

# 論文 コークス化機構を考慮した乾留モデルの開発

西岡 邦彦\*・吉田 周平\*・播木 道春\*

## Development of the Carbonization Simulation Model with Consideration of Coking Mechanism

Kunihiko NISHIOKA, Shuhei YOSHIDA, and Michiharu HARIKI

### Synopsis :

A simulation model which enables the estimation of the carbonizing condition in a coke oven in view of both coke qualities and heat transfer, is proposed. The validity of the model is confirmed through both laboratory-scale and actual-scale coke ovens. The features of the model are described as follows;

(1) Density variation in the coal and coke zones across the oven width during carbonization is consecutively calculated and used as an input value for coke quality estimation and heat transfer calculation.

(2) Porosity, micro-strength, and graphitization during carbonization are consecutively calculated and used as input values for the estimation of coke strength and reactivity. Coke strength is estimated with consideration of the effect of structural defect which may be caused by the incomplete bonding of coal particles.

### 1. 緒 言

コークス炉内の乾留状況を品質と伝熱の両面から同時に推定できれば、高炉が必要とする品質のコークスを必要量だけ最も経済的に製造する指針が容易に得られよう。

本来、コークス品質と伝熱とは表裏一体の関係にあり、両者を切り離して考えることはできないが、両者を結びつける理論構成が不十分であつたことから、これまでコークス品質としての強度および反応性推定やコークス炉の伝熱シミュレーションの研究は、それぞれ単独に行われてきた<sup>1)~12)</sup>。

著者らは既報<sup>13)</sup>で示したコークス化機構の検討結果を踏まえ、コークス炉内の乾留状況を品質と伝熱の両面から推定できる乾留モデルの開発を進めてきた。そして一方において、実炉の解析に必要な基礎データの収集作業<sup>14)15)</sup>を約 10 年にわたつて続けてきた。

これらの検討により、実炉の操業解析に十分活用できるコークス炉乾留モデルを開発できたので、以下に本モデルの構成内容と検証例を説明する。

### 2. コークス炉乾留モデル

#### 2.1 モデルの概要

本モデルは乾留過程のコークス品質と伝熱の状況を、

Fig. 1 に示すような炉幅方向のみの 1 次元モデルとして計算するもので、その具体的な構成は Fig. 2 に示すとおりである。

ここで特徴的なのは、炉幅方向の任意の位置の石炭層およびコークス層の密度変化を、既報<sup>13)</sup>のコークス化機構の検討結果にもとづいて定量化する点にある。すなわ

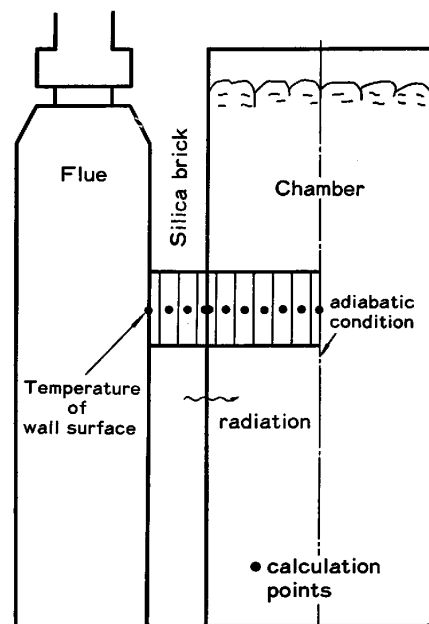


Fig. 1. Simulation model of the coke oven.

昭和 57 年 9 月 本会講演大会にて発表 Trans. ISIJ Vol. 23 (1983) Nos. 5 & 6 に一部掲載  
昭和 58 年 2 月 25 日 受付 (Received Feb. 25, 1983)

\* 住友金属工業(株)中央技術研究所波崎研究センター (Hasaki Research Center, Central Research Laboratories, Sumitomo Metal Industries, Ltd., 16 Oaza-Sunayama Hasakimachi Kashima-gun Ibaraki pref. 314-02)

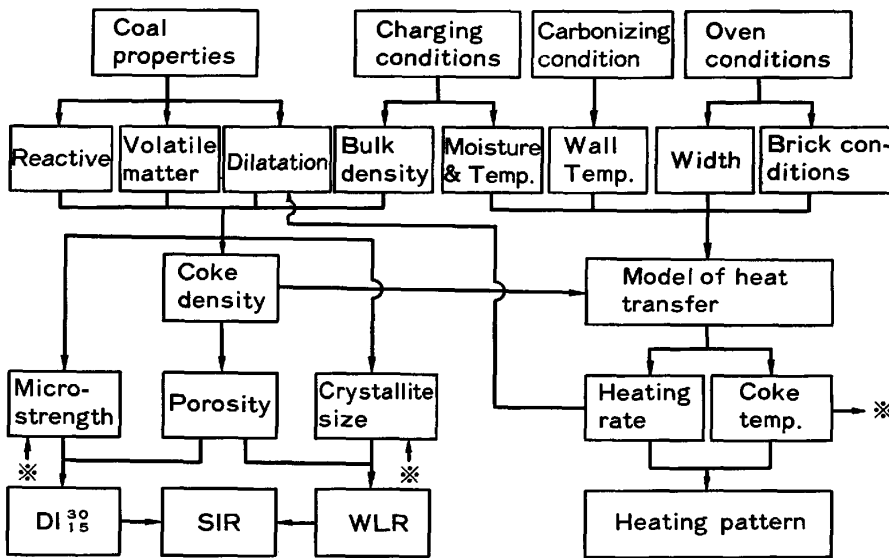


Fig. 2. Construction of the simulation model.

ち(1)式に示す密度計算式にもとづいて、乾留過程の密度を逐次計算し、伝熱計算とコークス品質計算の入力値とするものである。

$$\rho_i = \frac{W_{Ci} - W_{Oi} + W_{Ii}}{(1 - \epsilon) V_i} \dots\dots\dots (1)$$

- ここで、 $\rho_i$  : 任意の分割部分  $i$  の密度 [kg/l]
- $W_{Ci}$  : 分割部分  $i$  に装入された石炭のコークス化量 [kg]
- $W_{Oi}$  : 分割部分  $i$  より流出する溶融物のコークス化量 [kg]
- $W_{Ii}$  : 分割部分  $i$  に流入するガスや溶融物からのコークス化量 [kg]
- $V_i$  : 分割部分  $i$  の体積 [l]
- $\epsilon$  : コークスの体積収縮率 [—]

上記(1)式で計算される密度は(2)式に示す熱伝導方程式中の  $\rho$  として用いる。

$$C_p \rho \frac{\partial T}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial X} \left( \lambda \frac{\partial T}{\partial X} \right) - q \dots\dots\dots (2)$$

- ここで、 $C_p$  : 比熱、 $\rho$  : 密度、 $\lambda$  : 熱伝導率、 $q$  : 反応熱、 $T$  : 温度、 $t$  : 時間、 $X$  : 距離。

また(1)式で計算される密度は、コークスの真比重( $\rho_{ci}$ )を用いて気孔率( $P_i = 1 - \rho_i / \rho_{ci}$ )に換算し、既報<sup>19)</sup>で示したコークスの強度および反応性計算の入力値とする。さらに伝熱計算から得られる 300~500°C における加熱速度は、石炭膨張率<sup>16)</sup>の計算入力値として用い、乾留温度はコークスの真比重とマイクロ強度および黒鉛化度計算<sup>13)</sup>の入力値として使用される。

このようにして本モデルでは、炉幅方向の乾留状況をコークス品質と伝熱の両面から同時に推定することが可能である。

## 2.2 モデルの具体的構成

### 2.2.1 伝熱計算モデル

前記(2)式は、本来は均質な固体平板の内部吸発熱を伴う熱伝導に適用されるもので、石炭からコークスに変化していく過程の熱移動に適用するには、多くの外乱要因を考慮する必要がある。そこで本モデルで特に考慮した熱物性値の取り扱いと水分および発生ガスの取り扱い方法について以下に説明する。

#### (A) 熱物性値の取り扱い方法

①嵩密度：具体的方法は後記 2.2.2-(1)に示す。

②比熱および熱伝導率：

- i) 石炭からコークスになるまでの反応熱を含めた比熱と石炭層およびコークス層を均質な固体とみなした熱伝導率については、いくつかの報告<sup>17)18)</sup>がなされている。本モデルでは比熱については AGROSKIN ら<sup>17)</sup>の測定値、また熱伝導率については三浦ら<sup>18)</sup>の測定値を参考に、著者らのコークスについて測定した比熱および熱伝導率値と組み合わせ、Fig. 3 に示す実線値を用いている。

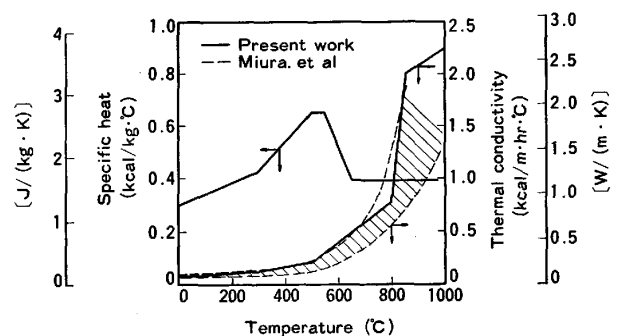


Fig. 3. Specific heat and thermal conductivity of the charge.

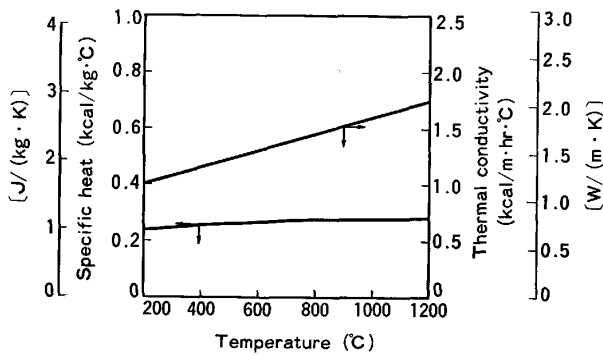


Fig. 4. Specific heat and thermal conductivity of the silica brick used by the actual oven.

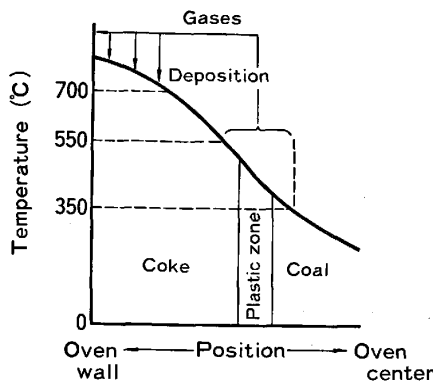


Fig. 5. The illustration of the mechanism of deposition from gas.

ii) れんがの熱物性値は、著者らが実際のコークス炉で使用されたれんがについて測定した Fig. 4 の値を用いている。

(B) 水分蒸発と発生ガスの取り扱い方法

①水分蒸発は、D. MERRICK の報告<sup>12)</sup>と同様に取り扱っている。

②水蒸気と石炭からの熱分解ガスが壁側のコークス層を通過する時には、各部分のコークス層と熱交換していくものとして取り扱っている。

なお、上記水分の蒸発および凝縮熱、さらには水蒸気および熱分解ガスがコークス層と熱交換する際の熱収支計算は、前記(2)式の反応熱  $q$  の項で取り扱う。

2.2.2 コークス品質計算モデル

コークスの強度および反応性は、基本的には気孔率、マイクロ強度および黒鉛化度により評価できることを既報<sup>19)</sup>で明らかにした。従つてコークス品質計算の主体は、これら3物性値の計算を行うことである。以下にこれらの計算方法の概略を説明する。

(1) 気孔率の計算方法

(A) 熱分解ガスからのコークス化量

熱分解ガスが高温コークス層で一部デポジットし、気

孔率を低減させる効果は、既報<sup>18)</sup>の検討結果にもとづいて、以下の取り扱いで計算される。

①熱分解ガスは、Fig. 5 に示すごとく、350~550°C の温度域で発生後、すべて壁側コークス層を通過するものとし、700°C でデポジットを開始し、1000°C までに完了する。

②上記温度域で発生した熱分解ガス中にデポジットし得るコークス量は、原料石炭の揮発分に依存するものとし、次式で与える。

$$Y_G = 2.5 \times 10^{-5} VM(100 - VM) \dots\dots\dots (3)$$

ここで、 $Y_G$ : デポジットコークス量 [kg/kg-coal]

$VM$ : 原料石炭の揮発分 [%]

なお、モデル上では、350~550°C の温度域において、熱分解ガスは一定速度で発生するものとして扱っている。従つて上記温度域で 1°C 上昇するごとに、デポジットコークスは(3)式で与えられる量の 1/200 だけ壁側に向かつて流れるとして扱う。

③壁側コークス層の任意分割部分におけるデポジットコークス量は、伝熱計算で算出される温度にもとづき、既報<sup>13)</sup>で示したコークス温度とデポジットコークス量の関係図をテーブル関数とし、前記2で示したコークス量を配分する。

(B) 溶融物からのコークス化量

溶融物が炭中側の石炭層を圧密する一方、壁側コークス層に浸透してコークス化し、気孔率を低減させる効果は、モデル上では次のように取り扱っている。

Fig. 6 において、炉幅方向の任意の分割部分  $i$  に着目した場合、石炭の膨張開始前の段階 (a) では、壁側

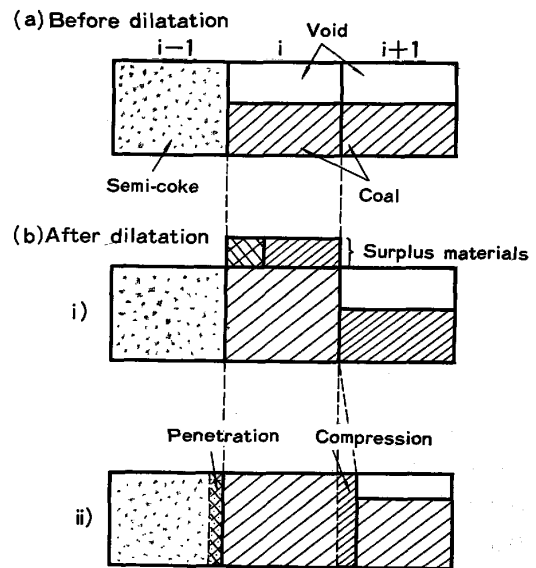


Fig. 6. Transfer model of melting materials in coal.

i-1 はセミコークス層を形成し、炭中側 i+1 は空隙をもつ粉炭層である。次いで分割部分 i の石炭が膨張し、その膨張体積 (a) の状態における空隙体積以上になると、余剰膨張が生じる (b-i)。

なお、石炭の膨張率は加熱速度に大きく左右されるが、その関係は次式で表すことができる<sup>16)</sup>。

$$D_i = 1.114D_0(\log \alpha_i + 0.42) \dots\dots\dots (4)$$

ここで、 $D_0$ : 加熱速度  $3^\circ\text{C}/\text{min}$ における真膨張率 [%]

$\alpha_i$ : 分割部分 i の加熱速度 [ $^\circ\text{C}/\text{min}$ ]

このようにして生じた余剰膨張部分は、炭中側分割部分 i+1 の石炭層の圧密と壁側分割部分 i-1 のコークス層への浸透とに配分する (b-ii)。この配分比率については現在パラメータとして取り扱っている。そして壁側コークス層に浸透した溶融物は石炭揮発分量に応じてコークス化量に変換される。

(C) 軟化層の体積変化とコークス収縮の取り扱い方法

軟化層の体積変化やコークスの収縮は、(1)式に示す密度に影響を及ぼす。そこで本モデルでは、これらの影響を以下のように取り扱っている。

Fig. 7 に示すごとく、装炭時 (図-i) における任意の分割部分 i は、壁側分割部分 i-1 が軟化し余剰膨張が発生すれば圧密 (図-ii) される。次いで分割部分 i が軟化し、余剰膨張が発生すれば炭中側分割部分 i+1 の石炭層を圧密してその体積を拡大する一方、壁側コークス層の収縮によりその体積は更に拡大 (図-iii) される。そして分割部分 i が固化すると、Fig. 8 に見られる乾

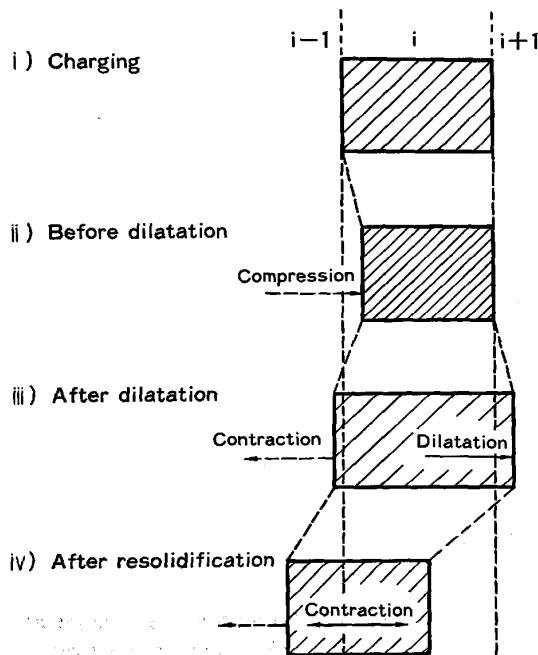


Fig. 7. Changes in coke volume.

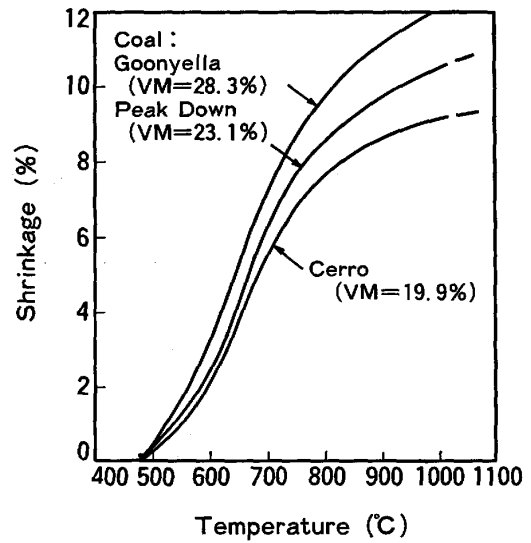


Fig. 8. Relation between heating temperature and shrinkage of coke during carbonization.

留温度に応じた収縮が起こり (図-iv)、炭中側に移動した軟化層の拡幅に影響を及ぼすとする扱いをした。

上記 (A) (B) (C) から得られる結果は、(1)式で示した密度計算に用いられ、次いで気孔率に換算される。

(2) マイクロ強度の計算方法

マイクロ強度が主に石炭化度と乾留温度に大きく依存する<sup>13)</sup>ことから、モデルでは原料石炭の反射率と伝熱計算から出力される乾留温度を次式に入力し、マイクロ強度を計算する。

$$MI_i = -91.1(\bar{R}_0 - 1.16)^2 + 6.28 \times 10^{-2} \cdot (T_i - 1000) + 55.0 \dots\dots\dots (5)$$

ここで、 $MI_i$ : 任意の分割部分 i のマイクロ強度 [-]

$\bar{R}_0$ : 原料石炭の平均反射率 [%]

$T_i$ : 分割部分 i の乾留温度 [ $^\circ\text{C}$ ]

(3) 黒鉛化度の計算方法

黒鉛化度は石炭化度と不活性成分量および乾留温度に依存する<sup>13)</sup>ことから、モデルでは原料石炭の揮発分と伝熱計算から出力される乾留温度を次式に入力し、黒鉛化度を算出する。

$$L_{Ci} = (-0.189VM - 6.25 \times 10^{-2}TI + 23.1) \exp[6.74 \times 10^{-4}(T_i - 1000)] \dots\dots\dots (6)$$

ここで、 $L_{Ci}$ : 任意の分割部分 i の黒鉛化度 [ $\text{\AA}$ ]

$VM, TI$ : 原料石炭の揮発分, 不活性成分量 [%]

上記の手法により気孔率  $P$ 、マイクロ強度  $MI$ 、黒鉛化度  $L_C$  が計算されれば、次式にもとづいて強度および反応性が算出される。

①強度:  $DI_{15}^{10}$

$$DI_{15}^{10} = 100 \exp[-0.81 \{ (11.4MI - 114) \exp(-4.2P) \}^{-0.60}] \dots\dots\dots (7)$$

ただし、上式はコークスを構造欠陥のない多孔体とみなした場合に適用できるものである。石炭の軟化熔融時における粒子間結合が不十分なためにコークス中に構造欠陥を生ずる場合は、既報<sup>13)</sup>で述べた空隙体積の充填率  $F_v$  を強度計算に導入した次式を用いる。

$$DI_{10}^0 = 100 \exp[-0.81 \{F_v(11.4MI - 114) \exp(-4.2P)\}^{-0.60}] \dots\dots\dots (8)$$

すなわち、 $F_v \geq 1$  の場合は(7)式を、 $F_v < 1$  の場合は(8)式を用いて強度計算を行う。

②反応性：WLR, SIR<sup>19)</sup>

$$WLR = 160(P - 0.102)^{0.67} \exp(-6.08 \times 10^{-2} L_0) \dots\dots\dots (9)$$

$$SIR = (3.52 \times 10^{-2} DI_{10}^0 + 1.74) (-0.298 WLR + 20.3) \dots\dots\dots (10)$$

### 3. モデルの検証

モデルの検証は、250 kg 試験コークス炉による実験室的検証と実際の大型コークス炉による実炉検証の両方で実施した。以下にそれらの詳細を説明する。

#### 3.1 実験室的検証

Table 1 に示す配合炭を水分 8%、嵩密度 720 kg/m<sup>3</sup> の条件で、炉幅 450 mm を有する 250 kg 試験コークス炉に装入し、発熱体温度 1140°C、乾留時間 24 h で乾留した。なお炉幅方向の各位置における乾留温度の推移については、既報<sup>19)</sup>と同様に炉幅方向に壁側から炭中まで9本の熱電対をセットして測定した。

これらの測定結果は、モデル計算値とともに Fig. 9

Table 1. Properties of the blended coal.

Ash (%, d. b.)	Volatile matter (%, d. b.)	Max. fluidity (log ddpm)	Total reactive (%)	Mean reflectance (%)
8.2	26.8	2.20	79.0	1.15

~14 に示した。これらの図から明らかのように、炉幅方向の各位置における軟化帯温度域 (300~500°C) の加熱速度、気孔率はもとより、昇温パターンについても実測値と計算値とが良好一致を示した。そして Fig. 12, 13, 14 に見られるように、炉幅方向の各位置におけるコークスの強度および反応性の挙動を計算できる点は本モ

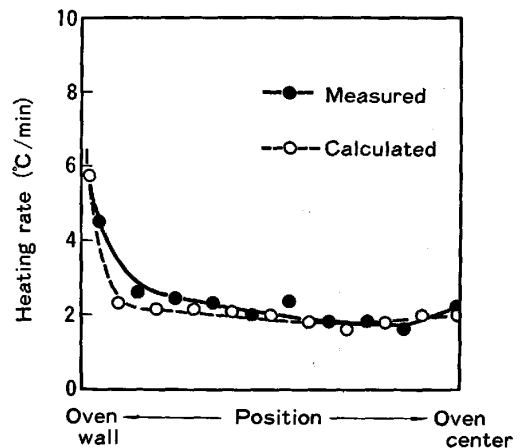


Fig. 9. Heating rates across the oven width.

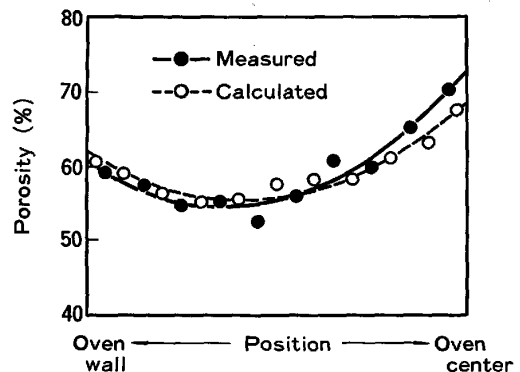


Fig. 10. Variation of porosity across the oven width.

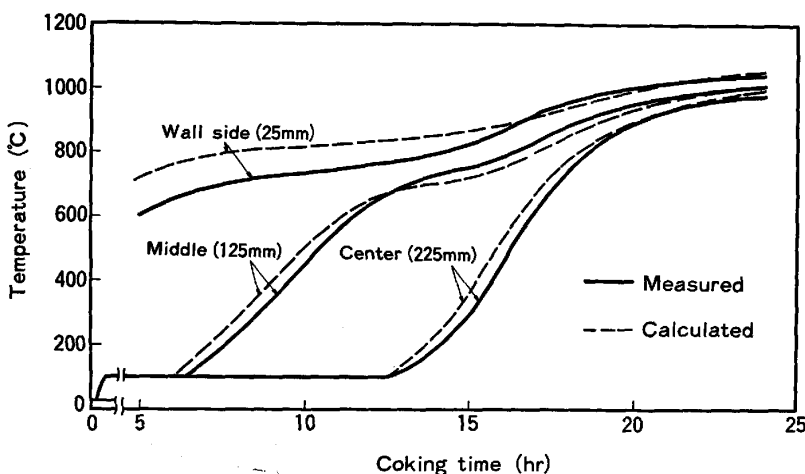


Fig. 11. Temperature change at different points across the oven width.

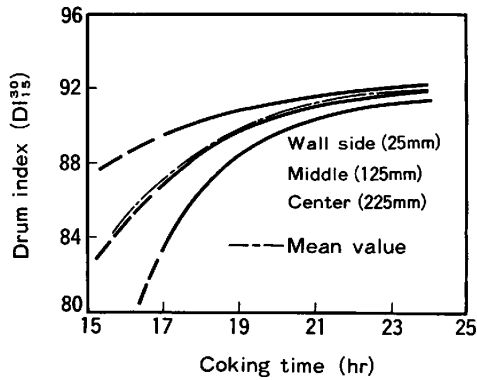


Fig. 12. Variation of calculated JIS drum index during carbonization at different points across the oven width.

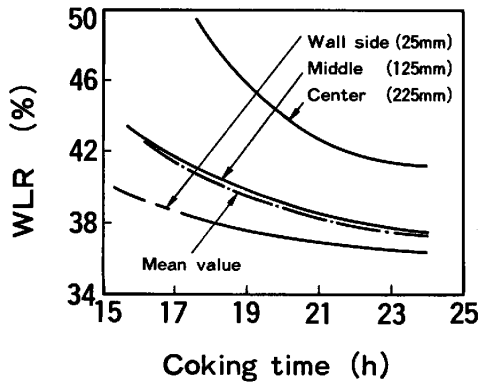


Fig. 13. Variation of calculated WLR during carbonization at different points across the oven width.

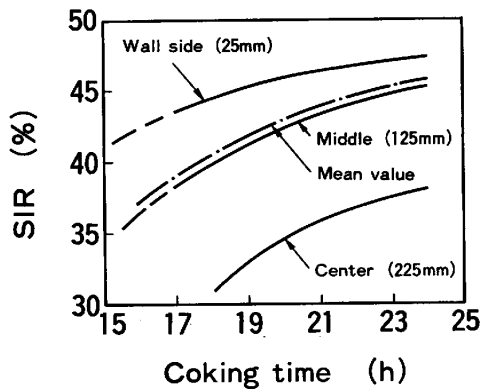


Fig. 14. Variation of calculated SIR during carbonization at different points across the oven width.

デルの特徴でもある。ここで図中の---で示される曲線は炉幅方向の各位置における強度および反応性の加重平均値の推移を示したものであるが、乾留時間 24 h 後の計算値 ( $DI_{13}^{\circ}=91.9$ ,  $WLR=37.3$ ,  $SIR=45.5$ ) と実測値 ( $DI_{13}^{\circ}=91.8$ ,  $WLR=37.0$ ,  $SIR=46.7$ ) とは極めて良く一致することが確認された。

### 3.2 実炉検証

#### 3.2.1 実炉データの収集

モデルの実炉検証のためには、モデル計算に必要な燃焼室壁温度と炭化室内の装入炭嵩密度分布を事前に測定しておかなければならない。さらに炭化室内の各位置に於けるコークス品質と炭中温度の値を正確に測定し、実測値と計算値とを対比できることが不可欠である。これらの実炉でのデータ収集方法については既に報告<sup>14)15)</sup>もあり、ここでは簡単に説明する。

- ① 対象コークス炉：住金化工(株)鹿島製作所  
II-C 炉 (コッパース式)
  - i) 炉体諸元：炉高 7.125 m, 炉長 16.5 m, 炉幅 0.46 m
  - ii) 操業条件：負荷率 100~120% (乾留時間 24~20 h)
- ② 燃焼室壁温度の測定：光高温計内蔵の水冷プローブ<sup>14)</sup>による測定。測定結果の 1 例を Fig. 15 に示す。
- ③ 炭化室内の装入炭嵩密度分布の測定：実炉と炉高と炉幅が同寸法の鋼製模型設備<sup>15)</sup>により測定。測定結果の 1 例を Fig. 16 に示す。

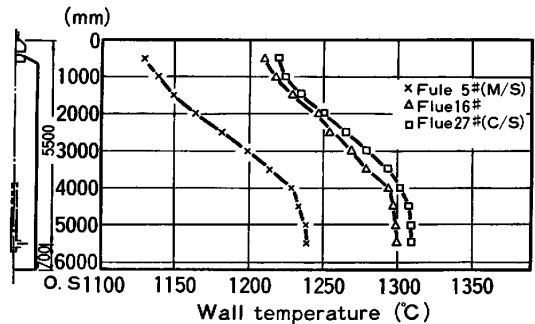


Fig. 15. Characteristic distribution of wall temperature from C/S to M/S (8 min after the end of combustion, No. 138 flue, battery II-C)

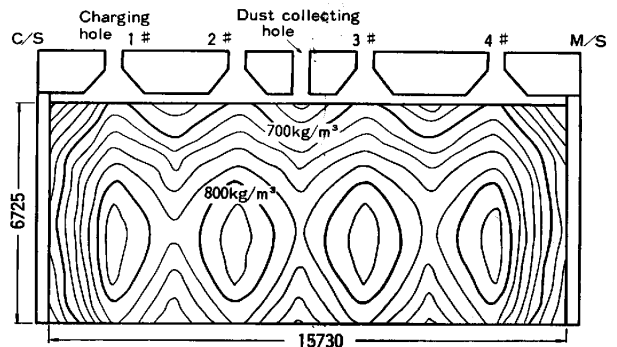


Fig. 16. The bulk density measured at the actual scale model oven. (moisture: 8.9%, mean bulk density: 735 kg/m<sup>3</sup>)

Table 2. Properties of the charged coal.

Total moisture (%)	Volatile matter (% d. b.)	Ash (% d. b.)	Total dilatation (%)	Max. fluidity (log ddpm)	Total reactive (%)	Mean reflectance (%)
8.2~8.9	26.5~27.2	8.1~8.5	51~70	2.10~2.26	75.6~78.3	1.12~1.15

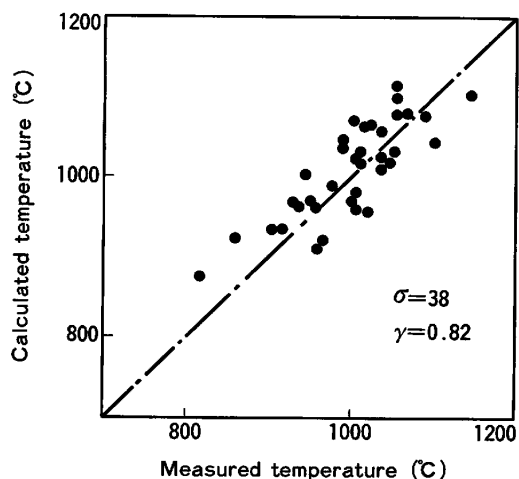


Fig. 17. Comparison of the measured temperature with the calculated one in oven center at the pushing time.

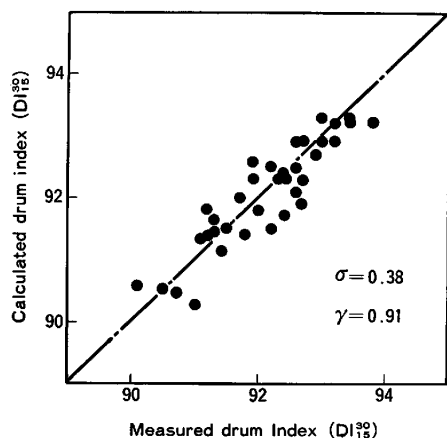


Fig. 18. Comparison of the measured values with the calculated values in JIS drum index.

④ 炭中温度の測定とコークスのサンプリング：コークスサンプリング用バスケットを炭中温度測定用熱電対保護管に取り付け、炉上の各石炭装入口より炭化室に垂下後、装炭して炭中温度を測定。さらにバスケットに捕集されたコークスをサンプリング<sup>15)</sup>し、コークス品質を測定。

なお、本測定期間に使用された装入炭の性状は、Table 2に示すとおりである。

### 3.2.2 検証結果

まず炭化室内の各位置における窯出し時の炭中温度(窯出温度)について、モデル計算値と実測値とを比較し

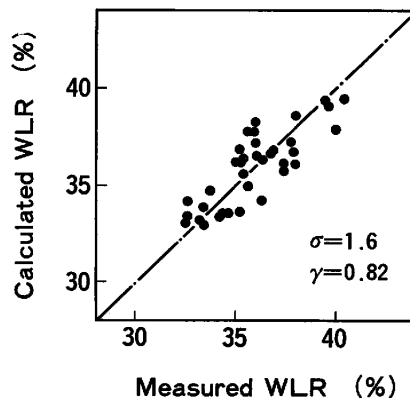


Fig. 19. Comparison of the measured values with the calculated values in WLR.

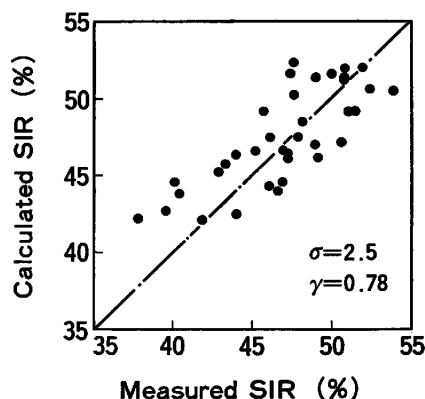


Fig. 20. Comparison of the measured values with the calculated values in SIR.

た結果、Fig. 17に示すように若干のばらつきはあるものの比較的良く一致することが確認された。

またコークスの強度 ( $DI_{10}^{90}$ ) および反応性 (WLR, SIR) についても、炭化室内の各位置における窯出し時の品質をモデル計算し、バスケットサンプルで得られたコークスの実測品質値と比較した。その結果は Fig. 18, 19, 20に示すごとく  $DI_{10}^{90}$ , WLR, SIRとも良く一致することが確認された。なおコークスの強度が低く、反応性の悪い (WLRが高く、SIRが低い) 部分は、炉上部および装入口間に多いことが認められた。この理由として、炉上部は装入炭の嵩密度が低く、かつ燃焼室の壁温度の低いことが大きく影響し、装入口間は装入炭の嵩密度が装入口直下より低いことの影響が大きいとモデル的に推定された。

すなわち嵩密度が低いとコークスの気孔率が大きくな

り、燃焼室の壁温度が低いとコークスの基質強度および黒鉛化度が低下し、強度および反応性に悪影響を及ぼすことになる。

#### 4. 結 言

今回、コークス炉内の乾留状況をコークス品質と伝熱の両面から同時に精度よく推定できる乾留モデルの内容と検証例について報告した。本モデルの特徴とする点は次の2点にある。

(1) 乾留過程における炉幅方向の石炭層およびコークス層の密度変化を、既報<sup>13)</sup>で説明したコークス化機構の概念にもとづいて計算し、伝熱計算とコークス品質計算の入力値とする。

(2) コークス品質の計算は、乾留過程の気孔率、マイクロ強度および黒鉛化度を逐次算出し、既報<sup>19)</sup>で示した強度および反応性評価式の入力値とする。なおコークスの強度計算において、石炭粒子の結合が不十分なために生ずる構造欠陥は既報<sup>13)</sup>の空隙体積の充填率  $F_v$  を導入して精度向上を図った。

そして本モデルは、実験室規模および実炉規模の検証テストにより、その妥当性が確認された。

最後に、本研究を遂行するにあたり、終始御指導を賜りました住友金属工業(株)中央技術研究所西岡邦夫所長、白岩俊男元技監、赤松経一前波崎研究センター所長、同研究所次長羽田野道春博士に厚く感謝の意を表します。

また、本研究の実炉検証に際し、コークスサンプルおよび貴重な実炉データを提供いただいた住金化工(株)関係者各位に厚く感謝する次第であります。

#### 文 献

- 1) I. I. AMMOSEV, I. V. EREMIN, S. F. SUKHENKO, and L. S. OSHURKOV: *Koks i Khimiya* (1975) 12, p. 9
- 2) N. SCHAPIRO and R. J. GRAY: *J. Inst. Fuel*, 37 (1964), p. 234
- 3) H. R. BROWN, G. H. TAYLOR, and A. C. COOK: *Fuel*, 43 (1964), p. 43
- 4) 城 博: *燃料協会誌*, 26 (1947), p. 1, p. 98
- 5) 宮津 隆, 奥山泰男, 鈴木喜夫, 福山辰夫, 森高: *日本鋼管技報* (1975) 67, p. 125
- 6) W. SIMONIS: *Glückauf-Forschungshefte*, 29 (1968), p. 103
- 7) 田代 清, 小川秀治, 串岡 清: *富士製鉄技報*, 17 (1968), p. 354
- 8) J. KASPERCZYK and W. SIMONIS: *Glückauf-Forschungshefte*, 32 (1971), p. 23
- 9) V. I. BUTORIN and G. N. MATVEEVA: *Coke and Chem.* (1975) 10, p. 19
- 10) 松原健次, 田島 治, 鈴木喜夫, 平田英一: 第16回石炭科学会議予稿集 (1979), p. 212
- 11) 松原健次, 田島 治, 鈴木喜夫, 岡田 豊, 中山順夫, 加藤友則: *鉄と鋼*, 68 (1982), p. 2148
- 12) D. MERRICK: *The Coke Oven Managers' Year-Book* (1978), p. 316 [C. O. M. A. Ltd Mexborough]
- 13) 西岡邦彦, 吉田周平: *鉄と鋼*, 70 (1984), p. 351
- 14) 山田健彦, 大木 徹, 奥井信之, 田村洋一, 高島啓行, 越後格之: *燃料協会誌*, 56 (1977), p. 36
- 15) 南澤 勇, 山田健彦, 浜村欣次, 神原定良: *コークス・サーキュラー*, 29 (1980), p. 209
- 16) K. NISHIOKA and S. YOSHIDA: *Trans. ISIJ*, 5 (1983), p. 381
- 17) A. A. AGROSKIN, E. I. GONCHAROV, L. V. LOVETSKII, L. A. MAKEEV, N. S. GRYAZNOV, and V. V. MOCHALOV: *Coke and Chem.* (1968) 11, p. 3; (1973) 5, p. 21
- 18) 三浦隆利, 田島浩人, 三浦 潔, 大谷茂盛: *化学工学論文集*, 8 (1982), p. 121
- 19) 西岡邦彦, 吉田周平: *鉄と鋼*, 70 (1984), p. 343