

# 複数オリフィス及びノズルからのガス吹込みによる 溶融金属中介在物の除去速度

奥村 圭二\*・棚橋 尚貴\*<sup>2</sup>・平澤 政廣\*・佐野 正道\*

Rate of Inclusion Removal from Molten Metal to Slag with Injecting Gas  
from Multi-orifice and Multi-nozzle

Keiji OKUMURA, Naoki TANAHASHI, Masahiro HIRASAWA and Masamichi SANO

**Synopsis** : Studies have been made on bubble formation at non-wetted nozzles and orifices and on the effect of bubble size on the rate of inclusion removal from molten metal.

The bubble formation at a nozzle or an orifice in mercury has been investigated. The experimental values of size of the bubble formed at a nozzle agree with those calculated from correlating equations using outer diameter of the nozzle. In the case of lower gas flow rate, the bubble size increases with increasing outer diameter of the nozzle ( $d_{no} < 7\text{mm}$ ). At nozzle diameter of  $d_{no} > 7\text{mm}$ , the bubble size is independent of  $d_{no}$ , and the nozzle can be regarded as an orifice. The bubble size increases with increasing gas-chamber volume under the conditions where the gas flow rate is relatively low and the dimensionless gas-chamber volume,  $Nc'$ , is larger than unity.

The rate of  $\text{SiO}_2$  inclusion removal from molten Cu to slag with injecting Ar gas from multi-orifice and multi-nozzle has been examined. In the case of multi-orifice, the bubble size increases with increasing the number of orifices. This shows that the growing bubbles coalesce into one on the surface of the orifice plate. The rate of inclusion removal decreases with increasing bubble diameter. It is confirmed that the inclusion particles are removed from the melt mainly through adhesion to the bubble-metal interface.

**Key words** : inclusion ; deoxidation ; steelmaking ; inclusion removal rate ; gas injection ; bubble ; nozzle ; orifice ; porous plug.

## 1. 緒言

製鋼プロセスにおいては、ポーラスプラグより溶鋼中にガスを吹込み、浴中に気泡を分散させることにより介在物除去の促進が図られている。一般に、ポーラスプラグの材質は酸化物系耐火物であり、溶鋼とは濡れにくいいため、ポーラスプラグ表面の近接した気孔から生成する気泡は互いに合体し、大きな気泡が生成すると考えられる。

佐野ら<sup>1)2)</sup>は、溶融金属中単一ノズルからの気泡生成について、液体の物性値、ガス流量、蓄気室容積などの影響を考慮した気泡径推算式を提案しており、気泡径はノズル外径で規定されることを示した。小沢ら<sup>3)</sup>は、溶融金属中オリフィスから生成する気泡の底面径はノズルの場合よりも大きくなり、気泡径も大きくなることを明らかにした。また、Anagboら<sup>4)</sup>は、水モデル系において、水に濡れる材質のポーラスプラグによるガス吹込み実験を行い、気泡分散挙動を調べたが、溶融金属系に適用するには問題がある。

ガス吹込み攪拌下の溶融金属中介在物除去に関しては、著者ら<sup>5)6)</sup>は、単一ノズルを用いてガス吹込み攪拌された溶

銅中の $\text{SiO}_2$ 介在物除去の速度論的研究を行い、介在物の気泡への付着を考慮した介在物除去モデルにより実験結果を合理的に説明した。

本研究では、まず、水銀を用いた低温モデル系において、液体に濡れにくいノズルからの気泡生成について、気泡径に及ぼすノズル外径及び蓄気室の影響について調べ、従来得られている気泡径の推算式と比較検討する。さらに、溶銅を用いた高温モデル系において、るつぼ底に設置したアルミナ製の複数のオリフィス及びノズルよりメタル中へArガスを吹込み、溶銅中 $\text{SiO}_2$ 介在物の除去に関する速度論的実験を行い、気泡生成離脱挙動を明らかにするとともに、介在物除去速度に及ぼす気泡径の影響を解明する。

## 2. 実験

### 2・1 低温モデル系におけるガス吹込み実験

実験装置の概略をFig. 1に示す。ガラス製容器(70φ×63φ×140mm)に水銀(1.69kg)を入れ、J字型ガラス製ノズルにより容器底から $\text{N}_2$ ガスを吹込んだ。ノズルは内径が1

平成7年5月26日受付 平成7年9月25日受理 (Received on May 26, 1995; Accepted on Sep. 25, 1995)

\* 名古屋大学工学部 (Faculty of Engineering, Nagoya University, Furo-cho Chikusa-ku Nagoya 464-01)

\* 2名名古屋大学大学院生 (現: 中部電力(株)) (Graduate Student, Nagoya University, now Chubu Electric Power Co., Inc.)

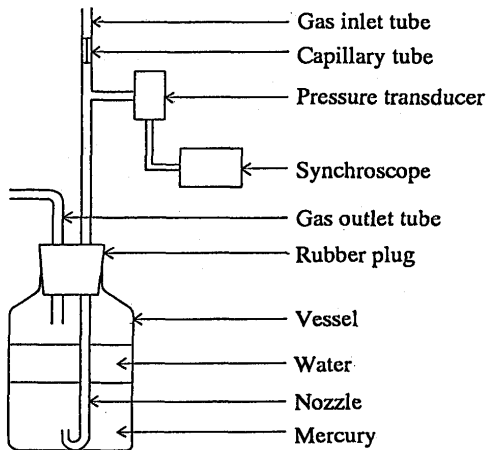


Fig. 1. Experimental apparatus. (Cold model)

mm, 外径は1.5~15mmである。吹込みガス流量は $1.64 \times 10^{-6} \sim 5.34 \times 10^{-5} \text{ m}^3/\text{s}$ とし、マスフローコントローラーで調節した。配管途中に毛細管（内径0.2mm, 長さ30mm）を取り付けることにより、毛細管よりも上流側が蓄気室にならないようにした。蓄気室容積は $1.41 \times 10^{-7} \sim 9.79 \times 10^{-6} \text{ m}^3$ とした。また、気泡生成頻度の測定は圧力パルス法を用い、600s内の任意の0.5sについて6回行い、その測定結果の平均値を気泡生成頻度とした。

2・2 高温モデル系における介在物除去実験

実験装置の概略をFig. 2に示す。実験には12kWのSiC抵抗炉を用いた。ムライト製の反応管(145φ×130φ×740mm)内の均熱部につばを設置した。测温はつば底部に接触させたPt-Pt・13%Rh熱電対により行った。気泡生成頻度の測定方法は低温モデル系と同様である。また、吹込みガスの流量はマスフローコントローラーにより設定した。

Fig. 3に示すようなガス吹込み実験用つばを作成した。つばはアルミナ製(46φ×40φ×100mm)で、つば底にガス吹込み用のアルミナ製多孔板をアルミナペーストで固定した。アルミナ製多孔板とつばの間には、蓄気室を設けた。図に示すような配置で、アルミナ製板に1~9個の内径1mmのオリフィスを作製し、複数オリフィス板とした。孔間距離Dは5mmとし、2個のオリフィスの場合はD=15mmとした。複数オリフィス板の蓄気室容積Vcは $5.31 \times 10^{-6} \text{ m}^3$ である。また、アルミナ製板に1.2φ×0.8φ×11mm及び2.0φ×1.2φ×11mmのノズルを1~4本埋め込み、複数ノズル板を作製した。ノズル間距離は15mmとし、ノズルの先端はつば底から5mmの位置になるようにした。複数ノズル板のVcは、 $5.31 \times 10^{-6} \text{ m}^3$ であり、一部の試験では、Vcは3.0φ×1.0φ×400mmの寸法のガス導入用配管内容積( $3.14 \times 10^{-7} \text{ m}^3$ )とした。なお、溶銅とアルミナの接触角は1523Kでは147°であり<sup>7)</sup>、オリフィス及びノズルは溶銅に濡れにくい。

実験に用いたメタルはCu(0.3~0.35kg)、スラグは28mass%Li<sub>2</sub>O-58mass%SiO<sub>2</sub>-14mass%Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>の組成の合成スラグ

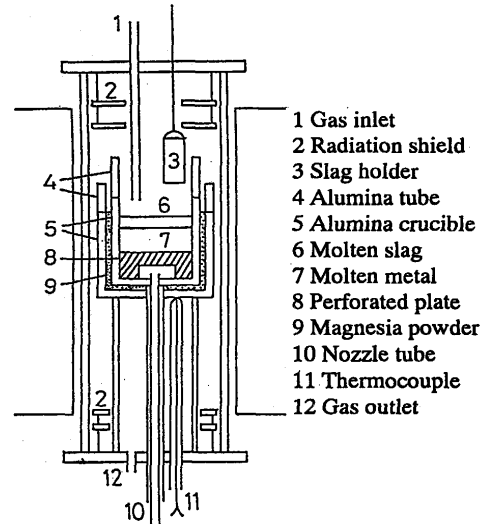


Fig. 2. Experimental apparatus. (Hot model)

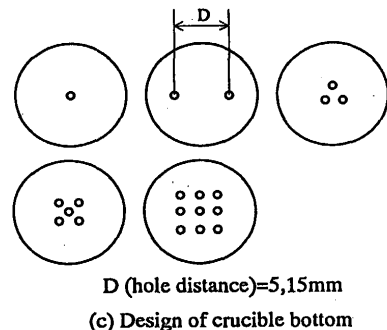
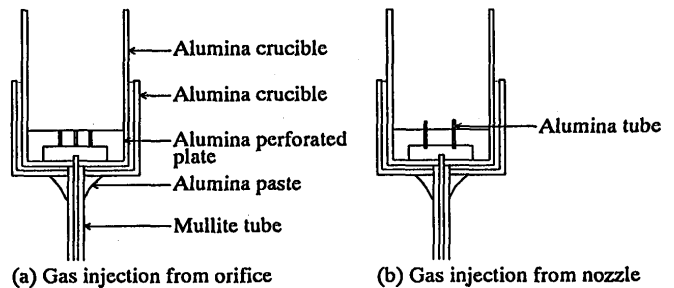
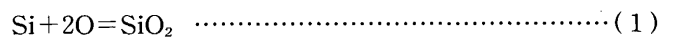


Fig. 3. Design of crucible and configuration of nozzle and orifice.

(0.0445kg)である。脱酸剤はCu-30mass%Si合金である。実験温度は1523Kである。

Ar雰囲気下でつばにCuを溶解した後、0.117mass%Oとなるようにメタル中に酸化銅を添加し、1800s間Arガスを吹込み、メタル浴を攪拌した。この時の吹込みガス流量は $5 \times 10^{-6} \text{ m}^3/\text{s}$ (1523K,  $1.013 \times 10^5 \text{ Pa}$ )である。その後、Cu-30mass%Si合金をメタル中に添加し30s間攪拌して(1)式の反応により、メタル中にSiO<sub>2</sub>介在物を生成させた。



スラグを溶銅上に添加、溶解させた。スラグの溶解に要した時間は約1200sである。メタル試料を石英管で採取した

だちにArガスをメタル中に吹込み、攪拌を開始した。この時を実験開始時間とした。吹込みガス流量は  $1 \times 10^{-5} \text{m}^3/\text{s}$  ( $1523\text{K}$ ,  $1.013 \times 10^5 \text{Pa}$ )一定とした。適当な時間間隔で溶銅試料を採取し、分析に供した。分析は全酸素について不活性ガス融解非分散赤外線吸収法により行った。実験中、適宜、気泡生成頻度の測定も行った。

### 3. 実験結果と考察

#### 3.1 低温モデル系におけるガス吹込み

気泡生成頻度  $f$  と吹込みガス流量  $V_g$  から、(2)式により気泡の球相当直径  $d_B$  を求めた。

$$d_B = \left( \frac{6V_g}{\pi f} \right)^{1/3} \dots\dots\dots (2)$$

Fig. 4 にノズル外径  $d_{no} = 2.0\text{mm}$  の場合の  $d_B$  とガス流量  $V_g$  の関係を示す。図には以下に示す佐野ら<sup>1)</sup>の気泡径推算式による計算結果も示した。

$$d_B = \left\{ \left( \frac{6\sigma d_{no}}{\Delta\rho g} \right)^2 + 9.5 \left( \frac{V_g^2 d_{no}}{g} \right)^{0.867} \right\}^{1/6} (Nc' \leq 1) \dots\dots (3)$$

$$d_B = \left\{ \left( \frac{6\sigma d_{no} Nc'}{\Delta\rho g} \right)^2 + 9.5 \left( \frac{V_g^2 d_{no}}{g} \right)^{0.867} \right\}^{1/6} (Nc' > 1) \dots\dots (4)$$

$$Nc' = \frac{4Vc\Delta\rho g \sin\theta}{\pi d_{ni} d_{no} (P_0 + P_{hs})} \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 $\sigma$  は表面張力、 $d_{no}$  はノズル外径、 $\rho$  は密度、 $g$  は重力加速度、 $Nc'$  は蓄気室に関する無次元数、 $Vc$  は蓄気室容積、 $\theta$  は接触角、 $d_{ni}$  はノズル内径、 $P_0$  は大気圧、 $P_{hs}$  は静水圧である。

図において、 $d_B$  は  $V_g$  の増加とともに大きくなる。また、低ガス流量域では  $Nc'$  が大きくなるほど  $d_B$  は大きくなり、気泡径に及ぼす蓄気室の影響が無視できない。図から明らかなように、実験値は佐野らの気泡径推算式によりよく説明できる。

Fig. 5 は  $d_B$  とノズル外径  $d_{no}$  の関係を示す。各ガス流量について、 $d_B$  は  $d_{no} \leq 7\text{mm}$  では  $d_{no}$  の増加とともに大きくなるが、 $d_{no} > 7\text{mm}$  では、ほぼ一定になる。このことから、 $d_{no} > 7\text{mm}$  では、ノズルはオリフィスとみなすことができると考えられる。このノズル外径の臨界値は、小沢ら<sup>3)</sup>が測定したオリフィスから低ガス流量域において静力学的条件下で生成する気泡の最大底面径とはほぼ一致する。

以上のように、ノズルが液体に濡れにくい場合の気泡生成は、ノズル外径により規定されることが明らかである。また、本実験のガス流量範囲においては、ノズルは外径が  $7\text{mm}$  以上ではオリフィスとみなせる。

#### 3.2 高温モデル系における介在物除去

##### 3.2.1 生成気泡の球相当直径

気泡生成頻度  $f$  と吹込みArガス流量  $V_g$  から、次式により

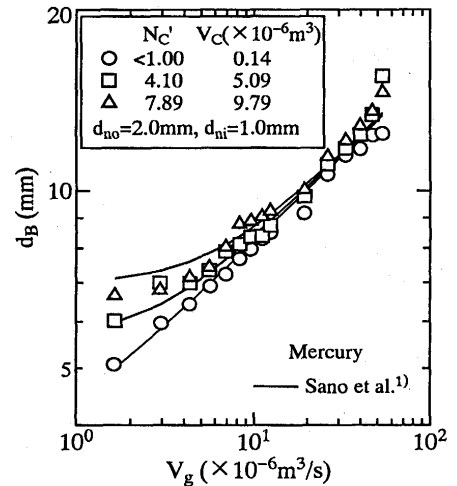


Fig. 4. Relation between  $d_B$  and  $V_g$ .

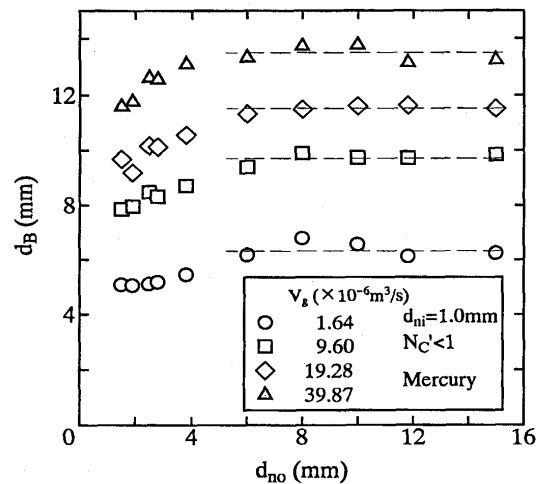


Fig. 5. Relation between  $d_B$  and  $d_{no}$ .

気泡の球相当直径  $d_B$  を求めた。

$$d_B = \left( \frac{6V_g}{\pi f n} \right)^{1/3} \dots\dots\dots (6)$$

ここで、 $n$  はオリフィスの個数あるいはノズルの本数である。

Fig. 6 は  $d_B$  と  $n$  の関係を示す。 $d_B$  は、ノズルの場合、その本数の増加とともに減少した。これは、ノズル1本当たりのガス流量はノズルの本数が増加するにつれて減少するためである。また、ノズル外径が大きいほど  $d_B$  は大きくなるのがわかる。 $n=1$  において、 $Vc=5.31 \times 10^{-6} \text{m}^3$  では蓄気室の影響により、 $Vc=3.14 \times 10^{-7} \text{m}^3$  の場合と比べて、 $d_B$  は大きくなる。

Fig. 7 に、(3)~(5)式により計算した気泡径と実験値を比較して示す。実験値は計算値より若干大きくなっているが、これは、気泡径推算式における蓄気室容積の温度補正の誤差<sup>1)</sup>が考えられるが、詳細は不明である。図より、実験値と計算値はおおむね一致しており、このことから、佐野ら<sup>1)</sup>の気泡径推算式の妥当性が確認された。

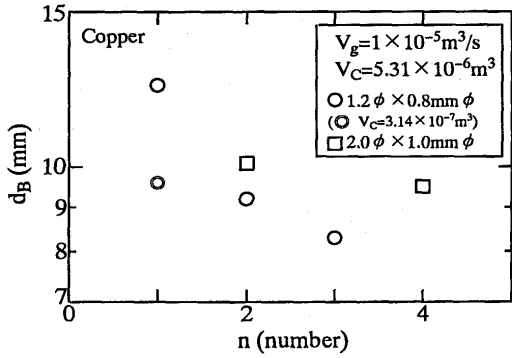


Fig. 6. Bubble size formed at multi nozzle.

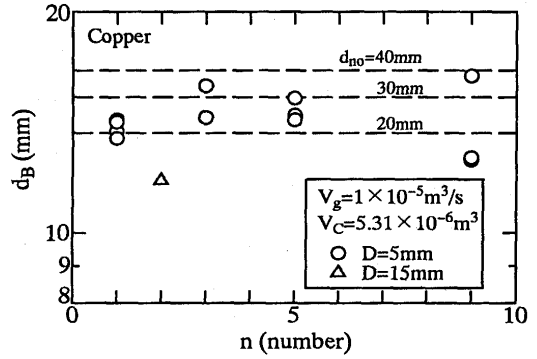


Fig. 8. Bubble size formed at multi orifice.

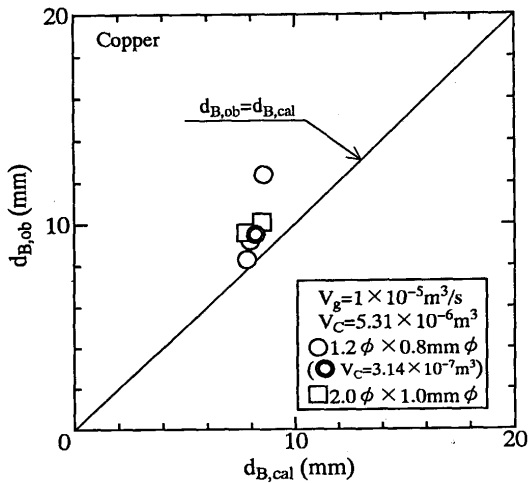


Fig. 7. Comparison of  $d_{B,ob}$  with  $d_{B,cal}$ .

Fig. 8はオリフィスの場合の $d_B$ と $n$ の関係を示す。ばらつきは大きい、 $d_B$ は1個のオリフィスに比べて複数のオリフィスの方が大きくなった。これは、気泡が隣合う孔の出口で合体して生成したことによると推定される。図には、(3)式による計算値を破線で示した。これによると、オリフィスの場合、気泡径はノズル外径を20mm以上とした時の計算値に相当し、気泡生成時の気泡底面がノズルの場合と比べて大きく広がっていると考えられる。なお、 $n=9$ の場合、3つの実験点はそれぞれ異なる3回の実験の結果であるが、 $d_B$ が小さくなったものもある。このときの $d_B$ は、気泡が合体して生成していなかった $n=2$ (孔間距離 $D=15$ mm)の場合と気泡径がほぼ等しくなった。この点については詳細は不明であるが、9個のオリフィスから合体した気泡が1つずつ生成するのではなく、複数の気泡が生成したと考えられる。

Figs.6,8から明らかなように気泡径はノズルよりもオリフィスの方が大きくなり、したがってノズルとオリフィスでは気泡生成の挙動が異なると考えられる。Fig.9にノズルとオリフィスからの気泡生成の挙動の模式図を示す。本実験で用いたノズルとオリフィスはアルミナ製であり、溶銅に濡れにくい。そのため、ノズルから生成する気泡は、(a)の

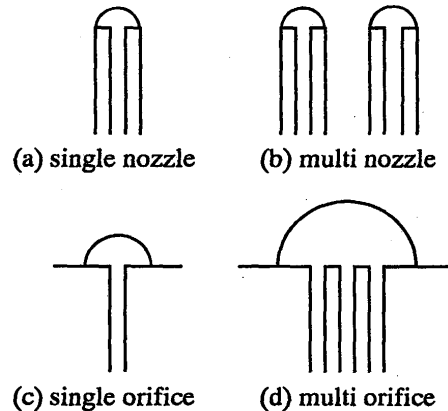


Fig. 9. Schematic illustration of bubble formation from nozzle and orifice.

ようにノズルに付着している気泡の底面がノズル外周まで広がって生成する<sup>1)</sup>。本実験では、ノズル間距離は15mmであるため、(b)のように複数のノズルから気泡は個別に生成していたと考えられる。一方、オリフィスではノズルの外周に相当するものがなく、(c)のようにオリフィスに付着している気泡の底面はノズルの場合よりも広がる<sup>2)</sup>。そのため、孔間距離が5mmの場合は(d)のように気泡が隣合う孔の出口で離脱前に合体し、大きな気泡が生成すると考えられる。

3・2・2 介在物除去速度に及ぼす気泡径の影響

メタル中全酸素濃度  $[\text{mass}\%O]_T$  の経時変化を一次速度式で整理した<sup>5)</sup>。

$$-\frac{d[\text{mass}\%O]_T}{dt} = k_o[\text{mass}\%O]_T \dots\dots\dots (7)$$

ここで、 $k_o$ は介在物除去速度定数である。

Fig.10に $[\text{mass}\%O]_T$ の対数と時間の関係を示す。 $[\text{mass}\%O]_T$ の対数は図に示した範囲では時間に対して直線的に減少していると見なすことができ、この直線の傾きから $k_o$ が求められる。介在物除去速度は気泡径が大きいほど遅い傾向がある。

Fig.11に $k_o$ と $d_B$ の関係を示す。図より、ばらつきはあるが、 $k_o$ は $d_B$ が大きくなると小さくなるのがわかる。本研究ではるつぼ径、メタル深さ及びガス流量は同一条件で実験を

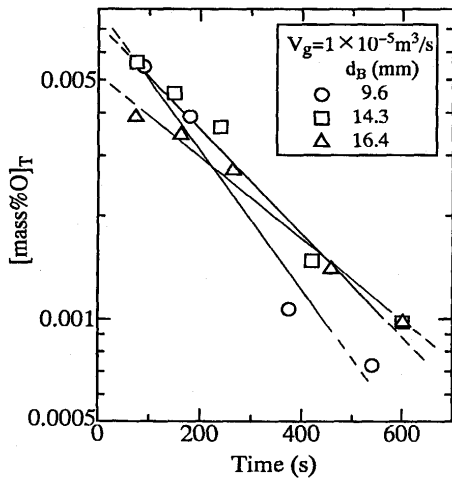


Fig. 10. Relation between  $\log[\text{mass}\%O]_r$  and time.

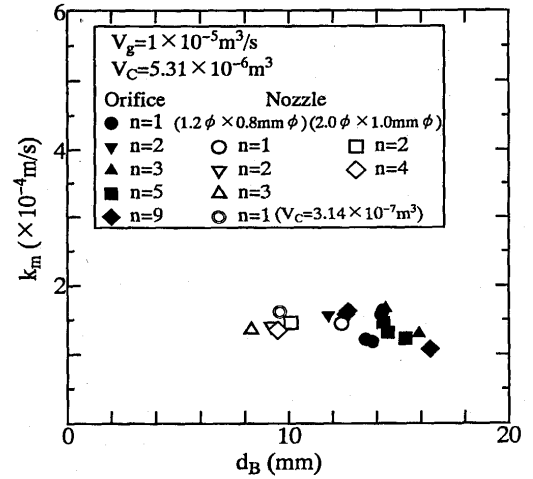


Fig. 12. Relation between  $k_m$  and  $d_b$ .

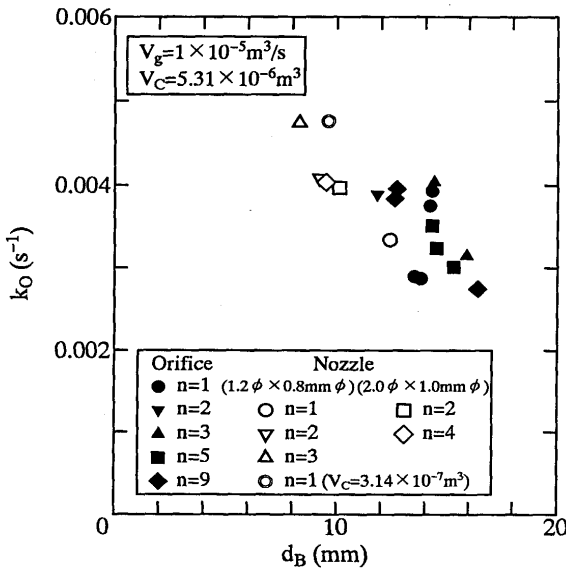


Fig. 11. Relation between  $k_o$  and  $d_b$ .

行っており、気泡径が介在物除去速度に影響を及ぼしていることが明らかである。

著者らは、単一ノズルからのガス吹込みによる溶鋼中SiO<sub>2</sub>介在物の除去速度を介在物の気泡への付着を考慮した数学モデルを構築し、実験結果を説明した<sup>5)</sup>。このモデルでは、メタル中介在物はガス気泡に付着してメタル浴内を上昇し、スラグーメタル界面まで運ばれ、そこでスラグ相へ除去されるという除去機構に基づいており、介在物の気泡表面への移動と気泡ーメタル間の物質移動の相似性を仮定し、介在物除去速度定数はみかけの物質移動係数 $k_m$ を用いて次式のように表される。

$$k_o = \left( \frac{3\pi d_b^2}{5} + \frac{6V_g h_l}{d_b v_B} \right) \frac{k_m}{V} \dots\dots\dots (8)$$

ここで、 $h_l$ は吹込み深さ、 $v_B$ は気泡上昇速度、 $V$ はメタル体

積である。このモデルでは、ノズル先端における気泡生成及びメタル中気泡上昇時の介在物の気泡への付着が考慮されている。

Fig.12に $k_m$ と $d_b$ の関係を示す。ばらつきはあるが、 $k_m$ は $d_b$ によらず一定の値であり、 $1 \times 10^{-4} \sim 2 \times 10^{-4} \text{m/s}$ である。従来、著者らが行ってきた、ガス流量とるつぼ径を変化させた実験結果によると、 $k_m$ は $1.2 \times 10^{-4} \sim 3.4 \times 10^{-4} \text{m/s}$ <sup>5)</sup>であり、本実験の $k_m$ の値とよく一致する。したがって、溶鋼中SiO<sub>2</sub>介在物のスラグへの除去速度は、気泡への介在物の付着除去機構に基づいて合理的に説明できることが明らかである。

以上のことから、ガス吹込み条件下において、気泡ーメタル界面積を大きくすること、すなわち、微細気泡をメタル中に分散させることが介在物除去速度の向上に有効であると考えられる。しかし、製鋼プロセスにおいて、耐火物は溶鋼に濡れにくいので、ポーラスプラグからのガス吹込みでも微細気泡の生成は期待できない。したがって、今後、微細気泡による効率的な介在物除去プロセスの開発が望まれる。

#### 4. 結言

低温モデル系におけるガス吹込み実験と、高温モデル系における介在物除去に関する実験を行い、以下の結果を得た。

(1) 低温モデル系において

i) ノズルが液体に濡れにくい場合、気泡径はノズル外径によって規定される。

ii) 本実験のガス流量範囲において、ノズルはその外径が7mm以上ではオリフィスとみなせる。

iii) 低ガス流量域では蓄気室の影響により気泡径は大きくなる。

(2) 高温モデル系において

i) 複数のオリフィスから生成する気泡は、孔間距離が5 mmでは隣接する孔の出口で離脱前に合体する。

ii) オリフィスから生成する気泡は、ノズルから生成する気泡よりも大きい。

iii) 吹込みガス流量が  $1 \times 10^{-5} \text{m}^3/\text{s}$  では、蒸気室容積を大きくするとノズルから生成する気泡は大きくなる。

iv) 介在物除去速度は介在物の気泡への付着除去機構に基づいてよく説明できる。

## 文 献

- 1) 佐野正道, 森 一美: 鉄と鋼, **60** (1974), p.348
- 2) 佐野正道, 森 一美, 佐藤哲郎: 鉄と鋼, **63** (1977), p.2308
- 3) 小沢泰久, 松井良行, 森 一美, 佐野正道: 鉄と鋼, **73** (1987), p.1543
- 4) P.E.Anagbo and J.K.Brimacombe: Metall. Trans., **21B** (1990), p.637
- 5) 奥村圭二, 伴 雅人, 平澤政廣, 佐野正道, 森 一美: 鉄と鋼, **80** (1994), p.201
- 6) 奥村圭二, 国井一孝, 平澤政廣, 佐野正道, 森 一美: 鉄と鋼, **80** (1994), p.539
- 7) 野城 清, 大石恵一郎, 荻野和巳: 日本金属学会誌, **52** (1988), p.72