

コークス強度劣化評価のためのレースウェイ固気二相反応流数値解析法の開発

研究代表者 九州大学 大学院工学研究院機械工学部門 准教授 渡邊 裕章

1. 緒言

製鉄工程の高効率化には、羽口における微粉炭吹き込み量を増加させるとともに、高炉内の通気性を確保することが重要である。しかしながら、微粉炭を多量に吹きこむと炉内の通気性が悪化することが知られている。これは、未燃の微粉炭がコークス充填層の空隙に取り込まれることで直接的に通気性を悪化させているのではなく、コークスの粉化が促進されることが原因である[1]。そして、このコークスの粉化は、微粉炭燃焼により生成された CO_2 によるコークスのソリューションロス反応に起因すると考えられている[2]。そこで、微粉炭の多量吹き込み時の燃焼効率の向上を図るとともに、コークスのソリューションロス反応特性を把握し、適切な値に制御する技術の開発が求められている。しかしながら、微粉炭燃焼は、乱流中を微粒子が分散しながら、水分蒸発、熱分解による揮発分放出、揮発分の気相反応、およびチャー粒子の固気反応といった様々な物理的・化学的過程が同時に進行する、予測が難しい極めて複雑な現象である。加えて、圧力バランスとコークスの反応により形成されるレースウェイ形状を、その内部での微粉炭とコークスの競合反応を同時に考慮して予測する手法は未だ存在しない。

近年、研究代表者らは、格子解像スケールの乱流渦を直接解き、解像スケール以下のもののみをモデル化することで、従来のあらゆるスケールの乱流渦をモデル化することで計算負荷を抑える定常解析（いわゆる Reynolds-averaged Navier-Stokes 法）[3]に比べて、格段に高精度な非定常解析が可能となるラージ・エディ・シミュレーション法 (large-eddy simulation, LES) に注目し、世界で初めて微粉炭燃焼場への適用を成功させる等[4-6]、固気二相反応流の高精度解析法の開発に携わってきた。これまでに、微粉炭のチャー燃焼・ガス化反応や熱分解モデルの開発[7-9]を行うとともに、ラボスケール[10-12]から実用規模[4,13]に至る様々なスケールの燃焼場で解析手法の妥当性を検証してきた。

一方、高炉に代表される高濃度粒子充填層の数値解析法については、従来計算負荷低減の観点から、粒子相をオイラー相として解く多流体モデルが用いられてきたが、近年の計算機性能の向上により、個々の粒子挙動をラグランジュ的に追跡する離散要素法 (discrete element method, DEM) [14,15]が注目を集めている。DEM は流動層型の反応器を対象に盛んに研究が進められてきているが、高炉の羽口吹き込み部のように、ミクロンオーダーの微粒子である微粉炭と、センチオーダーのコークスの挙動をそれらの高温反応を含めて同時に解析した例は皆無である。

本研究では、新たに DEM を用いたコークス充填層モデルを開発するとともに、従

来の質点近似による微粉炭燃焼モデルをカップリングすることにより、レースウェイにおける固気二相反応流に対して LES をベースとする Eulerian-Lagrangian-DEM カップリング解析法を適用し、微粉炭吹き込みによる羽口前レースウェイ形成過程を予測可能な解析手法を開発することを目的とする。

2. 解析手法

2.1 支配方程式

本研究では、流体解析に LES を用いるが、DEM 粒子の体積を考慮するため流体の支配方程式には各コントロールボリューム CV の空隙率 β を考慮する。

$$\frac{\partial \beta \bar{\rho}}{\partial t} + \nabla \cdot (\beta \bar{\rho} \tilde{u}) = S_m \quad (1)$$

$$\frac{\partial \beta \bar{\rho} \tilde{u}}{\partial t} + \nabla \cdot (\beta \bar{\rho} \tilde{u} \tilde{u}) = \nabla \bar{p} + \nabla \cdot \beta \bar{\sigma} + \nabla \cdot \beta \bar{\tau} + S_u \quad (2)$$

$$\frac{\partial \beta \bar{\rho} \tilde{\phi}}{\partial t} + \nabla \cdot (\beta \bar{\rho} \tilde{\phi} \tilde{u}) = \nabla \cdot \beta D \tilde{\phi} + \nabla \cdot \beta \bar{q} + S_\phi \quad (3)$$

ここで、 t は時間、 ρ は流体密度、 u は流体の速度ベクトル、 p は圧力、 σ は応力テンソル、 τ はサブグリッドスケール応力、 ϕ は各スカラー、 D は各スカラーの拡散係数、および S は粒子との相互作用による生成項である。

また、 β 、および S_ϕ は次式で表される。

$$\beta = 1 - \frac{\sum_j \Delta t_c \cdot \alpha_j}{\delta t} \quad (4)$$

$$S_\phi = \frac{\sum_j \frac{\Omega_i}{\sum_i \Omega_i} \dot{\phi}_j \Delta t_c}{\Delta t} \quad (5)$$

ここで、 i は各 CV を、 j は DEM 粒子を表す。 t_c は粒子のサブ時間刻み、 α_{ij} は CV i を通過する DEM 粒子の体積占有率、 Ω_i は CV i の体積、および $\dot{\phi}_j$ は CV i における DEM 粒子 j によるスカラー ϕ 生成率である。

コークス粒子は、DEM に基づきその挙動を解析する。DEM 粒子の並進、および回転の運動方程式は、それぞれ次式で表される。

$$\dot{\vec{v}} = \frac{1}{m_c} (\vec{F}_C + \vec{F}_D) + \vec{g} \quad (6)$$

$$\dot{\vec{\omega}} = \frac{\vec{T}_C}{I} = \frac{\sum R_{ij} \times \vec{F}_{C_{ij}}}{I} \quad (7)$$

要素 ij が接触した際に生じる法線方向、および接線方向の接触力 $\vec{F}_{C_{nij}}$ 、および $\vec{F}_{C_{tij}}$ については、バネ・ダッシュポット系として考慮し、それぞれ次式とした。

$$\vec{F}_{C_{nij}} = (-K_{nj} \delta_{nij} - D_{nj} \vec{v}_{ij} \cdot \vec{n}_{ij}) \vec{n}_{ij} \quad (8)$$

$$\vec{F}_{C_{tij}} = -K_{tj} \vec{\delta}_{tij} - D_{tj} \vec{v}_{tij} \quad (9)$$

ここで、 K はバネ反発係数、 D はダッシュポットの粘性減衰係数、および δ はDEM粒子のオーバーラップを表す。 δ が正の場合は斥力が、負の場合は引力が働くものとした。

微粉炭粒子の挙動は、質点近似を用い、ラグランジェ的に解析した。微粉炭粒子の運動方程式は次式で表される。

$$\frac{dx_p}{dt} = u_p \quad (10)$$

$$\frac{du_p}{dt} = \frac{1}{2} \frac{\rho_p}{m_p} C_D A_p |\tilde{u} - u_p| (\tilde{u} - u_p) + g \quad (11)$$

$$\frac{dT_p}{dt} = -\frac{1}{c_{p,p} m_p} \left[A_p q'_p - A_p \epsilon_p \sigma (\Theta_R^4 - T_p^4) - Q_p - L_V \frac{dm_p}{dt} \right] \quad (12)$$

$$\frac{dm_p}{dt} = -\left(\frac{dC}{dt} + \frac{dV}{dt} \right) \quad (13)$$

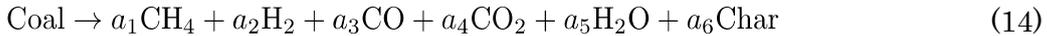
ここで、 x_{pl} は粒子位置、 u_{pl} は粒子速度、 ρ_p は粒子密度、 m_{pl} は粒子質量、 C_D は抗力係数、 A_p は粒子投影面積、 T_p は粒子温度、 $c_{p,p}$ は粒子比熱、 q'_p は対流伝熱量、 ϵ_p は放射率、 σ はステファンボルツマン係数、 Θ_R は輻射強度から導かれる輻射温度、 Q_p は反応熱、 L_V は相間の質量移動に伴う潜熱、 C は固定炭素質量、 V は揮発分質量である。

Eulerian-Lagrangian-DEM カップリング解析では、以上の流体、DEM粒子、および微粉炭粒子の各支配方程式を各式の生成項、および β を介してカップリングして解く。数値解析コードは、非構造格子系LESソルバーFFR-Comb (NuFD/FrontFlowRed extended by Kyushu Univ., Kyoto Univ., CRIEPI and NuFD) [4-6,10-13]を用いた。

2.2 反応モデル

2.2.1 微粉炭燃焼モデル

微粉炭の熱分解には単一次反応モデルを用い、揮発分組成には CH_4 、 H_2 、 CO 、 CO_2 、および H_2O を考慮した[8]。このときの微粉炭の熱分解反応式、および各揮発分組成の放出速度は次式で表される。



$$\frac{dV_k}{dt} = A_k \exp\left(-\frac{E_k}{RT_p}\right) (V_k^* - V_k) \quad (15)$$

ここで、 a は炭種によって決まる各成分の係数、 V_k は放出された k 化学種の質量、 V_k^* は初期微粉炭中の質量、 A_k は頻度因子、 E_k は活性化エネルギーである。本研究で採用する微粉炭組成は、揮発分:33.5 wt%、固定炭素:51.8 wt%、および灰分:12.4 wt% (受入ベース)、C:82.6 wt%、H:5.24 wt%、O:9.44 wt%、N:2.19 wt%、S:0.49 wt% (dry ベース)であり、このとき、 $a_1 = 0.186$ 、 $a_2 = 0.001$ 、 $a_3 = 0.134$ 、 $a_4 = 0.014$ 、 $a_5 = 0.0002$ 、

$a_6 = 0.642$ となる。また、 A_k および E_k は、それぞれ 2.02×10^3 1/s, および 3.11×10^4 J/mol とした[17].

気相反応には、次の 5 つの総括反応を考慮した。式(16)-(19)の反応速度には、Scale Similarity Filtered Reaction Rate Model (SSFRM) [18]により計算した。式(20)については、Functional Chemistry (FC) モデル[8]により計算した。



SSFRM による反応速度は次式にて表される。

$$\bar{\omega}_k = \overline{\dot{\omega}_k(\rho, \tilde{T}, \tilde{Y}_k)} + K \left(\overline{\dot{\omega}_k(\rho, \tilde{T}, \tilde{Y}_k)} - \overline{\dot{\omega}_k(\bar{\rho}, \tilde{T}, \tilde{Y}_k)} \right) \quad (21)$$

ここで、 $\dot{\omega}_k$ はアレニウス式から導かれる k 化学種の生成速度である。

FC モデルによる反応速度は次式にて表される。

$$\bar{\omega}_{20} = A_{20}(\bar{P}_k, \tilde{T}) \exp\left(-\frac{E_{20}}{R\tilde{T}}\right) \cdot \frac{1}{(R\tilde{T})^2} \left(\bar{P}_{\text{CO}}\bar{P}_{\text{H}_2\text{O}} - \frac{\bar{P}_{\text{CO}_2}\bar{P}_{\text{H}_2}}{K_{eq}} \right) \quad (22)$$

ここで、頻度因子 A_{20} は各組成の分圧と温度の関数であり、本研究では詳細化学反応機構 GRI-Mech3.0[19]により構築した。

チャーガス化反応には、次の 3 つの反応経路を考慮し、Langmuir-Hinshellwood 型活性点部分共有モデル[20]を用いて反応速度を計算した。



本部分共有モデルによる反応速度は次式により表される。

$$\frac{dx}{dt} = \eta S_0 \left(\frac{k_{11} P_{\text{CO}_2}}{1 + k_{12} P_{\text{CO}_2} + k_{13} P_{\text{CO}} + a/ck_{22} P_{\text{H}_2\text{O}} + a/ck_{23} P_{\text{H}_2}} + \frac{k_{21} P_{\text{H}_2\text{O}}}{1 + bck_{12} P_{\text{CO}_2} + bck_{13} P_{\text{CO}} + k_{22} P_{\text{H}_2\text{O}} + k_{23} P_{\text{H}_2}} \right) \quad (26)$$

ここで、 η は有効拡散係数、 S_0 は Random Pore モデル[21]による反応表面積、 k は各ガス化剤に対する反応速度定数、 a , b , および c はそれぞれモデル係数である。これらの詳細については、文献[8,20]を参照されたい。

2.2.2 コークス反応モデル

本研究では、コークスは固定炭素と灰分から構成されるものとし、固定炭素 80 wt%, および灰分 20 wt% とした。固定炭素の反応速度は、前節の Random Pore モデルと

Langmuir-Hinshellwood 型活性点部分共有モデルを組み合わせた固気反応モデルに従うものとした。反応経路についても、式(23)-(25)に従うものとした。

2.3 解析条件

本研究の対象系は、コークス充填層小型燃焼炉[16]とした。図 1 に解析領域、および解析格子を示す。図のように、解析領域はブローパイプ部とコークス充填層部から構成されており、ブローパイプ部の長さは 800 mm とし、コークス充填層部は微粉炭の流入方向に長さ 1,000 mm、幅 400 mm、高さ 1,400 mm とした。この領域を格子解像度約 15 mm の格子で約 19 万要素に分割した。

コークスの初期粒径は 50 mm、粒子密度 1,000 kg/m³ である。初期充填層高さは約 1,000 mm に設定した。微粉炭の初期粒径は平均粒径約 90 μ m でロジンラムラー分布に従うものとした。微粉炭流量は 50 kg/h である。微粉炭と一緒に羽口から流入する高温ガスは、流量 2.2 m³/h (1,723 K)、O₂:27.25wt%、N₂:59.29 wt%、CO₂ 8.71 wt%、および H₂O 4.75 wt% である。なお、排気をアシストするため、本解析では燃焼炉底面から 1 m/s の常温空気を投入した。図 2 に初期コークス充填層の様子を示す。

本解析は、Fujitsu PRIMERGY CX2550/CX2560 M4 上で 8 コア並列計算で行った。定常に達するまでの 30,000 ステップを時間刻み 1 ms により解析した。

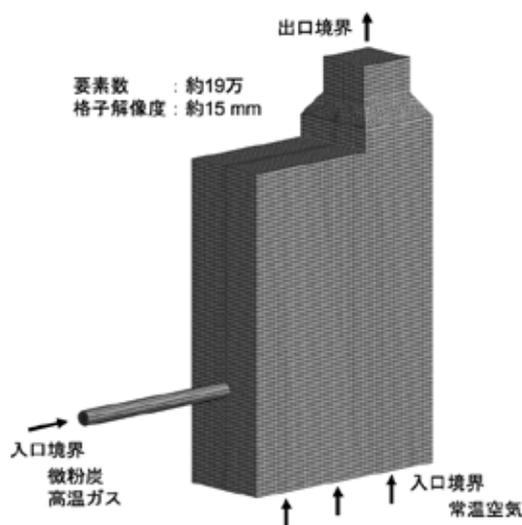


図 1 解析領域 (解析格子)

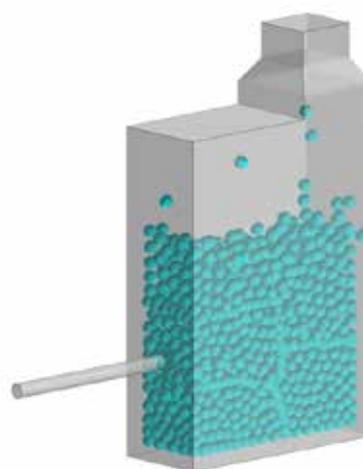


図 2 初期コークス充填層

3. 結果と考察

図 3 に流速絶対値の分布を、図 4 にガス温度分布をそれぞれ示す。流速はブローパイプ内の微粉炭燃焼により 200 m/s を超える速度まで急激に上昇した後、コークス充填層内で急速に低下していることがわかる。これは充填層内に形成されるレースウェ

イの周囲を取り囲むコークスによるものである。ガス温度の高い領域は、羽口部レースウェイ内に形成され、炉出口に向かって伸びていることがわかる。図 5 にガス温度分布について羽口部を拡大したものに速度ベクトルを併せて表示したものを示す。レースウェイを取り囲むコークスにぶつかり急減速する流れや、レースウェイ内に循環流を形成するものなどを観察することができる。

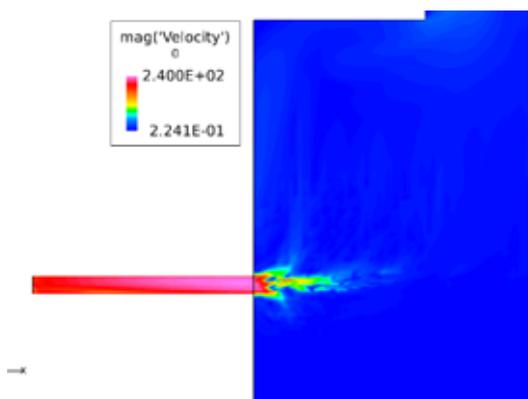


図 3 流速絶対値の分布

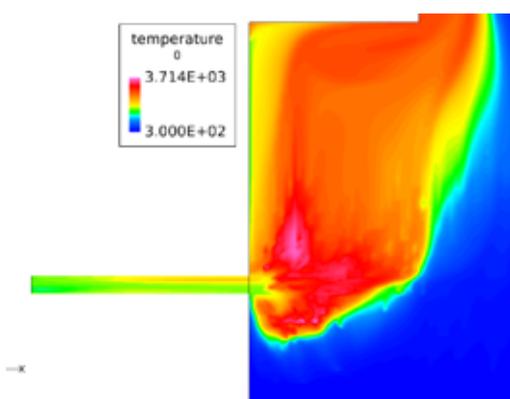


図 4 ガス温度分布

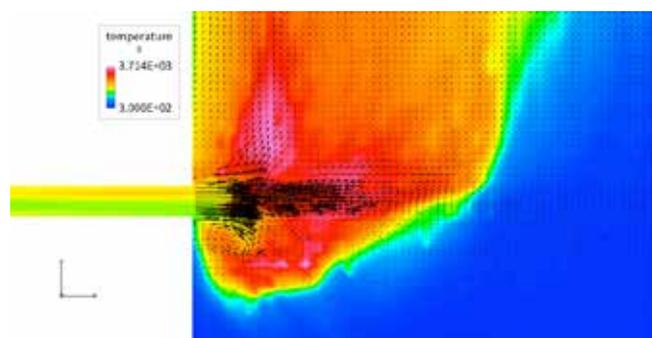


図 5 速度ベクトル (羽口部拡大)

図 6 に、酸素濃度（質量分率）の分布を示す。図より、酸素濃度は羽口部において急速に減少し、レースウェイ内ではほぼ完全に消費されることがわかる。このことから、微粉炭に由来する揮発分と固定炭素の燃焼反応はブローパイプ内において開始されるものの、それらの酸化反応は、主に滞留時間の長いレースウェイ内で進行しているものと考えられる。また、酸素濃度の低い、いわゆる還元雰囲気領域は、図 4 において観察される高温の領域に対応するように、炉出口に向かって

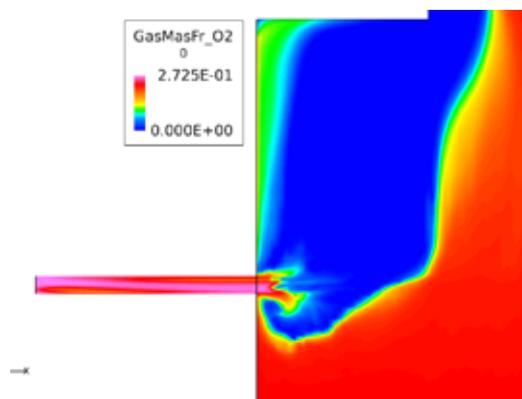


図 6 O₂濃度の分布

伸びていることがわかる。

図 7 に CO_2 濃度を、図 8 に H_2O 濃度の分布をそれぞれ示す。 CO_2 、および H_2O は、主として微粉炭の燃焼により発生するものと考えられ、レースウェイ内でピーク値を示したのちに、炉出口に向かって比較的高濃度の領域が伸びていることがわかる。しかしながら、 CO_2 、および H_2O の濃度はレースウェイから炉出口に向かって単調に減少するわけではなく、炉の中央付近で一旦それらの濃度は減少している。この領域は、図 4、および図 6 において観察されたとおり、極めて高温の還元雰囲気であることから、この領域内に存在するコークスは、 CO_2 によるソリュションロス反応や水蒸気ガス化反応を起こしており、これに起因して、 CO_2 、および H_2O の濃度が一旦低下するものと考えられる。

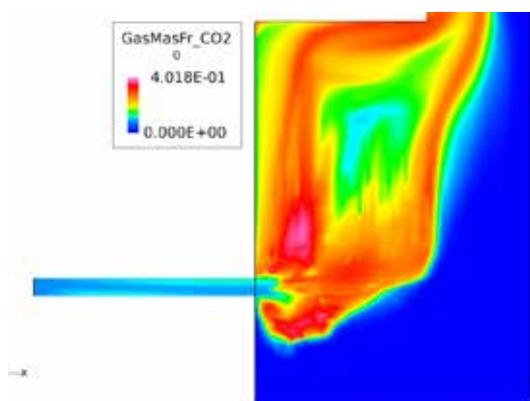


図 7 CO_2 濃度の分布

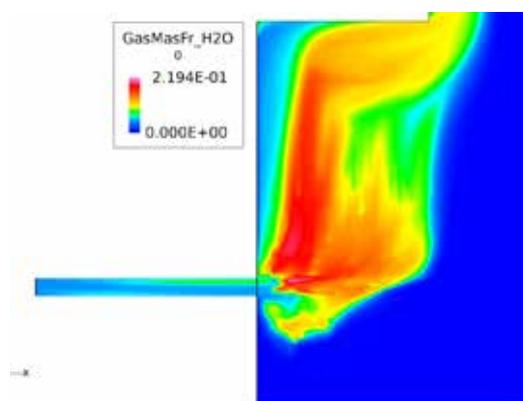


図 8 H_2O 濃度の分布

図 9 に CO 濃度を、図 10 に H_2 濃度の分布をそれぞれ示す。図より、 CO 、および H_2 の濃度は、図 7、および図 8 において観察された CO_2 、および H_2O 濃度が一旦低下する炉の中央付近にピーク値をもつことがわかる。これらは、コークスの CO_2 、および H_2O との固気反応 (式(24)、および式(25)を参照のこと) により発生したものと考えられる。

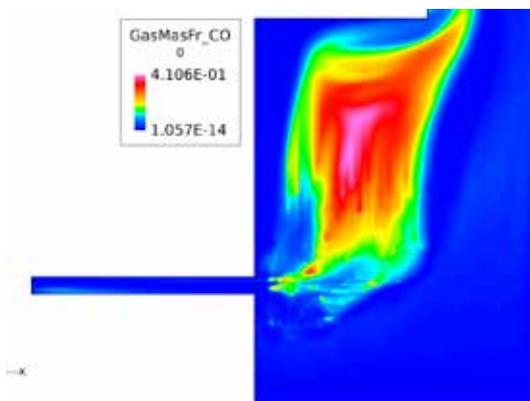


図 9 CO 濃度の分布

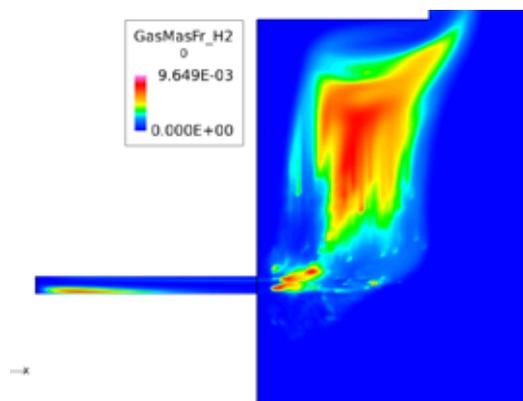


図 10 H_2 濃度の分布

図 11 に、微粉炭粒子の分布を示す。ただし、図は微粉炭粒子の質量によってスケールリングしている。図より、微粉炭粒子はレースウェイ内からその上方に集中して存在することがわかる。羽口部では大きな質量をもつ未燃粒子も存在するが、レースウェイ内ではほぼ燃焼は完結し、質量の小さな灰粒子へととなっている。

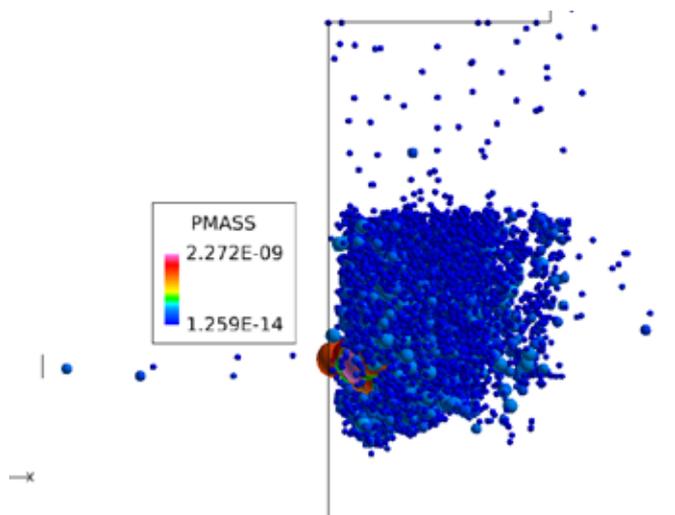


図 11 微粉炭粒子の分布

図 12 に、コークス粒子の分布を示す。ただし、図はコークス粒子の質量によってスケールリングしている。図より、羽口部からレースウェイ内のコークス粒子は質量が減少し、空間が生じていることがわかる。また、レースウェイから上方に向かってコークス粒子質量の小さな領域が広がっており、図 9、図 10 で観察された CO_2 、 H_2O との固気反応に起因する CO 、および H_2 の生成領域と一致している。

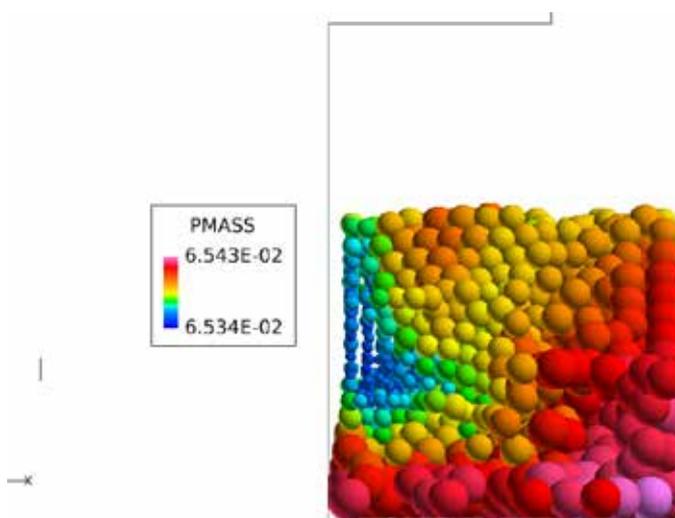


図 12 コークス粒子の分布

4. まとめ

本研究では、新たに DEM を用いたコークス充填層モデルを開発し、質点近似による微粉炭燃焼モデルをカップリングすることにより、レースウェイにおける固気二相反応流に対して LES をベースとする Eulerian-Lagrangian-DEM カップリング解析法を開発した。本手法により、微粉炭吹き込みによる羽口前レースウェイ形成過程を予測可能となった。今後は、より長時間の運転を評価可能にするため、DEM 解析の計算負荷低減、およびコークス反応の時間スケーリングに関する検討を進める予定である。

謝辞

本研究は、2018 年度の公益財団法人 JFE21 世紀財団の技術研究助成により行われました。ここに感謝の意を表します。

参考文献

- [1] 出口幹郎, 柴田耕一郎, 福岡正能, 高炉レースウェイ周辺部の圧力, 温度および炭材粉率におよぼす微粉炭吹き込みの影響, 鉄と鋼, 76(5) (1990), 691-698.
- [2] 山口一良, 鶴野建夫, 山本哲也, 上野浩光, 今野乃光, 松崎眞六, 微粉炭多量吹き込み時のコークス粉化機構と粉化抑制, 鉄と鋼, 82(8) (1996), 641-646.
- [3] Watanabe, H., Otaka, M., Numerical simulation of coal gasification in entrained flow coal gasifier, Fuel, 85 (2006), 1935-1943.
- [4] Watanabe, H., Tanno, K., Baba, Y., Kurose, R., Komori, S., Large-eddy simulation of coal combustion in a pulverized coal combustion furnace with a complex burner, Turbulence, Heat and Mass Transfer, 6 (2009), 1027-1030.
- [5] Kurose, R., Watanabe, H., Makino, H., Numerical simulation of pulverized coal combustion, KONA Powder and Particle Journal, 27 (2009), 144-156.
- [6] Watanabe, H., Kurose, R., Komori, S., Large-eddy simulation of swirling flows in a pulverized coal combustion furnace with a complex burner, Journal of Environment and Engineering, 4 (2009), 1-11.
- [7] Umemoto, S., Kajitani, S., Miura, K., Watanabe, H., Kawase, M., Extension of the chemical percolation devolatilization model for predicting formation of tar compounds as soot precursor in coal gasification, Fuel Processing Technology, 159 (2017), 256-265.
- [8] Watanabe, H., Tanno, K., Umetsu, H., Umemoto, S., Modeling and simulation of coal gasification on an entrained flow coal gasifier with a recycled CO₂ injection, Fuel, 142 (2015), 250-259.
- [9] Umetsu, H., Watanabe, H., Kajitani, S., Umemoto, S., Analysis and modeling of char combustion with heat and multicomponent mass transfer, Combustion

- and Flame, 161 (2014), 2177-2191.
- [10] Muto, M., Watanabe, H., Kurose, R., Komori, S., Balusamy, S., Hochgreb, S., Large-eddy simulation of pulverized coal jet flame -Effect of oxygen concentration on NO_x formation-, Fuel, 142 (2015), 152-163.
- [11] Ahn, S., Tanno, K., Watanabe, H., Numerical analysis of particle dispersion and combustion characteristics on a piloted coaxial pulverized coal jet flame, Applied Thermal Engineering, 124 (2017), 1194-1202.
- [12] Zhang, W., Tainaka, K., Ahn, S., Watanabe, H., Kitagawa, T., Experimental and numerical investigation of effects of particle shape and size distribution on particles' dispersion in a coaxial jet flow, Advanced Powder Technology, 29 (2018), 2048-2060.
- [13] Muto, M., Watanabe, H., Kurose, R., Large-eddy simulation of pulverized coal combustion in multi-burner system -Effect of in-furnace blending method on NO emission-, Advanced Powder Technology, 30 (2019), 3153-3162.
- [14] Cundall, P.A., Strack, O.D.L, A discrete numerical method for granular assemblies, Geotechnique, 29 (1979), 47-65.
- [15] Tsuji, Y., Kawaguchi, T., Tanaka, T., Discrete particle simulation of two-dimensional fluidized bed, Powder Technology, 77 (1993), 79-87.
- [16] 村尾明紀, 柏原祐介, 高橋功一, 大山伸幸, 松野英寿, 佐藤道貴, 微粉炭燃焼特性に及ぼす高炉への都市ガス吹き込みの影響, 鉄と鋼, 101 (2015), 653-660.
- [17] Niksa, S., Predicting the devolatilization behavior of any coal from its ultimate analysis, Combustion and Flame, 100 (1995), 384-394.
- [18] DesJardin, P.E., Frankel, S.H., Large eddy simulation of a nonpremixed reacting jet: Application and assessment of subgrid-scale combustion models, Physics of Fluids, 10 (1998), 2298-2314.
- [19] Smith, G.P., Hanson, R.K., Song, S., Gardiner, Jr. W.C., Lissianski, V.V., Qin, Z., in <http://www.me.berkeley.edu/gri_mech/>.
- [20] Umemoto, S., Kajitani, S., Hara, S., Modeling of coal char gasification in coexistence of CO₂ and H₂O considering sharing of active sites, Fuel, 103 (2013), 14-21.
- [21] Bhatia, S.K., Perlmutter, D.D., A random pore model for fluid-solid reactions: II diffusion and transport effects, AIChE Journal, 27 (1981), 247-254.