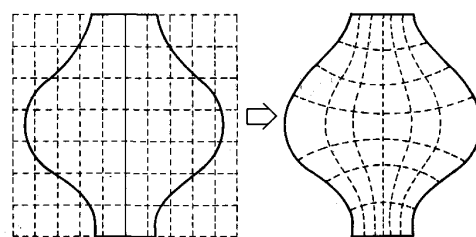
以上のように、反応を取り扱う場合には、反応速度が温度に関して指数関数的に変化するため、伝熱計算および弾性計算には見られない数値解析上の工夫をする必要がある。

### 2.2.2 伝熱計算上の注意点

伝熱計算(各相で成り立つ(7)式)において、各相間の熱交換係数が大きい場合、例えば、高炉のような充填層型の反応容器の場合には、ガスと固体の熱交換係数が大きいため、固体温度の変化に従つて、ガス温度も敏感に変化するし、逆にガス温度の変化に従つて、固体温度も敏感に変化するので、各相ごとに、交互に繰り返し計算を実施すると収束が悪くなる。そこで、固体側の(7)式と、ガス側の(7)式とを連立させて、固体およびガス温度を同時に求めてやる必要がある。すなわち、(7)式の差分近似式を相の数だけ連立させ、各相の温度を同時に求める方が、精度および計算時間の点で有利となる。

### 2.3 メッシュ設定の自動化

プロセスの数値解析において任意の容器形状を差分メッシュ上に表し、境界条件を設定する作業は従来の直線直交座標系では、非常に面倒な作業となつていたが、最近、図 3 に示すごとく、メッシュを物体に沿つた座標



直交デカルト座標系 一般曲線座標系

図 3 メッシュ作成方法

系 (Body fitted coordinates) に自動分割する技術<sup>10)</sup> が開発されて、境界面での処理が容易になっている。今後は CAD との結合も予想される。

その結果、最近の数値解析は、次の三つの段階に分けて構成されるようになってきた。

第1段階 (プリプロセッサ) では、容器の形状を読み込み、容器形状に沿って、メッシュを自動分割する。

第2段階 (メインプロセッサまたはソルバー) では、境界条件と初期条件を入力し、第1段階で作成したメッシュ上で求めた微係数を、絶対座標系に変換しながら、基礎構成方程式 (流動、反応、伝熱等) に入力し、数値解を求めていく。一応、この段階で計算結果は、プリントアウトされてでてくるが、数字の羅列であつて、直感的に見にくいものである。

そこで、計算結果をグラフ化する第3段階の処理 (ポストプロセッサ) が必要となる。最近では、3次元の陰線処理、濃度、温度分布などのカラー表示等、理解しやすい形に表示してくれる汎用ソフトも開発されている。

以上のように、三つの段階に分割され、ソルバーによって解析対象を容易に変更できるようになりつつある。

### 3. 今後の数値解析の動向

数値解析は、今後ますます、利用の拡大が期待されているが、その拡大の方向について若干述べる。

(1) 一つは定常から非定常へ、また、2次元から3次元への、計算領域の広がりである。この2次元から3次元への広がりには、技術計算機自体のハードの進歩も必要である。現在の中型技術計算機 (約 2 MIPS) では、反応を伴うプロセスの非定常2次元計算で、1ケース 1~2h 程度を要する。これを3次元に拡張すると、この数十倍以上の計算時間を要するので、中型計算機では、現実的に実用の域を越えており、スーパーコンピューターによつて初めて、実用化が可能となる。また、実際の問題は、ほとんどが3次元であるから、CAD と組み合わせた、3次元反応容器内のプロセス数値解析が今後ますます増加するものと予想される。

(2) 第2は事象の広がりである。例えば、反応を伴うプロセスでは、反応に伴う熱的問題および反応に影響を与える流動現象も同時に解析しなければならないが、この他に、イオン性流体の反応を考える場合には、電磁流

体の解析が必要となるし、反応容器自体の設計に反映させるには、熱的な問題に加え、応力解析の問題も関係してくる。このように、反応を伴うプロセスの数値解析技術は、図4に示すように、反応を含め、伝熱、電磁、強度、光、流動の同時解析手法へと、今後、発展拡大していくものと予想される。

## 4. ま と め

以上のように数値解析技術は、プロセス開発の期間を大幅に短縮し、かつ、フィジビリティ・スタディーの精度を向上させ、パイロットプラント実験を代替するものとなると考える。しかしながら、このシミュレーション技術は理想的な系については、かなり実用的な域に達してきたものの、混相流の反応挙動、気液界面での反応挙動、液中への気体吹込み時の反応挙動、流動層内での反応挙動等、基本的な流動特性またはマクロな反応挙動等の、いわゆる構成方程式のはつきりしない現象への適用はまだ不十分だといえる。結局、これらの現象の本質を解明していくことこそ、これからの数値解析技術の進歩に繋がるものといえる。

### 記 号

$c$ : 熱容量	$d_p$ : 粒子径
$D_i$ : 着目成分 $i$ の拡散係数	$F$ : 外力ベクトル
$h/\delta$ : 熱交換係数	$i, j, k$ : 座標ベクトル
$k$ : 熱伝導度	$M_i$ : 着目成分 $i$ の分子量
$P$ : 圧力	$Q$ : 発生熱量
$R_i$ : 着目成分 $i$ の反応速度	$t$ : 時間
$T$ : 温度	$V$ : 流速ベクトル
$x, y, z$ : 座標	$\varepsilon$ : 空隙率
$\mu$ : 粘性係数	$\nu$ : 動粘性係数
$\xi_i$ : 着目成分 $i$ の重量分率	$\rho$ : 密度

### 文 献

- 1) 栗田興一, 村井達郎: 鉄と鋼, **73** (1987), p. 2052
- 2) 鈴木富雄, 坂本雄二郎: 鉄と鋼, **73** (1987), S 37
- 3) Y. KATO, J. C. GROSJEAN, J. P. REBOUT and P. V. RIBOUD: 鉄と鋼, **73** (1987), S 212
- 4) 中島潤二, 辻野良二, 平居正純, 沢田郁夫: 鉄と鋼, **72** (1986), S 1106
- 5) C. W. HIRT, B. D. NICHOLS and N. C. ROMERO: LA-5852 (1975)
- 6) 高橋亮一, 吉川秀雄, 大倉 稔, 阿部 豊, 荒川秋雄: コンピューターによる流体力学〈演習〉(1982), p. 213 [企画センター]
- 7) 工藤純一, 八木順一郎: 鉄と鋼, **72** (1986), p. 2032
- 8) 羽田野道春, 栗田興一, 岡根幸司: 鉄と鋼, **63** (1977), p. 19
- 9) L. LAPIDUS: Digital Computation For Chemical Engineers (1962), p. 131
- 10) J. F. THOMPSON, Z. U. A. WARSI and C. W. MASTIN: J. Comp. Phys., **47** (1982), p. 1

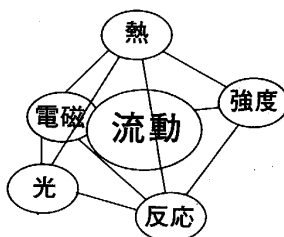


図 4 シミュレーション分野の広がり