鉄鉱石の焼結構造の特徴とその形成法則*

稲角 忠弘¹ 中野 正則² 笠間 俊次³

Structural Characteristic and Formation Rule of Iron Ore Sinter

by Tadahiro INAZUMI¹, Masanori NAKANO² and Shunji KASAMA³

1. Chief Researcher, Process Technology Research Laboratories, Nippon Steel Corporation
(Now, Secretary General, Committee for Overseas Iron and Steel Raw Materials)
2. Senior Researcher, Process Technology Research Laboratories, Nippon Steel Corporation,
Futtu-shi, Chiba 293
3. Manager, Iron-Making Department, Oita Works, Nippon Steel Corporation

Complex sinter structure of iron ore was analyzed and characterized with use of high-power and high-resolution computerized tomography scanner newly developed. Image analysis system for CT figures was enabled (1) to visualize and observe three dimensional structure of inner portion of sinter, (2) to quantify densification degree of sintered parts, (3) to quantify geometric characteristic from the view point of topology and fractal as well as porosity by size, and (4) to simulate gas flow through pores in sintered body. Distinct relationship between pore size and pore type, that means the difference between open and closed pore, was found. By measuring densification degree distribution of inner sintered body, homogeneity of sintering and ratio of insufficiently sintered portion were evaluated.

By analyses of cluster or pore size distribution, structure of iron ore sinter was found to be fractal. Structural changes in cluster and pore size, and densification degree of solid portion, which occur simultaneously during sintering were quantified. These structural changes were found to be ruled by bonding percolation theory. The theory suggests that sintering condition corresponding to the critical point of percolation theory is the best for both gas flow through sintering layer and product yield. Based on the findings, by checking the fundamentals of experience-based DL process, a new type of feeder, Intensified Sifting Feeder, which enable to make idealized raw-packed structure was developed, and furthermore reduction of sinter cake load was found to improve permeability with change of pore network.

KEY WORDS : Iron Ore Sinter, Sinter Structure, Pore Network, CT, Fractal, Percolation Theory

1. はじめに

工業の分野でいわゆる“焼きもの”と呼ばれる焼結品の占める比重は大きい。伝統的な陶磁器、耐火物、煉瓦および工業材料としての電子磁気製品、工具、機械用焼結部品から、素材産業のプロセス中間製品としての金属製錬用焼結鉱、ペレット、セメントクリンカーなどいずれも焼結で生産されている。天然現象でも南極の氷の大部分は雪の焼結体であり¹⁾、火砕流堆積物が固結した溶結凝灰岩も焼結体である。

焼結体は多孔質で、しかも孔の形および固体部の結合状態が複雑であるという共通した特徴を有する。この焼結構造が焼結体の強度、透水性、通気性、熱的性質、電磁氣的性質等の品質は当然として、製造過程での良品製造歩留率をも左右する。したがって、

構造のもつ意味はきわめて重要である。一般的には、この構造の複雑さの把握には顕微鏡観察など視覚による定性的な段階にとどまっている。そのため、従来の解析では、気孔率、気孔径、気孔壁厚など試料全体の平均値を扱うのみで、形態の複雑さや構造のバラツキの影響をほとんど考慮に入っていない。

焼結の立場から広く焼き物の世界をみてもみると、そこでは成品の焼成の完了度を示す定量的判定基準がなく、操業者の経験と勘に基づいて焼結の完了が評価されている。このような意味で焼結反応の評価は前近代性を抱えているといえる。より品質の良い焼結体をより効率の良い工程で生産するためには、焼結構造の科学的評価基準を確立する必要がある。そこで、まず鉄鉱石焼結鉱を対象とするX線CT(Computerized Tomography)技術を開発した²⁾。これにより焼結鉱の内部構造が非破壊で可視化でき、固体密度分布の測定をはじめ、気孔や焼結体の幾何学的構造の解析が可能となった。特に気孔あるいはクラスタ(焼結体構成の小単位)の大きさの不揃いに注目して、そのバラツキの解析を進めた結果、一見ランダムで不規則に見える焼結体の構造にいくつか規則性があることが見いだされた。特に焼結体がフラクタルの性質をもっていることがわかり、フラクタルの観点からの理解が重要なことを認識するにいたった。

* 1995年6月1日受付 8月7日受理

1. 新日本製鐵(株)技術開発本部プロセス技術研究所製鉄プロセス研究部主幹研究員(現 海外製鉄原料委員会)

2. 新日本製鐵(株)技術開発本部プロセス技術研究所製鉄プロセス研究部主任研究員

3. 新日本製鐵(株)大分製鐵所製鉄部部長

[著者連絡先] FAX 03-3201-7963 (海外製鉄原料委員会)

キーワード: 鉄鉱石焼結, 焼結体構造, 気孔通気網, CT, フラクタル, パーコレーション

Fig. 1 Sintering process of iron ore.

本稿では著者らが開発した鉄鋼材料解析用 CT 装置の構成、機能の概要と、本装置を用いて解析した鉄鉱石の焼結構造の特徴とその形成過程等について紹介する。

2. 鉄鉱石焼結プロセスにおける焼結構造解析の必要性

高炉法による鉄鋼生産は大規模な焼物から始まる。鉄鉱石粉鉱にフラックス剤としての石灰石粉と燃料としてのコークス粉とを混ぜて、着火し、通風しながらコークスを燃やすと、その燃焼熱で鉄鉱石と石灰石が反応して焼き固まる。焼結法のカテゴリーとしては自己燃焼法である。幅 5 m、厚さ 600 mm のベルト状の大焼結体（シンターケーキと称する）を日産最大 2 万 t 規模で生産している。これを最終的には平均 20 mm 前後の焼結鉱に塊砕、整粒し、高炉に使用する（Fig. 1）。年間日本全国で約 1 億 t、全世界で約 7 億 t 生産される。量産品だけに、その歩留、品質および生産性がコスト、エネルギー消費、環境問題に与える影響は大きい。

焼結鉱は気孔率が 20 % から 50 % の多孔体である。これを壊れにくいものにするには気孔を減少させるとよい。一方、高炉で還元しやすいものにするには気孔を増加させる方がよい。また生産速度も通気気孔の増加で向上する。そこで高品質の焼結鉱を効率的に生産するためには、本来欠陥である気孔を、強度低下を最小限に押さえつつ、通気に有効な形態にいかにか成形成するという重要な課題が生じる。このように、焼結ではプロセス自体に気孔を通したトレードオフの関係が内在しており、気孔の形成状態がプロセスを左右しているといえる。ところが従来、気孔の構造はあまりにも複雑で、解明が遅れていた。

3. 焼結鉱構造の解析技術の開発

3.1 鉄鋼材料解析用 CT の開発

物体の 3 次元構造情報を非破壊で効率的に収集する手法として CT 技術が開発され、医療用 X 線 CT が普及している。しかし、医療用 X 線 CT は X 線が弱くて鉄鉱石焼結鉱のような高密度物質を透過できず、また分解能も 2 mm と低く焼結体の形態構造解析の性能としては不十分である。そこで管電圧を医療用 CT の 3 倍の 420 kV に高め、γ 線に近い硬 X 線を発生する X 線 CT（呼称 870 型）を新日本製鐵(株)と東芝(株)とで共同開発した³⁾。870 型 X 線 CT で透過可能な試料の最大寸法は 62 mm φ × 90 mmH で、分解能すなわち各画素の一辺の長さは 250 μm である。各画素の X 線透過能は 512 階調の定量値として

得られる。これを CT 値と呼び(1)式で定義する。

$$A = k_1 + k_2 (\mu_i - \mu_{st}) / \mu_{st} \quad \dots\dots\dots (1)$$

A : CT 値, k_1, k_2 : 装置定数, μ_i : 測定画素の X 線吸収係数, μ_{st} : 基準物質 (870 型 CT では空気)

3.2 焼結体構造専用画像解析システムの開発

測定データは 250 μm 角の画素単位の CT 値で構成される。これを次に画像処理する。このための画像解析システムを新日本製鐵(株)と ENICOM(株)とで開発した²⁾。画像解析システムは、汎用ワークステーション HP9000 をベースに GUI (グラフィカル・ユーザー・インターフェース) を用いた画像入力、画像処理およびデータ処理の各サブシステムからなる。各画像処理ルーチンを体系化し画面上のボタンをマウスでクリックするだけで一連の解析が行える。本システムでは焼結体内部構造の可視化とともに、焼結体の緻密化度の解析、焼結構造のトポロジー・フラクタルなどの幾何学的解析、気孔構造に基づく通気シミュレーションが行える。

4. 密度指標 (CT 値) による焼結体構造の解析

4.1 物質の種類と CT 値との関係

鉄鉱石焼結鉱に関連する物質の密度と CT 値の関係を Fig. 2 に示す。CT 値は酸化鉄である鉄鉱石類（鉄鉱石粉鉱、スケール等）、焼結鉱マトリックス鉱物（カルシウムフェライト、ライムオリビンなどの反応生成鉱物）、鉄鉱石脈石および副原料（石英、蛇紋岩、粘土鉱物、石灰石）、コークス、気孔（空気）の順に低くなる。各物質間の CT 値の差は測定精度に較べて十分に大きく、CT 値でこれら物質を識別できる。

実際の焼結体は気孔を含む複合物質なので、画素内に CT 値の異なる複数の物質が共存することがある。したがって、実際の CT 値から物質を同定する場合、このことを考慮する必要がある。

4.2 境界部における CT 値の変化

——気孔を例とした特定 CT 値の面積測定精度の検討——

気孔と固体の境界が一つの画素中に存在する場合、この画素の CT 値は気孔と固体の中間値（グレイ）となる。これを通称周辺ボケと言う。グレイの画素を気孔と見なす確率は、固体と気孔を判別する CT 値のしきい値により変る。Fig. 3 の横軸は気孔と固体の CT 値をそれぞれ 0 と 1 としたときのしきい値、縦軸は真の気孔面積に対する計測される面積の比である。これより、気孔の大きさ (R) が画素の大きさ (d) に対して十分大きい場合 ($R/d \gg 1$)、例えば気孔径が 1.25 mm 以上あれば、しきい値を 0.5 とすると、気孔の大きさを 3 % 以下の誤差で測定できることが

Fig. 2 Relationship between density and CT value (left), and CT values of constituent materials of sinter cake as a function of porosity (right). Solid and open circles represent reference and test materials, respectively. The diagram shows also the ranges of CTH, CTM and CTL.

(a) A schematic diagram showing grey pixels appearing between a real pore (white) and the surrounding solid (black).
(b) A diagram showing between the threshold value determining pores and the measured/real area ratio of a pore. The parameter is the pore radius/pixel size ratio.

Fig. 3 Influence of pixel size on measurement of pore size.

わかる。画素中の異種固体間の境界がそれぞれの物体の面積測定誤差に与える影響も同様に取扱える。

4・3 焼結体の固体部 CT 値の工業的意味

4・3・1 固体部 CT 値と構成物質の粒度、鉱物種との関係

焼結反応では、反応の進行につれて粒が結合して塊となるとともに、塊の内部から気孔が排出され、固体部は緻密化する。これと並行してさまざまな化学反応が起こる。これら焼結の進行に伴う変化が、CT 値にどのように現れるかを以下に述べる。

画素に比較して十分に大きい物質は CT 値が直接鉱物の種類に対応する。一方粒度が画素の大きさ $250\mu\text{m}$ 程度かそれ以下になると、測定される CT 値は複数の構成物質の CT 値の荷重平均となる。したがって微細粒子のまわりに空隙が多い原料ないし未焼結状態では CT 値は空隙率に比例して低下する (Fig. 2)。このことは、測定される CT 値が焼結反応に伴う鉱物の種類の変化と粒度の変化を同時に反映することを意味し、CT 値のみで焼結構造の違いを判定することはできない。しかし、対象物質が限定される場合には、CT 値の違いから実際の意味を導き出すことができる。

4・3・2 焼結状態と固体部 CT 値⁴⁾ 原料粉のうち、鉄鉱石類および返鉱以外の脈石、フラックス剤、コークス粉の CT 値はすべて粒度に関係なく 150 以下である (Fig. 2)。一方、鉄鉱石類と返鉱は粒径が画素より十分大きい場合は 150 以上の本来の CT 値を示すが、画素以下の細粒では本来の CT 値より低いみかけの値を示す (Fig. 2)。図から明らかなように、1 画素で気孔と鉄鉱石類あるいは返鉱が半分ずつ占める場合、その CT 値は 150 以下になる。このように本来 CT 値が高い原料も微粉で焼結以前の状態では CT 値はみかけ上低く、低 CT 値物質として計数される。焼結反応では CT 150 以下の細粒の鉄鉱石類が塊になり、同じく 150 以下の脈石、フラックス剤が反応して、CT 値 150 以上のマトリックス鉱物と 2 次生成の酸化鉄となる。したがって、CT 値が 150 以下の画素比率 (以下 CTL と定義する) を集計すると、未焼結反応物質の残留状態を知ることができる。

焼結が十分進んだ状態を示す CT 値 150 以上の範囲をさらに細分類することにより、焼結状態のより詳しい判別が可能となる。すなわち、酸化鉄と焼結鉄マトリックス鉱物の間の CT 値 220 をしきい値とする。このとき 220 以下はマトリックス鉱物および画素サイズ以下の細粒酸化鉄を示す。細粒酸化鉄は、焼結反応で過剰な加熱を受けると、巨大化し CT 値が 220 以上になる。したがって、CT 値 150 から 220 の中間値 (以下 CTM と定義) を示す画素の割合は、実際の意味で標準的な焼結鉄の生成率を表す。

220 以上の CT 値 (以下 CTH と定義) は、過剰に成長した酸化鉄か元の粗大な鉄石の残留物を示す。後者をあらかじめ測定しておき溶解係数をかけて差し引けば、過剰に焼結が進んだ部分の比率を知ることができる。以上の検討結果をもとに画像処理上に生じる境界ボケの修正は計算速度を考慮して実際に影響の大きい CTL 部だけにとりいれて、CTL, CTM, CTH の比率と気孔率を算出する実用式を導いた¹⁾。

鉄鉱石焼結反応で同時進行する緻密化・塊成化および鉱物生成は以上のように CT 値に反映されるので、適当な CT 値を選んで区分することにより焼結反応の実際の進行程度を判定することができる。非破壊で焼結体内部の焼結進行の状態も評価でき、いわゆる不均一焼結 (現場用語で焼けむら) の構造の詳細かつ定量的な検討が可能となる。

5. 焼結体構造の幾何学的解析

5・1 焼結体内部の構造観察

5・1・1 立体可視化 焼結体内部の複雑な 3 次元構造を把握する作業は難しい。従来から多数の断面像を重ね合わせて 3 次元像を組み立てる方法が試みられてきた。しかし、これは大変な労力を必要とするうえに、断面を削らずに得ることが不可能なので、近似像しか得られない。これに対し、CT では 3 次元情報を試料台の移動精度の範囲内で連続して撮像できる (Fig. 4)。図では、気孔の形態を見るために、測定値をコンピュータ処理して、固体を透明、気孔を不透明にしてある。このような処理により閉気孔と開気孔 (貫通気孔) の識別のみならず、気孔の連結状態、気孔の形態、気固界面の凹凸などの詳細が観察できる。さらに現在は、3 次元透視像の回転、視野の変更、任意面の切断の操作を加えたソフトウェアも開発してある。構造のキャラクタライゼーションの原点は観察にあり、このことを本技術の出発点とした。

Fig. 4 Three-dimensional CT images of stem and closed pores.

Fig. 5 Constitution of pores of a classified size to total porosity.

本技術を岩石構造の内部構造の立体観察に応用したところ、岩石の空隙構造は想像の域を超えるものであったとの指摘がある⁵⁾。固体内部の空隙構造は強度、通気あるいは通水性などを規制するので、今後他の広い分野で活用されるものと期待される。

5・1・2 閉気孔と開気孔 気孔の立体像を観察することにより、鉄鉱石焼結の気孔径と気孔形態との間に相関があることが見いだされた。すなわち、5 mm の小気孔のほとんどが閉気孔であるのに対し、5 mm 以上の大気孔の大部分は貫通気孔である。また、気孔率と気孔形態との間にも相関がある。すなわち、気孔率の高い試料には5 mm 以上の貫通気孔が多く、気孔率が低い試料には5 mm 以下の閉気孔が多い (Fig. 5)。これは、焼結反応が進行するにつれて気孔が排出されて、気孔間のつながりが途絶え、閉気孔化していく過程を示唆している。南極の水は表層から深部へかけて同様の気孔の変化が報告されている¹⁾。

5・2 焼結体構造のトポロジー解析

一連構造 (つながり方) のキャラクタライゼーション

(1) ネットワーク解析 焼結体内で、互いにつながりあっている気孔あるいはクラスタの集合状態の特徴をトポロジーのブランチの概念を導入して解析した⁶⁾ (Fig. 6 中)。通気に関係のない5 mm 以下の閉気孔を削除したCT画像中から、気孔 (あるいは固体であればクラスタ) の中心線を見だし (それは、気孔をボロノイの三角形分割法に従って三角形に分割し、得られたすべての三角形の外心を取り、隣接の三角形の外心を連ねて、一連の連結線を描くことによる)、気孔を多くの線分 (ブランチ) の集合体としてスケルトン (線) で表示する (Fig. 6)。これにより、互いにつながり合っている気孔の幹線と枝線が識別され、またそれらの偏在状態など焼結鉄内の気孔網の構成が一目瞭然となる。ここで、単位面積当たりのブランチの数をブランチ密度、ブランチの長さを気孔の総面積で除した指数をブランチ幅と定義した。焼結過程では、粉の塊状化、気孔の統合が進むに従い、ブランチ密度は減少し、ブランチ幅は拡大する。すなわち、焼結初期には粉はあまり結合しておらず枝の多い (凹凸の多い) 構造をとりブランチ密度が高いのに対し、焼結が進んで大塊になると丸みが出てきてブランチ密度が低下する。気孔本数も同様の变化をする。またブランチ幅は固体部では塊の短径の長さ、気孔では気孔の太さであり、これらの値は焼結進行とともに増加する。

(2) クラスタおよび気孔の大きさの分布 焼結体の組織の

複雑さの一つは焼結体のサブ構成単位のクラスタおよび気孔の大きさの不揃いにある。そこで次に焼結体内部の気孔およびクラスタの大きさの分布を検討する。焼結鉄の気孔は固体部へ複雑に入り込んでいるので、フェレー径あるいは円相当径から求められる面積と実際の数値とはかけ離れてしまう。そこで、面積は凹凸の大きい形状に適用されるメッシュ法で測定した。クラスタあるいは気孔に250 μ m のメッシュをかぶせ、覆われたメッシュの数で面積を求める。このデータをフラクタルでよく使われている粗視化の方法で整理する⁷⁾。気孔あるいはクラスタの面積で表したサイズとそれに対応する気孔のあるいはクラスタの数を両対数グラフで表示して、直線関係が得られれば、構造はフラクタルとみなせる。焼結鉄構造のグラフは、後述のように、焼結状態によって直線になったり、上下に凸の曲線になったりする。したがってグラフのパターンから焼結状態が評価できる⁷⁾。

6. 焼結体の構造形成機構

6・1 焼結反応進行による焼結構造の変化

6・1・1 コークス使用量の焼結体構造に及ぼす影響

(1) CT画像に見られる構造変化 自己燃焼方式の鉄鉱石焼結ではコークス使用量は加熱量に対応し、その増加とともに焼結反応が促進すると考えられる。そこで粉コークス量を変えて焼結試験を行い、焼結の進行に伴う構造の変化をCTデータにもとづいて解析した。撮像した焼結体内部のCT像をFig. 7に示す。内部構造の差は顕著である。コークスが少ない試験では焼結構造は均一だが塊状化、緻密化が進んでいない。コークス量が5%まで増加する間は、塊状化、気孔の成長、緻密化が試料全体に進む。しかし、コークス量が5%を超すと過焼結部と未焼結部が混在する不均一な構造になる。

(2) 緻密化度の変化 (Fig. 8 (a)) 低緻密化焼結CTLはコークス量が5%まではその増加とともに減少し、コークス量5%のときCTLが極小となる。一方、適正緻密化焼結CTMはコークス量4%で最大になる。また、過剰焼結CTHは5%以上で高いレベルにある。これらの事実より、焼結鉄の製造においては、5%前後のコークス量が最適であると結論される。

(3) ブランチ構造の変化 (Fig. 8 (b)) ブランチ指標では、コークス量が5%まではコークス量が多くなるにつれて気孔もクラスタもブランチ密度が減少し、ブランチ幅が増大する。ところが、コークス量が5%を超すと逆にブランチ密度、ブランチ幅はコークスが少ない場合と同じ領域に戻る。これは、コークスが過剰な場合、気孔、クラスタともに一部は巨大に成長するが同時に未焼結部も増加するため、平均値で見るとこれらの値が低下するためである。

(4) クラスタおよび気孔の大きさ分布の変化 (Fig. 9) コークス配合率の異なる焼結体を対象に、クラスタあるいは気孔のサイズの分布を粗視化の方法で評価する。図の横軸は画素数で示したクラスタのサイズ、縦軸は対応するサイズ以上のクラスタ数であり、コークス量で層別して3次元的に表示してある。図よりコークス使用量の変化とともにグラフのパターンが規則的に変化しているのがわかる。すなわち、コークス使用量が少ない場合は上に凸の曲線、コークス使用量が増加すると直線、さらにコークス量が多くなると下に凸の曲線となる。このことは、コークス量が少ない場合は塊状化の単位が小さい側に片寄っており、コークス量が多くなるとつれ大小のクラスタが全体に万遍なく存在するようになり、コークス量がさらに多くなると大きいものと小さいものが同時に増加し中間程度の塊が相対的に減少することを示している。このグラフのパターン変化も上述の緻密化度やブランチ指標

Fig. 6 Illustration of skeletonizing pore channels and cluster bondings.

Fig. 7 CT images of sinter cakes produced with different coke ratios Red, green and blue shows high, middle and low CT values, corresponding to excess, adequate and insufficient sintering, respectively.

Fig. 15 Schematic figure of Intensified Sifting feeder and its mechanism.

Fig. 16 Comparison of sinter cakes produced by the conventional method (left) and under a magnetic force (right), showing together with the results of gas flow simulation.

Fig. 8 Effect of coke consumption on sinter cake structure.

Fig. 9 Relationship between cluster size and cumulative number of clusters as a parameter of coke ratio.

の変化と同様、コークス量 5 % を境にしている。

6・1・2 焼結体の構造形成法則についての考察 上記の通り各種の構造指標が同傾向の変化を示すということは、構造形成に何らかの法則性があることを示唆している。上記のクラスタのサイズ分布パターンの変化は物理学で扱われるパーコレーション問題⁷⁾で、サイト間のボンディング（結合）の確率を変化させた場合に形成するクラスタのサイズ分布の変化と一致する（Fig. 10）。パーコレーション理論によれば、クラスタのサイズの分布が両対数グラフで直線になるのはパーコレーション現象の臨界点に相当する。臨界点ではボンドで繋がったクラスタ、すなわち焼結体が端から端までひと繋がりのものになったクラスタが少なくとも 1 個生成する状態である。この時クラスタ群のサイズの分布は次式で表される。

$$N \propto S^{-d} \quad \dots\dots\dots (2)$$

ここに、 S はクラスタのサイズ、 N は対応するサイズ以上のクラスタ数である。また、 d は図の直線の傾きで、クラスタ構造のフラクタル次元となる。このフラクタル次元によって形状の複雑さの程度が定量化でき、焼結体の性質が評価できる⁷⁾。臨界点以下では全体に繋がるクラスタは存在せず、大きなクラスタができ難いので、クラスタサイズの小さい部分では直線性を示すが、大きい部分では直線から外れて急激に落ちるパターンを示す。臨界点以上になると、クラスタはさらに肥大化し、大きなクラスタほど加速度的に大きく成長するので、極めて大きいクラスタと小さい

Fig. 10 Results of simulation of bond formation. Left three diagrams show cluster size distribution and right three networks show bond formation at lattice points, depending on bonding probability.

クラスタの 2 群に分かれる。このために中間的な大きさのクラスタが少なくなり、クラスタサイズの大きな側で直線から外れたゆるい傾斜を示すパターンとなる。上述の緻密化度やブランチ指標ではコークス量 3 % と 7 % では同じ値をとっていた（Fig. 8）。しかし、クラスタのサイズ分布パターンの観点から見ると、両条件で焼結体の内部構造は本質的に異なるものであることがわかる。パーコレーション理論⁷⁾によると、気孔サイズの分布に対しても同じ結論が得られる。さらにクラスタサイズとクラスタの見掛け密度とが比例することが理論的に証明される。緻密化度の分布さらに表面積の変化についてもクラスタサイズと密接な関連があるといわれている⁷⁾。本理論によれば鉄鉱石の焼結におけるブランチ指標および緻密化度の変化、クラスタおよび気孔のサイズ分布の変化はコークス量約 5 % を臨界点とすることによって統一的に説明できる。ただし、本理論が鉄鉱石の焼結に真に適用できるかどうかは今後詳細に検討する必要がある。この種の研究の発展を期待したい。

6・2 焼結体構造の形成のシミュレーション

6・2・1 焼結体構造形成モデル パーコレーションの理論においては、隣合った格子点同士がある確率に従ってランダムに結合すると仮定すると、焼結構造と同じクラスタおよび気孔のサイズ分布が得られる。実際の焼結反応では、コークスの燃焼熱の大きいところと小さいところ、溶けやすい鉱石と溶けにくい鉱石、気孔の多いところと少ないところがランダムに分布しており、これらの総合として隣接格子点同士が結合するかどうかが決まる。すなわち、結合の有無がある確率で焼結層内にランダムに分布しており、パーコレーションモデルの条件に合致しているといえる。そこで以下の数学モデルを開発した⁸⁾。

数学モデルは、従来のヒートパターンモデルにおけるガスの流れおよび伝熱と粉コークスの燃焼条件を各格子点に割り振り、融液流れを組み合わせることにより構成した。本モデルを用い、上

Fig. 11 Simulation of sinter cake structure formation with the change of coke content by mathematic model.

記のコークスの配合量を変化させた実験をシミュレートし、コークス配合量とシンターケーキ構造変化との関係を求めた (Fig. 11)。コークスの増加とともにCTLに逆比例する指標の溶融量は増す。しかし、コークス量が5%まで増加すると溶融量は飽和し、さらにコークス量を増すと逆に溶融量は低下する。クラスターのサイズ分布の変化も実験結果とよく一致した。

7. 焼結構造と実際操業

7・1 焼結体構造と強度、粒度の関係

鉄鉱石焼結プロセスの目的は粉を塊にして高炉の要求する5 mm以上の塊を最大限つくる、すなわち良品歩留を最大にすることにある。パーコレーション理論の観点からは、焼結構造は臨界点以下、臨界点、臨界点以上のいずれかに分類される。コークスが少ない場合はボンドの発達这不十分で歩留が低い。またコークス使用量が臨界点を超えるときは、大きなクラスタもできるが小さなクラスタも増加し、かつ不均一焼結のため、多くのコークスを使っているのにもかかわらず結果的に歩留が低い。結果として臨界点で微粉の割合が最小となる。Fig. 12に実操業で得られた歩留、強度とコークス使用量との関係を示す。コークス量が5%のあたりで歩留が最大になり予測結果と一致する。

7・2 焼結体構造と通気分布の関係

7・2・1 ブランチ構造と通気性 鉄鉱石焼結中の通気抵抗は下位の原料層、中位の燃焼溶融層、上位の焼結完了層 (シンターケーキ) の総合として決まる。このうち燃焼溶融層と焼結完了層の通気抵抗は焼結反応で形成される気孔構造に左右される。ここでは後者の気孔率および気孔ブランチ構造と通気抵抗との関係について述べる。Fig. 13はブランチ指標で表した気孔構造と通気抵抗との関係を示す。ここで、通気抵抗は、煉瓦の通気試験法に準じ、0.5 m/sの通風をしたときの圧力損失値で評価している。したがって数字が小さいほど通気性が良い。図より、ブランチ密度が小さく、ブランチ径が大きいほど通気が良くなる。このことは多数の細くて高通気抵抗の気孔が減少し、太くて通りの良い通気幹線が発達することを示している。図には気孔率も示して

Fig. 12 Effect of coke ratio on product yield (left) and sinter strength (right).

Fig. 13 Ventilation resistance (pressure drops/kPa) as functions of pore branch density and width. Dash lines show isoporosity of pores over 5 mm.

ある。通気は気孔率よりもブランチ指標の影響を受ける。

7・2・2 気孔構造とガス流れの分布 ブランチ指標では焼結体全体の通気を平均的に評価できる。しかし、実際のガスは焼結層内を一通気には流れていない。そこで焼結層内の流れの分布のシミュレーションを検討した²⁾⁹⁾。5・2で述べた方法により、ブランチの長さ、幅とそのつながりが通気網全体についてわかると、キルヒホッフの法則を適用して、通気網全体の流れが計算できる。計算例をFig. 16に示す。通気流れの分布を等圧線 (全圧1.0に対し0.05刻み) で示している。シミュレーションは、圧力損失が流量に比例した場合と、流量の2乗に比例したと仮定した場合といずれも可能である。前者はガスの流れが層流、後者は粘性流体に等しい乱流とした場合に相当する。この図は層流の場合である。

8. 本技術の応用

8・1 プロセス制御、操業診断への応用

パーコレーションモデルによると臨界点では、焼結産物は焼結不十分と焼結過剰との中間の適正な構造となり、返鉄率が最低 (最高歩留) で、かつ最も均一で良好な通気 (最高生産率) が実現される。この観点から経験的に行われてきた原料評価の科学的判定、プロセス固有の不均一焼成構造の解消などプロセスの設計と制御のあり方を見直すことにより、プロセスの近代化が達成できると考えられる。

8・2 応用例

鉄鉱石の焼結は上層から下層へ向かって進む。このため、上層は予熱されていない新しい空気が燃焼に使われ、熱不足になりやすい。これに対し、下層は既焼結部を通して予熱された空気で燃焼されるため、熱過剰になりやすい。この現象に起因する不均一燃焼が、鉄鉱石焼結プロセスの固有の問題の一つである。この問題をパーコレーション理論から判断すると、上層は臨界点以下、中層は臨界点、下層は臨界点を越した状態であるといえる。この差はボンディング確率の違いに起因するので、焼結層の高さ方向のボンディング確率分布を変えられれば焼結構造を均一にできるはずである。このような観点から、CT解析によるシンターケーキの構造解析を通して、均一焼結技術の開発に取り組んだ例を以下に示す。

焼結は上から下へ進むため、焼結の高さ方向で融液の生成量に差が生じ、これが燃焼むらの原因となる。さらに、焼結層内における原料の粒度分布の偏析がこの燃焼むらを助長することが、経

Fig. 14 Schematic figure of slip phenomenon and ore size segregation during raw mix feeding.

験から知られている。特に鉄鉱石の焼結分野では機械の大型化により、原料充填の装入乱れが増し、この傾向に拍車をかけている。そこで焼結状態を X 線 CT で解析した。原料の供給速度が増すと未焼結の CTL が増加する。このことを手がかりとして調べた結果、歩留を低下させる主な原因は原料装入時に充填層傾斜面で発生するナダレ現象にあり、ナダレが充填層の原料粒度構成を乱していることがわかった¹⁰⁾ (Fig. 14)。対策として、ナダレに起因する不規則な粒度偏析を解消し、かつ焼結層の高さ方向に融液生成量を均一にするための条件である原料粒度傾斜が形成できる整粒分散式装入装置を開発した¹⁰⁾ (Fig. 15)。この装置を使うことにより、焼結層内で上部には比較的小さい粒子が、下部には粗い粒子が集まる。コークスは鉄石や石灰石に比べて細粒なため、その量は相対的に上部で多くなる。このような焼結層を上から焼くと、燃料の多い上層と予熱された空気の下層が温度的にほぼ同じになり、融液の生成を上下で均一にすることができる。この結果、歩留が大幅に改善された。

さらに、層高方向の焼結の不均一性の解析を進めた結果、シンターケーキの荷重も高さ方向のボンディング確率に影響していることが判明した。すなわち、ドワイトロイド型焼結では、上層のシンターケーキの荷重を受けて、中および下層の焼結反応が進み、下層ほど加圧度が高い状態で焼結され、ボンディング確率が増す。そこで荷重軽減のために、焼成完了の上層に磁気浮揚力を働かせて、シンターケーキの燃焼溶融帯にかかる荷重を軽減する実験を行った¹¹⁾。この結果、中層以下の過剰焼結の不均一焼結構造が解消でき、中層以下において一貫して、臨界点に近い構造を均一に形成させることができた (Fig. 16)。

9. 今後の課題

9・1 焼結分野で残された課題

ボンディング確率は上記応用例の他、原料の溶融特性などの原料条件、操業条件によって左右される。CT を用いた定量化により、与件に対して最適に操業する管理技術の開発なども課題である。

さらに、焼結体をはじめ岩石の破碎後の粒度構成もフラクタルであることが明らかにされている。したがって、この観点に立つ焼結体の塊砕・破壊現象の解析は今後に残された大きな課題である。塊成化（結合）と破碎（解離）の間の可逆性の有無は、フラクタルの基本的課題であり、法則がみいだせれば成品粒度の制御と破碎・粉化の抑制につながり、工業的価値が大きい。また、原料の粉体もフラクタルの観点から構造の解析が進められている。

原料から成品までの間に一貫したサイズの変化を支配する何らかの法則が潜んでいるかもしれない。今後の研究の発展が期待される。

9・2 鉄鉱石焼結以外の焼き物の世界への本研究の適用

本技術は、鉄鉱石焼結と同種の非鉄金属製錬用焼結、セメントクリンカー、断熱煉瓦等へ応用できるはずである。ただし、焼結材料は現在ファイン化による品質向上の方向にあり、本技術よりさらに高分解能 (μm オーダ) の解析が必要である。最近小角 X 線を用いた超高分解能 X 線 CT も市販され始めており¹²⁾、この種の研究の発展にも期待したい。

10. まとめ

(1) 鉄鉱石焼結等の高密度物質も透過可能な高エネルギー型の鉄鋼材料用 X 線 CT を用いて、焼結体内の 3 次元構造を可視化するとともに、焼結体の緻密化度の測定、焼結構造のトポロジー・フラクタル等の幾何学的解析、気孔構造の通気シミュレーションが行えるシステムを開発した。

(2) 一見ランダムで不規則に見える焼結体の形状はフラクタルの特徴をもっている。

(3) 鉄鉱石焼結反応の進行過程では塊状化、緻密化、気孔の統合成長の変化が同時並行的に起こる。この構造変化は原料粒子間のボンディング確率に左右される変化で、パーコレーション理論に則った変化と考えられる。

引用文献

- 1) Maeno K.: J. Phys. Chem., Vol. 87, p. 4103-4110, (1983)
- 2) 稲角忠弘・笠間俊次・伊東敬祐・中野 司・水島裕恵：日本金属学会会報, Vol. 31, p. 440-442, (1992)
- 3) 田口 勇・中村磁男：鉄と鋼, Vol. 171, p. 1685-1699, (1985)
- 4) Inazumi, T., Kasama, S., Sato, K., Sasaki, M. and Tanaka, T.: Proc. 5th Int. Symp. Agglomeration, p. 559-610, (1989), Brigston (England)
- 5) 中野 司・西沢 修・増田幸治・稲角忠弘・笠間俊次：月刊地球, Vol. 16, p. 616-620, (1992)
- 6) Dullien, F. A. L.: Porous Media, p. 90, (1979), Academic Press
- 7) 高安秀樹：フラクタル, p. 36, (1987), 朝倉書店 (東京)
- 8) Nakano, M., Inazumi, T., Mizushima, H., Sadaoka, H. and Takayasu, H.: Proceedings of The 3rd International Conference on Advanced Materials, p. 515-518, (1993), Ikebukuro (Tokyo)
- 9) 中野 司・藤井直之：情報地質, Vol. 2, p. 275-295, (1991)
- 10) 大河内賞受賞業績報告書 (第 36 回): p. 90-97, (1990)
- 11) 稲角忠弘・藤本政美・佐藤修一・佐藤啓次：材料とプロセス, Vol. 6, p. 904-905, (1993)
- 12) 富岡祥郎：第 1 回放射線による非破壊シンポジウム, p. 75-81, (1995), 東京