粒子配置を考慮した充填層の熱物質移動解析

夏井 俊悟*・昆 竜矢*・植田 滋*・加納 純也*・井上 亮*・有山 達郎*・埜上 洋*²

Analysis of Heat and Mass Transfer in a Packed Bed by Considering Particle Arrangement

Shungo NATSUI, Tatsuya KON, Shigeru UEDA, Junya KANO, Ryo INOUE, Tatsuro ARIYAMA and Hiroshi NOGAMI

Synopsis : Low reducing agent operation of large blast furnace has attracted a special attention from the background of the global warming. Because the coke ratio is reduced in this operation, causing a huge local ventilation resistance that causes operational problems, it has become increasingly necessary to understand the operation of blast furnace based on non-empirical phenomena. Among the most promising numerical approaches is a combination of the discrete element method (DEM) and computational fluid dynamics (CFD). In this study, particle-based model was newly developed, which considers heat transfer, mass transfer and chemical reactions in the shaft part of blast furnace. It became possible to analyze the three-dimensional discontinuous phenomena among particle with gas flow.

Because this model was developed to expand the spatial scale more than conventional analysis, the discontinuous factors made it possible to simulate by the behavior of discrete particles. The particle arrangement and the packed bed structure were evaluated for studying the flow structure, temperature and composition distribution. Remarkable change in the heat and mass transfer characteristic appeared in the interface between coke and ore layer, and near the wall. The ore and coke particle mixture system, which was expected to improve reducing rate due to the dense packing, is relatively-ineffective. Rather, a low permeability resistance improved reducing rate, it means convection effect was larger. Degree of freedom of particle arrangement is high, and its large influence on temperature and reaction distribution, it was able to show the usefulness of this model.

Key words : numerical analysis; packed bed; blast furnace; particle arrangement; DEM-CFD simulation; heat transfer; chemical reactions.

1. 諸言

大型高炉における低還元材比操業は、高炉操業の共通課題である。この課題へのアプローチとして、コークスの混合装入や高反応性コークスの使用が模索されているが、適切な操業設計指針を得るために、粒子層の局所的な反応挙動や固体運動の非経験的な予測が求められている^{1,2)}。これまでの充填層プロセスにおける現象理解のために、物質移動解析は重要な役割を果たしてきた³⁻⁵⁾。さらに近年、計算機環境の向上も手伝って数値流体力学 (Computational Fluid Dynamics, CFD) や数値固体力学 (Computational Solid Dynamics, CSD) が様々な分野で応用され、解析できるスケールもさらに広がってきている⁶⁻⁸⁾。これらを高炉プロセス解析に最大限利用することで、プロセス全体の収支などマクロ的な解析と同時に小さいスケールでの現象を理解することができ、上述の操業設計に役立つと考えられる。

充填層プロセス形態の一つである高炉は、大規模な固体と流体との接触反応装置である。充填層内を移動する固体粒子は、全体で見れば連続体的でありながらも、個々の運動は離散的な運動形態をとることが知られている⁹⁾。これに対し、固体粒子間の接触などの相互作用に Discrete Element

Method (DEM) を適用した Lagrange 的記述による解析が、荷下がり挙動の理解において有用な成果をあげている²⁾。また、近年のコンピュータ容量の増大に伴って、流体運動を連続的に離散化する差分法 (または有限体積法) とのカップリングによる DEM-CFD シミュレーションが実際の高炉プロセススケールに応用できるようになってきた。

充填層プロセスにおいては温度・組成・反応の考慮が重要である。Austin らは各相を相互作用する異なる流体として記述する四流体モデルを開発し、マクロスケールでの固気相分布のシミュレーションから、高炉全体の反応器設計や操業条件に対する指針を与えた^{10,11)}。著者らは、DEM-CFD シミュレーションから得られた固相組成分布を連続相で近似して、高炉全体の反応率分布を計算する方法を提案している¹²⁾。ただし、本来固相の反応率分布はコークス・鉱石層により隔てられているため不連続性を示す。個々の粒子の堆積によって層は形成される。そこで、粒子単位での熱・物質移動を直接解析できれば、粒子スケールを空間の最小単位とでき、これらの不連続性を考慮できる。離散型の伝熱・反応モデルの統一的な構成方程式は未だ確立されたとは言い難いが、近年、実験および解析結果から粒子ベースの解析手法が提案されている¹³⁻¹⁵⁾。このようなアブ

平成 24 年 2 月 3 日受付 平成 24 年 3 月 19 日受理 (Received on Feb. 3, 2012; Accepted on Mar. 19, 2012)

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

*2 室蘭工業大学大学院工学研究科機械科学ユニット (Mechanical Science Unit, Muroran Institute of Technology)

ローチは、粒子単位の不連続現象要因を組み込むことが容易である。本研究は、充填層における粒子単位の熱物質移動現象に対する新たな解析手法を提案する。今回は、高炉を模擬した充填層を解析対象として、粒子配置の流れ、温度場、反応分布への影響を調べた。

2. 数値解析

充填層内の移動現象についてFig.1に模式的に示す。固一気相（粒子一流体）間の運動量、熱量、物質量の移動および交換を考える。計算のフローをFig.2に示す。図中各変数は、以下に示す方程式群に従う。

2・1 運動方程式

2・1・1 粒子の運動¹⁶⁾

Fig.1b) に示すように、気相流中にある単一の球形粒子運動は、粒子間接触力および粒子一流体間相互作用力を考慮して、揚力などの影響が小さいとすれば、並進および回転方向の運動方程式で与えられる。

$$m_p \frac{dv_p}{dt} = \sum_{j \neq i}^{N_c} F_c + F_f + F_g \quad (1)$$

$$I_p \frac{d\omega_p}{dt} = r_p \sum_{j \neq i}^{N_c} (F_{cs} - F_r) \quad (2)$$

ここで、 m_p は粒子質量、 v_p は粒子速度、 t は時間、 F_c は粒子間接触力、 N_c は接触粒子数、 F_f は粒子一流体間相互作用力、 F_g は重力、 I_p は粒子慣性モーメント、 ω_p は粒子角速度、 r_p は粒子半径、 F_{cs} は剪断方向接触力、 F_r は回転抵抗力であ

Fig. 1. Schematic diagrams of unit cell.

a) fixed volume element through which a fluid flows in the packed bed, b) particle-particle and particle-fluid momentum transfer, c) heat transfer, d) mass transfer.

る。粒子間接触力は、Hertzの弾性接触理論に基づく“soft sphere model”を適用して表現する。各方向における粒子 i のバネ係数 k 、ダッシュポット係数 η 、動摩擦係数 μ_f 、回転抵抗力 F_r の求め方は前報⁹⁾と同様である。

2・1・2 流体の運動¹⁷⁾

粒子群中の流体の運動は、粒子一流体間相互作用を考慮して、Reynolds応力の影響を無視すれば¹⁸⁾、連続の式と非圧縮性Navier-Stokes式で与えられる。

$$\frac{\partial}{\partial t} (\epsilon \rho_g) + \nabla \cdot (\epsilon \rho_g \mathbf{u}_g) = 0 \quad (3)$$

$$\frac{\partial}{\partial t} (\epsilon \rho_g) + \nabla \cdot (\epsilon \rho_g \mathbf{u}_g \mathbf{u}_g) = -\epsilon \nabla p_g + \epsilon \mu_g \nabla^2 \mathbf{u}_g + \epsilon \rho_g \mathbf{g} + \mathbf{F}_b + \mathbf{F}_f \quad (4)$$

ここで、 ϵ は空隙率、 ρ_g は流体密度、 $\mathbf{u}_g$ は流体速度、 p_g は流体圧力、 μ_g は流体粘性係数、 $\mathbf{F}_b$ は浮力である。 $\mathbf{F}_b$ はBoussinesq近似¹⁷⁾により求めた。

2・1・3 粒子一流体間相互作用力

粒子一流体間相互作用力は、粒子と流体の相対速度から与えられる¹⁹⁾。

$$\mathbf{F}_f = \beta_t (\mathbf{v}_p - \mathbf{u}_g) \quad (5)$$

Fig. 2. Calculation flow chart including interactions between particles and fluids.

ここで、 β_i は固気間運動量交換係数であり、 ϵ によってErgunの式²⁰⁾ またはWen and Yuの式²¹⁾ を適用して求める。また、流体抗力係数 C_D は、粒子Reynolds数 $Re (= |\mathbf{v}_p - \mathbf{u}_g| \rho_g \epsilon d_p / \mu_g)$ によってSchiller-Naumannの式または定数を与える。これらの求め方は前報⁹⁾と同様である。

2・2 熱伝導方程式

2・2・1 粒子の伝熱

Fig.1c)に示すように、気相流中にある単一粒子の伝熱形態は、固一気間対流伝熱、粒子間接触伝熱、放射伝熱の3つに分類できる¹³⁾。さらに、粒子の化学反応による熱生成を考慮して、粒子に関する熱伝導方程式が得られる。

$$m_p C_{p,p} \frac{dT_p}{dt} = Q_{\text{reac}} - \left(\sum_{j \neq i}^{N_c} Q_{\text{cond}} + Q_{\text{conv}} + Q_{\text{rad}} \right) \dots\dots\dots (6)$$

ここで、 $C_{p,p}$ は粒子の定圧比熱容量、 T_p は粒子温度、 Q_{reac} は反応熱量、 Q_{cond} は粒子間伝熱量、 Q_{conv} は粒子一流体間伝熱量、 Q_{rad} は粒子層内放射伝熱量である。ただし、粒子温度に関しては、Biot数 $Bi (= h_p d_p / \lambda_p) < 0.1$ のとき粒子内の温度一定と仮定することができる²²⁾。今回は、この条件を満たすように解析条件を設定した。粒子 i と j 間伝熱量は、接触面を介する熱移動量と、接触面近傍の気相を介しての熱移動量の和として与え、各伝熱モデルを適用することにより求める^{13,22,23)}。

$$Q_{\text{cond}} = (Q_{ct} + Q_{cd}) \cdot (T_{p,j} - T_{p,i}) \dots\dots\dots (7)$$

$$Q_{ct} = 2 \lambda_p r_c \dots\dots\dots (8)$$

$$Q_{cd} = \frac{2\pi\lambda_g \left[1 - \frac{1}{2} \left(\frac{r_c}{r_p} \right) \right] (r_p - r_c)}{1 - \frac{\pi}{4}} \dots\dots\dots (9)$$

ここで、 Q_{ct} は接触伝熱量、 Q_{cd} は伝導伝熱量、 λ_p は粒子の熱伝導率、 λ_g は流体の熱伝導率である。反応熱量は、各化学反応の前後における系のエンタルピー変化から求める。

$$Q_{\text{reac}} = \sum_{l=1}^{n_r} [R_l \cdot (-\Delta H_{R,l})] \dots\dots\dots (10)$$

ここで、 l は反応式番号、 n_r は全反応式数、 R_l は反応式 l の反応速度、 $\Delta H_{R,l}$ は反応式 l の反応熱である。放射伝熱量は、粒子 i とその周囲の粒子層に対してStefan-Boltzmannの法則を適用して求める²⁴⁾。

$$Q_{\text{rad}} = \sigma_{SB} \phi_{ij} A_p (T_p^4 - T_b^4) \dots\dots\dots (11)$$

ここで、 T_b は周囲粒子層平均温度、 σ_{SB} はStefan-Boltzmann

定数、 ϕ_{ij} は粒子放射率、 A_p は粒子表面積である。 T_b は粒子 i 周囲の検査体積⁹⁾内に存在する粒子の平均温度とした。なお、 $\phi_{ij} = 0.85$ とし、壁面への抜熱は考慮しない。

2・2・2 流体の伝熱

粒子群中の流体の伝熱は、粒子一流体間相互作用を考慮して、Energy方程式で与えられる。

$$\frac{\partial}{\partial t} (\epsilon \rho_g C_{p,g} T_g) + \nabla \cdot (\epsilon \rho_g \mathbf{u}_g C_{p,g} T_g) = \epsilon \lambda_g \nabla^2 T_g + Q_p \dots\dots\dots (12)$$

ここで、 $C_{p,g}$ は気相の定圧比熱容量、 Q_p は固気間交換熱量であり、単位体積内に存在する粒子から以下のように与えられる。

$$Q_p = \frac{1}{V_c} \left(\sum_i^{N_V} Q_{\text{conv}} + Q_{\text{reac}} \right) \dots\dots\dots (13)$$

ここで、 V_c はセル体積、 N_V はセル内粒子数である。

2・2・3 粒子一流体間の伝熱

粒子一流体間対流伝熱量は、粒子と流体の相対温度から与えられる。

$$Q_{\text{conv}} = \beta_h A_p (T_{p,i} - T_g) \dots\dots\dots (14)$$

ここで、 β_h は固気間熱量交換係数である。 β_h は ϵ によってWakaoらの式²⁵⁾ またはRanz and Marshallの式²⁶⁾ を適用して求める。

$$\beta_h = \frac{Nu \lambda_g}{d_p} \dots\dots\dots (15)$$

$$Nu = \begin{cases} 2.0 + 1.1 Re^{0.6} Pr^{\frac{1}{3}} & (\epsilon \leq 0.8) \\ 2.0 + 0.6 Re^{\frac{1}{2}} Pr^{\frac{1}{3}} & (\epsilon > 0.8) \end{cases} \dots\dots\dots (16)$$

ここで、 d_p は粒子径、 Nu はNusselt数、 Pr はPrandtl数 $(= C_{p,g} \mu_g / \lambda_g)$ である。

2・3 物質輸送方程式

2・3・1 固相の物質輸送

Fig.1d)に示すように、固相の物質輸送方程式は、粒子がLagrange的に輸送されるので、組成 i の化学反応による生成または消失を考慮して、以下のように表される。

$$m_p \frac{d\psi_{s,i}}{dt} = S_{s,i} \dots\dots\dots (17)$$

$$S_{s,i} = \frac{v_{i,l} R_l}{M_i} \dots\dots\dots (18)$$

ここで、 $\psi_{s,i}$ は固相組成*i*の質量分率、 $S_{s,i}$ は固相組成*i*の生成速度、 $v_{i,l}$ は反応式*l*における物質*i*の化学量論係数、 M_i は物質*i*の分子量である。系に存在する固相組成は、 Fe_2O_3 、 Fe_3O_4 、 FeO 、 Fe 、 C 、 Al_2O_3 、 SiO_2 、 CaO 、 MgO の9種類とする ($N_s=9$)。

2・3・2 気相の物質輸送

気相の物質輸送方程式は、流体がEuler的に輸送されるので、組成*i*の移流、拡散、生成または消失を考慮して、以下のように表される。

$$\frac{\partial}{\partial t} (\epsilon \rho_g \psi_{g,i}) + \nabla \cdot (\epsilon \rho_g \mathbf{u}_g \psi_{g,i}) = \epsilon \Gamma_{g,i} \nabla^2 \psi_{g,i} + S_{g,i} \dots (19)$$

$$S_{g,i} = \sum_l \sum_{i=1}^{N_l} \left(\frac{v_{i,l} R_l}{M_i} \right) \dots (20)$$

ここで、 $\psi_{g,i}$ は気相組成*i*の質量分率、 $\Gamma_{g,i}$ は気相組成*i*の混合気体内拡散係数、 $S_{g,i}$ は気相組成*i*の生成速度である。系に存在する気相組成は、 H_2 、 H_2O 、 CO 、 CO_2 、 O_2 、 N_2 の6種類とする ($N_g=6$)。

2・4 化学反応速度^{27,28)}

v_A [mol] の固相分子*A*と v_B [mol] の気相分子*B*が反応して、 v_P [mol] の*P*と v_Q [mol] の*Q*が生成するときの化学反応式を以下に示す。

2・4・1 コークスの反応速度^{29,30)}

コークスと気相の反応速度は、不均一触媒反応モデルにより記述できる。すなわち、反応物である気相分子*B*のmol濃度 C_B に比例して、以下のように表される。

$$R_l = k_m A_p C_B \dots (22)$$

ここで、 k_m は総括反応速度係数であり、化学反応と物質移動の複合律速であるとするとき次式で与えられる。

$$k_m = \left(\frac{1}{k_d} + \frac{1}{\eta_e k_{c,l}} \right)^{-1} \dots (23)$$

ここで、 k_d は物質移動係数、 $k_{c,l}$ は反応式*l*の化学反応速度係数、 η_e は触媒有効係数である。 k_d は、 ϵ によってWakao and Funazkriの式³¹⁾ またはUsuiらの式³²⁾ を適用して求める。

$$k_d = \frac{D_{e,B} \text{Sh}}{d_p} \dots (24)$$

$$\text{Sh} = \begin{cases} 2.0 + 1.1 \text{Re}^{0.6} \text{Sc}^{\frac{1}{3}} & (\epsilon \leq 0.8) \\ 2.0 + 0.58 \text{Re}^{\frac{1}{2}} \text{Sc}^{\frac{1}{3}} & (\epsilon > 0.8) \end{cases} \dots (25)$$

ここで、 $D_{e,B}$ は気相分子*B*の粒子内拡散係数、ShはSherwood数、ScはSchmidt数 ($=\mu_g / \rho_g D_{e,B}$) である。 η_e は、粒内拡散の影響がなく、粒子内部が表面と同一の気相組成、温度であるとした理想的な反応速度の比であり、固体触媒反応の無次元パラメータであるThiele数 $\phi_c (= \frac{r_p}{3} \sqrt{\frac{k_{c,l}}{D_{e,B}}})$ の関数で与えられる。

$$\eta_e = \frac{1}{\phi_c} \left[\frac{1}{\tan(3\phi_c)} - \frac{1}{3\phi_c} \right] \dots (26)$$

$k_{c,l}$ は、各反応式から次のように与えた。なお、参照した化学反応速度係数はSI単位系に統一しTable 1にまとめて示した。

(a) カーボンの燃焼反応… ($l=1$)

Fieldら³³⁾より炭素分子の酸素分子による酸化速度を反応速度とした。

(b) ソリユーションロス反応… ($l=2$)

Kobayashi and Omori³⁴⁾より粒子表面に吸着された分子同士の反応であるLangmuir-Hinshelwood触媒反応機構型の化学反応速度とした。

Table 1. Kinetic coefficients for gas-solid reactions.

<i>l</i>	Coefficients	<i>l</i>	Coefficients
1	$k_{c,1} = 7.26 \times 10^5 \exp \left(-\frac{1.80 \times 10^4}{T_m} \right) R_g T_g$	6	$K_{e,6} = \exp \left(-3.127 + \frac{2879}{T_p} \right)$
	$k_{c,2} = \frac{k_{1,2}}{1 + k_{2,2} p_{\text{CO}} + k_{3,2} p_{\text{CO}_2}}$		$k_{c,6} = \exp \left(0.805 - \frac{7385}{T_p} \right)$
	$k_{1,2} = \exp \left(18.641 - \frac{36758}{T_g} \right)$		$D_{e,6} = \exp \left(0.485 - \frac{8770}{T_p} \right) / p_g$
2	$k_{2,2} = \exp \left(-2.578 + \frac{6898}{T_g} \right)$	7	$K_{e,7} = \exp \left(10.32 + \frac{362}{T_p} \right)$
	$k_{3,2} = \exp \left(25.901 - \frac{35234}{T_g} \right)$		$k_{c,7} = \exp \left(2.490 - \frac{4017}{T_p} \right)$
	$k_{c,3} = \frac{k_{1,3}}{1 + k_{2,3} p_{\text{CO}} + k_{3,3} p_{\text{CO}_2} + k_{4,3} p_{\text{H}_2\text{O}}}$		$D_{e,7} = \exp \left(-0.570 - \frac{4200}{T_p} \right) / p_g$
	$k_{1,3} = \exp \left(11.681 - \frac{26360}{T_g} \right)$	8	$K_{e,8} = \exp \left(8.98 - \frac{8580}{T_p} \right)$
3	$k_{2,3} = 6.621$		$k_{c,8} = \exp \left(4.700 - \frac{6999.7}{T_p} \right)$
	$k_{3,3} = \exp \left(13.346 - \frac{18350}{T_g} \right)$		$D_{e,8} = \exp \left(1.640 - \frac{6800}{T_p} \right) / p_g$
	$k_{4,3} = \exp \left(29.588 - \frac{36760}{T_g} \right)$	9	$K_{e,9} = \exp \left(1.30 - \frac{2070}{T_p} \right)$
	$K_{e,4} = \exp \left(7.255 + \frac{3720}{T_p} \right)$		$k_{c,9} = \exp \left(4.970 - \frac{6867.4}{T_p} \right)$
4	$k_{c,4} = \exp \left(-1.445 - \frac{6038}{T_p} \right)$		$D_{e,9} = \exp \left(0.770 - \frac{5900}{T_p} \right) / p_g$
	$D_{e,4} = \exp \left(4.135 - \frac{14080}{T_p} \right) / p_g$		
	$K_{e,5} = \exp \left(5.289 - \frac{4711}{T_p} \right)$		
5	$k_{c,5} = \exp \left(-2.515 - \frac{4811}{T_p} \right)$		
	$D_{e,5} = \exp \left(-1.835 - \frac{7180}{T_p} \right) / p_g$		

(c) 水性ガス反応… ($l=3$)

水素の反応阻害効果を見逃した Miyasaka and Kondo³⁵⁾ の化学反応速度を適用した。

2・4・2 焼結鉱の反応速度^{36,37)}

焼結鉱の反応は、酸化鉄の気相による還元反応のみを考える。酸化鉄は、酸化度によって組成が Fe_2O_3 (Hematite), Fe_3O_4 (Magnetite), FeO (Wüstite), Fe (Iron) と変化し、各組成 c における還元率を以下のように定義する。

$$R_c = 1 - \frac{v_c n_c}{n_{\text{Fe}}} \dots\dots\dots (30)$$

ここで、 v_c は酸化鉄組成 c の化学量論係数、 n_c は粒子1個中の酸化鉄組成 c の分子数である。また、粒子の総括還元率 R_l は、各組成における被還元酸素量の割合から求めた。焼結鉱と気相の反応速度は、焼結鉱内部の気孔率が十分小さくペレットと同様に還元が進行すると仮定すれば、多界面未反応核モデルを適用できる。多界面モデルの速度関数 a_{lj} を適用すれば、各反応式の反応速度は以下のように表される。

$$R_l = \frac{4\pi r_p^2 p_g}{R_g T_g} \sum_{j=1}^m a_{lj} \dots\dots\dots (31)$$

ここで、 R_g は気体定数、 m は多界面未反応核モデルの界面数である。 a_{lj} の求め方は Hara ら³⁷⁾ に従った。反応式 l の平衡定数 $K_{e,l}$ 、化学反応速度係数 $k_{c,l}$ 、有効拡散係数 $D_{e,l}$ は、Takahashi らのデータから各反応式から与えた³⁸⁾。

(d) Hematite の CO 還元反応… ($l=4$)

(e) Magnetite の CO 還元反応… ($l=5$)

(f) Wüstite の CO 還元反応… ($l=6$)

(g) Hematite の H_2 還元反応… ($l=7$)

(h) Magnetite の H_2 還元反応… ($l=8$)

(i) Wüstite の H_2 還元反応… ($l=9$)

2・4・3 反応熱と定圧熱容量

反応熱は、反応前後のエンタルピー変化から与える。Kirchhoff の法則より、相変化がない場合の反応熱の温度依存性を以下に示す。

$$\Delta H_{R,l} = \Delta H_{298K,l} + \int_{298K}^{T_p} \Delta C_{p,l} dT \dots\dots\dots (38)$$

ここで、 $\Delta H_{298K,l}$ は反応式 l における標準生成エンタルピー変化、 $\Delta C_{p,l}$ は反応物と生成物の熱容量の総和差分である。 $\Delta C_{p,l}$ は、以下のように与えられる。

$$\Delta C_{p,l} = [v_P C_p (P) + v_Q C_p (Q)] - [v_A C_p (A) + v_B C_p (B)] \dots\dots\dots (39)$$

分子 i の定圧比熱容量 $C_p (i)$ は以下のように与えた。

$$C_p (i (g)) = [a_{c,i} + b_{c,i} T_g + c_{c,i} T_g^{-2}] / M_i \dots\dots\dots (40)$$

$$C_p (i (s)) = [a_{c,i} + b_{c,i} T_p + c_{c,i} T_p^{-2}] / M_i \dots\dots\dots (41)$$

各物質に固有のパラメータ $\Delta H_{298K,l}$ 、 $a_{c,i}$ 、 $b_{c,i}$ 、 $c_{c,i}$ は Kubaschewski and Alock³⁹⁾ から与えた。

2・5 輸送物性

2・5・1 気相物性^{40,41)}

混合気体の移流・伝熱・拡散問題を同時に解く必要があるため、物性値 ρ_g 、 μ_g 、 λ_g 、 $\Gamma_{g,i}$ をそれぞれ数値的に求める必要がある。 ρ_g は、すべての気相成分が理想気体であると仮定し、理想気体の状態方程式から求める。他の物性値は、各気相分子 i の値を Chapman-Enskog の式から求め、混合気体の値を分子運動論に基づく式^{42,43)} で推算した。

2・5・2 固相物性

粒子の物性は、コークスと鉱石の2種類の粒子によって大きく異なる。コークス粒子の密度は変化しないと仮定して初期密度を保持させ、焼結鉱粒子の密度は鉄化合物の総括還元率から還元された酸素質量分を減少させて与える。粒子形状は、球形であると仮定するとすべて粒子径に代表される。コークス粒子は、Shrinking core model²⁸⁾ に基づいて、炭素の質量分率により粒子径を減少させる。焼結鉱粒子は、未反応核モデルを適用し、粒子径は変化せず初期粒径を保持する。なお本研究の粒子は、粗視化近似したモデル⁹⁾ を使用せず、すべて実粒子径を採用した。

粒子の見かけの熱伝導率は 1273K 以上になると大きく上昇する⁴⁴⁾ が、これは放射伝熱の寄与が大きい。ここでは、粒子の熱伝導係数 λ_p は一定として与え、温度による寄与は放射伝熱のみ考慮した。

粒子の弾性を示す Young 率 E_p および Poisson 比 ν_p は、法線方向バネ定数 k_n に影響し、時間差分条件から離散化時間の大きさに影響する。特に E_p は、計算量低下のために運動に大きく影響しない程度の小さい値に設定するのがよい。一方、コークスは、ソリューションロス反応によって強度が低下することが報告されている⁴⁵⁾。また焼結鉱は、融着帯において熔融を伴う。これらの現象を同時に解析すると計算量が増大するが、これに起因するトラブル要因の検討のためには今後考慮すべき変数である。

3. 解析方法

3・1 計算アルゴリズム

本研究における計算条件は、多くの計算量を必要とするため、計算時間を短縮するためになるべく少ない計算量とするアルゴリズムが必要である。粒子計算は、接触判定に高速なボクセル法を用いて陽的に解いた⁴⁶⁾。配列の逐次計算にはOpenMPを適用して並列処理した⁴⁷⁾。格子計算は、SIMPLE法に基づく半陰的アルゴリズム¹⁷⁾を採用し、連立一次方程式は、領域分割した共有メモリ上でline-SOR法により並列処理した。現在、現実的に計算できる粒子数は最大 10×10^6 個程度であり、高炉内のおよそ 300×10^6 個以上と言われる粒子運動をすべて計算することは困難である。今回は、計算粒子数を約 2×10^6 個として、コンピュータのハンドリング性を向上した。粒子がつくる構造の影響を理解するには空間精度は十分であると考えられる。

3・2 計算条件

計算対象領域は、高炉シャフト部を想定した半径2.0m、内容積150m³の円筒型の固定層である。計算領域および境界条件をFig.3に示す。本モデルにより解析を行う場合、最も興味深いのは系の固気相分布変化に対する2種類の異なる物性の粒子配置の影響である。充填構造は、次節で述べるように傾斜した層状配置、混合配置の2つとした。本条件は、空間解像度の最小単位を粒子単位、かつ充填層全体が解析範囲である。固気相の物性条件をTable 2に示す。コークス ($d_p = 0.080m$) および鉬石粒子 ($d_p = 0.040m$) の体積比は1:1、粒子数比で1:8とした。また、流体計算に使用する格子は、容器全体に対しては十分な空間分解能を持ち、かつ粒径に比べて大きく設定した。流入する気相条件は、湿分を含まないボッシュガスを想定した物性値、流入速度2.0m/s、流入温度は1273Kとした。系の初期温度は

1253K, $t = 18000\text{s}$ まで計算した。

4. 結果と考察

4・1 充填層構造と流れ場

本研究では、2種粒子の代表的な充填層構造として、高炉を想定して傾斜した層状配置 (Case A) と、混合配置 (Case B) を採用した。粒子を任意位置に発生、運動方程式である (1) 式、(2) 式に従い重力落下および堆積させて静的に収束した状態を初期配置とした。各3次元充填構造の任意断面を Fig.4 に示す。a1) Case A はマクロ的にみると各層は傾斜角 $26 \sim 28^\circ$ のほぼ平行な層構造である。a2) Case B における充填層全体の平均空隙率 $\bar{\epsilon}$ は Case A と比較して小さく、より粒子が密に詰まっている。代表的な充填層断面拡大図を見ると、鉱石粒子が上部に堆積する b2) の場合、粒子径差からコークス層への浸透 (percolation) により薄い混合層が生じ、局所的に b3) と似た構造となる。b1) のようにコークス層粒子が上部にある場合はこれが生じにくい。つまり粒子単位の空間スケールでは、単純にコークス層、鉱石層だけでなく必ず混合層が生じる。次に、各条件における空隙率、高さ方向の流体速度、圧力分布をまとめて Fig.5 に示す。いずれの場合も壁面付近の粒子配列により空隙率が増加し流速が大きい。Case A に比べて、Case B は全体が大粒子間に小粒子が入り込む混合状態であり、層全体に空隙率が小さい。Case A においては、コークスー鉱石間に生じた混合層が、膜状に空隙率を低下する。この混合層と層の傾斜の影響は速度分布に表れている。コークス層中心付近では大きい流速が生じ、逆に鉱石層中心では流速の低下が

Table 2. Calculation conditions.

Solid parameters	coke	ore	Gas parameters	mix gas
Number of particles	196,200	1,569,600	Number of grids	60 × 10 × 60
Diameter of particle, m	0.080	0.040	Cell size	dr , m 0.20000
Young's modulus, Gpa	5.40	35.00		dh , m 0.20000
Poisson's ratio, —	0.22	0.24		$d\theta$, rad 0.10472
Density, kg/m ³	1050	3950	Inlet velocity, m/s	2.0
Friction coefficient, —	0.43	0.43	Initial temperature, K	1253
Rotational friction coefficient, —	0.30	0.30	Inlet temperature, K	1273
Heat conductivity, kW/m · K	0.005	0.010	Coefficient of thermal expansion, /K	0.0
Initial temperature, K	1253		Time step, s	1.0 × 10 ⁻²
Time step, s	1.0 × 10 ⁻⁵		Inlet gas compositions, vol%	
Radius of control volume, m	0.113		CO	30.0
Initial solid compositions, mass%			CO ₂	10.0
C	88.1	0.0	H ₂	0.0
Fe ₂ O ₃	0.0	79.7	H ₂ O	0.0
Fe ₃ O ₄	0.0	0.0	N ₂	60.0
FeO	0.0	5.4	O ₂	0.0
Fe	0.0	0.0		
Al ₂ O ₃	3.2	1.9		
CaO	0.4	7.2		
SiO ₂	8.3	4.8		
MgO	0.0	1.0

Fig. 3. Schematic diagram of three-dimensional calculation domain.

Fig. 4. Initial packed bed structures derived by convergence calculation of processes. Gray and dark particles denote coke and ore. (a: whole images. b: classification of particle arrangement.)

みられる。層間の空隙率低下と粒径の影響が (5) 式における β_i を増大させる。この効果によって Case B の方が圧力損失量が大きくなる。一方で、圧力分布は層構造の影響をあまり受けない。Fig. 6 に Case A の縦断面における速度ベクトル図を粒径分布と並べて示す。ここで、粒径は充填層内セルの体面積平均径である⁴⁸⁾。空隙率と粒径分布の影響によって、壁面付近の流速はコークス層から鉱石層への境界で最大となり、中心付近の流速は鉱石層からコークス層への境界で最大となる。結果として、層を通過する気相の進行方向はジグザグになっている。

4・2 粒子配置の温度分布への影響

全粒子の各熱移動量について時間変化を Fig. 7 に示す。それぞれ粒子一個当たりの平均値であり、寄与の大きさを比較するために絶対値で示した。本条件は、1273K の温度域であり、対流伝熱よりも放射伝熱、反応熱量の方が大きい。コークスの反応熱は一個当たりの値なので、粒子数は少ないが粒径が大きいので焼結鉱の反応熱より大きい。Hematite の還元反応による発熱量は大きい、還元は進行とともに低下する。放射伝熱量は、初期は温度勾配から大きい、時間とともに減少する。ここで、本条件では反応熱が支配的であることから、絶対値は小さいが 1273K 付近の充填粒子層の温度は粒子単位では均一にならないと考えられる。Case B は Case A と比較して、放射伝熱量が大きい。発熱反応の鉱石と吸熱反応のコークスの混合配置により、周囲粒子との温度勾配が大きいためと考えられる。接触伝熱の寄与は Case B の方がやや大きい、絶対値は無視できる程度に小さい。充填層内の粒子温度分布を Fig. 8 に示す。 $t = 10800$ s においては、全粒子が流入気相温度以上となっている。Case A においては、鉱石の発熱とコークスの吸熱が同時に発生し、層境界で主に流れ方向への熱伝達が顕著に表

Fig. 5. Void fraction, velocity, and pressure in the gas-phase distributions. ($t=3600$ s)

Fig. 7. Various factors contributing to heating rate for all particles. (Inflow gaseous phase temperature is 1273K)

れている。同じ鉱石層の上部の温度が高く、コークス層は下部の温度が高い。Case B においては粒子単位で点する温度変化がみられる。前述の粒子周囲状況によって不均一性が強くなると考えられる。また、いずれの場合も充填層下部の方が高さ方向への伝熱量が大きい、これは下部ほど温度勾配が大きいためであると考えられる。このように、粒子配置によって局所的な温度のむらが生じることで、溶融・凝固が生じれば流れの停滞の原因になる可能性がある。

4・3 粒子配置と物質移動

CO 分率分布の時間変化を Fig. 9 に示す。Case A の場合、還元反応とソリューションロス反応の繰り返しによって、

Fig. 6. Velocity vector distribution in the gas phase that passes the vertical cross section of the particle bed for Case A. ($\theta = \pi/2$, $t = 3600s$)

Fig. 8. Temporal change in the temperature distributions of the solid phase.

Fig. 9. Temporal change in the CO volume fraction distributions in the gas phases.

Fig. 11. Influence of particle structure on ore reduction rate when $t = 10800s$. Coke particles are indicated by blue color.

Fig. 12. Reduction degree distribution in the vicinity of the coke-ore layer interface in the vertical cross section for Case A. ($\theta = \pi/2$, $t = 10800s$)

Fig. 13. Reduction degree distribution in the vertical cross section for Case B. ($\theta = \pi/2$, $t = 10800s$)

CO分率は増減を繰り返しながら上部に向かって低下する。各層境界においては分子拡散と反応が共存した組成変化が生じている。 $t=1800\text{s}$ では充填構造の影響が顕著だが、鉱石粒子が還元されるにつれ還元速度は低下するので、時間経過によりCO分率は全体に高く、均一化される。Case BにおけるCO分率は、高さ方向には単調減少に近いが、周・径方向に対して空間的不均一性がみられ、粒子配置による反応速度変化が無視できない。また、いずれの条件も壁面近傍でCO分率は全体に高い。これは、空隙率つまり単位体積内に気相の占める割合が大きく、流速の増大による影響で充填層内における気相の滞留時間が短縮されるためと考えられる。高さ方向のCO分率の変化をFig.10に示す。Case Aの場合、層構造を反映して径方向でCO分率の増減に差が生じている。一方、Case Bでは粒子配置による不均一性は見られるが、全体としてCO分率の減少の傾きは同じである。 $r=2.0\text{m}$ においては、いずれも壁面の影響でCO分率が高いが、Case Bの方が同じ高さでやや高い値となる。これはCase Bの方が、充填層内通気抵抗が高いため、より壁面付近に流れが集中するからであると考えられる。

次に、 $t=10800\text{s}$ における粒子単位の空間精度での鉱石還元率分布をFig.11に示す。コークス粒子はすべて青色で示した。鉱石粒子の反応率は、流速と初期温度の影響を受け、下部と壁面近傍で大きい。Case Bでは、壁近傍を除けば、還元反応の進行は径、周方向で一様である。下部ほど、壁面付近の反応速度が顕著に上昇する。これは、反応速度に対する流速の寄与が大きいことを示していると考えられる。このことは層状配置の方がより顕著に表れている。以上より、充填層内の物質移動における壁面効果はかなり大きいことがわかる。Tsujiらは壁面付近粒子周りの流れ構造が、粒子群を局所相平均するメソスコピックモデル以下のスケールで存在することを示している⁴⁹⁾。充填層に対して連続体近似を適用する場合、従来のコークス層と鉱石層条件⁵⁰⁾以外にも、それらの境界および壁面付近に対して、そ

れぞれ条件を与える必要があることが明らかである。

Case Aにおける還元率の詳細な分布を検討するために、充填層中部縦断面の一部拡大図をFig.12に示す。流れ構造の影響から、高さ方向上部ほど、また径方向に壁方向ほど還元率は高い。この領域では、Fig.6に示した流速の大きさに比例して還元が進行している。しかし、鉱石層内は均一でなく所々高い反応率粒子が点在する。このむらは、粒子単位の温度、粒子配置による気相の流速変化が相互に影響しあうため生じると考えられる。一方、コークス層へ侵入した鉱石の還元率はそれほど高くなく、ソリューションロス反応によるCO分率増加の効果による還元性向上の効果は小さいと考えられる。同様にCase BについてもFig.13に示す。ここでは明らかに粒子の反応率不均一性が存在する。よりCase Bの方が顕在化する原因として、局所的な空隙率変化により流速変化が大きいこと、また粒子の温度分布が大きいことなどが考えられる。いずれも粒子配置がもたらす効果であると考えられる。近年、高反応性コークスと鉱石の混合配置による還元速度向上が検討されているが、還元性に対する混合配置の効果は、通気性と化学反応速度の両側面を同時に評価するべきであると思われる。

5. 結言

充填層における粒子単位の熱物質移動現象解析を行った。コークスおよび鉄鉱石の伝熱と反応を伴う充填層解析を行うために、粒子単位での構成方程式を適用した。これにより粒子単位の不連続な熱物質移動現象解析を可能とした。

本モデルを用いて、粒子の配置を変化させた場合における流れ構造、温度、組成分布の変化を検討した。充填層の特徴として、壁面付近において粒子の配列効果から空隙率が高くなり、流速が増加する。また、層状構造では層間の粒子浸透によって混合層が形成される。混合層における低い空隙率が流れを妨げ、また層状配置では流体の進行方向はジグザグに変化する。層境界では、各伝熱と鉱石の発熱とコークスの吸熱が同時に発生するという熱伝達形態をとり、同じ層内でも温度分布が生じる。すなわち充填層を局所相平均して連続体近似を適用する場合、従来の連続体モデルのコークス層と鉱石層の条件以外に、それらの境界と壁面付近に特性の異なる領域が生成する。また、コークス層へ混合された鉱石は、CO分率増加の効果による還元性向上が期待されたが、本計算においてはその効果は小さく、むしろ通気性を向上させた場合の還元性向上の方が大きい。

記号

Nomenclature :

A_p : 粒子表面積 [m^2], a_{ij} : 多界面未反応核モデルの速度関数 [$\text{m}^2\cdot\text{Pa}\cdot\text{kmol}/\text{kJ}$], C_D : 流体抗力係数 [—], C_i : 物質 i の mol 濃度 [kmol/m^3], C_p : 定圧比熱容量 [$\text{kJ}/(\text{kg}\cdot\text{K})$], $\Delta C_{p,l}$: 反応式 l の反

Fig. 10. CO volume fraction distribution at each radial position along the vertical axis. ($\theta = \pi/2$, $t = 3600\text{s}$)

応物と生成物の熱容量差分 [kJ/kg·K], $D_{e,i}$: 物質 i の粒子内拡散係数 ($=3.0 \times 10^{-4}$) [m²/s], d_p : 粒子直径 [m], E_p : 粒子の Young 率 [GPa], F_b : 浮力 [N], F_c : 粒子間接触力 [N], F_{cs} : 剪断方向接触力 [N], F_f : 粒子-流体間相互作用力 [N], F_g : 重力 [N], F_r : 回転抵抗力 [N], g : 重力加速度 [m/s²], $\Delta H_{R,l}$: 反応式 l の反応熱 [kJ/kmol], $\Delta H_{298K,l}$: 反応式 l の 298K における反応熱 [kJ/kmol], h_p : 粒子流体間熱伝達率 [kW/(m²·K)], I_p : 粒子慣性モーメント [kg·m²], $K_{i,c}$: 気相 i と固相 c の平衡定数 [—], $K_{e,l}$: 反応式 l の平衡定数 [—], $k_{c,l}$: 反応式 l の化学反応速度係数 [m/s], k_d : 物質移動係数 [m/s], k_m : 総括反応速度係数 [m/s], $k_{f,l}$: Langmuir-Hinshelwood 機構の速度パラメータ ($j=1$ のとき反応速度定数 [kmol/kg·s·Pa], $j \neq 1$ のとき吸着平衡定数 [1/Pa]), l : 反応式番号 [—], M_i : 物質 i の分子量 [kg/kmol], m : 適用する多界面未反応核モデルの界面数 [—], m_p : 粒子質量 [kg], N_c : 接触粒子数 [—], N_g : 全気相組成数 [—], N_s : 全固相組成数 [—], N_f : セル内粒子数 [—], n_c : 粒子 1 個中の組成 c の分子数 [kmol], n_r : 全反応式数 [—], p_g : 流体圧力 [Pa], p_i : 気相組成 i の分圧 [Pa], Q_{cd} : 接触面近傍の気相を介しての伝導伝熱量 [kJ/s], Q_{ct} : 粒子間接触伝熱量 [kJ/s], Q_{cond} : 粒子間伝熱量 [kJ/s], Q_{conv} : 粒子-流体間伝熱量 [kJ/s], Q_p : 固気間交換伝熱量 [kJ/s], Q_{rad} : 粒子層内放射伝熱量 [kJ/s], Q_{reac} : 反応熱量 [kJ/s], R_c : 酸化鉄組成 c の還元率 [—], R_g : 気体定数 ($=8.314$) [kJ/K·kmol], R_l : 反応式 l の反応速度 [kmol/s], R_f : 粒子の総括還元率 [—], r_c : 粒子間接触半径 [m], r_p : 粒子半径 [m], $S_{g,i}$: 気相組成 i の生成速度 [kg/s], $S_{s,i}$: 固相組成 i の生成速度 [kg/s], T_g : 流体温度 [K], T_b : 検査体積内の粒子層平均温度 [K], T_m : 固気平均温度 [K], T_p : 粒子温度 [K], t : 時間 [s], u_g : 流体速度 [m/s], V_c : セル体積 [m³], v_p : 粒子速度 [m/s]

Greek symbols :

β_e : 体膨張係数 [1/K], β_h : 固気熱量交換係数 [kJ/(K·s)], β_i : 固気間運動量交換係数 [kg/(m³·s)], $\Gamma_{g,i}$: 気相組成 i の混合気体内拡散係数 [m²/s], ε : 空隙率 [—], η_e : 触媒有効係数 [—], λ_g : 流体の熱伝導率 [kW/(m·K)], λ_p : 粒子の熱伝導率 [kW/(m·K)], μ_g : 流体粘性係数 [Pa·s], ν_c : 酸化鉄組成 c の化学量論係数 [—], $\nu_{i,l}$: 反応式 l における物質 i の化学量論係数 [—], ν_p : 粒子の Poisson 比 [—], ρ_g : 流体密度 [kg/m³], σ_{SB} : Stefan-Boltzmann 定数 ($=5.670 \times 10^{-11}$) [kW·m⁻²·K⁻⁴], ϕ_{ij} : 粒子放射率 [—], $\psi_{s,i}$: 固相組成 i の質量分率 [—], $\psi_{g,i}$: 気相組成 i の質量分率 [—], ω_p : 粒子角速度 [1/s]

Dimensionless number :

Nu: Nusselt 数, Pr: Prandtl 数, Re: 粒子 Reynolds 数, Sc: Schmidt 数, Sh: Sherwood 数, ϕ_c : Thiele 数

本研究の遂行にあたって、数値解析に日本学術振興会科学研究費補助金の援助を得た。また、解析プログラムの検証に東北大学大学院修士学生齋藤諒君と柴崎亮君の協力を得た。記して謝意を表します。

文 献

- 1) S.Ueda, S.Natsui, H.Nogami, J.Yagi and T.Ariyama: *ISIJ Int.*, **50**(2010), 914.
- 2) S.Natsui, S.Ueda, H.Nogami, J.Kano, R.Inoue and T.Ariyama: *ISIJ Int.*, **51**(2011), 1410.
- 3) H.Nogami, H.Yamaoka and K.Takatani: *ISIJ Int.*, **44**(2004), 2150.
- 4) H.Nogami, M.Chu and J.Yagi: *Comput. Chem. Eng.*, **29**(2005), 2438.
- 5) K.Takatani, T.Inada and K.Takata: *ISIJ Int.*, **41**(2001), 1139.
- 6) T.Iribe, T.Fujisawa and S.Koshizuka: *Trans. JSCES*, 2008, (2008), 20.
- 7) T.Tsuji, K.Nakamura, K.Yabumoto and T.Tanaka: *J. Soc. Powder Technol. Jpn.*, **44**(2007), 173.
- 8) H.Ohki and N.Takeuchi: *Trans. JSCES*, 2006, (2006) 20.
- 9) S.Natsui, H.Nogami, S.Ueda, J.Kano, R.Inoue and T.Ariyama: *ISIJ Int.*, **51**(2011), 41.
- 10) P.R.Austin, H.Nogami and J.Yagi: *ISIJ Int.*, **37**(1997), 458.
- 11) P.R.Austin, H.Nogami and J.Yagi: *ISIJ Int.*, **37**(1997), 748.
- 12) S.Natsui, H.Nogami, S.Ueda, J.Kano, R.Inoue and T.Ariyama: *CAMP-ISIJ*, **24**(2011), 188, CD-ROM.
- 13) D.Rong and M.Horio: 2nd International Conference on CFD in the Minerals and Process Industries (CSIRO), Melbourne, (1999), 65.
- 14) K.Kuwagi, H.Hirno and T.Takami: *Jpn. J. Heat and Mass Transfer*, **1**(2007), 49.
- 15) Y.Kaneko, T.Shiojima and M.Horio: *Chem. Eng. Sci.*, **54**(1999), 5809.
- 16) P.A.Cundall and O.D.L.Strack: *Geotechnique*, **29**(1979), 47.
- 17) S.V.Patankar: "Numerical heat transfer and fluid flow", McGraw-Hill, New York, (1980).
- 18) 混相流ハンドブック, 日本混相流学会編, 朝倉書店, 東京, (2004), 49.
- 19) Y.Tsuji, T.Kawaguchi and T.Tanaka: *Powder Technol.*, **77**(1993), 79.
- 20) S.Ergun: *Chem. Eng. Prog.*, **48**(1952), 89.
- 21) C.Y.Wen and Y.H.Yu: *Chem. Eng. Prog. Symp. Series*, **62** (1966), 100.
- 22) T.Sakurai, T.Minami, T.Kawaguchi, T.Tsuji, T.Tanaka and Y.Tsuji: *Trans. Jpn. Soc. Mech. Eng. Ser. B*, **75**(2009), 1041.
- 23) W.L.Vargas and J.J.McCarthy: *Int. J. Heat Mass Transfer*, **45**(2002), 4847.
- 24) H.Zhou, G.Flamant and D.Gauthier: *Chem. Eng. Sci.*, **59**(2004), 4193; 4205.
- 25) N.Wakao, S.Kaguei and T.Funazkri: *Chem. Eng. Sci.*, **34**(1979), 325.
- 26) W.E.Ranz and W.R.Marshall, Jr.: *Chem. Eng. Prog.*, **48**(1952), 141; 173.
- 27) 伊藤久久: 熱力学, 八千代出版, 東京, (2000), 1; 45.
- 28) 伊藤久久: 速度論, 八千代出版, 東京, (2003), 43.
- 29) H.Nogami, T.Yamamoto and K.Miyagawa: *Tetsu-to-Hagané*, **96**(2010), 319.
- 30) 橋本健治: 反応工学, 改訂版, 培風館, 東京, (1993), 224.
- 31) N.Wakao and T.Funazkri: *Chem. Eng. Sci.*, **33**(1978), 1375.
- 32) T.Usui, M.Naito, T.Murayama and Z.Morita: *Tetsu-to-Hagané*, **80**(1994), 431.
- 33) M.A.Field, D.W.Gill, B.B.Morgan and P.G.W.Hawksley: BCURA Leatherhead, Chenery & Sons Ltd, U.K., (1967).
- 34) S.Kobayashi and Y.Omori: *Tetsu-to-Hagané*, **63**(1977), 1081.
- 35) N.Miyasaka and S.Kondo: *Tetsu-to-Hagané*, **54**(1968), 1427.
- 36) R.H.Spitzer, F.S.Manning and W.O.Philbrook: *Transaction of the Metallurgical Society of AIME*, **236**(1966), 1715.
- 37) Y.Hara, M.Sakawa and S.Kondo: *Tetsu-to-Hagané*, **62**(1976), 315.
- 38) R.Takahashi, Y.Takahashi, J.Yagi and Y.Omori: *Ironmaking Conf. Proc.*, **43**(1983), 485.
- 39) O.Kubaschewski and C.B.Alcock: "Metallurgical thermochemistry", 5th ed., Pergamon, (1979).
- 40) R.B.Bird, W.E.Stewart and E.N.Lightfoot: "Transport Phenomena", 2nd ed., John Wiley & Sons, New York, (2006), 23; 274; 525; 866.
- 41) B.E.Poling, J.M.Prausnitz and J.P.O'Connell: "The Properties of Gases and Liquids", 5th ed., McGraw-Hill, New York, (2000), 11.6; B.1.
- 42) C.R.Wilke: *J. Chem. Phys.*, **18**(1950), 517.
- 43) 燃焼流・希薄流・混相流・電磁流体の解析, 数値流体力学編集委員会編: 東京大学出版会, 東京, (1995), 4.
- 44) 鉄鋼物性値便覧製鉄編, 日本鉄鋼協会, 東京, (2006), 60.
- 45) H.Hayashizaki, K.Ueoka, T.Ogata, Y.Yamazaki, Y.Matsushita, H.Aoki, T.Miura, K.Fukuda and K.Matsudaira: *Tetsu-to-Hagané*, **95**(2009), 460.
- 46) H.Mio, A.Shimosaka, Y.Shirakawa and J.Hidaka: *Advanced Powder Technol.*, **18**(2007), 441.
- 47) 牛島省: OpenMP による並列プログラミングと数値計算法, 丸善, 東京, (2006), 11.
- 48) T.Kawaguchi, A.Doi, T.Tanaka and Y.Tsuji: *Progress in Multiphase Flow Research*, **1**(2006), 87.
- 49) T.Tsuji, E.Narita and T.Tanaka: *J. Soc. Powder Technol. Jap.*, **48**(2011), 847.
- 50) M.Kuwabara and I.Muchi: *Tetsu-to-Hagané*, **61**(1975), 787.