

融液流れを考慮した焼結気孔構造形成のシミュレーション

中野 正則*・稲角 忠弘*²・笠間 俊次*³・金田 裕恵*⁴・貞岡 久里*⁵・高安 秀樹*⁶

Computer Simulation of Pore Formation in Iron-ore Sintercake

Masanori NAKANO, Tadahiro INAZUMI, Shunji KASAMA, Hiroe KANEDA, Hisato SADAOKA and Hideki TAKAYASU

Synopsis : Behavior of pore and bond formation in sintercake on iron ore sintering has been studied by means of computer simulation in which melt flow phenomenon is taken into account. Simulations have revealed that pore size increases with increasing coke content and increasing melt fluidity. On the other hand, the excess of them results in a huge void and dense and massive clusters below which an unfired region is formed. These results are confirmed by comparing with the direct observation by X-ray CT.

Key words : agglomeration ; simulation ; computer ; sintercake ; structure ; sintering ; melt flow ; cluster ; fractal ; percolation.

1. 緒言

焼結工程を対象とした計算機シミュレーションは、鞭らのモデル¹⁾以来数多く報告されているが、そのほとんどが反応工学的手法にもとづいて焼結ベッド内のヒートパターンを計算するものである。その後、堀尾ら²⁾は最高温度等の主要ヒートパターン特性値の挙動解析のために、また和島³⁾らは実機オンライン制御のために、簡易なヒートパターン計算方法を検討している。一方、川口ら⁴⁾はヒートパターン計算モデルを中心に焼結工程全体をシミュレートする総合的なモデルへと発展させている。

近年、X線CT⁵⁾を用いたシンターケーキの構造解析技術⁶⁾が開発され、それによる実機や試験鍋から採取したシンターケーキの構造解析より、焼結工程の生産性や歩留⁷⁾がシンターケーキ構造と重要な関係があることが稲角らにより定量的に示された⁷⁾。さらに、フラクタルを利用したシンターケーキの構造形成原理に関する実験的検討⁸⁾が試みられている。著者らは、シンターケーキの構造とその形成挙動の研究が今後の焼結研究の柱と考えるが、現在までのところ、このシンターケーキ構造形成挙動をシミュレートする報告はない。

そこで、本報では、簡易化したヒートパターン計算モデルに融液流れを組み合わせた「シンターケーキ構造形成モデル」を構築し、実際のシンターケーキ断面CT像との比較検討ののち、焼結構造形成に重要と考えられるモデル中のパラ

メータを変えてそのシンターケーキ構造への影響を調べた。

2. 数学モデル

シンターケーキ構造形成挙動のシミュレートには、従来の1次元でのヒートパターン・モデルでは不十分であって、2次元焼結層断面内でのヒートパターンを計算する必要がある。しかし、多孔材料内の2次元流れとそれにとまう熱移動およびコークスの燃焼を直接解くことは難かしく、また本報の目的でもない。そこでここではコークス燃焼にかかわる酸素供給の有無と水平方向への対流伝熱の表現に重点をおいて単純化することとした。また、焼結における融液流れについては、重力、圧力差や表面張力を駆動力とするものが考えられるが、実際のメカニズムについてはよくわかっていないので、下方への滴下⁹⁾のみを考慮した。

本モデルの構成を以下に述べる。

正方形の格子からなるシンターケーキ垂直方向2次元断面の各格子点(水平方向をx軸：垂直方向をy軸とする)に、構成要素としての鉱石、コークスおよび気孔の構成割合を表す3変数(それぞれ、 ϕ_{ore} , ϕ_{coke} , ϕ_{pore} と記す。それぞれ、0~1の範囲の実数であり、それらの和は1である。)および酸素濃度(A: 0または1の2値化変数)と温度(T: 融点で規格化した0以上の実数)の5つの変数を定義する。この格子上で、コークスの燃焼、伝熱、融液の移動を行わせるが、それぞれは以下のように単純化した。

平成7年9月20日受付 平成7年11月29日受理 (Received on Sep. 20, 1995; Accepted on Nov. 29, 1995)

- * 新日本製鐵(株)プロセス技術研究所 (Process Technology Research Labs., Nippon Steel Corp., 20-1 Shintomi Futtsu 293)
- * 2 新日本製鐵(株)プロセス技術研究所(現: 海外製鉄原料委員会) (Process Technology Research Labs., Nippon Steel Corp., now Committee of Overseas Iron and Steel Raw Materials)
- * 3 新日本製鐵(株)大分製鉄所 (Oita Works, Nippon Steel Corp.)
- * 4 新日鐵情報通信システム(株) (ENICOM)
- * 5 神戸大学理学部 (Dep. of Science, Kobe University)
- * 6 東北大学大学院情報科学研究科 (Graduate School of Information Sciences, Tohoku University)

(1) 酸素の流れ

コークスの燃焼を左右する酸素濃度 (A) は、あり (=1) となし (=0) に2値化した。格子の酸素濃度は、当該格子の直上の3つの最近接格子の内の少なくとも1つの酸素濃度が1であり、かつ当該格子の気孔率がある閾値以上であり、かつ当該格子でコークスが燃焼していない場合に1とし、それ以外は0とする。[Fig. 1]

(2) コークスの燃焼

コークスの燃焼は当該格子のAが1でありかつ温度 (T) が発火点 (Tig) 以上である格子で進行し、その速度は一定値 (Rc) とする。コークスの燃焼熱は当該格子の ϕ_{ore} が0でない限り当該格子のみに与えた。この時のコークスの燃焼による当該格子の温度上昇量 ($\Delta T[x, y, t]$) は、単位量鉱石の単位量コークス燃焼による温度上昇量を ΔTc とすると、

$$\Delta T[x, y, t] = \delta * \Delta Tc * Rc / \phi_{ore}[x, y] \dots\dots\dots(1)$$

ここに、コークス燃焼の有無を表す δ は、

$$\delta = \begin{cases} 1 & (T[x, y] \geq Tig \text{ and } A[x, y] = 1) \\ 0 & (\text{else}) \end{cases} \dots\dots\dots(2)$$

(3) 焼結層断面内の2次元伝熱

焼結層内の気孔は水平方向にもよく発達していることが観察され、気孔内のガス流れによる対流伝熱では水平方向をも考慮に入れることが重要であると考えられる。そこで、ここでは、(3)式の熱拡散と同等の式で記述することとし[†]、(3)式中の伝熱速度を表すパラメータDhは実際の燃焼進行速度に近くなるようにフィッティングさせた。

$$T[x, y, t+1] = T[x, y, t] + Dh * (T[x+1, y, t] + T[x, y+1, t] + T[x-1, y, t] + T[x, y-1, t] - 4 * T[x, y, t]) + \Delta T[x, y, t] \dots\dots\dots(3)$$

(4) 融液の流動

融液の滴下量 ($d\phi_{ore}/dt$) に関しては、当核格子から直下

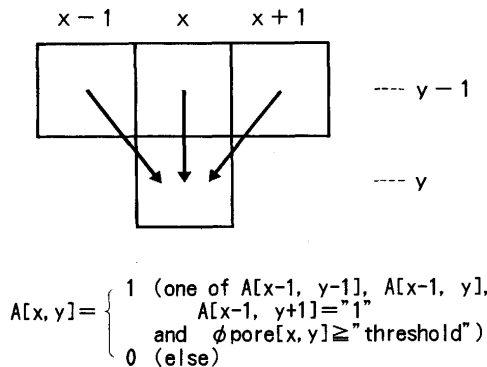


Fig. 1. Modeling of gas flow.

の3つの最近接格子 ($[x+\epsilon, y+1]$) への3つの流路を仮想し、それぞれの流路の流量 ($f_n, n=1, 2, 3$) はHagen-Poiseuilleの法則に従うとして求めた。具体的には、流路断面積を気孔率で表し、流路長 (path) を当該格子間の距離として、(4)式を用いた [Fig. 2]。計算時間差分1回あたりの(4)式で計算される3本の流路の総和が当該格子の鉱石残存量を越える場合は、それぞれの流量の比で残存鉱石全量を直下の3つの最近接格子に比例配分している。なお、融解潜熱は考慮していない。

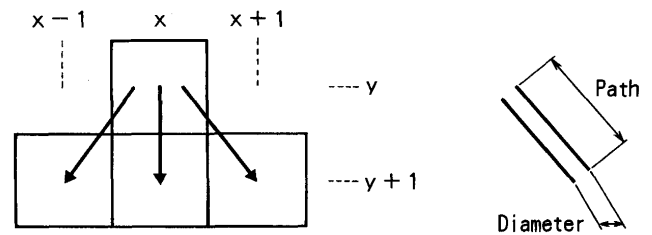
$$f_n = C * ((\phi_{pore}[x, y] + \phi_{pore}[x+\epsilon, y+1]) / 2) / \text{path} / fd \dots\dots\dots(4)$$

ここに、融液の流動性を表すパラメータC/fdは、操作変数として種々の値に振ってその影響をみた。

(5) モデルの計算条件

計算に際して使用したパラメータの値をTable 1にまとめた。層厚500mm, 焼結時間40分の焼結操業を想定し、各パラメータは計算における単位格子長さ2mm, 単位計算時間10秒を目安に適当に単純値に規格化している。

なお、初期条件として、各格子のコークス割合にランダムなゆらぎを与えられるようにし、そのゆらぎの大きさ (amp_{co})



Hagen-Poiseuille's law
 $\text{flow rate} = C * (\text{diameter})^2 / \text{path} / fd$
 $(\text{diameter})^2 \propto (\phi_s[x, y] + \phi_s[x+\epsilon, y+1]) / 2$
 fd: viscosity of melt

Fig. 2. Modeling of melt flow.

Table 1. Model parameters with typical values.

parameter	notation	actual value	value in model
cell number	x × y		250 × 250
cell volume	V cell		1
iteration interval	t		1
initial porosity	ϕ_{pore}	0.5	0.5
initial coke content	ϕ_{coke}	0.06	0.06
room temp.	T _{rm}	15°C	0
coke ignition temp.	T _{ig}	600°C	0.5
ignition furnace temp.	T _{fn}	1000°C	0.8
melting point.	T _{mp}	1200°C	1
coeff. of heat transfer	Dh	fitted by flame front speed at	1
coke combustion rate	Rc	30~60sec/particle	0.003
ore temp. increase by unit coke combustion	ΔTc	~600°C	2.44
melt fluidity	C/Fd		fitted at 8.0

†(3)式では、実際には存在しない上方への対流伝熱が入ってしまう欠点があるが、3・1節で検討するようにシンターケーキ形成には重要な影響を与えない。なお、比較のために垂直方向のみの伝熱を考慮した場合について補遺に記した。

の影響も調べた。

$$\phi_{\text{coke}} = \phi_{\text{coke}} * (1 + \text{amp}_{\text{co}} * (0.5 - \text{rand})) \dots\dots\dots (5)$$

ここに、randは0~1の乱数である。

3. 結果および考察

3・1 実際のシンターケーキ像との比較

本モデルにより計算した焼結ベッド中心でのヒートパターンを実際のそれと比較した [Fig. 3]。実際の焼結では上方からの冷たいガスの流入による冷却過程が支配的であるため本モデルの冷却速度は実際の焼結のものに比較して遅いものの、昇温速度は実際の焼結と比較して違和感のないパターンとなっている。これは、昇温過程がコークスの燃焼による昇温に支配されており、本モデルの簡略化が概ね妥当であったためと考えられる。

次に、シンターケーキ像を比較した [Fig. 4]。計算のシンターケーキ像はシミュレーション結果として得られる鉍

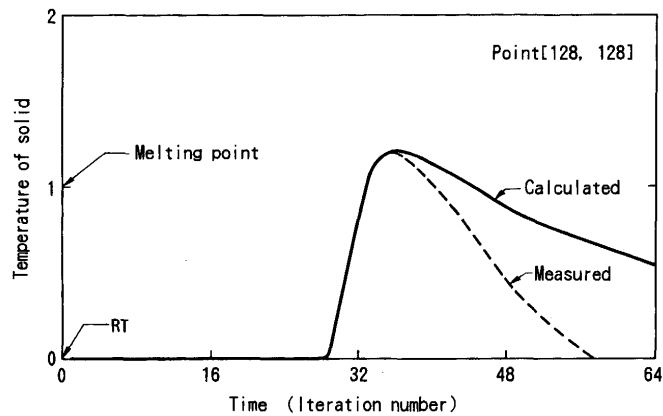


Fig. 3. Comparison of the heat pattern at the center of sintercake.

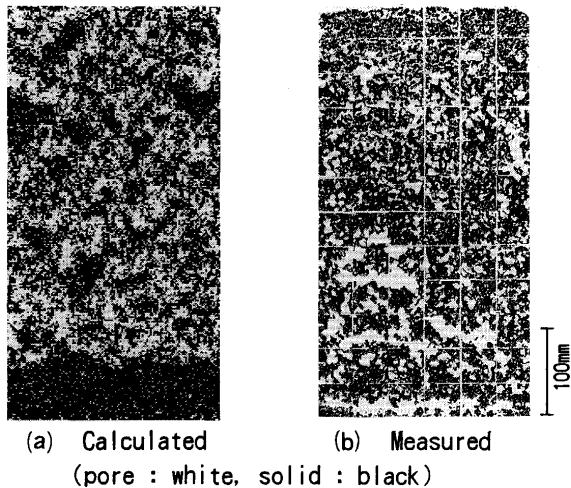


Fig. 4. Comparison of sintercake structure between calculation and measurement.

石密度分布をある閾値で固体 (黒) と気孔 (白) に2値化することにより作成した。この像は、実際のシンターケーキ断面像と比較して、個々の気孔形状に差異はあるものの、その分布状態はうまく再現している。これは、シンターケーキ形成にとって、3次元的に形成される気孔網に沿ったガス流れによる水平方向の熱の移動が重要であり、冷却速度はシンターケーキ形成にとってあまり重要でないことを示唆するものと思われる。

結論として、本モデルは、ヒートパターンにおける冷却速度が遅いという欠点は有するものの、実際のシンターケーキに近い気孔網を生成できると考え、次の気孔構造形成要因の検討に移った。

3・2 気孔構造形成要因の検討

コークス配合量 (C) と融液の流動性 (C/fd) を気孔構造形成の主要因と考えて、それらのパラメータを変えてシンターケーキの構造変化を調べた。

3・2・1 コークス配合量の影響

コークス配合量を変えた場合の、鉍石密度とコークス残留量の分布をFig. 5に示す。鉍石密度の変化から、コークス配合量の増加により生成する気孔径は増加することがわかる。また、過剰なコークス配合量では、コークス残留量分布に大きな未燃焼の固まりが存在することもわかる。この未燃焼は、直上部での過溶融による高密度領域の発生で気孔が閉塞し通気不良となったために発生していることが確認できる。葛西ら¹⁰⁾は、過剰コークス条件下ではクロスフロー的偏流を起こす粗大気孔が生成することを指摘しているが、同一の現象を再現したものと思われる。

上述の現象より、本シミュレーションでは焼結進行の程度 (通常は焼結の歩留として定量化されるもの) に最適なコークス配合量が存在することが推察できる。そこで、焼結進行の程度を鉍石の溶融率 (全鉍石中の溶融した割合) で表し、それをコークス配合量を変えて計算した結果 (同一コークス量でその初期分布を変えた10回の計算の平均値)

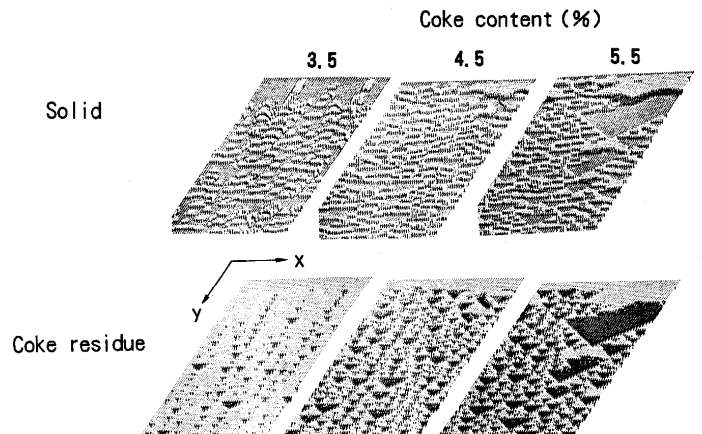


Fig. 5. Variation of sintercake structure and coke residue by coke content (pin height stands for concentration).

をFig. 6に示す。Fig. 6より、熔融率の推移は5%近傍で最大値を示し、それ以下でもそれ以上でも熔融率は低下することがわかる。

すでに稲角ら⁹⁾は、コークス配合量を変えたときのシタターケーキの構造変化を実験的に解析している。そこで、コークス配合量が過少でも過剰でも未焼が増加して歩留が低下すること、さらに最適なコークス配合量で得られるシタターケーキの構造がフラクタル構造を有することを示している。フラクタルとは、巨視化しても微視化しても同一の形となる形態をいい、自然界に広く存在している形と言われる¹¹⁾。具体的には、シタターケーキの2次元断面の固体ないし気孔部分のクラスターの大きさとその個数の両対数プロットが直線となることで確認される。

そこでこの稲角らの知見を検証することを目的として、Fig. 6の計算におけるコークス3, 5, 5.25%の場合の固体のクラスター分布をプロットした〔Fig. 7〕。クラスターの大きさとその数の両対数プロットは、3%では小さいクラ

スターが多量に存在することにより上に凸の曲線となるが、6%では過大なクラスターの生成により下に凸の曲線となる。ちょうど上記の最大の熔融率を示すコークス配合量である5%においてもっともよい直線性が得られた。この結果は、熔融率が最大となるシタターケーキ構造がフラクタルとなることを本数学モデルによるシミュレーションにおいても確認したことを示している。

3.2.2 融液流動性の影響

川口ら⁹⁾はシタターケーキ構造に及ぼすアルミナの影響を検討し、その増加が難溶性のカルシウムフェライト生成を促進して固体粒子の合体や貫通気孔の発達を阻害としている。本報でも、融液流動性のシタターケーキ構造への影響を調べた。その結果をFig. 8に示す。図では、初期の固体密度に等しい部分を薄い網に、それが初期値より低下した部分を白抜きに、増加した部分を濃い網で表示している。薄い網部分は未焼部分に相当すると解釈できる。この図より、融液流動性もコークス配合量と同様にシタターケ

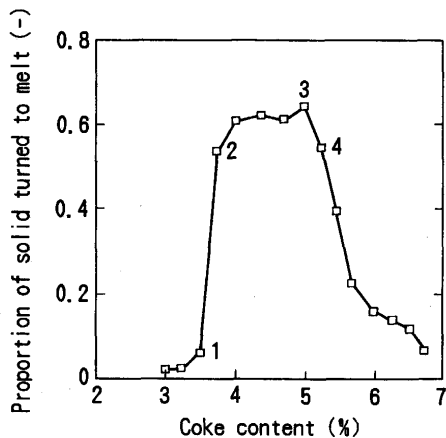


Fig. 6. Change of proportion of solid turned to melt per total solid.

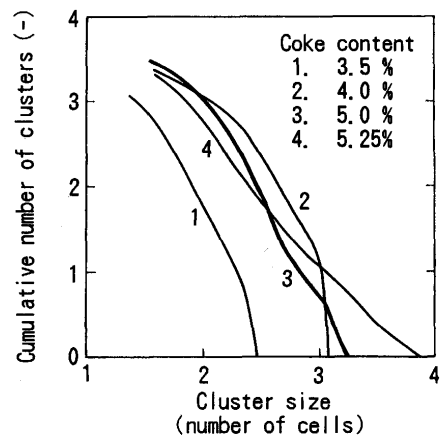


Fig. 7. Size distribution of solid cluster (log-log plot).

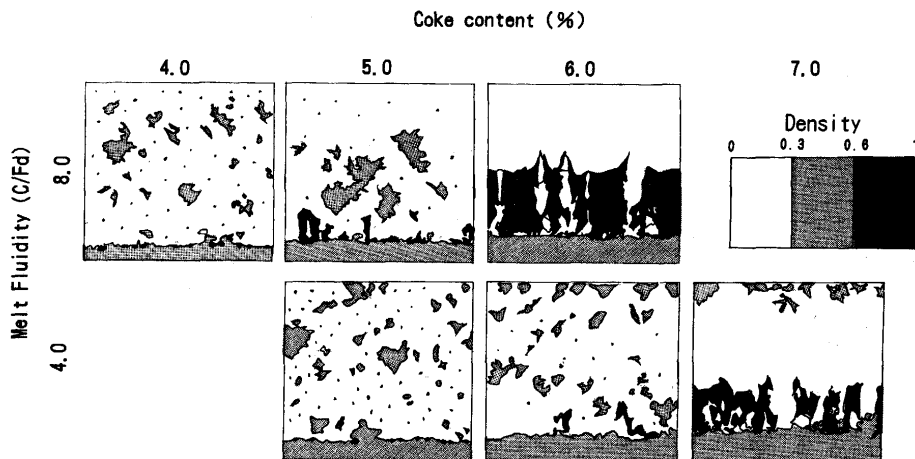


Fig. 8. Variation of ore density distribution by coke content and melt fluidity
 at white part: density lost
 at gray part: coke unfired or density unchanged
 at black part: density gained

一キ構造形成における重要な要因であり、融液流動性の増加はコークス配合量の増加と同様の効果を持つことが確認できる。つまり、適正な状態 [Fig. 8 下段中] で融液流動性を増すと過剰コークス配合時の状況と同じ多量の未焼を発生させる [Fig. 8 上段右]。一方、熱量不足の気孔構造が未発達な状態 [Fig. 8 下段左] で融液流動性を増すと適正な状態 [Fig. 8 上段中] となる。結局、コークス配合量と融液流動性を組み合わせた適正焼成条件の組み合わせポイントは、Fig. 8 における左上から右下に向かって存在するといえる。

3.3 初期ゆらぎの影響

焼結に本質的にまたは操業変動として存在する種々のバラツキのシンターケーキ構造への影響をみることを目的として、焼結反応開始前の原料充填層におけるコークス濃度のゆらぎの影響についてシミュレートした。

ゆらぎのない場合、気孔率は（水平方向に同一の値で）垂直下方に進むに連れて疎密に振れながら次第に減少し、ある時点で水平方向一斉に気孔が閉塞して空気が流れなくなり焼結の進行が停止してしまう現象が起こった。そこで、Fig. 9 のように、さらにそこにゆらぎの種を与えてやると、そこを起点として以下の層には安定した気孔網が発達してくることもわかった。また、初期ゆらぎの大きさ (amp_{co}) を10%と20%と変えてみたが、形成される気孔網に大きな差は目視上認められなかった。従って、焼結の安定した通気構造を確保するには何らかのゆらぎが必要であるがそれは多くは必要ないと考えられる。

上記の気孔率の層厚方向の周期的な動きは、実際のシンターケーキでも観察され、葛西ら¹⁰⁾も数10mmを周期として気孔率の周期的な動きが存在することを指摘している。従来これはコークスや鉱石密度の初期充填層におけるバラツキが助長された結果であると想定してきたが、今回のシミュレーションではむしろこれらランダムな初期条件のゆらぎは焼結進行を安定化させる傾向があることから、これにはなにか別のメカニズムが存在する可能性があることを示していると思われる。

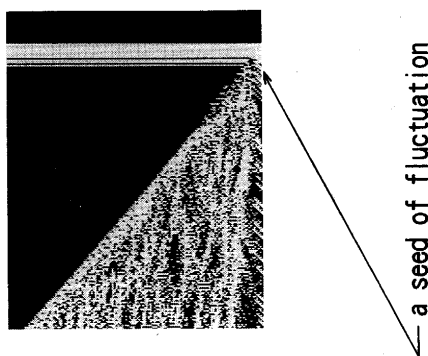


Fig. 9. Influence of initial fluctuation of coke distribution on sinter structure.

4. 結言

融液流れとそれによる気孔の閉塞現象をモデル化し、簡略化したヒートパターンモデルと組み合わせることにより、実際に近い形で焼結気孔形成挙動をシミュレートできた。そのモデルにおける2, 3の操作要因を検討することにより以下の結果を得た。

シンターケーキ構造形成において、

(1) 溶融率が最大となるシンターケーキ構造がフラクタルとなる計算結果を得、先の同様の実験的知見を計算機シミュレーションにより検証した。

(2) 融液流動性の増加はコークス配合量の増加と相補完する効果を持つ。

(3) 安定した通気気孔網の形成には、たとえば原料充填層におけるコークスの分布状態に、ある程度のゆらぎが必要である。

本研究を進めるにあたり神戸大学理学部伊東敬祐教授からいろいろと御助言をいただいた。ここに記して謝意を示します。

記号

ϕ_{pore} , ϕ_{coke} , ϕ_{pore}	: 鉱石, コークスおよび気孔の構成割合
δ	: コークス燃焼の有無を表すデルタ
A, T	: 酸素濃度と温度
amp_{co}	: ゆらぎの振幅
fd/C	: 定数 (粘性係数/定数に相当)
path	: 格子[x, y]と[x+e, y+1]間の距離
rand	: 0~1の乱数
Rc	: コークス燃焼速度 (一定値)
ΔT	: コークスの燃焼による温度上昇量
ΔT_{c}	: 単位量鉱石の単位量コークス燃焼による温度上昇量
[x+e, y+1]	: 直下の3つの最近接格子
x, y, t	: 垂直, 水平および時間の変数

文献

- 1) 鞭 巖, 樋口充蔵: 鉄と鋼, 56 (1970), 371.
- 2) 堀尾正毅, 大竹敏幸, 鞭 巖: 鉄と鋼, 60 (1974), 465.
- 3) 和島正巳, 相馬英明: 鉄と鋼, 73 (1987), 1948.
- 4) 川口尊三, 佐藤 駿, 高田耕三: 鉄と鋼, 73 (1987), 1940.
- 5) 田口 勇, 中村滋男: 鉄と鋼, 71 (1985), 1685.
- 6) 田口 勇, 田中幸基: 鉄と鋼, 72 (1986), 1629.
- 7) 笠間俊次, 稲角忠弘, 中安 勤: 鉄と鋼, 78 (1992), 1069.
- 8) 稲角忠弘, 笠間俊次: 鉄と鋼, 78 (1992), 1061.
- 9) 川口卓也, 笠間俊次, 稲角忠弘: 鉄と鋼, 78 (1992), 1053.
- 10) E. Kasai, B. Batcaiman, Y. Omori, N. Sakamoto and A. Kumasaka: ISIJ Intern., 31 (1991), 1286.
- 11) 高安秀樹: フラクタル, 朝倉書店 (1987)

付録. 垂直方向の対流伝熱のみを考慮した場合のシンターケーキ像の計算

垂直方向の伝熱のみを考慮した場合、本文中の(3)式に相当する伝熱式は以下のように単純化できる。ここでは、ガスと固体のそれぞれの熱収支式を連立させる煩雑さを避けるために、ガスと固体の熱交換速度が十分大きいとして、

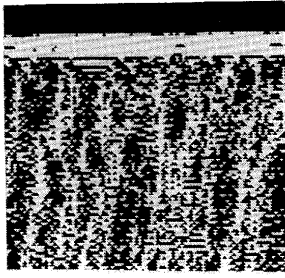


Fig. A1. Sintercake structure calculated with eq. (A2) for eq.(3)

当該格子における両者の温度は等しいと仮定する。また、ガス質量流速 (G) はすべての格子で一定値を用いる (気孔構造にあわせて変化させていない)。以上の簡略化により、ガスの比熱を C_g 、鉱石の比熱を C_s とすると、当該格子の温度 (T) は、当該格子の直上で空でない格子の温度 (T_u) を用いて (A1) 式となる。

$$C_s * \phi_{ore} * (dT/dt) = C_g * G * T_u - C_g * G * T \quad \dots (A1)$$

差分時間 $[t-1, t]$ において、 T_u の平均値を $\overline{T_u}$ とし、 $\overline{T_u}$ を一定として (A1) 式を積分し、 $(C_g * G) / (C_s * \phi_{ore}) = kh$ と置くと、温度に関する差分式 (A2) を得る。

$$T[x, y, t] = (T[x, y, t-1] - \overline{T_u}) * \exp(-kh / \phi_{ore}[x, y, t-1]) + \overline{T_u} \quad \dots (A2)$$

(A2) 式によるヒートパターンは、パラメータ kh のフィッティングにより、実際のそれとほとんど等しくすることが可能であったが、計算のシンターケーキ像は垂直方向に方向性のある実態とは感じの異なった気孔網となった [Fig. A1]。

実際の気孔網のような、3 次元的広がりを持つ気孔網の形成には、水平方向の熱の移動の取り込みが不可欠と考えられる。本文における検討では、その簡易な 1 表現として拡散型の伝熱式を採用したものである。