金属精錬プロセスにおける吹込み操作*

佐野正道¹

Fundamentals of Injection Operations in Refining Processes

by Masamichi SANO¹

1. Prof., Dr., School of Engineering, Nagoya University, Chikusa-ku, Nagoya 464-01

The present paper is concerned with physical phenomena associated with fluid flow in gas and powder injection in refining processes. The characteristics of bubble formation from a nozzle and an orifice (or porous plug) are described. The critical condition is discussed for jetting, in which the injected gas leaves the nozzle as a continuous jet. Dispersion behavior of the injected gas in the bath is investigated to clarify the structure of jet and plume. The stirring power of the injected gas is formulated, and the mixing time and circulating flow in the bath are also mentioned.

KEY WORDS: Injection Metallurgy, Bubble Formation, Jetting, Powder Injection, Mixing Time, Circulating Flow

1. 緒言

気泡、液滴、固体粒子の異相分散操作は化学工業において多く行われており、基礎研究も活発に推進されている¹⁾²⁾。金属精錬の分野においても、Table 1に示すように異相分散操作は積極的に利用され、大きな成果をあげている。

金属精錬反応は異相系反応であり、一般にその反応速度は次式で与えられる。

$$(\text{反応速度}) = (\text{速度定数}) \times (\text{反応界面積}) \times (\text{推進力})$$

高純度金属の製造においては、不純物濃度は極低濃度まで低下し、推進力が小さくなるため、反応速度は非常に遅くなる。速度定数を大幅に増加させることは困難であり、反応速度を増大させるためには反応界面積を大きくすることが必須条件となる。このため、反応成分を含む気泡、液滴、固体粒子の溶融金属中への分散が必要となってくる。

金属精錬プロセスにおいて、最も多く行われている分散操作は溶融金属へのガス吹込みである。この場合、ガス-金属間界面積の増加が図られるとともに、浴内の循環流動が起こり、温度、濃度分布が均一化し、熱および物質移動が促進される。本稿では、主として溶融金属中へのガス吹込みによって起こる種々の物理的現象に関する研究を中心にまとめる。

2. 溶融金属中の気泡の生成挙動

2・1 ノズルからの気泡生成

ノズルから生成する気泡の大きさに影響を及ぼす因子として、

ノズルの直径 d_n 、材質(濡れ性)、蓄気室容積 V_g 、液体の密度 ρ_L 、粘性係数 μ_L 、表面張力 σ 、ガス流量 V_g などがある。気泡の生成機構はこれらの因子の組合せによって複雑に変化する。

著者らは、水銀、溶融銀および溶鉄中のノズルからの生成気泡の大きさを測定し、ノズル直径、蓄気室容積、ガス流量、液体の物性などの影響を検討した³⁾⁴⁾。その結果、生成気泡の大きさを決定するノズル径は、液体に対するノズルの濡れ性によって異なり、ノズルが濡れる水系の場合にはノズル内径であり、ノズルが濡れない溶融金属系の場合にはノズル外径であることが明らかになった。蓄気室容積が小さく、気泡生成に対して影響を及ぼさない場合、生成気泡の大きさは次式で与えられる。

$$d_B = \left[\left(\frac{6\sigma d_n}{\rho_L g} \right)^2 + 0.0242 (V_g^2 d_n)^{0.867} \right]^{1/6} \dots\dots\dots (1)$$

ここで、 d_B は生成気泡径(cm)、 σ は表面張力(dyn/cm)、 d_n はノズル直径(cm)、 ρ_L は液体密度(g/cm³)、 g は重力加速度、(cm/s²)、 V_g はガス流量(cm³/s)である。なお、(1)式の右辺の括弧の第一項は静力学的釣り合いの条件から導かれる。

(1)式を用いて種々の液体中で生成する気泡の大きさを計算し、Fig.1に示した。図において、溶融金属の場合にはノズル外径 d_{no} を0.6 cm、水の場合にはノズル内径 d_{ni} を0.6 cmとした。低ガス流量域においては、気泡径は液体密度 ρ_L と表面張力 σ の影響を受け、 σ/ρ_L が大きいほど生成気泡径は大きくなるのがわかる。一方、ガス流量が大きくなると、生成気泡の大きさは液体の物性に無関係になる。

金属精錬プロセスにおけるように、ガス流量が非常に大きい場合には、生成気泡は大きくなり、上昇途中で分裂して気泡群を形成する。実際プロセスの解析においては、この気泡群中の気泡の大きさを知る必要がある。Leibsonら⁵⁾は、水-空気系の分散気泡群について次式を得ている。

$$d_{vs} = 0.713 Re_0^{-0.05} \quad (10,000 < Re_0) \dots\dots\dots (2)$$

* 1993年10月19日受付 12月13日受理

1. 工博 名古屋大学教授 工学部材料プロセス工学科

キーワード: インジェクション冶金, 気泡生成, ジェットティング, 粉体吹込み, 均一混合時間, 循環流動

Table 1 Dispersion phenomena and heterogeneous contacting operations.

Continuous phase	Dispersed phase	Dispersion phenomena	Heterogeneous contacting operations
gas	liquid	splashing, spraying, atomization	spray degassing
gas	solid	fume, powder conveyance, fluidization	dust collection, fluidized bed
liquid	gas	bubble, foaming	gas absorption and desorption, gas stirring, slag foaming
liquid	liquid	emulsion	slag-metal reaction
liquid	solid	suspension	solid particle-metal reaction, deoxidation (inclusion formation)
liquid	gas and solid	powder injection	powder injection refining
solid	gas	blowhole	blowhole formation during solidification
solid	solid	precipitation, internal oxidation	hardening

Fig. 1 Comparison of sizes of bubble formed in various liquids⁴⁾. Fig. 2 Relation between volume-surface mean diameter of bubble and gas-flow rate⁶⁾.

ここで、 d_{vs} は体面積平均径 (cm)、 Re_0 はノズルレイノルズ数 ($= d_{ni} \rho_G u_0 / \mu_G$, u_0 : ノズル出口のガス線速度, 添字 G: ガス) である。

空塔速度 V_s^a が大きい実際プロセスでは、気泡群は分裂、合体を繰り返しながら上昇する。すなわち、分散気泡群の気泡の大きさは、空塔速度、液体の密度、表面張力などの影響を受けると推定される。著者ら⁶⁾ は、水銀中の分散気泡の大きさを電気探針法により測定し、次式を得ている。

$$d_{vs} = 0.071 (\sigma / \rho_L)^{0.5} V_s^{0.44} \quad \text{..... (3)}$$

ただし、(3)式の各変数の単位には c. g. s. 単位系が用いられている。

Fig. 2 には、(3)式を用いて計算した各種液体中の分散気泡の

a) 気泡分散領域の単位断面積当たりのガス流量を表す。

Fig. 3 Largest base diameter of bubbles plotted against gas-flow rate⁹⁾. Fig. 4 Average bubble diameter plotted against gas-flow rate⁹⁾.

大きさを示す。Leibsonらの結果とは異なり、分散気泡径は空塔速度とともに増加する。図には、上山ら⁷⁾の水-空気系の実測値およびFruehan⁸⁾がQ-BOP炉中の窒素吸収速度より求めた推定値をプロットした。溶鉄中の分散気泡はかなり大きいことがわかる。

2・2 オリフィス、ポーラスプラグからの気泡生成

水中のオリフィスからの生成気泡の大きさは、(1)式中の d_n に対してオリフィス径を用いることにより求めることができる。しかし、熔融金属中のオリフィスから生成する気泡の底面はオリフィス断面よりかなり広がるため、気泡径の計算に(1)式を適用できない。

小沢⁹⁾は、水銀中のオリフィスから生成する気泡の底面を透明な容器底板を通して高速度撮影し、さらに電気探針法により気泡生成頻度を測定し、平均生成気泡径を求めた。高速度撮影より各流量における最大気泡底面径 d_{ML} を求めた結果を Fig. 3 に示した。 d_{ML} はガス流量 V_g に強く依存し、オリフィス径 d_o にはあまり依存していない。また、平均生成気泡径 $d_{B,av}$ とガス流量 V_g の関係を Fig. 4 に示した。図より明らかなように、オリフィス径の影響は小さく、 $d_{B,av}$ は V_g とともに大きくなる。Fig. 4 中の右下に低ガス流量域の結果を示した。図より $V_g < 0.1 \text{ cm}^3/\text{s}$ において平均生成気泡径 $d_{B,av}$ は V_g に無関係に一定であることがわかる。

低ガス流量域で静力学的条件下における気泡生成に対しては、Fritz の理論¹⁰⁾を適用することができる。液の密度を 13.6 g/cm^3 、表面張力を 480 dyn/cm 、接触角を 125° として計算した最大気泡底面径 d_{ML} を Fig. 3 中に示した。図において計算値は $V_g < 2 \sim 3 \text{ cm}^3/\text{s}$ では実測値に一致している。一方、接触角を 135° として計算した生成気泡径 d_B は $V_g < 0.1 \text{ cm}^3/\text{s}$ における平均生成気泡径 $d_{B,av}$ の実測値に一致する。最大気泡底面径と生成気泡径の計算値が実測値と一致する接触角が若干異なるが、これは前者は後退接触角、後者は前進接触角によって決まることによると考えられる。

ガス流量 V_g が高くなると、表面張力に比べて慣性力が支配的になってくる。この場合の気泡生成は、Davidson, Schüller¹¹⁾ による、ガスが点源から供給されると仮定するいわゆる点源モデルを用いて説明できる。実際の計算においてはガス運動量の寄与も考慮して最大気泡底面径、生成気泡径を求め、Fig. 3, 4 に示した。図における理論と実験の一致から Davidson と Schüller の点源モデルは気泡生成の実体をかなりよく表しているといえる。なお、Fig. 4 には、(1)式より計算した生成気泡径も同時に示した。オリフィスの場合、ノズル外径に相当するものがないため、 d_n に 0.5, 1.0, 2.0, 4.0 cm の値を代入して気泡径を計算した。図より、ガス流量の増加にともない d_n をより大きくした(1)式の計算値と実測値が一致することがわかる。

2・3 気泡の微細化

気泡-熔融金属間反応を効率的に進行させるためには、浴内に小気泡を多く分散させ、反応界面積および気泡の浴内滞留時間を大きくする必要がある。

液体中に小気泡を分散させるためには、気泡界面を多くつくるためのエネルギーが必要となる。このエネルギーとして、液体の運動エネルギーの他に、機械的エネルギー、音波エネルギー、電磁気エネルギー、圧力エネルギー、化学エネルギーなどが考えられる。

これらの中で、実際に使用されているエネルギーとしては機械

的エネルギーがある。たとえば、攪拌槽における気泡の微細化があげられる¹²⁾。金属精錬プロセスでは、回転ノズルが用いられており¹²⁾、その高速回転による剪断力が生成気泡に働き、小気泡が生成する。この方法は、熔融金属の脱ガスあるいは介在物の除去に有効であると考えられる。

常温の液体を扱う気泡塔においては、微細な気泡を発生させるために、Fig. 5 に示すような液体エジェクターを用いて気体と液体の同時吹込みも試みられている¹³⁾。しかし、高温の熔融金属の場合、エジェクターに使用する耐火物が激しく溶損すると考えられ、この方法を適用することは困難である。

なお、金属精錬プロセスへの応用を目指して、電磁気エネルギー¹⁴⁾、音波エネルギー¹⁵⁾の利用による気泡の微細化が研究されている。また、溶鋼中の介在物除去を目的として、加圧下で溶鋼に窒素、水素ガスを吸収させた後、減圧にして微細気泡を生成させる試みも行われている¹⁶⁾。

3. バブリングとジェッティング

吹込み精錬において浴中に吹込まれたガスの羽口近傍での挙動は、羽口の溶損や閉塞と密接に関連しており、実際プロセスの安定作業上からも非常に重要な問題である。

小沢ら^{9) 17) 18)}は、オリフィスから水銀、水浴中への N_2 , He ガス吹込みにおけるガスジェットの挙動を調べている。低ガス流量においては、前述したように、吹込まれたガスはオリフィス出口において水平方向に広がる。この広がりは周期的に変化し、気泡生成の周期に対応しており、この現象をバブリングと名付けた。ガス流量が増加し、ある臨界流量以上になると、バブリングの他に吹込みガスが連続的のジェットとして液中に侵入すると考えられる現象が現れることを見だし、この現象をジェッティングと名付けた。すなわち、ジェッティングにおいては、気泡底面径とオリフィス径がある時間継続して一致しているため、この時間範囲ではガスは気泡を生成せず、連続的のジェットとしてオリフィスより液中に侵入する。

Fig. 6 には、 $\text{N}_2\text{-Hg}$ 系についてバブリングとジェッティングの時間割合とオリフィス出口におけるガスのみかけのマッハ数 M' ^{b)} の関係を示した。図中の点線は窒素ガスに対する亜音速-音速領域の臨界の M' を示している。図より、バブリングからジェッティングへの遷移が始まる M' の値は 3 種のオリフィスについて一致していることがわかる。また、この臨界ガス線流速はオリフィス径に依存せず、音速より少し大きいところにある。

Fig. 7 には、 $\text{N}_2\text{-Hg}$, $\text{N}_2\text{-H}_2\text{O}$, $\text{He-H}_2\text{O}$ 系について測定

Fig. 5 Ejector type nozzle¹³⁾.

Fig. 6 Time fractions for bubbling and jetting plotted against nominal Mach number⁹⁾.

b) ガス流量をオリフィス断面積で割ったみかけのガス線流速と室温における音速との比である。

Fig. 7 Time fractions for bubbling and jetting for three models plotted against nominal Mach number¹⁸⁾.

したバブリング、ジェッティングの時間割合をみかけのマッハ数 M' に対してプロットした¹⁸⁾。図中の点線は N_2 ガス、破線は He ガスに対する亜音速—音速領域の臨界の M' を示している。図から明らかなように、バブリングからジェッティングへの遷移が始まる臨界の M' は三つの気—液の組合せにおいてすべて亜音速—音速の境界に近く、液体、吹込みガスの密度の影響をほとんど受けていない。しかし、ジェッティングへの遷移は液体の密度 ρ_L が小さいほど、吹込みガスの密度 ρ_G が大きいほど急激になっており、安定したジェッティングが起こりやすくなることがわかる。

液体中への吹込みガスジェットの挙動に関する研究は、Hoe-
fele と Brimacombe¹⁹⁾, Farias と Robertson²⁰⁾, McNallan と King²¹⁾ によっても行われており、バブリング—ジェッティングの遷移条件が示されているが、研究者によってかなり異なっている。小沢と森¹⁸⁾ は、従来の研究を詳細に検討し、各研究者の遷移条件が一致しない理由をつぎのように説明している。一般に高流量のガス吹込みにおいては、オリフィスで発生し離脱した気泡が上昇始めると、すぐにつぎの気泡の生成が始まり、上昇しつつある離脱気泡に合体連結する現象が起こる。このような気泡の合体連結現象が頻繁に起こるようになると、吹込みガスは、外見上連続的のジェットとして観察される。小沢らは、Hoe-
fele らが示した遷移条件は以上の気泡の合体連結現象に関連した遷移条件であることを明らかにした。なお、McNallan らはバブリング—ジェッティングの遷移条件をノズル単位断面積当たりのガス質量流量を用いて与えているが、その結果は小沢らの遷移条件にかなり近い。

4. 羽口の溶損と閉塞

熔融金属中にガス吹込みを行う場合、その吹込み条件によっては羽口近くの耐火物の溶損あるいは熔融金属の流入による羽口の閉塞が起こり、安定したガス吹込みを行うことができない。

溶鉄へのガス吹込みにおけるノズルの閉塞現象については、丸川ら²²⁾ が種々の形状のノズルを用いて閉塞条件を調査し、ノズル閉塞が起こらない臨界ガス線速度は音速に近い 330 m/s であり、ノズル閉塞を防ぐためにはノズル出口で音速条件を保つ必要があることを示した。Sharma²³⁾ は、炉底羽口から溶鋼への不活性ガス吹込みにおける羽口内への溶鋼の流入とマッハ数 $M (=u/a, u: \text{ガス線速度})$ 、フルード数 $Fr' = \rho_G u^2 / \rho_L g d_n$ との関係の調べた。溶鋼流入の臨界のマッハ数 M は 1.1 ~ 1.2、フルード数は 2,300 ~ 2,400 で、それ以上では溶鋼の流入は起こらないことを示したが、溶鋼流入の臨界条件はフルード数を基準とした方が

より妥当であるとしている。なお、Sharma は、羽口径 d_n を 0.1 ~ 0.3 cm の範囲で変化させて実験を行っているが、羽口内部への溶鋼の流入が起こらない実験は $d_n = 0.1$ cm の場合のみであり、他の d_n についても臨界のフルード数を確かめる必要がある。

Engh ら²⁴⁾ は、水およびエチレングリコールへ空気、He, H_2 を吹込み、液滴がノズル内に飛び込む現象を観察し、液滴発生速度と各種因子との関係を次元解析により得ている。しかし、液滴の発生に大きな影響を与える表面張力についてはデータ不足のため除いてあり、熔融金属系への適用性は不明である。

坂口ら²⁵⁾ は、溶鋼中への二重管羽口からの酸素吹込みを行い、溶損の起こらない羽口冷却条件およびガス吹込み条件を検討した。前者については酸素と溶鋼との発熱反応による羽口の受熱量が冷却ガスによる抜熱量より少ないことが必要であることを示した。また、後者については坂口らが与えた条件より羽口におけるみかけのガス線速度を求めると $M' = 1.5$ に相当する。この推定値を Fig. 7 に示したが、これは著者らのバブリング—ジェッティングの遷移条件に近いところにある。

以上より、羽口の閉塞と溶損を防止するには、音速領域のガス吹込みでジェッティング率を高めることがきわめて重要であることが明らかである。

5. 液体中への粉体吹込み

実際の金属精錬プロセスにおいては、反応界面積を増大させ、反応効率を上げるために、浴中への粉体吹込みが多く行われている。

単一粒子が気液界面を通過して液体中に侵入する臨界条件は、Engh²⁶⁾、小沢ら²⁷⁾、浅井ら²⁸⁾ によって検討され、臨界侵入条件を表す臨界ウェーバー数 $We_c (=r_p \rho_L u_{pe}^2 / \sigma, r_p: \text{粒子半径}, u_{pe}: \text{臨界侵入速度})$ と粒子と液体の密度比 ρ_p / ρ_L 、接触角 θ などの関係式が得られている²⁷⁾。

しかし、液体中への粉体吹込みにおいては気液界面は激しく乱れているため、単一粒子の場合とは著しく異なった侵入挙動を示す。Kimura²⁹⁾ はこの方面の先駆的研究を行い、粉体吹込みにおけるジェットの挙動が次式で定義される指数 N_J により特徴づけられることを見いだした。

$$N_J = C_p u_0 A_p (\rho_G / \rho_L) \quad \dots\dots\dots (4)$$

ここで、 C_p は吹込みガス単位体積当たりの粒子の個数 (cm^{-3})、 u_0 はガス線速度 (cm/s)、 A_p は粒子の投影面積 (cm^2) である。Kimura は、 $N_J > 1,500$ においては液体中に深く侵入する固気液混相ジェットが形成されることを明らかにし、この現象が粒子の衝突によって液面にできるくぼみの微小空間のガスがその粒子と後続粒子の間にトラップされることによって起こると推定した。

Irons と Tu³⁰⁾ は、Fig. 8 に示すような浸漬ランスから垂直下方への粉体吹込みにおけるバブリング、ジェッティング現象を新しい観点より検討している。Irons らによると、微粉体インジェクションの場合、ガスと粉体はほぼ同じ速度を持ち、運動量境界層の厚みは比較的大きく、隣り合う粉体の境界層が重なり合った “Coupled” の状態でガスと粉体は一緒に移動する。このような場合には、固気液混相のジェットが液中に侵入し、ジェッティングが起こる。これに対して吹込み粒子が大きく、固気比が小さい場合には、境界層の厚みは比較的小さく、境界層は重なり合わず、 “Uncoupled” の状態にあるため、気泡が生成する。

“Coupled” — “Uncoupled” の臨界の粒子体積分率 ϕ_{pe} は、Frössling の境界層厚みの理論を適用すると、次式により与えられる。

c) 断熱流れを仮定し、液体中に噴出後超音速流れになるものとして計算した。

Fig. 8 Schematic diagram showing differences between coupled and uncoupled flow³⁰⁾.

$$\phi_{pe} = \frac{\pi}{6 \left(\frac{6}{\sqrt{2} Re_p} + 1 \right)^3} \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 Re_p は粒子レイノルズ数 ($= d_p (u_g - u_p) \rho_G / \mu_G$ 、 d_p : 粒子径、 u_g 、 u_p : ガス、粒子の速度、 μ_G : ガスの粘性係数) である。Irons らは、熔融鉛モデルの実験結果、Farias と Robertson³¹⁾ の水-ガラス球系および McNallan ら³²⁾ の低融点合金系におけるバブリング-ジェッティング現象に対して上記の臨界条件が適用できることを示した。

6. 液体中への吹込みガスの分散挙動

液体中に吹込まれたガスの分散挙動に関しては、気泡頻度、ガスホールドアップ^{d)}、気泡上昇速度、ジェットおよびブルーム領域の大きさなどについて多くの研究が行われている。

著者ら³³⁾ は、水銀浴中へのオリフィスからのガス吹込みにおける浴中のガスホールドアップ分布を電気探針法により測定し、オリフィス近傍でのガスジェットの挙動とジェットあるいはブルームの広がり調べた。水銀容器の内径は 15 cm、浴深さは 14 cm で、オリフィス径 d_o は 1, 2 mm とした。

Fig. 9 には、ガス流量が一定で、オリフィス径が異なる実験で得られたガスホールドアップ分布 (ϕ_{loc}) の一例を示した。オリフィスから垂直上方距離 $h < \sim 30 \sim 40$ mm においては d_o が 1 mm と 2 mm の場合のガスホールドアップ分布が異なっており、 $d_o = 2$ mm ではオリフィス近傍で最大 0.8 のガスホールドアップが測定されているのに対し、 $d_o = 1$ mm ではオリフィスから少し離れたところに最大値があり、しかも 0.7 と小さい。また、 $h > \sim 30 \sim 40$ mm においては、ガスホールドアップのオリフィス径による差はほとんどない。

Fig. 10 には、垂直方向の各位置における中心軸上のガスホールドアップ $\phi_{r=0}$ を示した。図から明かなように、 $M' < 1$ では $\phi_{r=0}$ は h の増加とともに単調に減少する。一方、 $M' > \sim 1$ の場

d) ガスホールドアップは気液混相の体積中の気体の体積の割合として定義される。

Fig. 9 Contour map of gas holdup³³⁾.

Fig. 10 Relation between gas holdup on center axis and vertical distance from orifice³³⁾.

合には、オリフィスから少し離れた位置で $\phi_{r=0}$ は最大になる。これは、 $M' > \sim 1$ の場合にはガスはジェットの状態で水銀中に侵入するようになるため、その半径方向の広がり是非常に小さくなり、ジェットおよび電気探針の揺れにより探針先端が水銀に接触し、ガスホールドアップがみかけ上小さくなったことによると考えられる。

一つの流体を他の流体に吹込むことにより生ずる流れは、ジェットとブルームに大きく分類される。ジェットは吹込まれた流体の慣性力に起因する流れであり、ブルームは吹込まれた流体に働く浮力に起因する流れである³⁴⁾。Fig. 9, 10 において、 $h < \sim 30 \sim 40$ mm におけるガスホールドアップ分布はガスの慣性力の影響を受けているのに対し、 $h > \sim 30 \sim 40$ mm においてはガスホールドアップはガス流量にのみ依存している。したがって、気泡の分散の観点からは、ジェットからブルームへの遷移は、本実験条件では $h = \sim 30 \sim 40$ mm で起こると推定される。

多くの研究者がジェット、ブルームの大きさやガスホールドアップ、気泡頻度、流体速度などの分布を測定している。これらの分布はほぼガウス分布にしたがう。たとえば、ガスホールドアップ分布は次式により表される³⁵⁾。

$$\phi_{loc} = \phi_{r=0} \exp \left(- \frac{r^2}{r_{1/2}^2 / \ln 2} \right) \dots\dots\dots (6)$$

ここで、 $r_{1/2}$ は $\phi_{loc} = \phi_{r=0} / 2$ となる半径方向距離である。

Takelli ら³⁶⁾ によると、ブルーム内の速度分布とガスホールドアップ分布の半値幅の 1/2、 $r_{1/2,V}$ と $r_{1/2}$ の間にはつぎの関係がある。

$$r_{1/2} = 0.7 r_{1/2,V} \dots\dots\dots (7)$$

(7)式よりガスホールドアップ分布より速度分布の方が半径方向の広がりが大きいことがわかる。

なお、ジェット、ブルーム領域の構造および $\phi_{r=0}$, $r_{1/2}$ などの特性値については、Tackeら³⁵⁾、川上ら³⁷⁾、Castillejosら³⁸⁾、井口ら³⁹⁾の詳細な研究がある。

7. ガス吹込み攪拌浴内の流動と混合特性

金属精錬装置における浴内の流動と混合特性は精錬反応速度に大きな影響を及ぼすことから、その解明は装置の最適設計、操業、制御を行うために是非必要である。

7.1 吹込みガスの攪拌動力

熔融金属浴中に吹込まれたガスが液体に対してなす単位時間当たりの仕事としては、①羽口近傍におけるガス圧力の低下（音速領域の吹込みの場合）および温度上昇に伴う膨張の仕事、②浴内上昇中の静圧変化に伴う膨張の仕事、③浮力の仕事、④吹込み時にガスが持つ運動エネルギーが考えられる。

著者ら⁴⁰⁾は吹込みガスが持つエネルギーを検討し、②と③は全く同じものであり、いずれかをガスのエネルギーとして評価すればよいことを明らかにした。また、①と④の仕事のうちかなりの部分が羽口近傍で行われ、①と④については有効に使われるエネルギーのみを攪拌動力として評価すればよいことを指摘した。

したがって、液体単位質量当たりの吹込みガスの有効攪拌動力 $\dot{\epsilon}_M$ (W/t) は次式で与えられる。

$$\dot{\epsilon}_M = \frac{0.0142 V_g T_L}{M_L} \left[\log \left(1 + \frac{h_0}{1.46 \times 10^{-5} P_2} \right) + \frac{\eta}{2.303} \left\{ \frac{T_n}{T_L} \ln \frac{P_n}{P_1} + \left(1 - \frac{T_n}{T_L} \right) + \frac{T_n}{P_n T_L} \times \left(\frac{1}{2} \rho_{Gn} u_n^2 \right) \right\} \right] \quad (8)$$

ここで、 V_g はガス流量 (Nl/min), M_L は液体質量 (t), T_L , T_n は溶鉄、ガス（ノズル出口）の温度 (K), P_1 はノズル出口の静水圧 (Pa), P_2 は浴表面の雰囲気圧力 (Pa), ρ_{Gn} , u_n はノズル出口のガスの密度 (kg/m³), 速度 (m/s), および η はガスが持つエネルギーのうち浴内循環流動に有効に使われる割合である。 η の評価は現時点では困難であるが、Lehrer⁴¹⁾は吹込みガスの運動エネルギーがノズル近傍で急激に減衰することに着目し、ガスが持つ運動エネルギーに対して $\eta = 0.06$ を与えている。

7.2 浴の均一混合時間

一般にガス吹込み精錬装置においては気泡は浴内に均一に分散していないため、いかに装置内で液体が静止している死空間

Fig. 11 Relation between mixing time and $\dot{\epsilon}_M$ ⁴⁷⁾.

(Dead space) を小さくし、反応界面への反応物質の移動を促進させるかによって装置の性能が左右される。このような浴内の攪拌混合の尺度として、均一混合時間がある。均一混合時間は、浴内にトレーサを添加し、その濃度が浴内で均一化する時間として定義される。

精錬反応装置における均一混合時間 t_m は中西らによって初めて測定された。Fig. 11には、中西ら⁴²⁾が50 t取鍋、200 t RH, 65 kg水モデルにおけるガス吹込み攪拌、50 t ASEA-SKF炉における電磁攪拌について測定した結果を示した。図中には、Lehrer⁴¹⁾、Hsiaoら⁴³⁾、拜田ら⁴⁴⁾、甲斐ら⁴⁵⁾の測定結果もプロットした。図からわかるように、均一混合時間 t_m と投入攪拌動力 $\dot{\epsilon}_M$ の関係には研究者によってかなりの差があり、 t_m は $\dot{\epsilon}_M$ のみの関数では表されない。すなわち、 t_m は $\dot{\epsilon}_M$ の他に装置因子（炉径、ガス吹込み深さ、ノズルの数、位置など）および液体の物性値などによって変化すると考えられる。中西ら⁴⁶⁾は、水モデルによりノズル数を多くすると均一混合時間が長くなることを見だし、その理由として炉内がノズル数に対応するセルに分割され、各セルは独立しているように振舞うことを指摘している。

著者ら⁴⁰⁾は、浴への投入攪拌動力と浴の循環流動の運動エネルギーとの関係を考察し、均一混合時間が浴体積に依存することを見だし、次式を得ている。

$$t_m \propto (V_L^2 / \dot{\epsilon}_M)^{1/3} \quad (9)$$

ここで、 V_L は液体積である。

(9)式に基づいてFig. 11の実験結果を再整理して、Fig. 12に示した。Fig. 11とFig. 12を比較すれば明らかに、Fig. 11では各研究者（すなわち実験条件）による差が大きいのにに対し、Fig. 12ではその差が小さくなっている。これより、均一混合時

Fig. 12 Relation between mixing time and $\dot{\epsilon}_M (M_L / \rho_L)^{-2/3}$ ⁴⁷⁾.

Fig. 13 Relation between mixing time and $\dot{\epsilon}_M (D^2 / H_0)^{-2}$ ⁴⁷⁾.

間は $\dot{\epsilon}_M$ のみの関数ではなく、浴体積にも依存することがわかる。

また、著者ら⁴⁷⁾は次節で述べる浴の循環流動を巨視的エネルギー収支法を適用して解析することにより、装置形状の影響も含めた次式を導いている。

$$t_m = 100 \{ (D^2/H_0)/\dot{\epsilon}_M \}^{0.837} \dots\dots\dots (10)$$

ここで、 D は炉直径 (m)、 H_0 は浴深さ (m) であり、 t_m 、 $\dot{\epsilon}_M$ の単位は各々 (s)、(W/t) である。

Fig.11 において炉直径 D と浴深さ H_0 が与えられている実験結果を(10)式により整理してFig.13にプロットした。図より計算値と実験値はかなりよく一致していることがわかる。とくに、Hsiao らの 60, 6t 取鍋の測定結果は、Fig.11においては一つの相関式では表されないが、Fig.13では(10)式によりよく整理できることが注目される。これより、(10)式により均一混合時間に対する D および H_0 の影響を評価できることがわかる。

7.3 浴の循環流動

浴内へのガス吹込みにより循環流動が生じる。この循環流動は、Fig.14 (a), (b) に示すモデルについて検討されている。浴中の気泡分散領域であるジェット、ブルーム領域はFig.14 (a) に示すようにガスの上昇とともに広がる。Fig.14 (b) においては数学的モデルを簡単化するため、気泡分散領域の大きさは垂直方向距離に無関係に一定としている。

Fig.14 (a), (b) の流動モデルに対して巨視的な運動量収支^{48) 49)}、エネルギー収支^{47) 50) 51)} をとることによって気泡分散領域の液体速度、ガスホールドアップ、液体循環流量などを求めることができる。ここでは、巨視的エネルギー収支法による解析について述べる。定常状態においては、循環流動に伴う浴内でのエネルギー消散速度はガスから与えられる攪拌動力に等しい。エネルギー消散速度は、気泡分散領域における“bubble slip”によるエネルギー消散速度と単位時間当たり分散領域の液体に対して与えられるエネルギー（あるいはこれより単位時間当たり下降流域から分散領域に与えられるエネルギーを差し引いたもの）の和として与えられる。吹込みガスの攪拌動力のうち“bubble slip”によって消費される割合は、Lamont⁵²⁾によると0.2～0.3である。

著者ら⁴⁷⁾は、Fig.14 (b) に示した循環流動モデルについてエネルギー収支法により解析を行い、溶鋼、水の気泡分散領域にお

ける液体速度 u_L (m/s) および循環流量 $\dot{V}_L$ (m³/s) について次式を得ている。

$$u_L = 1.17 (V_{gM} g H_0 / A_p)^{0.846}, \phi < \sim 0.3, K^2 \sim 0.3 \dots (11)$$

$$\dot{V}_L = 1.17 (V_{gM} g H_0 / A_p^2)^{0.839}, \phi < \sim 0.15, K^2 \sim 0.3 \dots (12)$$

ここで、 V_{gM} は P_1 と P_2 の対数平均圧力および浴温度におけるガス流量 (m³/s)、 g は重力加速度 (m/s²)、 A_p は気泡分散領域の断面積、 K は気泡分散領域の直径と炉直径の比である。

巨視的な運動量収支あるいはエネルギー収支の方法では浴内における速度分布などを求めることができない。これらを求めるためには、浴内の循環流動について運動方程式を解く必要がある。精錬反応装置における浴内の循環流動は乱流であるため、Grevet, Szekely, El-Kaddah⁵³⁾, Sahai, Guthrie⁵⁴⁾, その他多くの研究者は、乱流モデルにより乱流粘性係数を与え、運動方程式の数値計算を行い、浴内循環流動の速度分布、乱流エネルギー分布などを得ている。Table 2 では気泡分散領域の液体速度 u_L について Sahai らの計算値と(11)式による計算値を比較した⁵⁵⁾。気泡分散領域のとり方が異なるため、両者の厳密な比較はできないが、Table 2 より両者はかなり近いことがわかる。これより、エネルギー収支法におけるエネルギー消散速度の見積りが妥当であることが示される。

8. 結 言

金属精錬プロセスにおいてガスおよび粉体吹込み操作、すなわちインジェクション操作はきわめて重要な役割をもつようになっている。このような実際技術の進歩に伴って、インジェクション冶金 (Injection Metallurgy) の理論的基礎を確立するため、種々の観点からの研究も活発に行われている。本稿は、それらの基礎研究のうち熔融金属中へのガスおよび粉体吹込みに伴って起こる流動に関連する物理的現象に焦点を絞り、まとめたものである。したがって、ここでは実際の精錬反応操作にとって重要な熱移動、物質移動現象および化学反応は全く扱っていない。

Table 1 にまとめたように、金属製精錬プロセスにおいては多くの異相系分散操作が行われている。これらの操作はいわゆる分散工学の観点から非常に興味深く、今後もこの方面の研究が活発に行われ、その研究成果が金属製精錬プロセスの分散工学として体系化されることが望まれる。

引 用 文 献

- 1) 化学工学協会：化学工学の進歩 3, 気泡・液滴工学, (1969), 日刊工業新聞社 (東京)
- 2) 化学工学協会：化学工学の進歩 16, 気泡・液滴・分散工学, (1982), 横書店 (東京)
- 3) 佐野正道・森 一美：鉄と鋼, Vol.60, p.348, (1974)
- 4) 佐野正道・森 一美・佐藤哲郎：鉄と鋼, Vol.63, p.2308, (1977)
- 5) Leibson, I., Holcomb, E. G., Cacosso, A. G. and Jacmic, J. J., : AIChE Journal, Vol.2, p.296, (1956)
- 6) 佐野正道・森 一美・藤田康久：鉄と鋼, Vol.65, p.1140, (1979)
- 7) 上山惟一・宮内照勝：化学工学論文集, Vol.3, p.19, (1977)
- 8) Fruehan, R. J. : Ironmaking Steelmaking, Vol.3, p.33, (1976)
- 9) 小沢泰久・森 一美・佐野正道：鉄と鋼, Vol.67, p.2655, (1981)
- 10) Fritz, W. : Phys. Zeitsch., Vol.36, p.379, (1935)
- 11) Davidson, J. F. and Schuler, B. O. G. : Trans. Inst. Chem. Eng., Vol.38, p.335, (1960)
- 12) Szekely, A. G. : Metall. Trans., Vol.7 B, p.259, (1976)
- 13) 大竹伝雄・東稔郎治・久保井亮一・高橋保夫・中尾勝実：化学工学論文集, Vol.5, p.366, (1979)

Fig. 14 Liquid circulation model.

Table 2 Liquid velocity in the plume zone.

Depth of water (m)	Vessel diameter (m)	Gas-flow rate $\dot{V}_{gM}$ (m ³ /s)	SAHAI et al. ⁵⁴⁾ (m/s)	Eq. (11) (m/s)
1.0	1.1	5×10^{-3}	0.84	0.89
1.0	1.1	3.33×10^{-3}	0.76	0.77
1.0	1.1	1.66×10^{-3}	0.62	0.61
1.0	1.1	8.33×10^{-4}	0.48	0.48
0.45	0.5	5.1×10^{-4}	0.44	0.53
0.45	0.5	7.0×10^{-4}	0.48	0.60
0.45	0.61	7.0×10^{-4}	0.50	0.60

- 14) 武田紘一・中村正和・大橋徹郎・野崎 洋・桑野和弘：鉄と鋼，Vol.73, H.1449, (1987)
- 15) 川上正博・堂脇正市・広江俊勝・伊藤公允：鉄と鋼，Vol.78, p.745, (1992)
- 16) Matsuno, H., Kikuchi, Y., Komatsu, M., Arai, M., Watanabe, K. and Nakashima, H. : Iron and Steelmaker, Vol.20, No.7, p.35, (1993)
- 17) 小沢泰久・森 一美：鉄と鋼，Vol.68, p.90, (1982)
- 18) 小沢泰久・森 一美：鉄と鋼，Vol.72, p.426, (1986)
- 19) Hoefele, E. O. and Brimacombe, J. K. : Metall. Trans., Vol.10B, p.631, (1979)
- 20) Farias, L. and Robertson, D. G. C. : Injection Phenomena in Extraction and Refining, compiled by A. E. Wraith, E1-25, (1982)
- 21) McNallan, M. J. and King, T. B. : Metall. Trans., Vol.13B, p.165, (1982)
- 22) 丸川雄浄・姉崎正治・戸崎泰之・広木伸好：鉄と鋼，Vol.65, s.154, (1979)
- 23) Sharma, S. K. : Iron and Steelmaker, Vol.14, No.3, p.73, (1987)
- 24) Engh, T. A., Tveit, H., Bertheussen, H., Stromsnes, P., Venås, K. and Svartås, T. M. : Scand. J. Metall. Vol.5, p.21, (1976)
- 25) 坂口庄一・石橋政衛・吉井正孝・山本里見・梶岡博幸：鉄と鋼，Vol.63, s.534, (1977)
- 26) Engh, T. A., Sandberg, H., Hultkvist, A. and Norberg, L. G. : Scand. J. Metall., Vol.1, p.103, (1972)
- 27) 小沢泰久・鈴木克紀・森 一美：鉄と鋼，Vol.69, p.753, (1983)
- 28) 渡辺吉夫・浅井滋生：鉄と鋼，Vol.67, s.219, (1981)
- 29) Kimura, E. : Trans. Iron Steel Inst. Jpn., Vol.23, p.522, (1983)
- 30) Irons, G. A. and Tu, B. H. : SCANINJECT III, Luleå, Sweden, 11: 1-11: 29, (1983)
- 31) Farias, L. and Robertson, D. G. C. : 3rd Process Technology Conference, Iron and Steel Society of AIME p.206 (March, 1982), Pittsburgh.
- 32) McNallan, M. J., Park, J. O. and Y. W. Chang : SCANINJECT III, 9: 1-9: 17, (1983), Luleå, Sweden
- 33) 佐野正道・牧野 浩・小沢泰久・森 一美：鉄と鋼，Vol.72, p.1552, (1986)
- 34) Rodi, W. : Turbulent Bouyant Jets and Plumes, (1982), Pergamon Press
- 35) Tacke, K. H., Schubert, H. G., Weber, D. J. and Schwerdtfeger, K. : Metall. Trans., Vol.16B, p.263, (1985)
- 36) Takelli, S. and Maxwell, W. H. C. : Tech. Rep. Dept. Civil Eng., Univ. of Illinois (1978)
- 37) 川上正博・富本 登・伊藤公允：鉄と鋼，Vol.68, p.774, (1982)
- 38) Castillejos, A. H. and Brimacombe, J. K. : Metall. Trans. Vol.18B, p.649, p.659, (1987)
- 39) 井口 学・出本庸司・菅原直也・森田善一郎：鉄と鋼，Vol.78, p.407, (1992)
- 40) 森 一美・佐野正道：鉄と鋼，Vol.67, p.672, (1981)
- 41) Lehrer, L. H. : I & EC, Process Design and Development, Vol.7, p.226, (1968)
- 42) Nakanishi, K., Fujii, T. and Szekely, J. : Ironmaking Steelmaking, Vol.2, p.193, (1975)
- 43) Hsiao, T. O., Lehner, T. and Björn, K. : Scand. J. Metall., Vol.9, p.105, (1980)
- 44) Haida, O., Emi, T., Yamada, S. and Sudo, F. : SCANINJECT II (1980), Luleå, Sweden
- 45) 甲斐 幹・平居正純・大河平和男・飯田 宏・田中 新・樋口満雄：鉄と鋼，Vol.66, s.233, (1980)
- 46) 中西恭二・加藤嘉英・野崎 努・江見俊彦：鉄と鋼，Vol.66, p.1307, (1980)
- 47) 佐野正道・森 一美：鉄と鋼，Vol.68, p.2451, (1982)
- 48) 長瀬洋一・河村祐治・吉迫敬央：化学工学論文集，Vol.6, p.862, (1980)
- 49) 赫冀成・浅井滋生・鞭 巖：鉄と鋼，Vol.70, p.1590, (1984)
- 50) Whalley, P. B. and Davidson, J. F. : Proc. Symp. on Multiphase Flow System (Symp. Series No.38) (1974) J5, [Inst. Chem. Eng., London]
- 51) Bhavaraju, S. M., Russell, T. W. F. and Blanch, H. W. : AIChE Journal, Vol.24, p.454, (1978)
- 52) Lamont, A. G. W. : Can. J. Chem. Eng., Vol.36, p.153, (1958)
- 53) Grevet, J. H., Szekely, J. and El-Kaddah, N. : Int. J. Heat and Mass Transfer, Vol.25, p.487, (1982)
- 54) Sahai, Y. and Guthrie, R. I. L. : Metall. Trans., Vol.13B, p.203, (1982)
- 55) 森 一美・佐野正道・小沢泰久：鉄と鋼，Vol.69, p.1714, (1983)