

焼結ケーキ中の空隙構造制御のための層構造設計

葛西 栄輝*・Sergey KOMAROV*・主代 晃一*²・中野 正則*³

Design of Bed Structure Aiming the Control of Void Structure Formed in the Sinter Cake

Eiki KASAI, Sergey KOMAROV, Koichi NUSHIRO and Masanori NAKANO

Synopsis : Design of bed structure is a promising approach to maintain/increase the productivity of sinter under the condition of increasing use of iron ores with high combined water content and fine particle size. In this paper, a process image of the above proposal, MEBIOS, is outlined and further *in situ* observation of the change in the void structure of the sintering bed by using X-ray CTS and a thermo-fluid dynamic simulation have been conducted in order to preliminarily evaluate the possibility of this process.

X-ray CTS observation suggests that the existence of pellets of 15 mm in particle size does not significantly affect the formation of macroscopic void network in the sintering bed and not lead to inhomogeneous sintering. A series of the laboratory-scale of sinter pot experiment was also carried out to obtain parameters for the numerical simulation. The gas flow near the pellet surface and the differences in the temperature profiles among the pellet center and surface were simulated by using the numerical model although further studies are necessary, *e.g.*, on the considering ways of structural changes of void in the sintering bed, reduction and oxidation reactions and a mesh generation method properly representing the contraction of bed height.

Key words: iron ore sintering; bed structure; sinter cake; void network; aging bed; induction bed; X-ray CTS; numerical simulation.

1. 緒言

最近の鉄鋼生産量増加を受け、鉄鉱石資源の価格高騰、優良鉄鉱石の将来的確保の困難性が指摘され、原料の自由度拡大が喫緊の課題と位置づけられている。一方、我が国ではピソライトやマランバなど、高結晶水鉄石に分類される鉄鉱石の焼結への使用比率が年々増加している状況であり、この傾向は今後も続くと予想される。

このような状況下で焼結鉄の生産性を維持、向上するためには、高結晶水鉄石の焼結特性を考慮した原料層構造の積極的な制御と、適正な原料分割配合設計が必要であると考えられる。具体的には、従来提案され、実用化されている原料分割造粒や選択造粒などの複合造粒法をさらに高度化することによって、焼結層内に理想的な通気経路（空隙ネットワーク）を形成するための焼成誘導層と、極端な融液発生を必要とせず比較的ゆるやかな塊成化を狙う焼成熟成層を適正に配置する方法である。前者では通常の焼結メカニズムに基づくコークス燃焼および層通過ガスの対流伝熱、後者ではペレットの焼成メカニズムに類似する外部からの熱供給および内部への見かけの伝導伝熱が主体的となる。このような焼成法のメリットを最大限に生かすためには、理想的な空隙ネットワークを実現するための層構造の

トータル設計と、溶融しにくく熱伝達しやすい緻密な熟成層の実現が重要である。

本報では、高結晶水鉄石多配合に対応可能な技術原理として、上記提案を具現化した例である原料層構造設計法の概念を述べ、その最適化に必要な情報を得るために行ったX線-CT装置による層空隙構造変化のその場観察、および熱流体力学的シミュレーションを行った。

2. 原料層構造設計への指針

焼結原料層は、水分等をベースとして造粒された擬似粒子の充填層である。焼結過程においては、上層から流れてくる高温ガスとの熱交換と周囲に存在するコークス燃焼による温度上昇により、特に原料細粒部分から融液生成が開始され、融液量が増加する。融液は未溶融粒子間を架橋し、これが凝固することにより、空隙ネットワークを内包した多孔質構造体である焼結ケーキが形成される (Fig. 1)。この変化は、一貫した見掛け粒子径増加（比表面積低下）を伴う連続現象と考えられ、温度低下により融液の流動性が失われた時点で構造が確定する。

粒子充填層の構造変化の観点からこの過程を考察すると、一次粒子間の融液架橋が平均クラスターサイズを増加

原著論文：ISIJ Int. Vol. 45 (2006), No.4, pp. 538-543

平成18年3月2日受付 平成18年3月20日受理(Received on Mar. 2, 2006; Accepted on Mar. 20, 2006; originally published in ISIJ Int., Vol. 45, 2005, No. 4, pp. 538-543)

* 東北大学多元物質科学研究所 (Institute of Multidisciplinary Research for Advanced Materials, Tohoku University, 2-1-1 Katahira Aoba-ku Sendai 980-8577)

*2 JFE スチール (株) スチール研究所 (Steel Research Laboratory, JFE Steel Co. Ltd.)

*3 新日本製鐵 (株) 環境・プロセス研究開発センター (Environment & Process Technology Center, Nippon Steel Corporation)

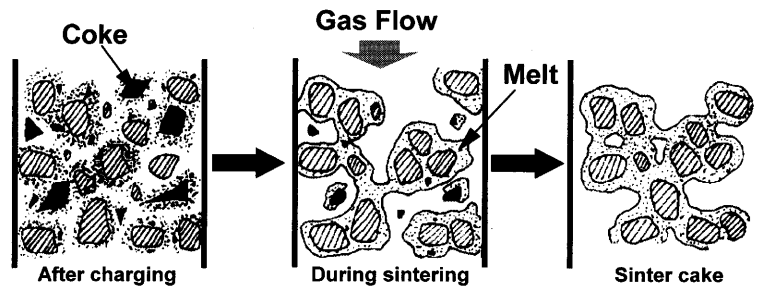


Fig. 1. Structural change from the raw material bed to the porous cake during sintering.

する現象とみなすことができる。これは、クラスターの平均直径を塊成化の程度を示すパラメータとして取り扱うことの妥当性を示す。一方、充填層の空隙構造変化の視点からは、気孔の合体による空隙成長現象とも考えられる。したがって、焼結層の最高温度上昇や高温保持時間増加によって上記現象を促進すると、クラスターと空隙の両方のサイズが増加していくことになる。しかし、極端な温度上昇は、多量の融液生成、流動による直下の空隙を閉塞をもたらす、通気障害による未焼成部、いわゆる“焼けむら”を引き起こすことが知られている。このような現象が起こらない範囲での最大クラスターサイズ、およびこれを実現する焼成条件の把握は極めて興味ある課題である。通常の焼結過程では、クラスターサイズが増加する途中で冷却による層構造の確定が起こると考えられ、結果的に焼結ケーキはマクロ的な周期を持つモザイク構造を示す¹⁾。クラスターサイズは溶融率や融液流動性の上昇によって増加し、例えば、コークス配合率増加は顕著な影響を与える (Fig. 2)。

高結晶水鉱石は goethite を主な成分とし、結晶水分解後の気孔率が高いため、融液との同化性が高い特徴をもつ。したがって、石灰石配合量が限られる実機原料条件下では低温で流動可能な融液生成が難しい一方、高温では同化が進行した部分の融液流動が一気に起こり、“焼けむら”を助長するため、成品歩留りが低下する。さらに、このような層構造変化においては、低温では空隙構造変化の遅滞、高温では通気パスの閉塞によって焼結層の通気を疎外するため、焼成時間延長をもたらす。

従来、高結晶水鉱石の高い同化性を緩和する方法として予備加熱処理が考えられ、自己緻密化焼結法²⁾、ピソライト鉱石床敷法³⁾などが提案されてきた。将来的な使用量増加が予測されるマラマンバ鉱石は結晶水を含む細粒主体の鉱石であり、これを原料中に均一分散することは、同化現象を助長する懸念がある。

先に著者の1人は、上記の高結晶水鉱石の特性を考慮した原料層の構造設計イメージをいくつか例示した⁴⁾。しかしながら、このような層構造を実現する装入法やハンドリングに耐え得る原料予備造粒法などを考慮すると、Fig. 3 に示すような層構造が現実的な目標の一つと考えられる。

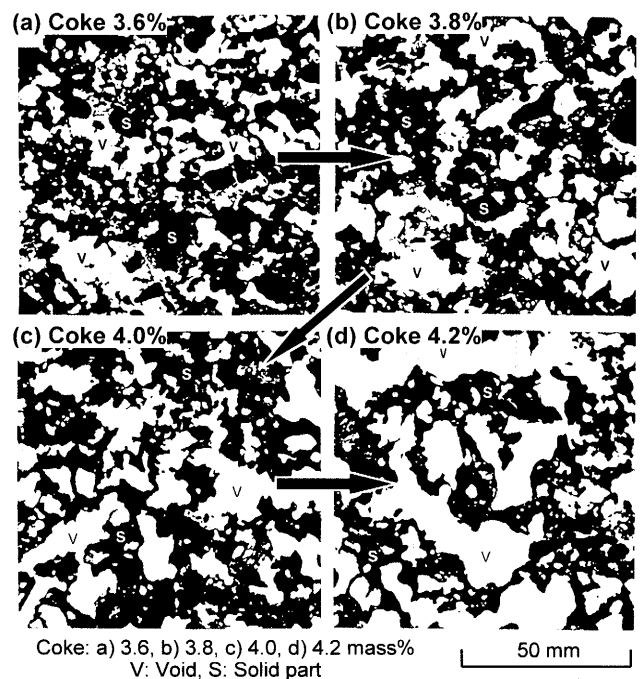


Fig. 2. Sinter cake structure prepared by varying coke rate.

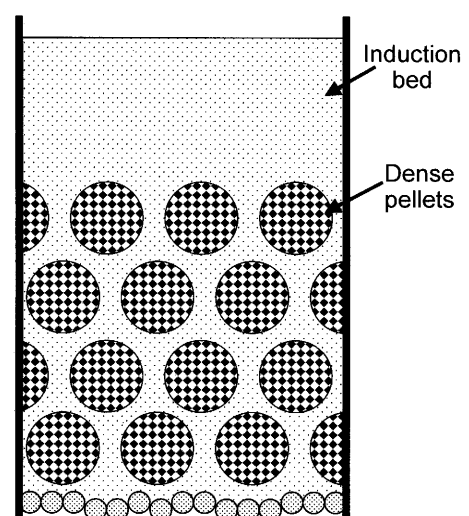


Fig. 3. An image of the design of bed structure of raw materials.

すなわち、通常焼成条件で適正な空隙ネットワークを形成可能な原料構成を持つ焼結誘導層中に緻密な予備造粒ペレット (熟成層) を配置するものである。この時、マラマ

ンバ鉱石など粉状高結晶水鉱石を熟成層の主要構成鉱石とし、主に誘導層を通過するガスからの熱供給による塊成化を狙う。同時に、ペレット内部での顕著な融液流動を抑制し、空隙構造形成時の骨材的な役割をも期待するものである。特に焼結ケーキ内に生成する空隙の位置とサイズの制御は、歩留り向上だけでなく、破生物の粒度分布制御への道を開く重要な技術である。多孔質メソモザイク組織焼結研究会では、これをMEBIOS (Mesomosaic EmBedding Iron Ore Sintering)法と名づけている。

3. X線-CT装置による層空隙構造変化の“その場”観察実験

Fig. 3のような構造を持つ原料層の焼結において、まず明確にすべきことは予備造粒ペレット（熟成層）の適正なサイズ範囲である。不均一焼成を避けるためにはペレット直下の誘導層にガスが十分に回りこむ必要があり、したがって、ペレットサイズには上限が存在するはずである。さらに、ペレット内部への伝熱速度の見地からもサイズ上

限が存在する。本研究では前者について、X線CTスキャン装置を使用する層構造変化の“その場”観察を行った。また、後者についてはペレット内部で起こる各種の吸・発熱反応や緻密化現象を定量把握し、数値シミュレーションを展開して検討するのが効率的と考えられる。

従来、X線CTスキャン観察においては、焼結層内に30mmφの厚さ3mmのアルミナ繊維製ディスクを置いたところ、焼成進行中にディスク直下の原料層の沈み込みによりガス流れが確保されることによって、その部分に大きな空隙が形成されることを確認している (Fig. 4)。この結果は、サイズが30mm程度の難ガス透過層の存在は、マクロ的な空隙ネットワーク形成に関してあまり大きな影響を及ぼさないことを示唆している。

3.1 実験方法

本研究では、X線CT観察用の小型焼結試験機（焼結層直径100mm，層高100mm）を用い、焼結層の中心部に予備造粒ペレットを置いたモデル実験を行った。

3.2 結果および考察

Fig. 5 (a), (b)に、マラマンバ鉱石Lとコークス(4mass%)

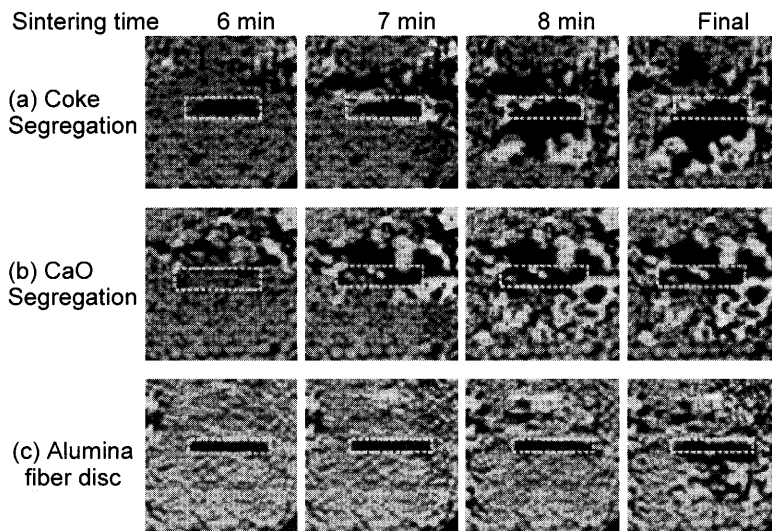


Fig. 4. Changes in the bed structure for various segregation conditions of raw materials (70×70 mm).

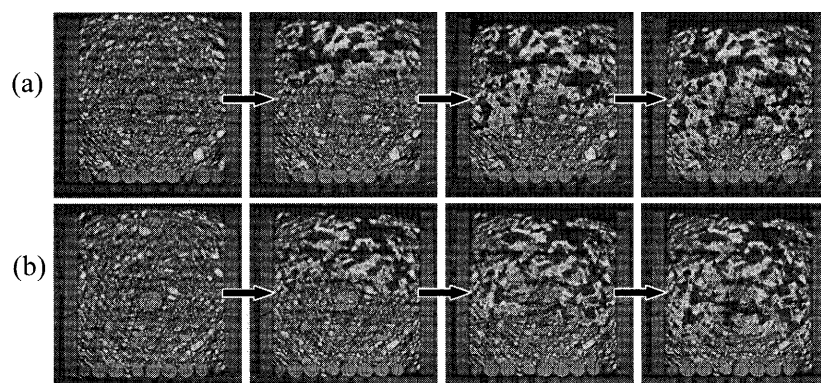


Fig. 5. Structural changes of the bed around the pellet of 15 mmφ (120×120 mm). Pellet was consisted of (a) marramamba ore + coke (4 mass%) and (b) marramamba ore only.

の混合粉および鉬石L粉のみで作製した直径15mmのペレットそれぞれ1個を設置したケースで得られた焼結層断面画像の経時変化を示す。いずれも焼成が進行し焼成前線が通過直後に、ペレット表面と周囲原料層間のギャップの形成が観察され、特にペレット直下に比較的大きな空隙が形成する。これは、Fig. 4に示したアルミナ繊維製ディスクを設置したケースで認められた空隙形成過程と類似した現象である。このような現象にはペレット表面近傍でのガス流れに対する壁効果が影響しているものと推定され、高速焼成を実現するプロセス原理としても注目される。また、焼成後のペレット配置部を観察すると、ケースによってはペレットが焼成中に崩壊してしまった組織や、コークス粉をペレットに配合することによる塊成化現象促進効果も観察された。

以上のように、焼結層内のガス流れに関しては、15mmφ程度のサイズのペレット配置が“むら焼け”など極端な焼成不均一性をもたらす可能性は比較的小さく、むしろ、適切な配置設計を行うことによってマクロ的均一性の確保と空隙ネットワーク構造の制御を実現する方法として積極的に利用できる可能性がある。一方、亀裂発生によるペレットの崩壊や過熔融現象を防止するためには、微粉コークスやカーボン源を含有するダスト粉などの配合率、CaO濃度、鉬石の熱割れ特性、ペレット密度や配合率など、多くの因子の影響把握が必須であり、これらの情報をベースとした配合条件の最適化が今後の重要な課題となる。

4. 焼結層・予備造粒ペレット測温実験および数値シミュレーション

本研究では、MEBIOS法による焼結において、焼成誘導層の形状、サイズ等が焼結層のガス流れや熱履歴に与える影響、誘導層内の温度履歴、適正な誘導層の配置構造等の検討を効率的に行うために、汎用熱流体解析コードを利用したシミュレーションモデルを開発している。本報では、計算に必要なパラメータ類のフィッティングのためのデータ取得を目的とした、小型焼結試験装置による焼成実験結果および計算結果との比較を述べる。

4.1 実験方法

内径70mm、原料層高400mmの小型焼結試験装置を使用し、焼結層中央部にヘマタイト試薬およびピソライト鉬石Kの破碎微粉を予備造粒したペレットを置き、焼成した(Fig. 6)。本実験はシミュレーションモデル構築のためのデータ取得を目的としており、予備造粒ペレットを1個のみ配置した条件で行い、複数のペレットを配置する種々のケースへの拡張を狙いとした。焼成中は、ペレットの表面温度(TC₀)および中心温度(TC_c)を連続的に測定した。

本ケースにおけるガス流れ、伝熱、主な反応等のシミュレーションに対し、汎用熱流体解析コード(PHOENICS)を

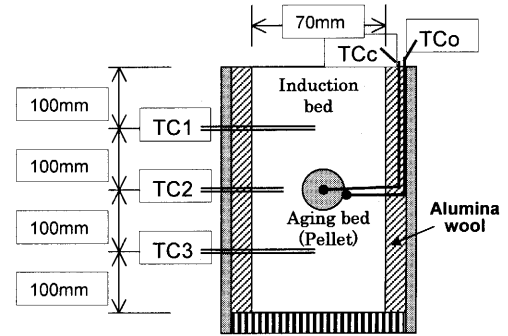


Fig. 6. Arrangement of small sinter-pot test.

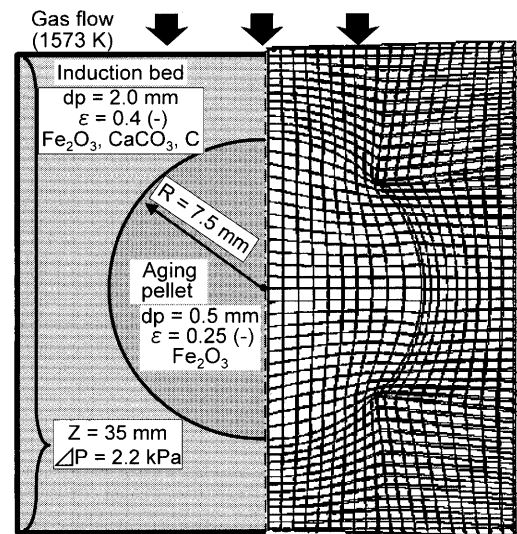


Fig. 7. An example of the simulation region and prepared mesh.

用いた検討を行った。Fig. 7は計算領域と構築したメッシュの一例である。上述した小型焼結試験装置による実験と比較しやすいように、図ではメッシュ左端軸を回転した円柱形の領域を計算するものであり、原理的には二次元計算となる。本シミュレーションモデルでは、原料中水分の揮発、石灰石分解、コークス燃焼、カルシウムフェライト生成、融液生成・凝固などの主要反応を考慮し、熱および物質の移動を考慮している。焼結層内のガス流れに関しては、運動方程式中に充填層の圧力損失を与える経験則であるErgunの式を代入し、熱と物質の流れを同時に解く。焼成熟成層と誘導層には、それぞれの空隙率と代表粒子径を与える。さらに、比較的大きなペレットを配置した際には、その表面近傍でのガス流れに関する壁効果が無視できないと考えられる(Fig. 8)。壁効果が顕著な場合、ガスはまずペレット近傍に流れ込み、ペレット表面を加熱すると考えられる。シミュレーションモデルにおいて、壁効果は準備したメッシュに対する空隙率の値をペレット表面から平均的な原料層へ連続的に低下させることにより考慮した。

4.2 結果および考察

表面温度(TC₀)および中心温度(TC_c)の経時変化の一例

を Fig. 9 に示す。周囲の層の温度変化と比較するとペレット中心部の温度上昇には時間遅れがあり、最高温度も低い傾向にあった。Fig.10 には TC_o と TC_c の各最高温度の差に対するペレットサイズの影響を示す。ペレット径の増加に伴い TC_c が低下する傾向が認められる。

Fig.11 および 12 にシミュレーション結果の例を示す。

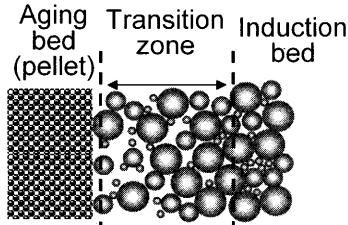


Fig. 8. Continual change of void fraction from the pellet surface toward the induction bed.

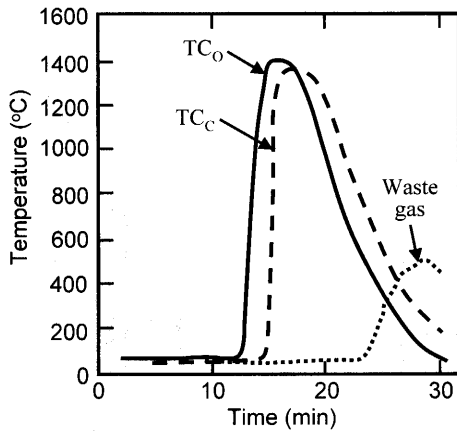


Fig. 9. Typical temperature profiles of TC_o , TC_c and waste gas temperature. (Case of 10mm pellet (hematite reagent))

Fig.11 は直径 15mm のペレット焼結層中心部（層頂から 200mm 下の位置）に置いたケースでの、焼結進行に伴う熱生成速度と固相温度分布の経時変化を示しており、ペレット周辺におけるガスの迂回流れ、ペレット表面近傍のガス流速の増加に伴う焼成促進などの現象が表現されている。Fig.12 は、5, 10, 15mm の各粒度を持つペレットを焼結層中心部に置いた場合の、ペレット表面温度 TC_o と中心温度 TC_c のそれぞれの経時変化である。直径 5mm のペレットでは、両者の変化にはほとんど相違が認められない。しかし、10 および 15mm のペレットの場合は、ペレット中心部の昇温が表面温度に対して遅れる現象が認められ、遅れの程度はペレット粒度の増加により増大する。ただし、本シミュレーションでは、両者の最高温度の差は極めて小さく、Fig. 8 に示した実験結果とは異なる結果となる。これには、ペレット内部の見かけ熱伝導係数の見積り誤差が影響しているものと考えられる。本モデルでは、多孔質へ

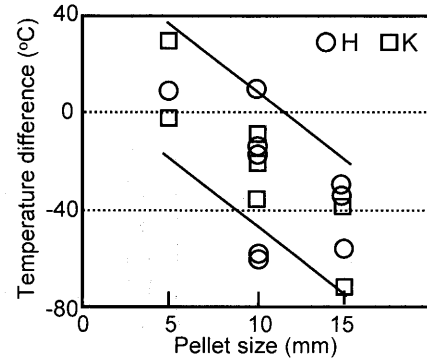


Fig. 10. Relation between size of pellet and the temperature difference of the center to the surface. (H: prepared by hematite reagent, K: prepared by pisolitic ore)

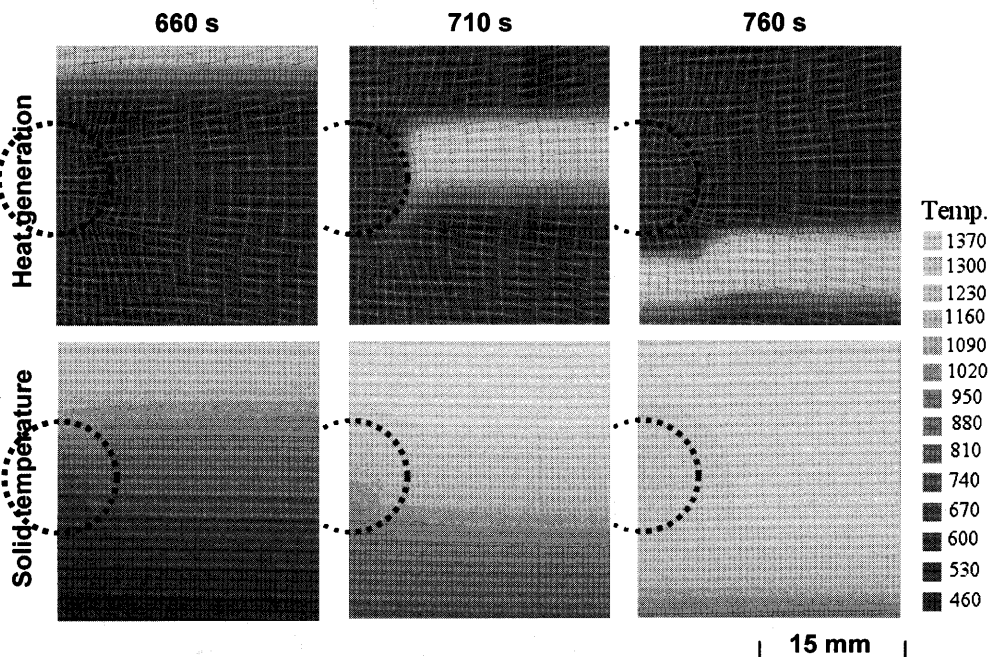


Fig. 11. Example of computed distributions of heat generation rate and solid temperature in the sintering bed with the pellet of 15 mm at 660, 710 and 760 s.

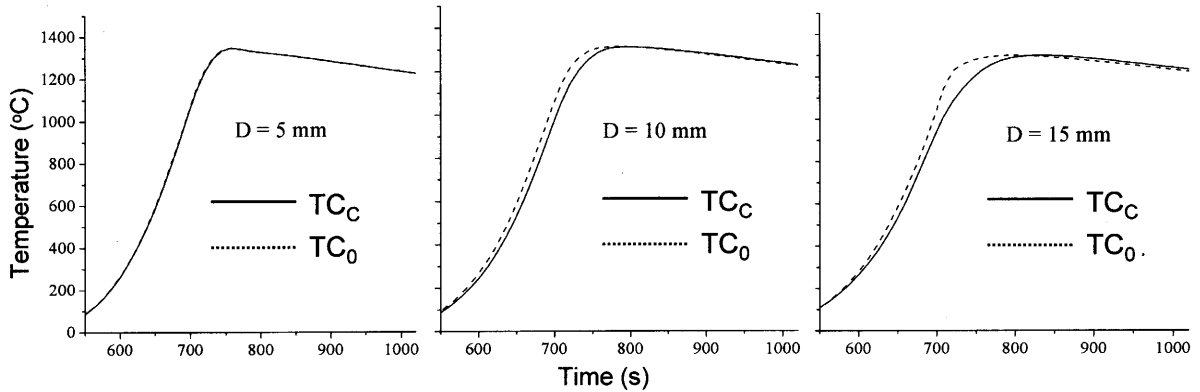


Fig. 12. Comparison of computed temperature profiles at the center, TC_C , and the surface, TC_0 , of the pellets of 5, 10, 15 mm in size during sintering.

マタイトを想定した熱拡散率の推定法⁵⁾を参考にした計算を行ったが、さらに精度に関する検討が必要と考えられる。

今後、ペレットへのコークス粉添加のケースなどにおいて顕著になる焼成熟成層内部での還元・酸化反応の考慮、固相発生融液の流動による層構造変化や、層高収縮を適切に表現するためのメッシュ発生法などに関する検討を継続し、例えばペレット中心部に十分な温度履歴を確保するための焼成条件把握などに使用できるシミュレーション開発を目指す。

5. 結言

マランバを中心とする粉状高結晶水鉍石の多配合に対応可能な技術としての原料層構造設計(MEBIOS)法を前提として、その最適化のための指針を与えるX線-CT装置による層空隙構造変化のその場観察、および流体力学的シミュレーションについて検討した。

(1) 鉄鉍石の焼結は、原料粒子クラスターおよび空隙のサイズ増加に特徴付けられるように、マクロ的には層構造の不均一化現象とみなすことができる。したがって、焼結現象進行とともに層内のガス流路は上記の特徴的サイズに応じた迂回が必要となる。高結晶水鉍石の多配合時に認められるような大きな岩盤状のガス不透過層の形成は、その下部での未焼成を生み出す。しかし、例えば、30mm程度のサイズの不透過部に対しては、ガスは比較的容易に迂回でき、不均一焼成の原因とはならない。

(2) 焼結層(焼成誘導層)内に15mm程度以下の比較的大きな予備造粒ペレット(熟成層)を配置した焼成実験を行い、ペレット直下に未焼成部が生成しないことをX線-CT装置を用いた観察により確認した。また、ペレット表面近傍の壁効果によるガス流速増加と考えられる現象が認められた。また、ペレットへの炭素源配合により塊成化が促進する現象を確認した。

(3) ペレットの最適な層内配置を効率的に検討するため、汎用熱流体解析コードを利用したシミュレーションモデル構築を目指した検討を行った。同時に、シミュレーションモデルに用いるパラメータ取得およびモデルの妥当性を検討するため、小型焼結試験機による焼成実験を行った。本モデルは、ペレット表面近傍のガス流れ、誘導層とペレット表面および中心部の温度履歴の相違等が表現可能であるが、今後、各パラメータ値の精査など、さらなる検討が必要である。

なお、本論文は多孔質メソモザイク組織焼結研究会における研究成果である。

文 献

- 1) E.Kasai, W.J.Rankin, R.R.Lovel and Y.Omori: *ISIJ Int.*, **29** (1990), 635.
- 2) Hida, Okazaki, Nakamura, Kamikawa, Kasai: *Tetsu-to-Hagané*, **78** (1992), 1021.
- 3) Kawaguchi, Hatano, Murai, Kawaguchi: *Tetsu-to-Hagané*, **80** (1994), 270.
- 4) E.Kasai: *CAMP-ISIJ*, **15** (2002), 718.
- 5) T.Akiyama, H.Ohta, R.Takahashi, Y.Waseda and J.Yagi: *ISIJ Int.*, **32** (1992), 829.