



技術解説

インジェクション・メタラジイ

原 茂 太*

I. 緒 言

乾式冶金プロセスの特徴は、単位容積当たりの高い生産性にある。この特徴を最大限にまで引き出す精錬技術が反応性の有る固体粒子やガスを金属浴に吹き込む、いわゆる、インジェクション・メタラジイ (Injection Metallurgy) である。ここでは、主として鉄鋼精錬過程で今日広く採用されるようになってきた、粉体吹き込み技術を利用した精錬プロセスの基礎と応用について概説する。

II. 高炉一転炉による鉄鋼製造プロセス

現在の高炉一転炉による鉄鋼製造プロセスでは、高炉において鉄鉱石を還元し、まず炭素、珪素、マンガン、硫黄、燐などを含む銑鉄を製造し、これを精錬炉である転炉に移して不純成分である珪素、硫黄、燐等を除去すると共に、脱炭して鋼としている。

このプロセスでは、銑鉄にふくまれる珪素は転炉において酸化されて酸性酸化物である珪酸となる。珪酸の存在は転炉において硫黄や燐（これは酸化されて燐酸となる）をスラグ中に固定するに必要な塩基性成分（主として石灰）

の精錬能力を減ずる。そこで、製鋼スラグに十分な精錬作用を付加するにはフランクスの使用原単位の増加、ひいては製鋼スラグの排出量の増大を來す。この事は廃棄されるスラグ量の増加のみならず、排出されるスラグが大きな顯熱を持つことから、熱エネルギーの観点からも不利となる。この欠点を克服する方法として、溶銑の脱珪プロセスが取り入れられるようになつた。

一方、酸化精錬において、珪素の酸化、燐の酸化および脱炭反応は競合反応である。従つて、溶銑中の珪素の低減は後の脱燐プロセスに好ましい環境を作り出すこととなる。このような観点から溶銑の予備処理（脱珪、脱硫、脱燐）技術が展開している[1]。このような溶銑の予備処理を含む精錬プロセスの構成の一例を図2に示す。

溶銑予備処理を含む高炉一転炉による鉄鋼製造プロセスにおいては、精錬作用の優れた強塩基性スラグの開発[2]およびその精錬作用を究極まで引き出す精錬技術が不可欠である。後者の目的に対応してインジェクション技術が発展している。

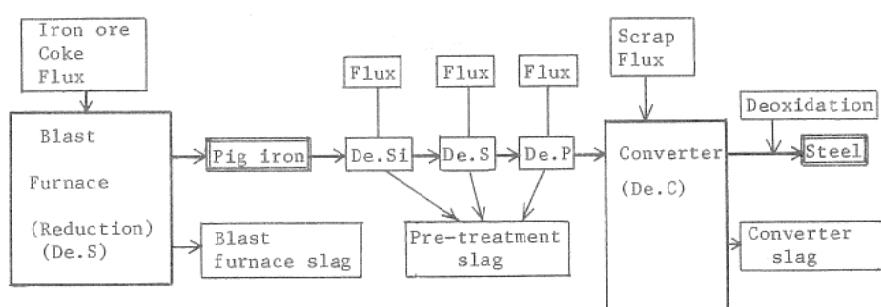


図1 Schematic illustration of blast furnace-converter process with the pretreatment of hot metal

*原 茂太 (Shigeta HARA), 大阪大学, 工学部, 治金工学科, 助手, 工学博士, 治金物理化学

III. 融体に吹き込まれたガスおよび粉体の挙動

インジェクション・メタラジィとはガスおよび粉体を金属浴へ吹き込むことによって、反応に関与する気一液界面もしくは固一液界面積の増加および浴の混合の強化をはかり、精錬反応を効率よく進行させる精錬技術である。実際的には、精錬剤（ブラックス）を懸濁させたガスを金属浴中にランスまたはノズルを使用して吹き込む。そこで、まず上部よりランスを用いて液面にガス・ジェットを吹き付けた場合について考える。

III-1. 液体表面に吹き付けられたガス・ジェットの挙動

液体表面に吹き付けられたガス・ジェットは図2に示すようにキャビティをつくる。このキ

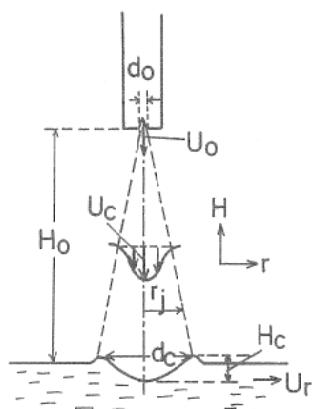


図2 Model of impinging gas jet used by Wakelin [3]

ャビティの底面では次のようにガス・ジェットの持つ運動エネルギーと液体の重力および液体表面の持つ表面張力のエネルギーが釣り合っている。

$$\frac{1}{2} \rho_g U_c^2 = g \rho_l H_c + (2\sigma/R_c) \quad \dots \dots (1)$$

ここで、 U_c —軸上でのジェットの速度、 H_c —キャビティの深さ、 R_c —底面でのキャビティの曲率半径、 σ —表面張力、 ρ_g 、 ρ_l —ガスおよび液体の密度。

今(1)式をノズル先端部の速度 U_o と軸上 H_o 位置での速度 U_c との関係式との組み合わせ、表

面張力項の寄与を無視できるとして、Wakelin は次のような式を得ている[3]。

$$\frac{H_c}{d_o} \left(\frac{H_o + H_c}{d_o} \right)^2 = \frac{k^2 M_j}{2\pi g \rho_l d_o^3} \quad \dots \dots (2)$$

または

$$\frac{H_c}{H_o} \left(\frac{H_o + H_c}{H_o} \right)^2 = \frac{k^2 M_j}{2\pi g \rho_l H_o^3} \quad \dots \dots (2')$$

ここで、 d_o —ノズルの直径、 H_o —ノズルから液面までの距離、 k —ジェット定数 M_j —ジェットの運動量 ($=\pi d_o^2 \rho_g U_o^2 / 4$) である。

図3は気一液系で(2')の関係が満されていることを示している。

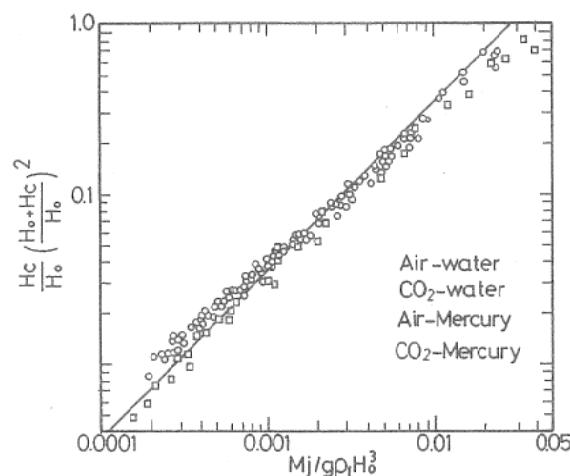
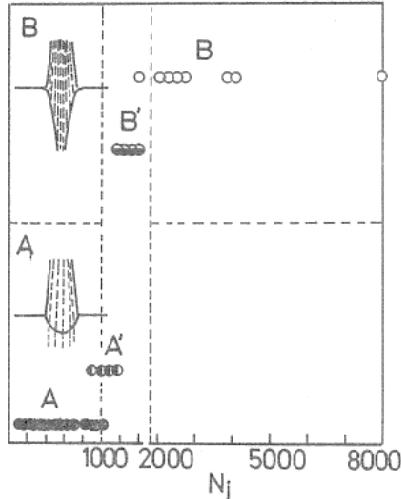


図3 Effect of the momentum of the jet and nozzle height on the depth of the cavity [3]

さて、気体が固体粒子を付随している場合については気体単独の場合よりかなり複雑である。木村[4]は、四塩化炭素、水、四臭化エタン等より成る液体の表面へ銅鉱石、コークス、イルメナイト鉱石、パーライト、ガラス球、シリカなど粒子を空気を用いて吹き付ける実験を行い、ガス一粒子の混合流は粒子の混合割合によって図4に示すように、(A)明確なキャビティを作る場合と(B)ガス一液体の混合相が形成され明確なキャビティを形成しない場合があることを明らかにした。(A)から(B)への移行は次式で与えられる N_j によってつまり、 N_j が1000以下では(A)の現象、または1500以上では(B)の現象へと変化することをしめした。

図4 Effects of N_j on cavity formation [4]

$$N_j = N_p \cdot U_o \cdot A_p \cdot (\rho_p / \rho_l) \quad (3)$$

ここで、 N_p —吹込ガスの単位体積内の粒子の個数 (ヶ/cc), U_o —ガスまたは粒子の速度 (cm/sec), A_p —粒子の投影断面積 (cm^2), ρ_p —粒子の密度 (g/cc), ρ_l —液体の密度 (g/cc) である。

さらに、粒子吹込みの状況の光学的観察から 0.25mm 以下の粒子はガス流速とほぼ同一の速度であり、ジェットの中心部での速度は液面に到達するまで変化しないことを確認している。ジェットの広がり角度は中心角として 9.2 度をえている。

他方、ジェット中心部における粒子の比率、 F として次の回帰式をえている。

$$F = 1.091 - 0.999[\log(H_o/d_o)]^2 + 1.4263 \\ \log(H_o/d_o) - 0.0843 \log(U_p/100) \\ + 0.253 \log(W_p/S_o) \quad (4)$$

ここで、 U_p —紺体粒子の速度, W_p —紺体供給量 ($\text{g/cm}^2 \text{ sec}$), S_o —ノズルの断面積である。また、ガス-粒子の混合流の侵入深さ H_p について次の式をえている。

$$(H_p/d_p) = 0.922(U_l/U_p \cdot d_p \cdot \rho_l)^{-0.055} \cdot \\ (N_p \cdot d_p^3/U_p)^{-0.029} \cdot (\rho_p/\rho_l)^{0.33} \\ \cdot (U_c/U_p)^{0.49} \cdot (d_o/d_p)^{0.906} \cdot \\ (1 + 2H_o \cdot \tan\theta/d_o)^{-1.22} \quad (5)$$

ここで、 θ はジェットの広がりの角度, N_p はジェットの中心軸での粒子の供給速度で、次式で示される。

$$N_p = W_p / (\pi d_p^3 \cdot \rho_p \cdot S_o / 6) \quad (H_o/d_o < 3.8) \\ N_p = W_p / [(\pi d_p^3 \cdot \rho_p \cdot S_o / 6)] \cdot 10^{F-2} \quad (H_o/d_o \geq 3.8)$$

表1 Penetration depth of particles in hot run and those in cold run [4]

Experimental No.	Hot run	Cold run
1	16.0-18.0mm	17.0mm
2	20.0-24.0	21.9
3	13.0-16.0	13.5
4	13.0-16.0	16.3
5	16.0-19.0	15.9

木村はコールド・モデルで得た式(5)を高温での実験結果と対比し、表1に示すように30%の誤差範囲で高温実験の結果を再現することを明らかにしている。

III-2. 浸漬したノズルから吹き込まれたジェットの挙動

金属浴に浸漬されたノズルから吹き込まれた高速ガス・ジェット(図5参照)の挙動に関しては、Themelis ら[5]によって初めて数学的に取り扱われた。このモデルでは、気液混合ジェットの水平方向の運動量 M_x は保存され、垂直方向の運動量 M_y はジェット内のガスに働く浮力に等しいと仮定する。また、ノズルからある距離にある点での運動量は保存される(即ち、粘性と表面張力の寄与を無視する)と仮定

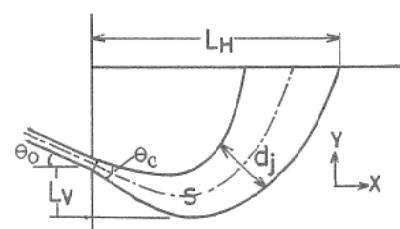


図5 Model of submerged gas jet in liquid [5]

する。さらに、ジェット軸に直角な面での気液混合相中のガス混合比および速度は均一であり、ジェット内にある液体も同一速度で運動すると仮定している。図5には実験によって得られるジェットの形を示している。ジェットの広がり角度 θ_c は水中に対する空気ジェットの場合 19~20 度であり、また空気中に対する空気の均一系ジェットの場合の実測値 21 度と良く対

応しており θ_0 はジェットの周りの流体の物性に無関係であるとしている。またジェットの直径 d_j はノズルからの距離 X に比例することを見出している。以上の結果にもとづいて、ジェットの軌跡について次式を導いている。

$$\frac{d^2Y}{dX^2} = 4F_r - \left[\tan(\theta_c/2) / \cos\theta_0 \right] \cdot [1 + (dY/dX)^2]^{1/2} \cdot X^2 \cdot H \quad (6)$$

初期条件 $\begin{cases} X = \frac{1}{2} \tan(\theta_c/2), Y = 0 \\ X = 1/[2\tan(\theta_c/2)], dY/dX = \tan\theta_0 \end{cases}$

ここで、Y—ジェット軸からの無次元垂直距離 ($=Y/d_0$)

X—ジェット軸からの無次元水平距離 ($=X/d_0$)

F_r —修正 Froude 数 ($= (\rho_g \cdot U_0^2 / g \cdot (\rho_l - \rho_g) \cdot d_0)$
 d_0 —ノズル直径, U_0 —ノズル出口のガス流速, H —ガスホールドアップ, θ_0 —水平面とノズル軸のなす角度である。

さて、ジェットが粒子を付随する場合、Themelis らの(6)式に対応するジェットの軌跡に関する方程式が Engh ら[6]によってえられている。Engh らのモデルによれば、ジェットの直径 d_j は Themelis らのモデルと異なり、ジェット軸に沿った距離 S に比例し、ジェットの広がり角度 θ_0 は粉体を付随する場合でも、ガスの特性のみで決るとしている。気—液混合流の場合と同様に、ジェット内のガス—粒子—液体は同一速度で運動すると仮定すると、(6)式に対応するジェットの軌跡に関する方程式(7)が得られる。

$$\frac{d^2Y'}{dX'^2} = \frac{\sqrt{1+S'^2 \cos\theta_0} \sqrt{1+(dY'/dX')^2} - 1}{Fr' \cos^2\theta_0} \quad (7)$$

初期条件 $\begin{cases} X' = 0, dY/dX = -\tan\theta_0 \\ X' = 0, S' = 0 \end{cases}$

ここで無次元距離 $X' = X/r$, $Y' = Y/r$, $S' = S/r$ であり、 r は次式となる。

$$r = \frac{d_0 \cdot f_2^{1/2} \{ \rho_l - \rho_g \} \cdot H_{go} \cdot \rho_{go}/\rho_g}{4 \tan(\theta_c/2) \cdot f_1 \cdot (H_{go} \cdot \rho_{go} + H_{po})} + \frac{\{ \rho_l - \rho_g \} \cdot H_{po}}{\cdot \rho_p^{1/2} \cdot \rho_l^{1/2}}$$

また、修正 Froude 数 Fr' は次式で与えられる。

$$Fr' = \frac{8U_0^2 \cdot f_1^3 \cdot (H_{go} \cdot \rho_{go} + H_{po} \cdot \rho_p)^{5/2}}{f_2^{3/2} \cdot g \cdot d_0 \{ [(\rho_l - \rho_g) H_{go} \cdot \rho_{go}/\rho_g] \cdot \rho_l^{1/2} \tan(\theta_c/2) + (\rho_l - \rho_g) \cdot H_{po} \}}$$

ここで、 ρ_p —粉体の密度, ρ_g , H_{go} , H_{po} はそれぞれノズル出口でのガスの密度、ガスの体積分率、粉体の体積分率である。また f_2/f_1^2 はジェット内での速度分布に対する補正計数で 1.026 の値をとる。

このようにして気体に付随して吹き込まれた粉体粒子が、その後金属浴と効果的に反応するためには、粒子がガス—液体界面を通過して液体内部に侵入することが必要となる。Engh ら[7]は粒子の侵入の際の界面エネルギーの変化と粒子に働く流体抵抗を考慮して、粒子がガス—液体界面を通過して液体中に侵入する条件を次の式によって表わしている。

$$\frac{U_0^2 r_p \rho_l}{8\sigma_1} > \left(1 + \frac{\sigma_{pl} - \sigma_{gp}}{\sigma_1} \right) \exp\left(\frac{3\rho_l}{4\rho_p}\right) + \left(1 - \frac{\sigma_{pl} - \sigma_{gp}}{\sigma_1} \right) - \left(\frac{8\rho_p}{3\rho_l} \right) \left\{ \exp\left(\frac{3\rho_l}{4\rho_p}\right) - 1 \right\} \quad (8)$$

ここで、 r_p は粒子の半径, σ_1 , σ_{pl} , σ_{gp} は液体の表面張力、粒子—液体、粒子—固体の界面張力を示す。

成田[8]は、粉体が液体に θ の角度で衝突する場合について、図 6 に示すランスを用いて水もしくは沃化カリ水溶液への発泡スチール、ステレン、アクリルなどの吹込み実験を行い、図 7 に示すような結果を得ている。Engh の式において、 $\sigma_{pl} = \sigma_{gp}$ と仮定している。今、この式から $14\text{mm}\phi$ の水平ノズル 2 孔を持つ浸漬ノズルより 2m の深さの鋼浴に 35Nm/hr の Ar ガスをキャリヤー・ガスとして 2.5 気圧の圧力で CaC_2 粉体を 18.5kg/min の供給速度で吹き込

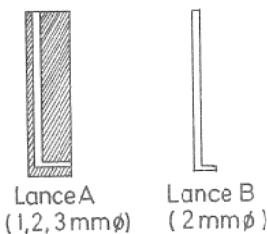


図6 Shape of lances of submerged gas jet in liquid [8]

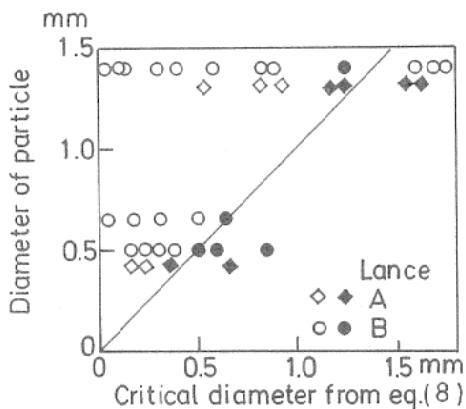


図7 Critical diameter of particles for penetration across the gas-liquid interface (○△: penetration, ●◆: no penetration) [8]

む場合について計算を行い、鋼浴中に侵入し得る粒子の半径は約0.1mmであり、それ以下の粒子は気泡内にとどまるだろうと予測している。

IV. 実操業におけるインジェクション技術の適用

粉体インジェクション技術は、すでに鉄鋼精錬において色々な段階で脱珪、脱磷、脱硫反応を効果的に進行させるために使用されているが、いずれにせよ、精錬剤と金属浴との混合を良くし反応界面積を増大させる工夫がなされている。またその反応場所としては、高炉の鉄床、溶銑取鍋、混銑車(Torpedo car)が使用される。そのいくつかの例について述べる。

IV-1. 溶銑の脱珪プロセスへの利用

溶銑の脱珪プロセスは既にⅡ節で述べたように、後の脱磷を有効に進行させるために、溶銑中の珪素を0.2%程度にまで酸化制御する過程である。通常、酸化剤として鉄鉱石、焼結鉱、ミルスケール、もしくは气体酸素を用いる。反応場所と方法としては図8に示すように、(A)高

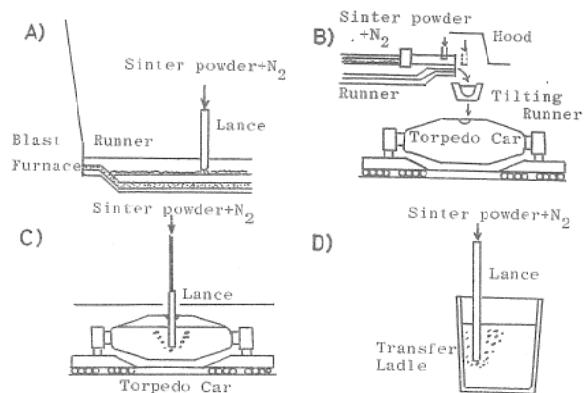


図8 Schematic illustration of various desiliconization methods

炉主樋における上置法またはtop-injection法(B)スキンマーの後もしくは傾注樋で酸化剤を上置し溶銑の落下のエネルギーによってかくはんする法、(C)トーピードインジェクション法、(D)注銑鍋インジェクション法などが試みられている。丸川らの報告によると[9]注銑鍋に酸化剤を上置し、窒素ガスで浴をかくはんした場合、脱珪効率(酸化剤の脱珪に対する利用率)は40~50%，傾注樋で酸化剤を上置し溶銑の落下のエネルギーによってかくはんする法では50~60%，トーピードインジェクション法では75~80%，注銑鍋インジェクション法では90%と報告されている。このように、粉体のガスによるインジェクションは反応速度、反応効率の面からも優れていることが理解される。

IV-2. 溶銑の脱磷・脱硫プロセスへの利用

溶銑の脱磷はすでに述べたように酸化剤によって磷を酸化し、塩基性酸化物によりスラグ中に固定する方法がとられる。他方、脱硫は溶銑中の硫黄を塩基性酸化物と反応させて硫化物としてスラグ中に固定する方法がとられる。したがって、両反応が効果的に進行する酸素ボテンシャルは必ずしも同じではない。著者らの研究によれば[10]石灰系のフラックスを酸化剤と共にインジェクションした場合、反応は図9のように進行する。図10には溶銑におけるP、Sの変化をしめす。図10aでは浮上したスラグが酸化力を失うと共に融点が上昇するのに対し、bの場合浮上したスラグは低融点であり酸化力を失うとともに復磷が起こっていることがわかる。

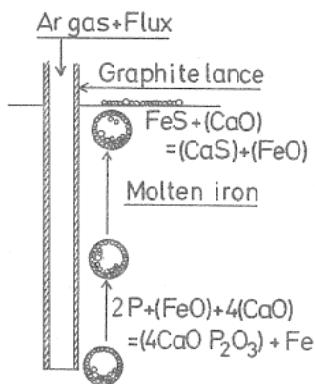


図9 Schematic illustration on simultaneous dephosphorization and desulfurization process [10]

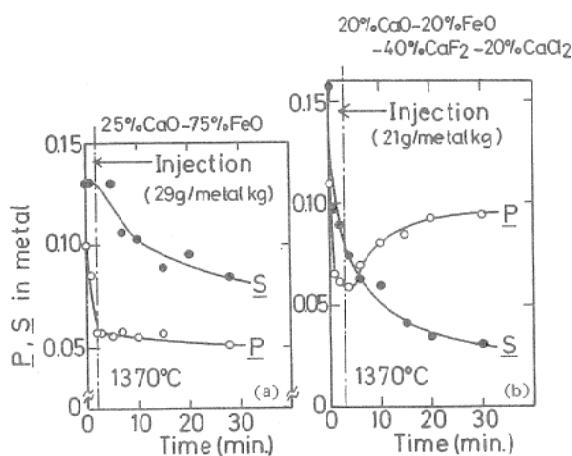


図10 Dephosphorization and desulfurization of pig iron by injection of lime based fluxes [10]

実操業における反応容器としては溶銑取鍋、混銑車が使用される。脱硫剤および脱磷剤としては大別して石灰系フラックスと炭酸ソーダ系のフラックスが使用され、脱流剤としてカルシウム・カーバイドも使用される。表2には、成田ら[11]によって報告された種々のフラックスと銑鉄浴の接触法による脱磷、脱硫効率の比較を示す。このように、接触法によって反応効率が異なることが理解される。この点にインジェクションを精錬反応へ応用する場合の面白さと難しさがある。

図11には実操業に使用されている混銑車脱磷設備の一例を示す。溶銑1トン当たり石灰8.6kg、ミルスケール8.6kg、螢石2.8kgを耐火物ランプを通じてインジェクションした場合、溶銑中の磷濃度は0.099%から0.011%へ、硫黄は

表2 Dephosphorization and desulfurization in various method (1350°C, CaO/SiO₂=3.0) (11)

Mark	Method	CaO-Scale-Spar		CaO-Scale-Spar-Na ₂ CO ₃	
		L _P F _P	L _S F _S	L _P F _P	L _S F _S
A	N ₂ CaO Scale Spar (Na ₂ CO ₃)	700 -900 90-95	15 -25 35-45	700 -1000 90-95	30 -50 50-60
B	N ₂ CaO Scale Spar (Na ₂ CO ₃)	50 -100 40-60	50 -80 60-70	80 -150 50-65	100 -150 75-85
C	CaO Scale Spar (Na ₂ CO ₃)	120 -250 60-75	5-15 15-30	120 -250 60-75	10-20 20-35
D	N ₂ CaO Spar (Na ₂ CO ₃) Scale	150 -300 65-80	15-25 35-45	150 -400 65-85	30-50 50-60
E	CaO Scale Spar (Na ₂ CO ₃)	100 -150 55-65	5-10 15-25	100 -200 55-75	10-15 20-30

$$L_P = (P_{\text{2}}O_5)/P, L_S = (S)/S, F_P = 100 \cdot (P_{\text{1}} - P_f)/P_{\text{1}}, F_S = 100 \cdot (S_{\text{1}} - S_f)/S_{\text{1}}$$

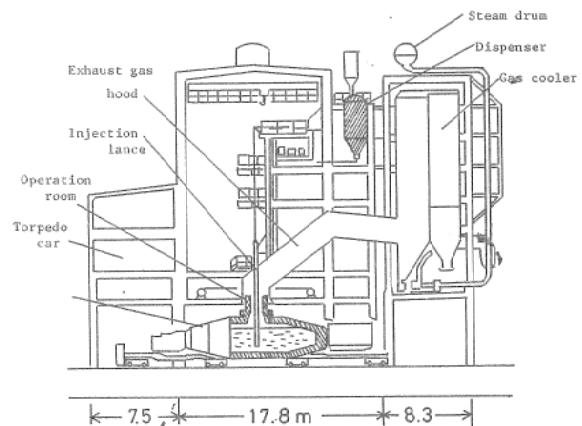


図11 Torpedo oxidation process for desilicification and dephtosphorization

0.03%から0.018%へと減少し、最終スラグ中の磷酸濃度は9.6%程度であるといわれている。

V. まとめ

冶金技術者は古くから、強かくはんを行うことによって反応を促進させる技術と知識を使ってきた。しかしながら、現代の冶金技術者はインジェクションの技術を精錬反応へ適用して、反応をコントロールしている。たとえば、銑鉄中の炭素を酸化することなしに、磷のみの酸化も可能である。現在、インジェクション・メタ

ラジーの基礎となる気体によって粉体を吹き込む場合の流体力学的解析の研究は、多くの研究者によって実施されており[12]、この成果を取り入れて、更に優れた反応容器の設計、インジェクション技術の確立を目指している。本小稿は雑駁ではあるがその現状を概説した。この方面に興味をもたれる方の少しでもお役にたてば幸いである。

文 献

- 1) 徳田昌則; 鉄と鋼 69 (1983) No. 15, p. 1699.
- 2) 原 茂太, 荻野和巳; 溶融塩 28 (1985) No. 3, p. 218.
- 3) D.H. Wakelin; Ph. D thesis, Imperial College, U. of London (1966) (from "Rate phenomena in Process Metallurgy" Written by J. Szekely & N.J. Themelis (1971) [Wiley-Interscience]).
- 4) 木村悦治; 日本学術振興会第140委員会主催シンポジウム『高温物性と Injection Metallurgy』昭和54年10月31日.
- 5) N.J. Themelis, P. Tarassoff & J. Szekely; Trans. AIME, 245 (1969), p. 2425.
- 6) T.A. Engh & H. Bertheussen; Scand. J. Met. 4 (1975), p. 241.
- 7) T.A. Engh & H. Sandberg; Scand. J. Met. 1 (1972), p. 103.
- 8) 成田貴一他; 日本金属学会シンポジウム『ガスースラグーメタル系における界面現象』昭和54年12月5日および日本学術振興会第140委員会主催シンポジウム『高温物性と Injection Metallurgy』昭和54年10月31日.
- 9) 野見山寛他; 鉄と鋼 69 (1983) Mo. 15, p. 1738.
- 10) 原 茂太, 倉田一郎, 荻野和巳; 鉄と鋼 69 (1983) No. 15, p. 1832.
- 11) 成田貴一他; 鉄と鋼 69 (1983) No. 15, p. 1825.
- 12) 鉄鋼基礎共同研究会融体精練反応部会報告『融体精練反応の物理化学とプロセス工学』(森一美部会長) 1985年5月.

