

粒子法を用いた金属精錬プロセスの解析

伊藤 公久*

1. はじめに

鉄鋼・非鉄金属製造における金属精錬プロセスを取り上げてみても、それらは長い歴史と様々な技術の積み重ねの上に築かれたものであるため、現行プロセスのさらなる改良や革新的プロセスの開発は、非常に困難な仕事であるように思われる。しかし、原材料の多様化やCO₂排出量削減、省エネルギー、副生物の利材化といった様々な要求に対して、迅速に対応できる技術開発の重要性が増しているのもまた事実であり、金属精錬に携わる技術者・研究者は、あらゆる手法を駆使してこの問題に立ち向かわなくてはならない。

金属精錬プロセスにおける精錬反応の解析と制御を行うためには、まず精錬反応の最終到達目標の値を熱力学計算によって求めるのが一般的であり、多くの先人の努力と研究によって、十分に確立された手法となっている。一方、各時刻における精錬反応の経過は、速度論を用いることによって記述することができる。多くの場合、金属精錬炉内の状況を連続的に観察・測定することはできないので、実際には適当なモデル化を行って速度論的解析が行われる。速度論のモデルに用いる輸送係数や反応速度定数は、実験・計算によって与えることができるが、最大の問題は、炉内における各相の動きや接触状況、特に反応界面積の正確な見積もりが非常に困難なことである。金属精錬プロセスのような高温系では実験上の問題もあり、コールドモデルが利用されることが多いが、表面張力の大きな熔融金属が介在する系における界面積を十分に推定できてはいない。計算機能力の向上と相まって著しく発達してきた計算流体力学(CFD)は、この問題を解決するための強力な手段となり得るものと期待できる。

精錬炉内では、気・液・固の異なる相が大きく変形しながらその接触状況を変化させているため、従来の格子法を用いた計算では、数多くの困難が伴ってきた。これに対して、近年発達してきた粒子法 (particle method) は、界面の大変形を伴う流れを比較的容易に扱うことができるという特徴を持っているので、精錬反応の解析に応用できる有望な手法とい

うことができる。

本稿では、高温における気体-液体-固体間の精錬反応解析のために重要となる、異相間界面の記述を中心に、金属精錬プロセス解析における粒子法応用の可能性について述べてみたいと思う。なお、鉄鋼精錬解析への具体的な応用については筆者による解説⁽¹⁾を参照されたい。

2. 各種の粒子法について

ここでは、精錬プロセス解析に用いられている様々な粒子法について、SPH法を中心に、簡単にその概要と特徴を解説する。

(1) MPS法

近年広く用いられている代表的な粒子法であるMPS (Moving Particle Semi-implicit)法は、越塚ら⁽²⁾⁽³⁾によって提案された計算法であり、非圧縮性流体を対象としている。

流体計算の基礎式は、式(1)で表されるNavier-Stokes方程式であり、右辺第1項は圧力項、第2項が粘性項、第3項が外力項である。外力項には、重力加速度や表面張力、界面張力などが入る。

$$\frac{Du}{Dt} = -\frac{1}{\rho}\nabla P + \frac{\mu}{\rho}\nabla^2 u + F \quad (1)$$

なおここで、 u 、 ρ 、 P 、 μ 、 F は、それぞれ速度、密度、圧力、粘性係数、外力を表している。

MPS法の詳細については、別の文献⁽²⁾⁻⁽⁴⁾を参照していただきたいが、特徴として以下の4点を挙げておく。

①圧縮性流体を対象としている。②式(1)中の微分演算子に対して、独自の粒子間相互作用モデルを用いている。③その名が示す通り、半陰解法を用いている。

(2) SPH法

SPH (Smoothed Particle Hydrodynamics)法は、当初宇宙物理学分野で開発された計算法⁽⁵⁾⁽⁶⁾であり、圧縮性流体に対応したシミュレーション手法である。空間内の位置 x に評価

* 早稲田大学教授；基幹理工学部応用数理学科(〒169-8555 東京都新宿区大久保3-4-1)
Analysis of Metal Refining Processes by Using a Particle Method; Kimihisa Itoh (Department of Applied Mathematics, School of Fundamental Science and Engineering, Waseda University, Tokyo)
Keywords: metal refining, rate process, particle method, SPH method, SPAM method, CFD, interfacial tension, reaction interface
2015年5月11日受理[doi:10.2320/materia.54.436]

点(ここでは粒子とよぶ)を考えたとき、粒子位置における物理量 $f(x)$ は式(2)で書くことができる。

$$f(x) = \int f(x') \delta(x-x') dx' \quad (2)$$

ここで $\delta(x)$ はデルタ関数である。

粒子を中心とした影響半径 h 内の空間中に物理量が連続的に分布していると考え、その分布関数をカーネル関数 W と呼ぶ。カーネル関数は、①極限がデルタ関数である、②規格化されている、③影響半径 h の外では0である、という3つの条件を満たす必要があり、様々な種類の関数が提案されているが、代表的なものとして式(3)で与えられる Lucy型⁽⁵⁾のカーネル関数が広く使われている。ここで r は粒子からの距離である。

$$W(r, h) = \frac{5}{\pi h^2} \left(1 + 3\frac{r}{h}\right) \left(1 - \frac{r}{h}\right)^3 \quad (3)$$

カーネル関数 W を用いて、粒子位置で物理量 $f(x)$ を離散化すると、近似式(4)が得られる。

$$f(x) = \int f(x') W(x-x', h) dx' \cong \sum_{j=1}^N f(x_j) \frac{m_j}{\rho_j} W(x-x_j, h) \quad (4)$$

ここで x_j は、 j 番目の粒子位置であり、 h はカーネルの影響半径、 m_j と ρ_j は、それぞれ j 番目の粒子位置における質量と密度である。

さらに、式(4)の勾配を求めることによって、物理量 $f(x)$ の勾配を式(5)で近似することができる。

$$\nabla f(x) \cong - \sum_{j=1}^N f(x_j) \frac{m_j}{\rho_j} \nabla W(x-x_j, h) \quad (5)$$

SPH法では、MPS法と異なり、スカラー関数の勾配を求めるには、カーネル関数の微分を行うだけでよいことが、式(5)から理解できる。

SPH法においては、空間は粒子によって離散化されているが、粒子位置で指定された物理量はカーネルによって影響半径内の空間に滑らかに分布しているので、それらを重ね合わせて得られる物理量 $f(x)$ は連続体の物理量になっている。したがって前述したようにSPH法における粒子は、実体のある流体粒子ではなく、評価点にすぎないことに注意が必要である。

SPH法は元来、圧縮性流体に対応したシミュレーション手法であるが、非圧縮性流体への適用が Monaghan ら⁽⁷⁾によって提唱されている。これは密度変化に対して強い圧力変化をさせる状態方程式を導入することによって、疑似的な非圧縮性流体として数値解析を行うものである。SPH法は陽解法であるため、同じ計算機的能力であれば、MPS法に比べて計算速度が大きいという利点を持っている。

(3) SPAM法

Hoover らはより一般性と自由度の高い運動方程式を提唱し、この手法が流体と固体の複雑な力学的変形に応用できることを示して、SPAM (Smoothed Particle Applied Mechanics) と名付けた⁽⁸⁾⁽⁹⁾。SPAM法では、SPH法と同

様、カーネル関数(重み関数)を用いた計算を行うが、ラグランジュ形式の連続体力学の問題を解くことを目的としているため、一般化された運動方程式(6)が与えられている。

$$\begin{aligned} \frac{du_i}{dt} &= m \sum_{j=1}^N \left[\left(\frac{\sigma}{\rho^2} \right)_i + \left(\frac{\sigma}{\rho^2} \right)_j \right] \cdot \nabla_i W(x_i - x_j, h) \\ &= -m \sum_{j=1}^N \left[\left(\frac{P}{\rho^2} \right)_i + \left(\frac{P}{\rho^2} \right)_j \right] \cdot \nabla_i W(x_i - x_j, h) \end{aligned} \quad (6)$$

式(6)は、第 i 番目の粒子の速度変化が、影響半径内にあるすべての粒子(j)からの力を含んだ運動方程式で表されることを示している。なお、添え字 i, j はそれぞれ粒子 i, j を表し、 σ は応力テンソル、 P は圧力テンソル($\sigma = -P$)である。基礎方程式として Navier-Stokes 方程式(1)を選択すれば、SPH法に帰着するが、例えば流体の粘性の記述に別の物理モデルを採用することができれば、ラプラシアン(2)の計算を必要としないシミュレーションも可能である。また、表面張力や界面張力は2体間ポテンシャルに組み込む形で表現することができる⁽⁹⁾。

3. 精錬プロセス解析への応用例

(1) 溶融鉄浴へのメタル、スラグの流下

スラグ-メタル間反応解析のための界面積評価の試みとして、MPS法を用いた溶融スラグの溶鉄への衝突シミュレーションを2次元で行った⁽¹⁰⁾。水槽に水および油を流下・衝突させるシミュレーションでは、水モデル実験と良い一致を示すことができたので、溶鉄-スラグの各物性値を用いてシミュレーションを実行した。

1873 Kにおいて溶鉄浴に高炉スラグおよび転炉スラグを流入させた場合のスラグ-メタル界面形状の変化を計算したところ、流入速度の増加に伴って進入距離は増大し、転炉スラグの侵入距離が高炉スラグの約1.5倍程度になることが明らかとなった。また転炉スラグの場合、スラグ-メタル間の界面積は、流入速度が0.5 m/sから0.9 m/sまで増大にしたがって、静的なスラグ-メタル界面の1.2倍から1.6倍まで増加することが予想された。

(2) 溶融鉄浴へのCaO粒子の打ち込み

溶融金属中への粉体吹込み技術は、鉄鋼分野では溶銑処理、底吹転炉、二次精錬で、また非鉄分野ではMIプロセスで実用化され、関連する研究も数多く報告されている。しかし基礎研究のほとんどが水モデルを用いているため、濡れ性の乏しい粒子が表面張力の大きな溶融金属中へ侵入する際の挙動に関する知見はほとんど得られていない。そこで、固体粒子が溶融金属に侵入する様子をSPH法によるシミュレーションを用いて推定した⁽¹¹⁾⁻⁽¹³⁾。

粒子侵入のシミュレーションにおいては、固体-溶鉄間の界面張力の評価が重要となる。界面を連続体と考えた場合には、界面の曲率と各位置における法線ベクトルとを求め、界面(表面)張力によって流体に与えられる力を計算する方法を

取る。しかし、乱れた界面や粒子数が少ない場合には代表点の数が十分ではないために、計算が破綻してしまう。

次の式(7)は、よく知られているヤングの式であり、 γ_{ls} は液体-固体間、 γ_{gs} は気体-固体間、 γ_{gl} は気体-液体間の界面張力、 θ は接触角である。

$$\gamma_{ls} - \gamma_{gs} + \gamma_{gl} \cos \theta = 0 \quad (7)$$

しばしば式(7)を水平方向の力の釣り合いで説明している例を見かけるが、式(7)は界面張力を界面自由エネルギーと考えて、熱力学的平衡条件から導出されるものである⁽¹⁴⁾。三重点における力の釣り合いを考えた場合には、鉛直方向の力は釣り合っていないように見える。実は鉛直方向の成分 $\gamma_{gs} \sin \theta$ は、固体表面の局所における大きな応力と釣り合っていると考えられる⁽¹⁵⁾が、そのことに触れられている場合は少ない。

上述の議論に立てば、液体粒子に働く力を記述するためには、表面張力といったマクロな物理量を用いるよりも、個々の粒子間の力を考慮したモデルを用いるのが適切であると考えられる。粒子法において界面張力を扱ったモデルは数多く報告されている⁽¹⁶⁾⁻⁽¹⁹⁾が、MPS法において、粒子間ポテンシャルを用いたモデルがいくつか報告されている⁽¹⁸⁾⁽¹⁹⁾。これらのモデルを参考にして、スケールの変化によらず正確に引力と斥力を表現するために、無次元距離 $q (= \frac{r}{h})$ の関数としてポテンシャル $\varphi(q)$ を、式(8)で定義した⁽¹³⁾。

$$\varphi(q) = C \left(\frac{q^3}{3} - \frac{(h+d)q^2}{2h} + \frac{d}{h}q \right) \quad (8)$$

式(9)によって求められた界面張力 F_{inter} を支配方程式である Navier-Stokes 方程式(1)の外力項に加えることで、シミュレーションを行うことができる。

$$F_{inter} = \frac{1}{2} (\cos \theta + 1) \cdot \Sigma \varphi(q)' \cdot \frac{\vec{r}}{|r|} \quad (9)$$

なおここで、 θ は接触角、 d は初期に配置された粒子(代表点)間距離、 C はポテンシャル係数であり、 $\varphi(q)'$ はポテンシャルの微分、 \vec{r} はベクトルを表している。

この界面張力モデルを用いて、粒子初速度 18 m/s で、直径 $d_p = 2.0$ mm のポリスチレン球 ($\theta = 91^\circ$, $\rho = 0.974$ g/cm³) を水槽に打ち込んだ際の 3次元シミュレーションの結果を図1に示す。衝突時のキャビティー生成やその後の気泡の侵入挙動など、実際の水モデル実験⁽²⁰⁾と非常に良い一致を示した。

同様の界面張力モデルを用いて、溶鉄浴への CaO 粒子の打ち込みの 2次元シミュレーションを行った。初速度 10 m/s で、直径 1 cm の CaO 粒子 ($\theta = 110^\circ$, $\rho = 3.34$ g/cm³) を打ち込んだ場合には、衝突によって直径約 4.4 cm のキャビティーが生じ、最大侵入深さは約 2.2 cm と計算された。一方、紛体吹込みを模擬し、直径 2.0 mm の CaO 粒子複数個を初速度 20 m/s で打ち込んだ場合の計算結果を図2に示す。粒子直径が減少した結果、初速度が2倍になっても、CaO 粒子はほぼその直径程度しか溶融鉄中に侵入しないという結果が得られた。

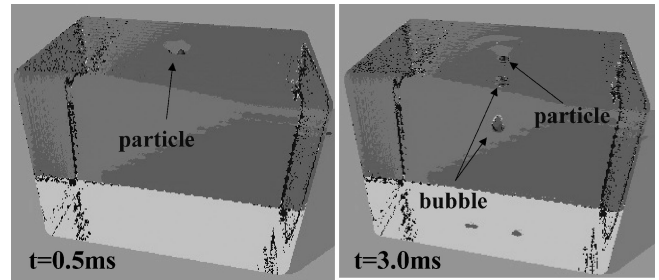


図1 水浴に打ち込まれたポリスチレン球の3次元シミュレーション(初速度 18 m/s, 粒子直径=2.0 mm, 粒子密度 0.974 g/cm³, 接触角91°).

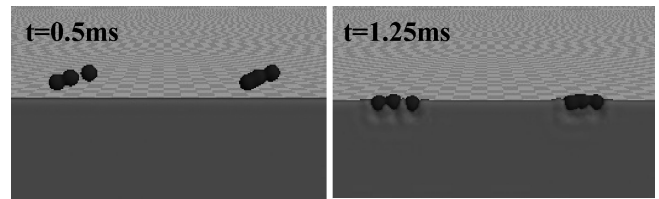


図2 溶鉄浴に打ち込まれた CaO 粒子の2次元シミュレーション(初速度 20 m/s, 粒子直径 2.0 mm, 粒子密度 3.34 g/cm³, 接触角110°).

(3) スラゲーメタルの混合

スラゲーメタル反応の解析においては、2相間の界面の挙動を時間の関数として記述し、その面積を算出することが最も重要である。このためには、界面近くに存在するスラグ粒子-メタル粒子間に働く力を正確に記述し、それを運動方程式に組み込むことが必要となる。そこで、界面近くで相互作用するスラゲーメタル両相の粒子に対して、前述した SPAM 運動方程式(6)を用い、それ以外の同種の液体粒子間の計算に関しては、Navier-Stokes 方程式(1)を用いたハイブリッドモデルの構築を試みた。このモデルを用いて、スラゲーメタル系を模した油-水2相系についてのシミュレーションを行った⁽²¹⁾。なお、油-水粒子間の相互作用力は、Fowkesモデル⁽²²⁾を用いて評価した。計算と同一の条件下での荒木ら⁽²³⁾による実験結果との比較を行ったところ、十分に実験結果を再現できることを確認した。実際のスラゲーメタル系においても、適切な2体間ポテンシャルを設定することで、本モデルの適用が可能となるが、最適なポテンシャルパラメータを導出するためには、高温系における界面張力データの実測が不可欠である。

4. 今後の展望

金属精錬プロセスでは、高速の気流やガスジェットが利用されている場合が多い。たとえば、鉄鋼精錬における転炉プロセスでは、音速を超える酸素ジェットが鋼浴に吹きつけられるため、ガスと浴との相互作用によって生成するキャビティーや液滴の評価が非常に重要である。

粒子法における気液2相流の計算においては、気体と液体の密度が 10^3 のオーダーで異なることに加えて、気体粒子と液体粒子の速度が著しく異なるため、実際に計算を行うことは困難であった。この問題を解決するため、メッシュ法と粒子法とを結合させたハイブリッド粒子法が開発されている⁽²⁴⁾⁽²⁵⁾。また、スラグ、メタル粒子に加えて気体粒子を導入し、ガス流通時の2融体流動をシミュレーションした結果も報告されている⁽²⁶⁾。しかしながら、音速に近い速度のガスジェットと液体の相互作用に関するシミュレーションはまだ十分に達成されてはおらず、今後の発展が期待される。

今までの議論は、ニュートン流体を対象とした計算に関してのものであったが、材料科学一般への応用を考えれば、特にソフトマターを中心に、非ニュートン流体に関する計算が重要になってくるものと思われる。非ニュートン流体に対しても粒子法の応用は幾つか試みられており、特にビンガム流体に関してはSPH法を用いた計算⁽²⁷⁾や、MPS法を用いた津波の解析⁽²⁸⁾などが報告されている。鉄鋼精錬プロセスでは、マルチフェイズフラックスと呼ばれる固液共存スラグの活用によって、高速かつ高効率の精錬が指向されているが、その反応機構の詳細や制御方法については多くの課題が存在している。助永ら⁽²⁹⁾は、マルチフェイズフラックスでは、固相の体積分率30%以上の系において、ビンガム流体の挙動が出現することを報告しており、精錬プロセスの解析においても、非ニュートン流体への粒子法の応用が今後重要になってくるものと思われる。

粒子法は近年目覚ましく発展し、その適用範囲も大きく広がって来た。材料科学の様々な分野において、解析ツールとしての粒子法の活用がさらに進展していくと思われるが、計算法の厳密な数学的裏付けなどの基礎的な問題が今後解明され、その信頼性が高まっていくことを期待している。粒子法のユーザーの一人である我々金属精錬の研究者は、対象となる現象についての正しい物理的・化学的理解を怠らず、慎重に粒子法の適用を進めることが肝要であろう。

最後に、本稿を纏めるに当たり文献収集や図面作成に助力いただいた、早稲田大学大学院生 中野美枝子君並びに坪井真広君に、深く感謝申し上げます。

文 献

- (1) 伊藤公久：ふえらむ, **19**(2014), 809-813.
(2) 越塚誠一：粒子法, 丸善, 東京, (2005).

- (3) 越塚誠一：粒子法シミュレーション, 培風館, 東京, (2008).
(4) 平田直哉：ふえらむ, **19**(2014), 781-787.
(5) L. B. Lucy: *Astronomical Journal*, **82**(1977), 1013-1024.
(6) J. J. Monaghan: *Computer Physics Communication*, **48**(1988), 89-96.
(7) J. J. Monaghan: *Journal of Computational Physics*, **110**(1994), 399-406.
(8) W. G. Hoover and C. G. Hoover: *Computing in Science and Engineering*, **3**(2001), 78-85.
(9) W. G. Hoover：粒子法による力学, 森北出版, 東京, (2008).
(10) M. Asai, H. Nijo and K. Ito: *ISIJ International*, **49**(2009), 178-181.
(11) 森 正樹, 財前航介, 若林貴士, 伊藤公久, 宮田政樹： *CAMP-ISIJ*, **25**(2012), 991.
(12) 栃木隆宏, 藤谷俊祐, 森 正樹, 伊藤公久, 宮田政樹： *CAMP-ISIJ*, **25**(2012), 992.
(13) 中野美枝子, 伊藤公久： *CAMP-ISIJ*, **27**(2014), PS-12.
(14) A. W. Adamson: *Physical Chemistry of Surfaces 5th edition*, John Wiley and Sons, New York, (1990), 385.
(15) J. N. Israelachvili：分子間力と表面力 第3版, 朝倉書店, 東京, (2013), 375.
(16) 石井英二, 杉村泰介： *日本機械学会論文集 B*, **78**(2012), 1710-1725.
(17) 本郷卓也： *日本機械学会東北支部第45期秋季講演会*, (2009), 85.
(18) M. Kondo, S. Koshizuka and M. Takimoto: *Transaction of JSCES*, paper number 20070028, (2007).
(19) S. Natui, R. Soda, T. Kon, S. Ueda, J. Kano, R. Inoue and T. Ariyama: *Mater. Trans.*, **53**(2012), 662-670.
(20) J. G. Lee and M. Tokuda: *Trans. ISIJ*, **28**(1988), 278-287.
(21) 財前航介, 伊藤公久： *CAMP-ISIJ*, **26**(2013), PS-5.
(22) F. M. Fowkes: *Ind. Eng. Chem.*, **56**(1964), 40-52.
(23) 荒木 健, 越村俊一： *土木学会論文集 B2*, **66**(2010), 66-70.
(24) 石井英二, 石川 亨, 田辺好之： *Thermal Science & Engineering*, **14**(2006), 51-59.
(25) 田中伸厚, 西村 健, 渡辺史紀, 森 治嗣： *日本機械学会論文集 B*, **76**(2010), 124-126.
(26) S. Natsui, H. Takai, T. Kumagai, T. Kikuchi and R. Suzuki: *Mater. Trans.*, **55**(2014), 1707-1715.
(27) T. Capone, A. Panizzo and J. J. Monaghan: *Journal of Hydraulic Research*, **48**(2010), 80-84.
(28) 五十里洋行, 後藤仁志, 新井智之： *土木学会論文集 B2*, **68**(2012), I_066-I_070.
(29) 助永壮平, 春木慎一郎, 山岡由宗, 齊藤敬高, 中島邦彦： *鉄と鋼*, **95**(2009), 807-812.



伊藤公久

★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★
1983年3月 東京大学大学院工学系研究科金属工学専攻 博士課程修了
1983年4月 東北大学選鉱製錬研究所 助手
1991年4月 早稲田大学理工学部材料工学科 助教授
1996年4月 早稲田大学理工学部物質開発工学科 教授
2007年4月 現職
専門分野：高温物理化学, 数理物質工学
◎日本刀のデジタルアーカイブや古代製鉄法の研究も
行っています。
★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★★