

$F_k$ : (2-10) 式で与えられる係数	[-]	$t$ : 時間	[s]
$F_j$ : $i$ 相から $j$ 相に及ぼす相互作用力	[N/m <sup>3</sup> ]	$u_i$ : $i$ 相の実速度 ( $i=g, s, l, f$ )	[m/s]
$F_i$ : $i$ 相内における応力項	[N/m <sup>3</sup> ]	$z$ : 軸方向座標軸	[m]
$g$ : 重力の加速度	[m/s <sup>2</sup> ]	<b>ギリシャ文字</b>	
$P_m$ : $m$ 相の圧力	[Pa]	$\varepsilon_i$ : $i$ 相の体積占有率 ( $i=g, s, l, f$ )	[-]
$r$ : 円柱座標系における半径方向の座標軸	[m]	$\varepsilon_i(d), \varepsilon_i(s)$ : 液体の動的および静的ホールドアップ	[-]
$Re_p$ : 粒子レイノルズ数 ( $=\phi_s d_s u_g \rho_g / \mu_s$ )	[-]	$\mu_i$ : $i$ 相の粘度 ( $i=g, s, l$ )	[Pa·s]
$\sum_i \sum_k S_{ij}^k$ : 変化 $i$ による $k$ 相から $j$ 相への質量の移動速度 ( $k=g, s, l, f$ ただし $k \neq j$ )	[kg/m <sup>3</sup> (bed)·s]	$\rho_i$ : $i$ 相の密度 ( $i=g, s, l, f$ )	[kg/m <sup>3</sup> ]
		$\phi_s, \phi_f$ : 充填粒子と粉体の形状係数	[-]

## 2.3 新コークス製造技術の展開

### 2.3.1 はじめに

新コークス製造技術の開発は、既存炉の平均炉命が25年に達しており (Fig. 2.6), 次のコークス製造法の開発が少しずつ現実的になってきた。その最も大きな刺激は、国家プロジェクトとして推進された「成形コークス製造プロセス (FCP)」の開発とドイツで、単位炭化室容積を従来の6~7倍にする「JCR (Jumbo Coking Reactor)」の開発であろう。

一方基礎的な研究としては、1977年から始まった日本鉄鋼協会、特定基礎研究会の一連の石炭・コークスの基礎研究がある。この中で、1990年からは「コークス製造のための乾留制御」部会として、新しいコークス製造技術のシーズの発掘に努めた。その結果を基にして、「次世代コークス製造技術の開発」が1994年から国家プロジェクトとして推進されている。

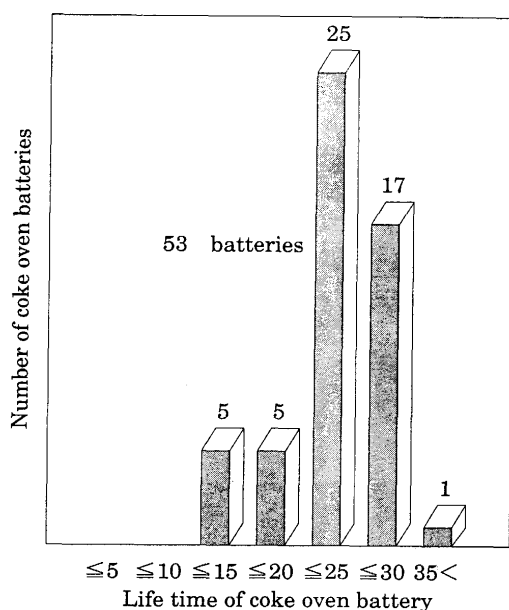


Fig. 2.6. Distribution of life time of coke oven batteries.

### 2.3.2 成形コークス製造法

バッチ式である室式コークス炉に対して、連続式成形コークス製造法は、環境規制への対応が容易なこと、高速乾留が行えるなどの利点があり、1960年代から1970年代にかけて世界中で数多く検討されが、日本鉄鋼連盟方式の成形コークスプロセス (FCP) が最も新しい。

このFCPは、国家プロジェクトとして、1978年から始まり、1980年から新日本製鐵(株)八幡製鉄所に200 t/dの設備 (Fig. 2.7) の建設を進め、1984年から3年間の操業試験を行った。操業試験は、9次にわたり延べ日数579日、総生産量は9.3万t、高炉使用試験用6.1万tのコークスを生産した。

高炉試験は、新日本製鐵(株)戸畑4高炉 (内容積4,250m<sup>3</sup>) で、1986年10月から翌年1月初めにかけて行われ最大30%まで使用できることを示した。

FCPでは、使用石炭の範囲が広いことが特徴であり、揮発分 (VM) 23~35%、粘結性 (C.I.) 50~70の配合炭を使用できる。これは、非・微粘結炭の使用量が65~100%の範囲にあることを示す。

NKKは、埋蔵量の比較的多い、高揮発分非粘結炭のFCPでの多量使用を検討し、2 t/dのマイルドチャー技術 (低昇

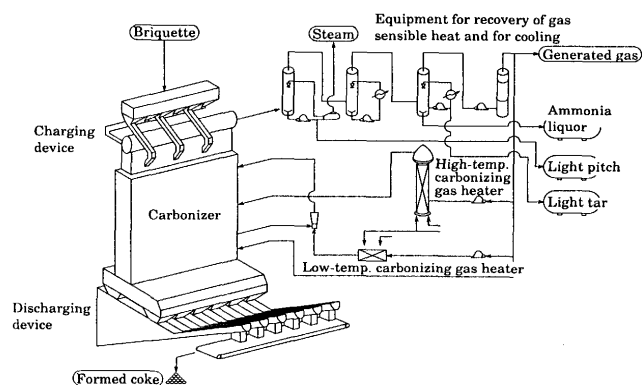


Fig. 2.7. Flowchart of the formed coke process. (M. Tateoka, et al.: 2nd Int. Cokemaking Cong., London, (1992))

温速度、低温乾留)の開発を行った。その結果、高揮発分非粘結炭を2~8°C/minの昇温速度で、550°Cまで加熱して得られたマイルドチャー40%を石炭と配合しても強度の高い成形コークスを得ることができた。

成形炭を造るには結合剤(バインダー)が必要である。(株)神戸製鋼所・関西熱化学(株)は、石炭系のコールタールピッチ(軟ピッチ)だけでなく、石油系の重質油や合成高分子化合物をバインダーとして使用できるかを検討し、プロパン脱歴アスファルト(PDA)や石油ピッチ(ASP)は初期ガス温度を500~550°Cまで上げないと、成形炭の変形、融着などが起き、炉操業の自由度が減少し、厳しい炉温管理が必要になる。そこで、合成高分子化合物であるポリビニルアルコール(PVA)の熱硬化性に着目して、PVAの水溶液をバインダーとして用いることにより、石炭系バインダーと同等品質の成形コークスを得ることを示した。

川崎製鉄(株)千葉製鉄所で高炉試験を行うため、1991年に200t/dのプラントが再稼働され、42,835tの成形コースが製造された。1992年には高炉試験も実施された。

しかし、この成形コークスプロセスを実機化するには次の問題を改善しておくことが好ましい。

- 1) 製品コークスの通気抵抗が室炉コークスの約2倍と高く、高炉で成形コークスの多量使用には限界があること。
- 2) コークス製造のエネルギー使用量が室炉に比べて高いこと。これらの課題に対して、その後改善研究が進められており、従来型の枕型ブリケットを大型化することやコークス内部亀裂を抑制できる加熱パターンの検討が新日本製鐵(株)で行われている。

### 2.3.3 新しいコークス製造技術の基礎研究

日本鉄鋼協会・特定基礎研究会での石炭・コークス関連の研究は、1977~1981年の「原料炭基礎物性」部会が始まりである。ここでは、コークス用原料炭としての基礎物性の解明を目的とした。

1982~1984年には「石炭のコークス化特性」部会として、石炭の熱分解とコークス化およびコークス強度の基礎研究を行った。この2回の部会での成果を基に、実際のコークス炉の解析を行うことを目的に「石炭の炭化反応」部会を1986~1988年に行った。

「石炭の炭化反応」部会からは積極的に若手の研究者と他分野の研究者にも参加を依頼した。例えば石炭粉の挙動ということで、石炭粉の粉体特性研究(九州工業大学)や乾留過程での熱物性値の測定研究(東北大学)などの新しい観点からの研究が行われた。

特定基礎研究会での研究は、石炭・コークスの基礎物性から乾留反応の基礎と進み、室炉での反応の検討まで行ったところで、鉄鋼各社の共通の重要課題であったコークス炉リプレース問題に関連した基礎研究課題をとということで次世代コークス製造技術創出のための基礎研究を提案し、1990~

1993年まで「コークス製造のための乾留制御」部会が行われた。

次世代コークス製造法は、①設備投資の大幅削減、②環境・労働問題の抜本的な対応、③使用石炭の自由度確保、④生産変動への柔軟性確保が要求される。この部会では、次世代コークス製造法のシーズの創生ということで、幅広く展開させた。

石炭加熱下の性状研究(九州工業大学、京都大学、北海道大学)では、石炭粉の膨張率、膨張・収縮応力、および付着力を測定できる装置を試作し、付着力の最大となる加熱パターンを提案した。また、石炭層に加熱下で針を進入させ、軟化溶融の度合いを加熱速度、加圧、保持温度を変化させて測定し、粘度を推定するモデルを作成した。

予熱処理炭の特性研究(東北大学、成蹊大学)では、流動層を用いて400~500°C/minの加熱速度での石炭物性の変化を測定し、非微粘結炭でも顕微鏡観察では急速加熱による溶融性の向上が認められた。しかし、予熱温度が400°Cを越えると急速に流動性が低下すること、保持時間も高温予熱の方が短い時間で流動性の低下が見られる。これらの結果は、予熱炭を一度室温に下げてから測定した結果である。コークス製造プロセスでは、予熱から連続であり、流動性の低下が実際に起きるかはまだ不明である。さらに石炭を流動層で加熱し、融着による流動停止温度が石炭の流動度と対応することを示し、流動停止温度前までの加熱とその後乾留炉でのコークスの製造を試みた。

加圧成形研究(大阪大学、京都大学、九州大学)では、急速加熱炭の熱間成形(250°C)とそれに続く乾留工程で実際にコークスを製造した。非・微粘結炭では十分な強度を有するコークスを製造することができなかった。熱間成形はホットプレスで行ったが、装置的に温度が十分上げられなかったことが原因であるかもしれない。さらに高温まで(500°C)急速加熱(100°C/min)、加圧できる装置での実験も試みた。非粘結炭では、室温からの500°Cまでの加圧が望ましいが、粘結炭では、加圧の効果は十分得られない。これは、500°Cで圧

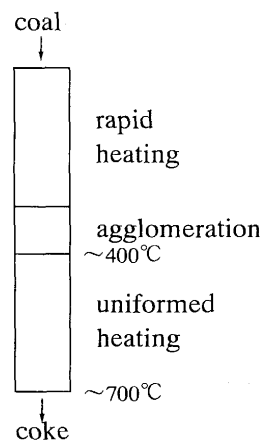


Fig. 2.8. Concept of the innovative cokemaking process.

を開放すると石炭層の急激な膨張によりフレーク状コークスが生成したためである。さらに溶剤抽出炭を成形して、コークス化することも試みた。

中・低温乾留コークスの高炉内反応の研究（北海道大学）ではこの部会で実際製造したコークスの性状研究を行った。

これらの研究成果を基に Fig. 2.8 に示すような石炭の急速加熱を前提としたコークス製造法のシーズ技術を提案した。この技術は、①石炭を急速に加熱することにより溶融性を向上させる可能性があること、②石炭を塊成化して、均一かつ低温で乾留することにより総炭化時間を短縮できる可能性があること、である。

これは主に石炭・コークスの物性面からの提案であり、この技術を次世代のコークス製造法と位置付けるには、プロセス面から基礎を含めての十分な検討が必要である。

### 2.3.4 次世代コークス製造技術

次世代コークス技術を完成させるため、1994年から日本鉄鋼協会、特定基礎研究会で、プロセスの基礎からの検討を目的とする「新コークスプロセス工学」部会を発足させた。この部会では、石炭・コークスの加熱下での物質変化・反応挙動および熱特性を定量的に記述できるモデル化を図るとともに、反応メカニズムを解明することを目的とした。これらの知見を基に、新コークス製造技術の工学的展開の基礎が構築できる。

一方、次世代コークス製造プロセスの開発が1994年から鉄鋼各社を中心に国家プロジェクトとして発足した。

この技術は、石炭を400℃付近まで急速加熱して、石炭の軟化溶融特性向上の可能性を見いだすとともに、乾留時間の短縮を図る。その後、全部あるいは一部を熱間成形することで、微粉の発生を防ぎ、併せて石炭改質の効果をさらに高める。乾留炉では、700℃程度で押出し、乾留時間の低減を図る。得られたコークスを改質炉で1,000℃程度まで加熱し、室炉コークス並みの品質を得ようとするものである。

この技術は以下のような特徴が見込まれる。

- 1) エネルギー原単位の約10%低減
- 2) NO<sub>x</sub>の約30%低減、SO<sub>x</sub>の約10%低減

- 3) 石炭資源制約の緩和（非粘結炭の約50%使用可能）
- 4) 生産性300%向上による設備のコンパクト化
- 5) コークス炉3K作業の無人化

2年間は基礎的な調査研究プロジェクトである。ここでの主要開発課題は下記のとおりである。

- 1) 石炭の急速加熱変化：石炭を急速加熱することによる軟化・溶融性の変化と最適加熱速度、加熱温度の選定。
- 2) コークス品質への効果：急速加熱による乾留挙動の変化とコークス品質の定量的評価、使用石炭範囲の提示。
- 3) 急速加熱炭のハンドリング：軟化炭の挙動とハンドリング技術の確立。
- 4) プロセスエンジニアリング：プロセスフローの決定、急速加熱方法の選定、熱間成形方法の選定、ベンチスケールの仕様決定。

本プロジェクトは「21世紀における生産性、環境保全性を革新するスーパーコークス炉」を開発する意味で、「SCOPE 21」(Super Coke Oven for Productivity and Environment enhancement toward the 21st century)と名付けられた。

このように新しいコークス製造技術の開発が1994年から本格的に活動を開始した。

### 2.3.5 おわり

今後、コークス削減技術および代替技術としての高炉への微粉炭吹き込み、溶融還元製鉄法の進展を見込んだとしても、炉寿命を35年と想定すると、2000年初頭には大幅なコークス量の不足が懸念される。

高炉製造法の基盤プロセスとして、21世紀の社会環境ニーズに応えうる革新的コークス炉開発に大きな期待がかけられている。

産学共同研究の場である日本鉄鋼協会特定基礎研究会での地道な活動や日本鉄鋼連盟式成形コークス製造法の研究成果を基に新コークス製造技術の開発が1994年にいよいよ具体化してきた。

次世代コークス製造技術の開発を目的とした国家プロジェクトと産学共同研究の日本鉄鋼協会特定基礎研究会の発足である。

## 2.4 劣質鉱石対応技術

### 2.4.1 劣質鉱石対応技術の研究開発推移

周知のように、対象とするプロセスに不向きな原料は劣質と評価され、その価格は低下する。我が国では、劣質鉱石対応技術は焼結鉱の製造における「安価鉱石積極使用技術」と言い替えることができる。

#### (1) 鉄鉱石資源の劣質化

原料ソースにおいては、この10年間に四つの大きな変化

があった。いずれも劣質化の範疇に入る。

年代順には、まずペレット用の高品位微粉鉱石（PF、平均粒度は約0.15 mm）が低価格で安定的に購入可能となった。第2次オイルショックにより、焼成ペレットの価格競争力が無くなったためである。1979年から入荷している。次に、1986年より出荷されたカラジャス鉱床（ブラジル）の開発がある。極めて品位が高く（SiO<sub>2</sub><1%、Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub><1%）、埋蔵量は世界最大である。続いて豪州における新規鉱床の開発が始