

技術論文

石炭膨張圧およびコークス強度におよぼす石炭粉碎粒度の影響

Effect of the Coal Size on Coking Pressure and Coke Strength

今野 沙緒梨*
Saori KONNO窪田 征弘
Yukihiko KUBOTA野村 誠治
Seiji NOMURA上坊 和弥
Kazuya UEBO土橋 厚
Atsushi DOBASHI土井 一秀
Kazuhide DOI

抄 録

コークス製造における課題として膨張圧の低減とコークス強度の向上が挙げられる。これらに対する手段として、石炭の細粒化に着目し、高膨張圧炭の細粒化による膨張圧の低減およびイナーートの細粒化によるコークス強度の影響について検討した。その結果、高膨張圧炭の細粒化により軟化熔融層内のガス透過性が増加し、膨張圧が低下することを明らかにするとともに、実機において、高膨張圧炭の細粒化によるガス圧の低減およびコークス押出負荷の低減を確認した。また、X線CT装置を用いた代表性の高いイナーートサイズの測定方法を確立し、イナーートサイズとコークス強度の関係性を調べた結果、数mmオーダーの粗大イナーートは細粒化するほどコークス強度が向上するが、イナーートを約1.5mm未満に細粒化してもコークス強度は向上しないことが分かった。

Abstract

To reduce the coking pressure and improve coke strength are important subjects in cokemaking process. Focusing on the fine crushing of coal as a means for these subjects, we investigated the reduction of the coking pressure by a selective fine crushing of high coking pressure coal and effect of the fine crushing of inertinite on coke strength. As a result, it is clarified that fine crushing of high coking pressure coals increases the gas permeability of the plastic coal layer, which decreases coking pressure, and at the commercial cokemaking plant, the internal pressure and maximum power current of coke pushing were decreased by the fine crushing of high coking pressure coal. And, a method of measuring the representative inert size using X-ray CT is established. In addition, from investigation of relationship of inert size and coke strength, it is clarified that the crushing of inert of 1.5 mm or more improves coke strength.

1. 緒 言

日本製鉄(株)では、これまでにコークス炉用装入炭の乾燥処理システム(CMC: Coal Moisture Control¹⁾, DAPS: Dry-cleaned and Agglomerated Precompaction System²⁾)を開発し、装入炭の水分を低下させて装入炭の嵩密度を向上させることにより、生産性の向上、省エネルギー化および高強度コークスの製造を達成してきた。高嵩密度操業は、石炭乾留時の膨張圧(軟化熔融した石炭の膨張により炉壁を押し出す力)を増大させるため、コークス押出負荷の増加となり、押出トラブルを引き起こす危険がある。そのため、膨張圧の管理が重要であり、膨張圧抑制のための石炭配合技術の検討を行ってきた³⁾。

その上、近年、コークス炉の老朽化が進んでおり、さらなる膨張圧の低減が求められている。また、高炉操業におけるCO₂削減のための還元材比の低減や、コークス製造コスト低減のための安価な非微粘結炭の増使用が求められており、さらなるコークス強度の向上も重要な課題である。

これら膨張圧の低減と、コークス強度の向上の両方に寄与する可能性がある手段として、石炭の細粒化が挙げられる。膨張圧に対しては、石炭細粒化による効果があるという報告⁴⁾や、むしろ増加すると述べている⁵⁾報告もあり、石炭細粒化による膨張圧低下のメカニズムは明確になっていない。一方、コークス強度に関しては、石炭細粒化に伴う石炭中のイナーチニット組織(以下、イナーートと略記)のサイズ低下が、コークス強度の向上に寄与すると考えられ

* プロセス研究所 製鉄研究部 主任研究員 千葉県富津市新富 20-1 〒293-8511

ている⁶⁾。しかし、代表性の高い石炭中のイナートサイズの測定方法が確立されておらず、イナートサイズとコークス強度の関係は十分に明らかになっていない。

そこで本報では、高膨張圧炭の細粒化による膨張圧低減に関して実験室レベルの基礎的な検討、および実機への適用について述べる。また、まず代表性の高いイナートサイズの測定方法を検討し、次にその方法によって測定されたイナートサイズとコークス強度の関係性を調べ、コークス強度向上に必要なイナートサイズの目標値を調べた。

2. 本 論

2.1 高膨張圧炭の細粒化による膨張圧低減⁷⁾

2.1.1 高膨張圧炭の細粒化による影響の実験室検討

(1) 実験条件

①試験コークス炉による軟化溶融層内ガス圧測定

実験室検討および後述の実機試験では、高膨張圧炭として、A炭、B炭、C炭を用いた。試験コークス炉⁸⁾において、石炭粒度3mm以下85%、装入密度850kg/m³の条件にて測定した各単味炭の最大軟化溶融層内ガス圧は、それぞれ170kPa、370kPa、50kPaであった。

高膨張圧炭であるB炭とC炭を25%～50%の割合で配合した6種類の配合炭(Test1～6)を用いた。Test1～4では、各単味炭をそれぞれの目標粒度に粉碎した後に配合し、Test5、6では所定比率で配合した後に目標粒度に粉碎した。

配合炭は、装入密度850kg/m³で試験缶に充填し、試験コークス炉にて18.5時間乾留した。軟化溶融層内ガス圧は、内径1mm、外径2mmのステンレス鋼管を用い、炉幅方向中央、炉長方向中央、炉底から120mmの位置で測定した。なお、軟化溶融層内ガス圧が、可動壁炉で測定した膨張圧と相関があることは事前に確認している。

②軟化溶融状態の石炭層ガス透過性

石炭粒度が軟化溶融層のガス透過性に及ぼす影響について検討するために、膨張した石炭を加熱して軟化溶融状態において、外部からガスを流通させたときの圧力損失をガス透過性として評価した。

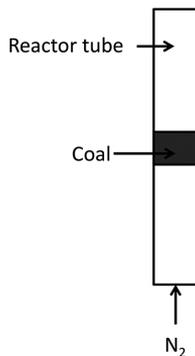


図1 軟化溶融石炭のガス透過性試験における反応管イメージ図
Reactor tube of plastic coal permeability test

図1に反応管のイメージ図を示す。石炭はSUSのwire meshで挟んで固定した。石炭を充填した反応管4本を加熱炉にセットし、反応管下部から窒素を10cm³/minにて流した。反応管上部は大気開放とし、集塵装置に接続した。室温から300℃までは10℃/min、300℃から600℃までは5℃/minで昇温し、反応管下部の圧力計で圧力を測定した。石炭はA炭およびB炭を用い、密度0.80g/cm³にて充填した。

(2) 実験結果と考察

図2に、石炭の平均粒径と軟化溶融層内ガス圧の関係を示す。横軸の平均粒径は、Test1～4では、細粒化した高膨張圧炭B炭、C炭のみの平均粒径であり、Test5、6では配合炭全体の平均粒径としている。図2に示すように、全ての条件において、石炭の平均粒径が小さくなるに伴い、軟化溶融層内ガス圧が大きく低下した。高膨張圧炭の細粒化によるガス圧抑制効果があることが分かる。

この理由について、軟化溶融層内ガス圧の支配因子の一つと考えられる軟化溶融層のガス透過性の観点から検討を行った。粒子充填層内における流速と通気抵抗の関係は、ダルシー則では(1)式にて表される。

$$u = (k/\eta) (\Delta P/L) \quad (1)$$

ここで、 u :流速[m/s]、 k :ガス透過係数[m²]、 η :ガス粘度[Pa·s]、 ΔP :圧力損失[Pa]、 L :層厚[m]である。圧力損失 ΔP により軟化溶融層のガス透過性を表現した。

図3に、温度に伴う圧力損失 ΔP の変化の一例を示す。圧力損失が、B炭の軟化溶融温度域で増大していること、およびB炭の細粒化とともに低下していることを確認した。図4に、A炭とB炭の平均粒径と圧力損失の最大値の関係を示す。高膨張圧炭の細粒化に伴い、圧力損失 ΔP_{max} は大きく低下しており、軟化溶融石炭層のガス透過性は大きく向上することが分かる。このことから、高膨張圧炭細粒化による軟化溶融層ガス圧の低下は、高膨張圧炭の細粒化による軟化溶融石炭層のガス圧透過性の向上によると示唆さ

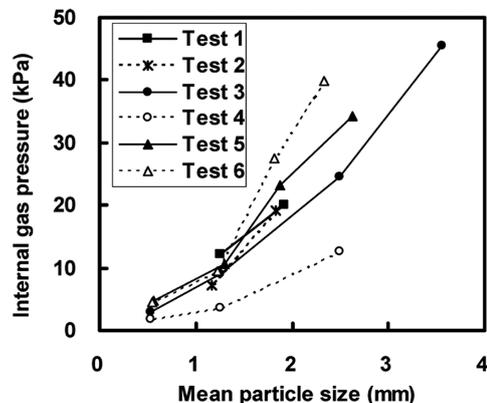


図2 軟化溶融層内ガス圧に対するB炭、C炭および配合炭の平均粒径の影響⁷⁾
Effect of mean particle size of coals B and C (in test1-4) and blended coal (in test5 and 6) on internal gas pressure⁷⁾

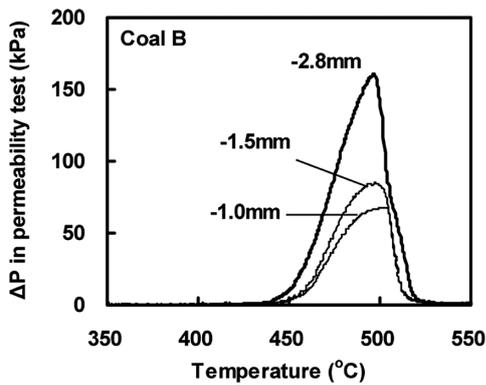


図3 温度に伴うガス透過性試験における圧力損失 (ΔP) の変化⁷⁾

Change in pressure drop in permeability test (ΔP) with temperature⁷⁾

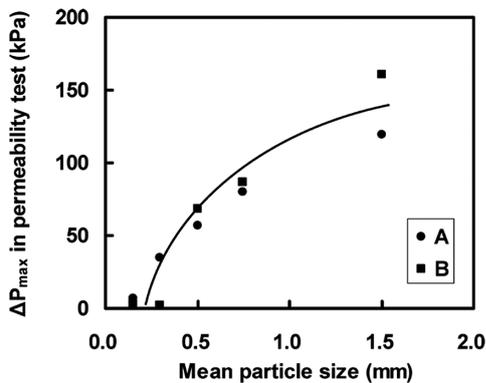


図4 ガス透過性テストにおける最大圧力損失 (ΔP_{max}) に対する石炭粒径の影響⁷⁾

Effect of coal particle size on maximum pressure drop (ΔP_{max}) measured in permeability test rig⁷⁾

れた。

2.1.2 実機における高膨張圧炭の細粒化

実験室知見をもとに、実機において、高膨張圧炭細粒化を行い、押出負荷低減を試みた。まず、君津製鉄所コークス工場において、数窯を対象に試験を行った。配合炭中の高膨張率炭 B 炭比率を 6% 一定とし、B 炭の粉碎粒度 3mm 以下比率を 85% から 93% に細粒化した。炉蓋から炉幅方向中心、装入孔下付近にステンレス鋼管を装入し、軟化溶融層内ガス圧を測定した。

図 5 に、B 炭の粉碎粒度に対する軟化溶融層内ガス圧、および最大押出電流値を示す。図 5 に示すように、高膨張圧炭の細粒化により、軟化溶融層内ガス圧が低下し、最大押出電流値も低下することを、実機にて確認した。

さらに、大分製鉄所コークス工場において、全窯を対象として試験を行った。配合炭中の高膨張率炭 A 炭比率を 4% とし、試験期間 17 日間において、A 炭の粉碎粒度 3mm 以下比率を 82% から 96% まで段階的に上昇させた。試験期間中のコークス炉稼働率は 121%、上部炉温は 1145°C、装入炭水分は 4.5% であった。図 6 に、A 炭の粉碎粒度

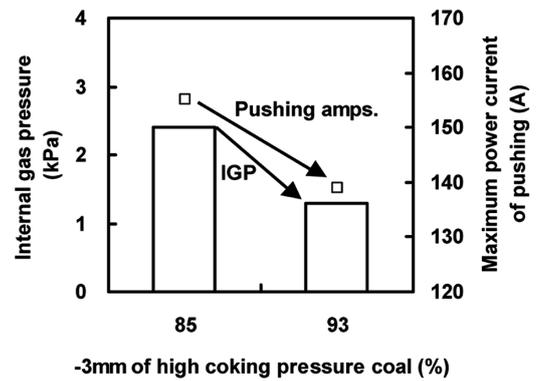


図5 実炉における軟化溶融層内ガス圧および最大押出電流に対する高膨張圧炭 B 炭粒度の影響⁷⁾

Effect of particle size of high coking pressure coal B on internal gas pressure and maximum power current of pushing in an actual coke oven chamber⁷⁾

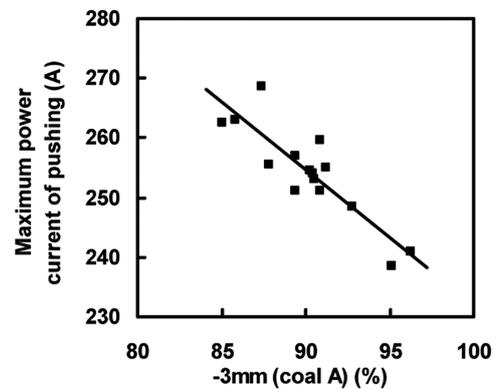


図6 高膨張圧炭 A 炭の粉碎粒度 3mm 以下比率と最大押出電流の関係⁷⁾

Relationship between $-3\text{mm}\%$ of high coking pressure coal A and maximum power current of pushing⁷⁾

3mm 以下比率と、最大押出電流の関係を示す。A 炭の粒度が細かいほど、最大押出電流が低くなっており、高膨張圧炭の細粒化により押出負荷が低減することが確認された。

2.2 代表性の高いイナートサイズの測定方法⁹⁾

2.2.1 イナートサイズの測定方法

石炭中のイナートは、乾留過程において軟化溶融しないため、石炭の状態からほとんど形態を変えることなくコークス中に残存する。一方、ビトリニットは、乾留過程において軟化および膨張し、発泡したコークス組織を形成する。そこで本報では、イナートの判別を容易にするため、乾留した後のコークス中におけるイナートサイズ分布を測定した。

また、測定の代表性を高めるため、短時間で広範囲の断面を撮像可能な X 線 CT を用いた。炉壁側から炭中側まで一体となった塊コークス数個について、炉壁に対して平行な断面を約 20 枚撮影した。撮像条件は、管電圧 120kV、管電流 100mA、スライス厚み 1mm、1 画素の寸法は 0.5mm

とした。解析領域の合計値は約 1500cm² である。

図 7 にコークスの X 線 CT 像の一例を示す。画像上の白い部分が X 線の吸収度の高い高 CT 値 (高密度) の部分、黒い部分が X 線吸収の低い低 CT 値 (低密度) の部分に対応する。コークス中のイナートは、発泡している他の組織に比べて気孔率が低いため、CT 像上では高密度の部分として認識される。そこで、密度の違いによってイナートと他の組織を判別し、画像解析によってイナートのサイズ (絶対最大長) を測定した。イナート判別の密度の閾値は、石炭中に所定粒度に調整したイナートを添加して乾留し、乾留後コークスの X 線 CT 像において判別されるイナートが所定粒度となる密度 (1.25g/cm³) に設定した。

2.2.2 イナートサイズの測定結果

本手法を用いて、石炭の細粒化に伴うコークス中のイナートサイズの変化を測定した。その結果の一例を図 8 に示す。ここでは、X 線 CT 測定用試料として、単味炭 (トータルイナート 33%) を 3mm 以下の比率で 71%, 89% および 96% に粉碎し、粉碎後の石炭を試験コークス炉で乾留して製造したコークスを用いた。

図 8 に示すように、石炭粉碎強化に伴うイナート組織のサイズ分布の変化が定量的に表されていることが分かる。これまで、顕微鏡写真を用いた画像解析では解析領域が小さく、石炭粉碎強化によるイナートサイズの変化を定量評価することが困難であったが、X 線 CT 装置を用いて解析領域を拡大することで、代表性の高いイナートサイズ分布の測定が可能になった。

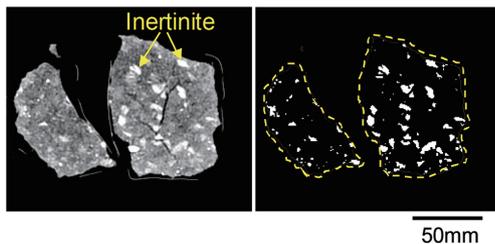


図 7 コークス中のイナートの識別⁹⁾
Distinction of inertinite in coke⁹⁾

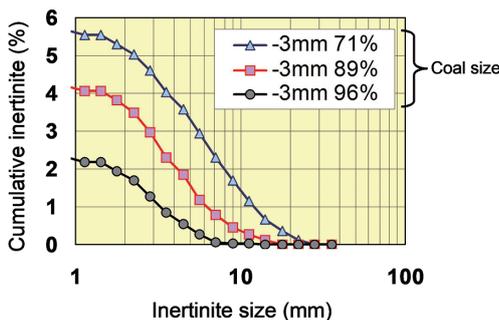


図 8 石炭粉碎粒度の変化に伴うイナート粒度分布の変化⁹⁾
Change in inertinite size distribution by coal crushing⁹⁾

3. イナート組織のサイズがコークス強度に及ぼす影響

3.1 試験方法

(1) 石炭試料の調整

イナートのサイズがコークス強度に及ぼす影響を調べるためには、サイズの異なる純粋なイナートを用いることが望ましい。しかし、数mmオーダーのサイズで純粋なイナートを得ることは困難である。そこで、石炭中のイナートが他の組織よりも硬く粉碎されにくい性質を利用し、イナート濃縮炭を以下のように調整した。

まず、トータルイナート比率 35.6% の A 炭の原炭を 15 mm の篩で篩分けた。篩上の塊炭を粉碎機で一次粉碎し、粉碎後試料をさらに 6mm で篩った。今後、この 6mm 以上の石炭を石炭 B (イナート濃縮炭) と呼ぶ。

次に、サイズのみ異なるイナート濃縮炭を作成するため、石炭 B を 0.3mm~0.6mm, 0.6mm~1.2mm, 2.0mm~4.0 mm, 5.0mm~7.0mm, および 10mm~15mm の粒度フラクションに調整した。なお 10mm~15mm の試料は、6mm 以上の石炭 B をさらに 10mm で篩い、篩上留分を 10mm~15mm に調整して作成した。各フラクションの組織成分を同一にする目的で、乳鉢を用いて石炭 B を弱粉碎し、フラクション未満の粉の発生を極力抑制しつつ粒度調整を行った。

(2) コークス製造条件

1.5mm に粉碎した A 炭に各粒度範囲に調整された石炭 B (イナート濃縮炭) を 15% 配合した配合炭を、試験コークス炉 (炉幅 420mm) にて 18.5 時間乾留し、コークスを製造した。なお、配合炭の装炭密度は 850kg/m³ とした。

乾留後の赤熱コークスは、窒素雰囲気中で常温まで冷却した。冷却後のコークスケーキから、X 線 CT 撮影用の試料として、炉壁側から炭中側まで一体化しているコークス塊を 2 個採取した。また、冷却後のコークスは、シャッター試験機で 2m の落下衝撃を 3 回与えた後、コークスのドラム強度指数 (JIS K 2151) を測定した。

3.2 試験結果

図 9 に石炭 B の粒度が異なるコークス塊の X 線 CT 像の例を示す。これらの画像に示すように、コークス中のイナートは石炭 B (イナート濃縮炭) の粒度とほぼ同じサイズで残存していることが分かる。

図 10 にこれらの X 線 CT 像の画像解析によって測定されたイナートのサイズ分布およびコークスのドラム強度 DI¹⁵⁰₁₅ を示す。なお、No.1, No.2 のイナートサイズについては、X 線 CT の解像度の関係から、コークスの顕微鏡写真の画像解析によって測定した。図 10 下図に示すように No.1, No.2 のコークスの DI¹⁵⁰₁₅ は、ほぼ同じ値を示す。一方で、No.3, No.4 および No.5 のコークスの DI¹⁵⁰₁₅ は、イ

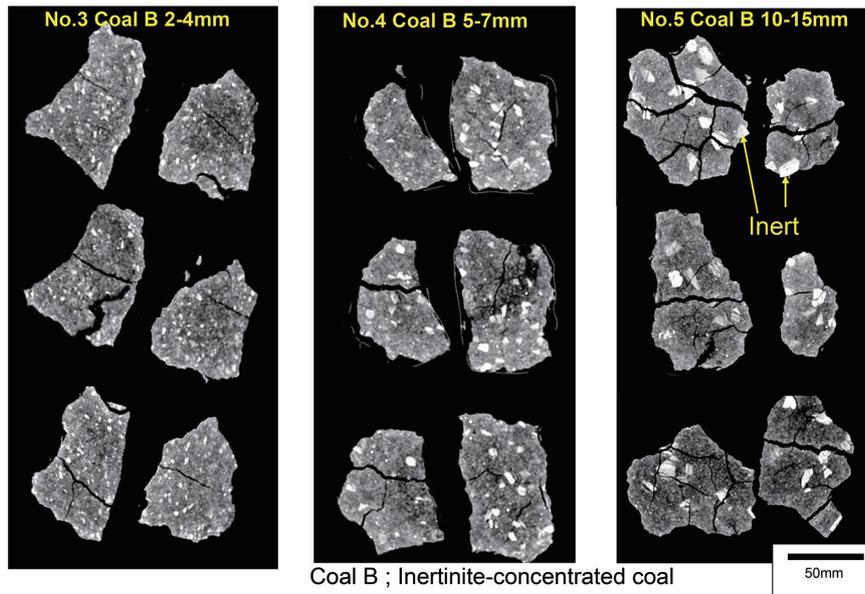


図9 石炭Bの粒度が異なるコークス塊におけるイナーテ Inertinite textures in coke with different size of coal B

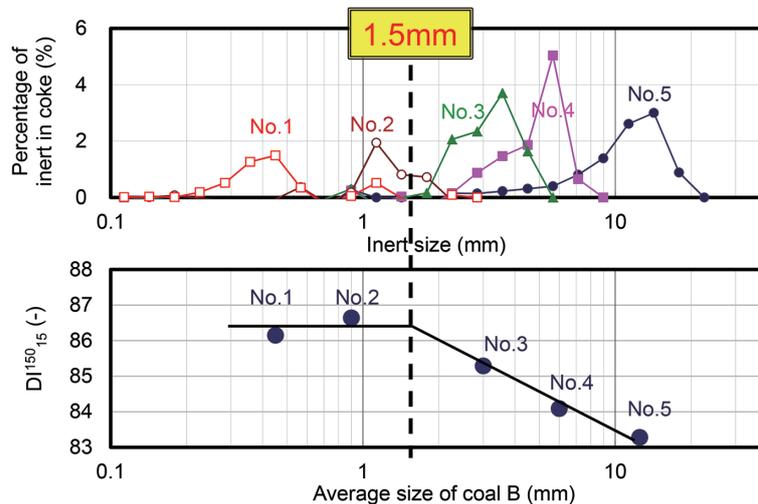


図10 イナーテ粒度分布とイナーテサイズによるコークス強度への影響¹⁰⁾
Size distribution of inertinite texture and effect of inertinite size on coke strength¹⁰⁾

ナーテ組織のサイズの増加に伴い低下している。これらの結果から、数mmオーダーの粗大イナーテ組織は、細粒化するほど DI^{150} は向上するが、イナーテ組織を 1.5mm 未満に細粒化しても DI^{150} は向上しないことが分かった。すなわち、コークス強度 DI^{150} に悪影響を及ぼし始めるイナーテサイズは 1.5mm 程度であることが分かった。

4. 結 言

高膨張圧炭の細粒化による膨張圧低減効果について検討し、高膨張圧炭の細粒化により軟化溶解層内のガス透過性が増加し、膨張圧が低下することを実験室試験にて明らかにするとともに、実機においても、高膨張圧炭の細粒化によるガス圧の低減およびコークス押出負荷の低減を確認した。

また、X線CT装置を用いた代表性の高いイナーテサイズの測定方法を確立し、イナーテサイズとコークス強度の関係性を調べた結果、数mmオーダーの粗大イナーテは、細粒化するほどコークス強度 DI^{150} は向上するが、イナーテを約 1.5mm 未満に細粒化しても DI^{150} は向上しないことが分かった。すなわち、コークス強度 DI^{150} に悪影響を及ぼし始めるイナーテサイズは約 1.5mm であることが分かった。

以上より、膨張圧の低減およびコークス強度向上にとって、石炭の細粒化が有効な手段であることを明らかにした。その一方で、一般的に石炭の細粒化は、装入炭嵩密度の低下によるコークス生産性やコークス強度の低下を引き起こしたり、微粉増加に伴う炉壁付着カーボン増加による押出負荷増加などに繋がったりする可能性がある。そのため、

実操業においては石炭の細粒化を実施する際には、これらの影響に注意しながら行うことが必要である。

参考文献

- 1) Wakuri, S. et al.: AIME 45th Ironmaking Conference Proceedings. 303 (1986)
- 2) Nakashima, Y. et al.: 2nd Int. Cokemaking Congr. London, UK, 1992, p.518
- 3) Nomura, S. et al.: Fuel. 83, 1771 (2004)
- 4) Loiso, R. et al.: Coke Quality and Production. Butterworth Publications, London, 1989, p.353
- 5) Brysh, O.P. et al.: Research Buletin 11. Institute of Gas Technology, Chicago, 1951
- 6) Miura, Y. et al.: J. Fuel Soc. Jpn. 60, 771 (1981)
- 7) Nomura, S. et al.: Tetsu-to-Hagané. 96, 265 (2010)
- 8) Nomura, S. et al.: Fuel. 75, 801 (1996)
- 9) Kubota, Y. et al.: 材料とプロセス. 30, 664 (2017)
- 10) Kubota, Y. et al.: Testu-to-Hagané. 92, 833 (2006)



今野沙緒梨 Saori KONNO
プロセス研究所 製鉄研究部 主任研究員
千葉県富津市新富20-1 〒293-8511



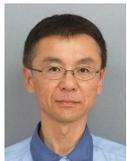
上坊和弥 Kazuya UEBO
プロセス研究所 製鉄研究部 主幹研究員



窪田征弘 Yukihiro KUBOTA
技術開発企画部 主幹 博士(環境科学)



土橋 厚 Atsushi DOBASHI
名古屋製鉄所 製鉄部 コークス工場長



野村誠治 Seiji NOMURA
プロセス研究所 製鉄研究部長 Ph.D



土井一秀 Kazuhide DOI
大分製鉄所 製鉄部 コークス工場長