



私の論文

今振り返ってみて、行間にこめた思い、エピソード

ガス-メタル間の物質移動現象の理解に向けて

Understanding of Mass Transfer Phenomenon between Gas and Metal

岡山 敦

Atsushi Okayama

日本製鉄(株) 技術開発本部
九州技術研究部 製鋼・鋼材研究室
主幹研究員

1 はじめに

今回、第83回俵論文賞を受賞させて頂いた拙著「溶鋼へのガス吹込み時の物質移動係数と攪拌強度の関係」¹⁾に関して、論文執筆に至る経緯や裏話などを紹介する機会を得た。このような栄誉ある賞を頂けたことに対して、論文執筆に至る前段階のテーマ選定から速度論的な考察に至るまで親身になって相談に乗っていただいた共同執筆者の樋口先生をはじめ、実験や数値計算など、本論文を完成させるまでに協力頂いた多くの方々に心より御礼申し上げたい。本稿には筆者が論文に書ききれなかった思いを書き記す。読んでくださった方の今後の研究活動の糧になれば幸いである。

2 研究の動機

本研究はガス-メタル間反応に着目したものであるが、研究に至った経緯は低窒素鋼溶製ニーズから始まる。転炉から取鍋へ溶鋼を出鋼する際、取鍋内では注入流に巻き込まれた大気が溶鋼に吸収され、低窒素鋼溶製を困難にしている。出鋼プロセスは大気下で行われ、取鍋内の溶鋼量が時間経過とともに変わる。そこで、注入現象を化学的側面と物理的側面に分け、数値計算を使って注入中のガス-メタル界面積を算出し、物質移動係数を乗じることで注入現象を再現することを思い立った訳であるが、ガス-メタル間の物質移動現象を取り扱った先行文献が少なく、解析には使いにくい状況であった。使い勝手の良い検討手法が無いのであれば自分が実験してデータを得よう、その後の展開も考えて汎用性の高い形式に纏めてみよう、そう思って取り組んだのが本研究で

ある。

3 研究の概要

本研究では、溶鋼に窒素ガスを底吹きした際の溶鋼中窒素濃度変化を測定し、その実験結果からガス-メタル間の物質移動係数と攪拌動力密度の関係を明らかにした。溶鋼中の窒素濃度の経時変化が分かれば吸窒反応の容量係数が得られ、容量係数を反応界面積で割れば物質移動係数が求まる訳である。そこで、Fig.1に示す実験装置を用いて溶鋼量や吹込む窒素ガス流量を変えた条件での溶鋼中の窒素濃度変化を調査した。また、Fig.2に示すように、それぞれの条件での溶鋼中の気泡挙動を数値計算で再現し、反応界面積を算出した。最終的に得られたのがFig.3であり、気泡および自由表面でのガス-メタル間の物質移動係数が攪拌動力密度のおよそ0.6乗に比例して増加する結果となった。この関係式を用いると、攪拌動力密度から物質移動係数を見積もることが可能である。このため、注入操作であっても底吹きであっても数値計算等で反応界面積を求めておけば溶鋼の吸窒挙動を推定できるようになることから、反応解析もしく新規プロセス検討といった場面では窒素挙動推定手法として活用して頂けるのではないかと思う。

4 溶鋼実験に纏わる裏話

上述した動機のもと、ガス-メタル間の物質移動現象を溶鋼実験で調査することを決め、いくつかの条件は雰囲気調整炉を使って実験することにした。論文では特に触れられる

* [今回の対象論文]

岡山敦, 樋口善彦:「溶鋼へのガス吹込み時の物質移動係数と攪拌強度の関係」, 鉄と鋼, Vol.105 (2019), No.8, pp.793-802 (第83回俵論文賞受賞)

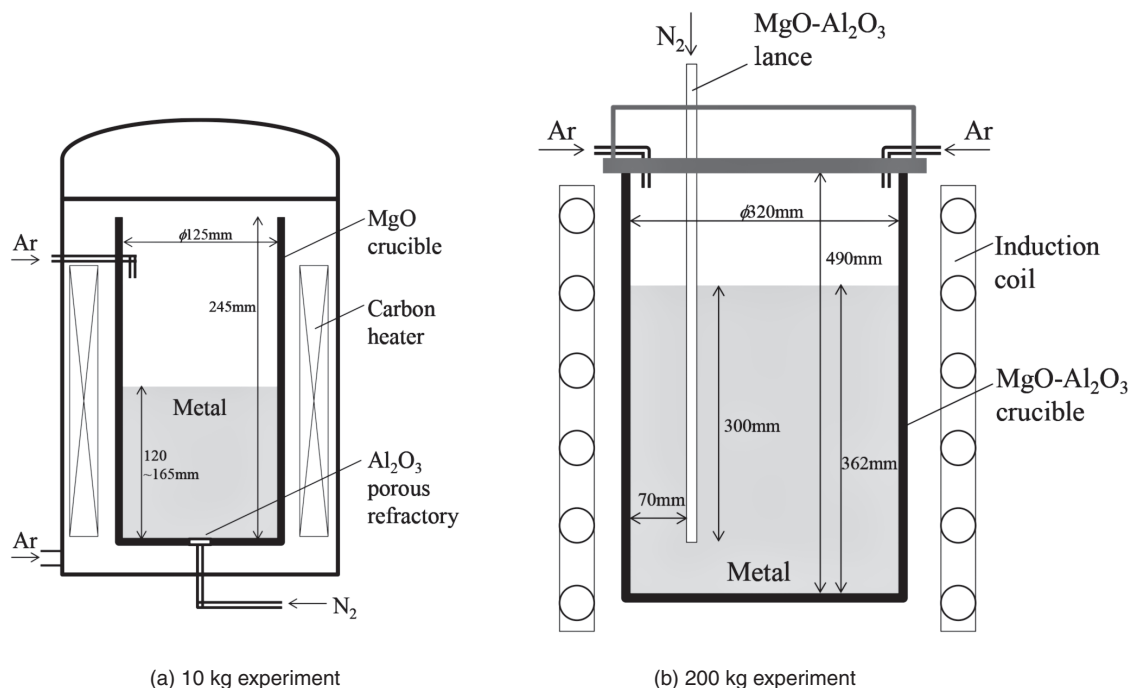


Fig. 1 Experimental apparatus¹⁾.

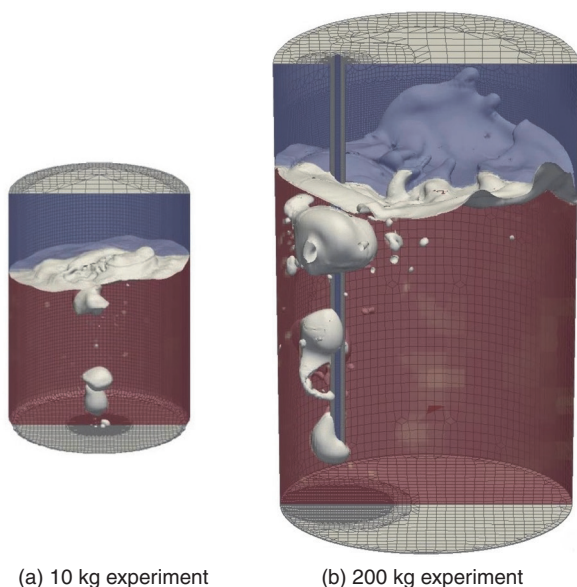


Fig. 2 Gas-liquid interface during bubbling (simulation).

ことなく実験条件として表に纏められている部分であるが、ガス種および溶鋼量変更の点では多くの苦労があった。

実験に使った10 kg 雰囲気調整炉ではルツボ底部からアルゴンガスを吹込み、溶鋼を攪拌している。窒素ガスを吹込むためには既存のアルゴンガスラインを改造して窒素ガスラインを新たに取付け、タイミングを合わせてガス種を切り替えることが必要であった。実験開始前までは溶鋼中窒素濃度を

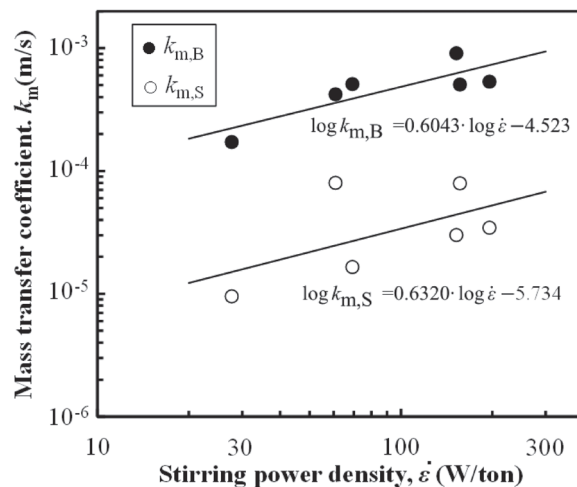


Fig. 3 Relation between stirring power density, ϵ and mass transfer coefficient, k_m ¹⁾.

下げておくためアルゴンガスを吹き込んでおり、初回実験ではバルブ操作により同一タイミングでアルゴンガスを停止し、同一流量の窒素ガスを供給することを試みたが、ルツボ底部のΦ1 mmのガス供給孔6箇所全てに溶鋼が差し込み、実験が継続できなくなるトラブルが発生した。振り返ってみると、ガス種を切り替えたタイミングで瞬間的にガス供給圧力が低下したことでガス供給孔に溶鋼が差し込んだと考えられる。次回実験では窒素ガスを先に流し、後からアルゴンガスを停止させることでトラブルを回避したが、溶鋼実験では

「こんなことで」と思うような原因でもトラブルに繋がる場合があり、初回実験時のトラブルは自身の経験不足、想像力の欠如を思い知らされることとなった。

また、この雰囲気調整炉は溶解量10 kgが標準仕様であるため、溶鋼量を変えた条件で実験ができないか実験担当者と相談した結果、溶鋼を14 kgに増量した条件でも実験できるとの回答を得た。可能であれば溶鋼量を減らした条件でも実験したかったが、機械式の自動サンプラーの浸漬深さが一定であり、溶鋼量を減らすと溶鋼サンプルを採取できなくなるため、溶鋼量を減らした条件は断念せざるを得なかった。溶鋼14 kgの条件の実験では、築炉段階で母材となる電解鉄12 kgをルツボに入れ置きしたが、どうしても入りきらない2 kg分は電解鉄が溶け落ちた後に追装して調整した。しかしながら、雰囲気調整炉の構造上、電解鉄が溶け落ちた後の溶鋼に一度に添加できる電解鉄は200 g程度であり、添加のたびに溶鋼温度も30℃近く下がるため、溶鋼量が14 kgになるまで2時間近くひたすら電解鉄を追装する作業に追われた。もちろん、このような失敗した実験や、実験にたどり着くまでの苦労に関して論文の文面に現れることは無い。しかしながら、実験装置を改造、もしくは新しい実験装置を立ち上げたり、通常とは異なる条件で実験する場合、少なからずこのような苦労があると思われる。このような視点で過去の論文、特に、実験手法や測定手法が現在ほど確立されていない1980年代の論文を読んでいくと、実験手法が書かれている部分の行間には、本質に迫ろうとする熱意や実験時の苦労の一端が見える場合があり、論文がぐっと身近に感じられるようになる。本研究でも、論文に載せられるデータを得るに至るまでには実験装置や実験手順に関する様々な検討の積み重ねや手間が掛かっており、プロット一つ一つに思い入れがある。根気良く実験を遂行して下さった実験担当者の方々には今一度、感謝の言葉を伝えたいと思う。

5 数値計算への期待

本論文を完成できた大きな要因の一つに、数値計算の大きな進歩が挙げられる。ガスメタル間反応を取り扱う研究においては反応界面積が難解なポイントの一つであり、これまでの研究の多くが容量係数のままで結果を整理せざるを得なかった要因の一つである。すなわち、水模型実験であれば水中の気泡を直接観察できるため、気泡の大きさを算出して反応界面積を見積もることもできるが、溶鋼系では湯面に浮上して破泡する段階の気泡しか観察できない。このため、物質移動係数まで算出した多くの研究は溶鋼の自由表面と雰囲気ガスを反応させた実験から容量係数を求め、容器断面積で割って物質移動係数を算出してきた。しかしながら、注入流

に巻き込まれた気泡や底吹きに伴って生成する気泡との反応を考える場合には、何らかの手法でガスメタル界面積を見積もることが必要である。先行研究では溶鋼中の気泡径の推定式²⁾も提案されており、その推定式を使って反応界面積を見積もった上で物質移動係数を求めることも考えたが、数値計算の汎用性の高さや今後の発展性を考慮した結果、本研究では数値計算を使って反応界面積を見積もることとした。本研究では流体のvoid率を0.5とした条件の下、直接測定することが難しい底吹き条件でのガスメタル界面積を算出した。数値計算では、溶鋼静圧による気泡の圧縮、浮上中の合体や分裂といった溶鋼中の複雑な気泡挙動を可視化可能であり、今後も本論文と同様の解析をする際は欠かせない検討手法になると考えられる。ガスメタル間の物質移動現象に関する研究は1980年代に報告されたものが多く、気軽に数値計算を使えない、その当時と同じ状況であれば本研究の結果は得られなかったことを考えると、筆者は幸運な時代に研究できたと言える。また、本研究では、先行文献に記載されている溶鋼実験の様子を数値計算での再現を試みたが、論文に記載された模式図、実験条件を入念に読み込み、計算格子の作成から境界条件の設定まで、忠実に再現するよう心掛けた。この作業中は、その当時実験していた方の思いや苦労の一片が感じられ、一緒に実験しているような感覚となり、この上なく楽しい時間を過ごせた。余談ではあるが、筆者が数値計算に興味を持ったのは入社1年目(2003年)に参加した鉄鋼協会主催の講習会での懇親会で、担当幹事の方から「これから精錬研究を志すのであれば、計算熱力学と数値計算は欠かせない」との話を聞いたのがきっかけである。その当時はまだ自分で数値計算に取り組む状況を想像できる段階では無かったが、漠然と数値計算に対する憧れを持ったことを覚えている。現状では、数値計算をするにはソフトウェアや計算機の環境設定等が必要であるが、今後、計算機の性能やソフトの使いやすさが向上し、表計算ソフトで作業している感覚で数値計算ができるようになる時代が来ることを期待している。

6 残課題

本研究では、実験結果から抽出したガスメタル間の物質移動係数を攪拌動力密度の関数として整理したが、結果の整理方法には十分検討できていない点が残っていると考えられる。本論文の結果には、工学的に重要な要素の一つである容器形状の影響を考慮できていないのである。攪拌動力密度は系に与えたエネルギーを体積で割った値であるため、本論文の知見を使うと投入エネルギーと溶鋼体積が同じ条件であれば、溶鋼保持容器の形状に関わらず同じ物質移動係数が見積られる。ガスメタル間の流速や気泡径が容器形状に影

響を受けると仮定すると、Fig.3の関係は容器内径/溶鋼深さが0.76から1.04の範囲でのみ有効である可能性がある。スラゲーメタル間とガス-メタル間の物質移動係数を同じように取り扱って良いかは議論が必要と考えられるが、スラゲーメタル間の物質移動係数に及ぼす容器形状の影響を検討した研究は、Sawadaら³⁾、Nakagawaら⁴⁾によって報告されており、近年ではKitamuraら^{5,6)}により報告されている。これら先行研究では、物質移動係数もしくは物質移動容量係数を攪拌動力密度で整理する際は容器形状の影響を考慮した形で整理しており、特にKitamuraらの論文⁵⁾は容器形状の影響に加えて温度の影響も考慮したスラゲーメタル間の物質移動係数推定式を提示しており、工学的な価値が高く、学術的にも非常に示唆に富んだ論文である。本研究でも結果を整理する際は容器形状の影響を反映させた形での整理を試みたが、筆者の力不足もあり、Fig.3の形より先には進められなかった。物質移動係数は拡散係数、反応物質間の相対流体速度等が複雑に影響するパラメータであり、今日、明日で急に理解が進むことはないと考えられるが、本研究を含む先行研究および今後得られるであろう知見を積み重ね、少しずつでもガス-メタル間の物質移動係数に関する理解が深まっていくことを期待したい。

終わりに

筆者の考える「研究」とは、先行研究の知見を足掛かりに観察した現象を解析し、新たに得た知見を積み重ねて物事の

本質を明らかにすることであり、研究者間で知見をギブ・アンド・テイクすることで発展すると考えられる。これまでは諸先輩方が蓄積して下さった知見を使う、すなわちテイクするだけの場合が多く、自分自身は研究成果の提供、すなわちギブできていないと感じていたことも、論文執筆の動機の一つである。筆者の論文が多くの方に読まれ、研究発展のサイクルに加わることができるのであれば、研究者としてこの上ない喜びである。

参考文献

- 1) 岡山敦, 樋口善彦: 鉄と鋼, 105 (2019), 793.
- 2) 佐野正道, 森一美, 佐藤哲郎: 鉄と鋼, 63 (1977), 2308.
- 3) 沢田郁夫, 大橋徹郎, 梶岡博幸: 鉄と鋼, 70 (1984), S161.
- 4) 矢田安信, 小森俊也, 中川淳一, 森田光宣: CAMP-ISIJ, 2 (1989), 135.
- 5) S.Kitamura, T.Kitamura, K.Shibata, Y.Mizukami, S.Mukawa and J.Nakagawa: ISIJ Int., 31 (1991), 1322.
- 6) 北村信也, 伊藤公久, パレバニ フェルシッド, 森正樹: 鉄と鋼, 100 (2014), 491.

(2021年5月14日受付)