

生成コークス性状に及ぼす石炭予熱条件の影響

小島 紀徳*・南雲 篤郎*²・三浦 潔*³・荒牧 寿弘*⁴・有馬 孝*⁵・山下安正*⁶・稲葉 敦*⁶

Effects of Preheating Condition of Coal on Produced Coke Properties

Toshinori KOJIMA, Atsurou NAGUMO, Kiyoshi MIURA,
Toshihiro ARAMAKI, Takashi ARIMA, Yasumasa YAMASHITA and Atsushi INABA

Synopsis : Rapid preheating of coal was conducted in entrained and fluidized beds. Preheated coal particles were directly introduced to a carbonizer to produce coke under loading pressure of 0.97 MPa. Effects of preheating conditions of coal, i.e., preheating temperature and soaking time, on the properties of produced coke, i.e. micro and tensile strengths, true density and porosity were discussed.

In the case of entrained bed, bubble formation in coke produced from caking coal was slightly restrained by the rapid preheating. As to the slightly caking coals, preheating at high temperature with long soaking time led to the reduction in the strength of coke. In the case of slightly caking coal, the rapid preheating at the temperature lower than 400°C increased the strength of produced coke and the effects of soaking time was hardly observed.

Lastly, it was demonstrated that the rapid preheating of slightly caking coal at 350°C in the fluidized bed could increase the strength of coke drastically.

Key words : slightly caking coal ; strength of coke ; rapid preheating ; coke properties ; fluidized bed.

1. 緒言

現状のコークス炉は、環境、労働問題、原料炭使用範囲、生産弾力性、設備費などさまざまな問題を抱えている。コークス炉のリプレースにあたり、これら諸問題を解決するプロセスを構築することは、溶融還元法などコークスを用いない新製鉄法の開発とともに、重要課題である。日本鉄鋼協会の乾留制御部会では、石炭粉の軟化溶融温度までの急速加熱/塊化処理/均一低温加熱の3段連続コークス製造プロセスを想定した研究がなされてきた。この部会では、石炭の軟化温度直前(約400°C)まで急速に加熱することにより乾留時間の短縮が可能となり、石炭の改質による原料炭範囲の拡大が期待され、さらにはこれまでより低温でのコークス化、連続プロセスによる低コスト化、低公害でのコークス製造をねらいとしている。

急速加熱装置としてはコンパクトであり、予熱時間の短縮化による処理能力向上あるいは装置小型化に加え、二段目の塊化プロセスに好影響を及ぼすことが望まれる。本研究では大量処理、連続処理に適し、熱効率がよく、設置面積が少なく、設備費が比較的安い、などの理由から急速加

熱装置として流動層を想定した。石炭を予熱して送入した場合¹⁾については、かさ密度の増大によるコークス生産性の向上に有効であるが²⁾、石炭膨張圧が増加しコークス収縮率が減少するので、原料炭選択範囲および炉体保護上の制約がある²⁾。加えて、急速加熱の温度によっては軟化溶融性の発現により石炭粒子凝集が生じた場合、装置運転上のトラブルになると思われ、この点についての検討を行う必要がある。

一連の研究ではガス発生量³⁾、装置内凝集特性⁴⁾、生成予熱炭の溶融・塊化特性に対する、予熱、流動条件の影響の把握、さらには一段目の急速加熱プロセスの運転条件が⁵⁾、二段目以降の最適操作条件の設定値に影響されることを考慮し、二段目およびプロセス全体との関係についても知見を得ることを目的とした。

流動層を予熱に用いると、層内に投入された粒子は、層内に存在する粒子により他の装置では困難なほど速い速度での加熱が可能であるが⁶⁾、一方、層内に急速予熱後の石炭が保持され、滞留時間分布、すなわち保持時間分布を有することとなる。そこで本報告では、まず加熱条件として、層温度(急速予備加熱温度)、急速加熱後の保持時間ととり、

平成7年10月3日受付 平成8年1月18日受理 (Received on Oct. 3, 1995; Accepted on Jan. 18, 1996)

* 成蹊大学工学部 (Faculty of Engineering, Seikei University, 3-3-1 Kichijouji-kitamachi Musashino 180)

* 2 成蹊大学大学院生 (現: 千代田化工建設(株)) (Graduate Student, Seikei University, now Chiyoda Co.)

* 3 住友金属工業(株)鹿島製鉄所 (Kashima Steel Works, Sumitomo Metal Industries, Ltd.)

* 4 新日鐵化学(株)君津製造所 (Kimitsu Works, Nippon Steel Chemical Co., Ltd.)

* 5 新日本製鐵(株)プロセス技術研究所 (Process Technology Research Laboratories, Nippon Steel Corp.)

* 6 資源環境技術総合研究所 (National Institute for Resources and Environment)

予熱炭から製造したコークスの品質にどのような影響を与えるかを検討するために、気流搬送により急速に加熱し、その後熱間で適宜保持の後、加重圧下でコークス化したときの生成コークスの性状を測定し、検討した。ついで、流動層により連続的に急速加熱した石炭から製造したコークスについても、その特性を検討した。

2. 実験方法

2.1 試料

用いた石炭は微粘結炭であるCERREJON, WITBANKと粘結炭であるGOONYELLAの3種類であり、使用粒径範囲は0.297-0.84mmである(なお、CERREJONについては、非粘結炭に近い物性を有するが、以下では統一的に微粘結炭と記載する)。これらの物性値をTable 1に示した。

2.2 気流層および流動層急速加熱実験装置

実験に用いた気流層による急速加熱コークス化実験装置をFig. 1に示す。気流層急速加熱実験装置は後述の連続式流動層実験装置の一部であるが、滞留時間の影響を調べるため、接続部を急速加熱部として用い、石炭を連続供給、急速予熱した後、塊化・コークス化部に導いた。

接続部(気流層急速加熱部)はステンレス製内径27.2mm、長さ600mmであり、独立に温度制御ができる。塊化・コークス化部はステンレス製内径14.3mm、長さ430mmの反応管と荷重用フランジ付きの12mm径の丸棒から構成されている。全て外部電気炉加熱である。この装置の利点は、窒素

雰囲気下、急速加熱した石炭を熱間のまま荷重、コークス化が可能なことである。

一方、流動層加熱装置は、Fig. 1を、前報³⁾の装置図(Fig. 1)にオーバーフロー管として接続したものである。流動層への粒子の供給速度は約6g/minであり、空管から実験を開始すると、約40分後に、オーバーフロー管から排出が開始される。従って平均滞留時間(気流層実験での保持時間に相当)は40分強と考えられる。

2.3 急速加熱炭の塊化・コークス化

気流層を用いた実験条件の概要をTable 2に示す。まず、装置全体(気流層急速加熱部、塊化・コークス化部)を所定の温度に保持し、石炭供給部から石炭を窒素(約250cm³/s, at20°C)とともに少量ずつ(約6g/min)供給し、接続部とコークス化部において急速加熱した。コークス化部に適量(約5cm相当)が充填したら供給を終了した。供給に要する時間は1~2分である。予備実験においてコークス化部の均温部を調べ、この充填した石炭粒子が均温部のみに位置するように炉下部には金属棒をあらかじめ挿入しておいた。また、本実験条件下(設定温度400°C)で粒子を送入した際の気流搬送部中央部およびコークス化部中央部の温度変化を熱電対で測定したところ、送直後には十~数十°Cの温度降下がみられたが、3分程度でほぼ設定温度に戻った。これより、投入粒子の熱容量による装置の温度降下はあるものの、

Table 1. Coals employed in the present study.

	WIT-BANK (WIT)	GOON-YELLA (GOO)	CERR-EJON (CER)
Reflectance [%]	0.79	1.02	0.62
Total Inert [%]	36.8	27.3	11.6
CSN	2	9	1
Proximate analysis [db%]			
ash	7.1	7.60	1.0
VM	33.5	26.45	37.7
FC (dif.)	59.4	65.95	61.3
Ultimate analysis [daf%]			
C	83.9	87.36	82.3
H	5.1	4.89	5.5
N	2.2	1.95	1.6
S (combustible)	0.6	0.56	0.5
O (difference)	8.2	5.24	10.1
Gieseler plastometer (ASTM)			
softening [°C]	405	408	—
maximum fluidity [°C]	435	462	—
log (max. fluidity/dpdm)	1.08	3.25	—
solidification [°C]	457	496	—
Dilatometer (ASTM)			
softening [°C]	400	378	NM
maximum contraction [°C]	472	421	NM
maximum contraction [%]	9	25	NM
maximum dilatation [°C]	—	493	NM
maximum dilatation [%]	—	128	NM
total dilatation [%]	—	153	NM

— : immeasurable, NM : not measured

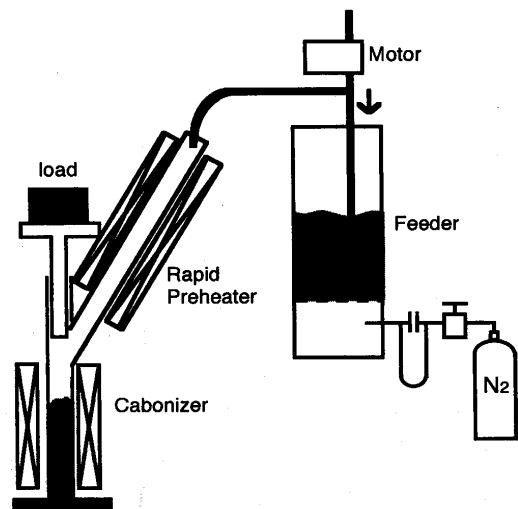


Fig. 1. Experimental apparatus-entrain bed pre-heater, feeder and carbonizer.

Table 2. Experimental condition for entrain bed.

Coal	Preheating temp. [°C]	Soaking time [min]
WIT	-, 250-450 (every 50)	0
	400	0-30 (every 10)
CER	-, 350-450 (every 50)	0
	400	0, 10
	450	0, 5, 10, 30
	450	0 (up to 550 °C)
GOO	-, 400	0
	400	0, 30

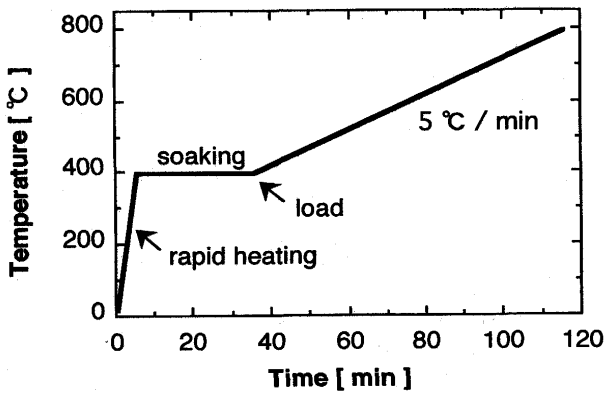


Fig. 2. Schematic heating pattern of coal.

粒子表面については急速に三百数十°Cに加熱され、また全体としては数分で室温から設定温度に至るとの条件下で実験を行ったことになる。

粒子滞留時間のコークス品質への影響を把握するため、荷重を加える前に、所定時間(0分、5分、10分、20分、30分)一定温度に保持した。なお、保持時間が0分であっても、前述のように、粒子によっては供給に要する1~2分は保持されていることとなる。塊化・コークス化は、荷重0.97 MPa、昇温速度5°C/min、最終焼成温度800°Cの条件で行った。加熱パターンをFig. 2に示す。

2・4 流動層連続急速加熱炭のコークス化

ついて、気流層実験から特徴的な結果が得られたCER炭について、流動層を予備急速加熱に用い、急速加熱後に保持時間分布を有する石炭から同様にコークスを製造した。実験は、層温度、350°C、400°C、450°Cで行った。定常となった後、オーバーフロー管から排出された粒子を、直ちに2・3と同様な加重下、昇温条件下、窒素雰囲気下で加熱、コークス化を行った。

2・5 生成コークス性状の評価

生成したコークスの品質として、引張強度、マイクロ強度(指標として用いた篩の目開きは210 μ m=70メッシュ)、気孔率、真密度で評価した。

3. 実験結果および考察(気流層実験)

引張強度、マイクロ強度、気孔率、真密度および形状、接合状態に及ぼす予熱の効果、すなわち予熱の有無、予熱温度、予熱温度での無荷重保持時間の影響について検討した。結果を粘結炭であるGOOについてFig. 3、微粘結炭であるWIT、CERについてFig. 4、Fig. 5に、それぞれ市販コークスの一般的な値とともに示す。

GOOについては目的とした円筒状のコークスが得られることはまれであったため、詳細な検討を行ってはいないが、またマイクロ強度、真密度の違いは少ないものの、下記のWITに比して弱い引張強度、高い気孔率が特徴的である。

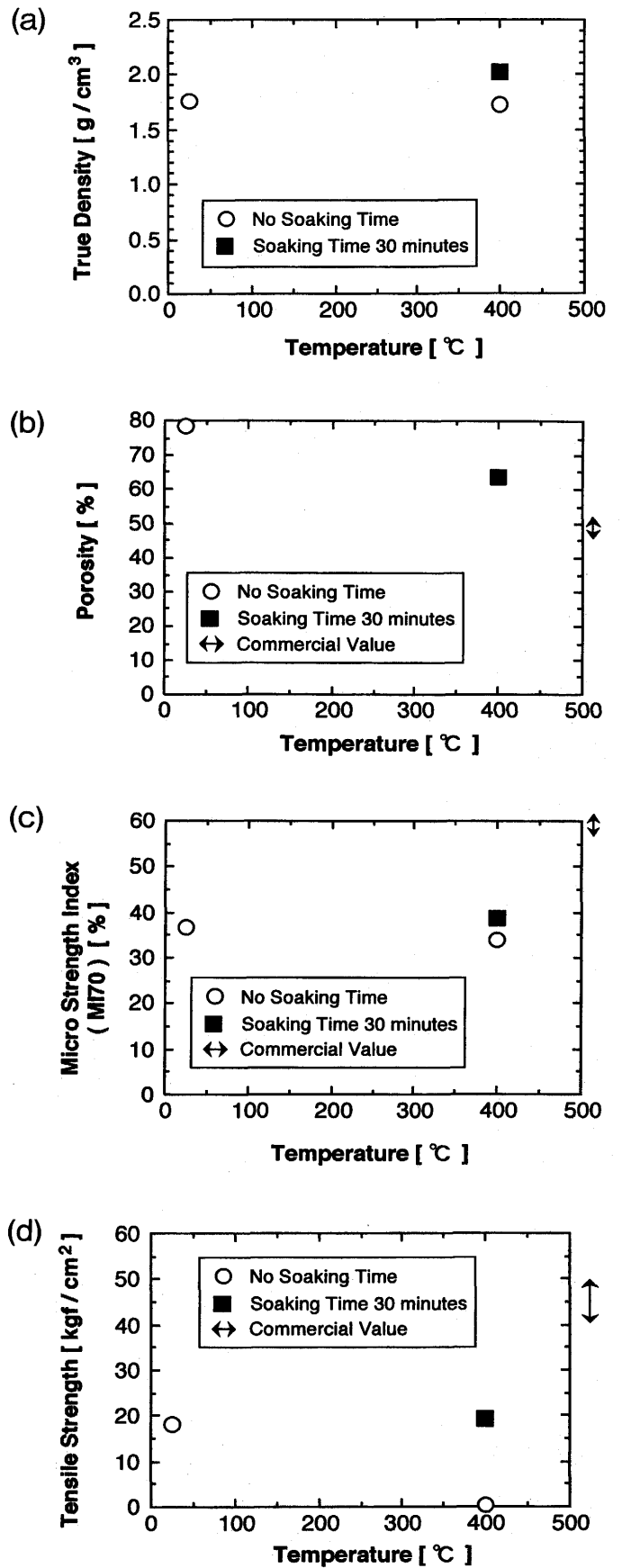


Fig. 3. Effects of preheating temperature and soaking time on produced coke properties-GOO. (a): true density, (b): porosity, (c): micro strength index, (d): tensile strength.

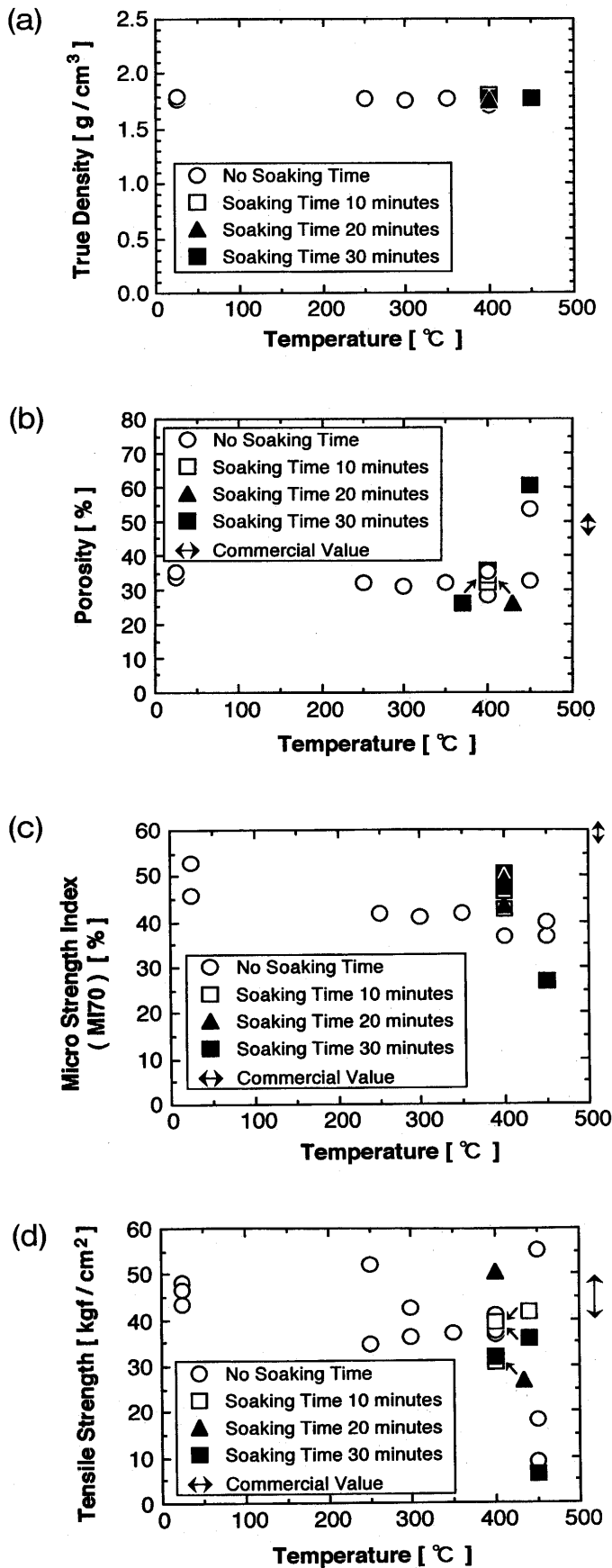


Fig. 4. Effects of preheating temperature and soaking time on produced coke properties-WIT. (a): true density, (b): porosity, (c): micro strength index, (d): tensile strength.

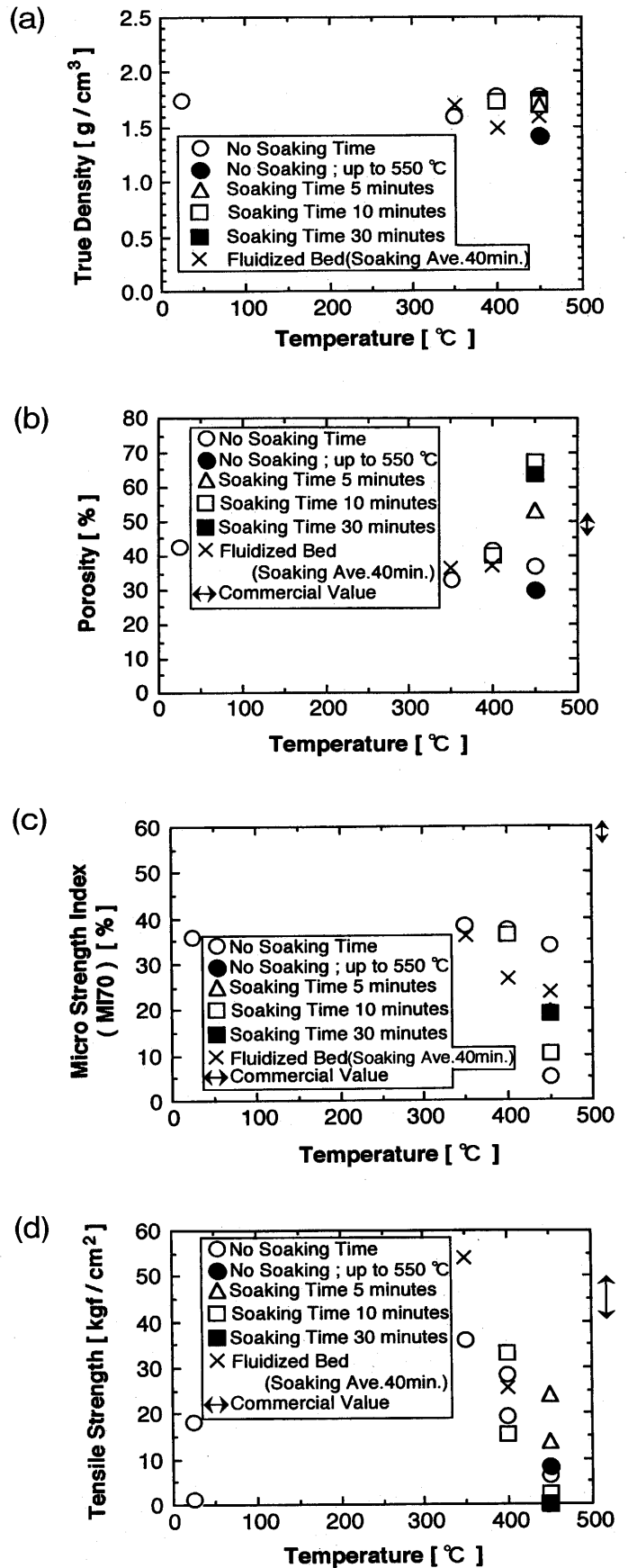


Fig. 5. Effects of preheating temperature and soaking time on produced coke properties-CER. (a): true density, (b): porosity, (c): micro strength index, (d): tensile strength.

強い発泡・膨張性によるものと考えられる。しかしながらGOOの軟化点以上の温度(400°C)で30分保持した場合にはその膨張性は若干抑えられた。

真密度は、WIT, CERとも800°Cまで加熱してコークスを製造した場合には違いは少ない。一方比較のためにCERについてコークス化を550°Cまでの加熱で終了させると、真密度は若干小さめとなった。

気孔率については真密度が小さいCER, 550°Cの条件での結果を除き、予熱温度の上昇に伴い増大し、低品質のコークスになる傾向がみられた。特に軟化溶解温度に相当する450°Cまでの急速加熱においてその傾向は顕著に現れた。また保持時間の増加とともに気孔率は増大した。

WITについては生成コークスの見かけの形状への、予備加熱条件の影響はみられなかった。引張強度は、予備加熱温度450°Cでは大きく低下し、コークス品質の低下がみられた。450°Cでは保持時間の影響も若干みられた。マイクロ強度については影響はさほど顕著ではないもののほぼ同様であった。

一方、引張強度、マイクロ強度の低下は、軟化溶解温度以上(450°C)の加熱により、粒子が内部は軟化していても表面は固化が始まり、粒子間の接着が不十分となったためと考察される。また気孔率の増大も、再固化が開始したことにより荷重による圧密効果がなくなったためと考えられる。

CERについては予備加熱を行わない場合も含め、強固なコークスとはなりにくかったが、低温特に350°Cでの予備加熱により見かけ上欠損の少ない円筒形状のコークスが形成された。しかし450°Cで保持時間を30分とすると、円筒形状のコークスは得られなかった。マイクロ強度についてはWITとほぼ同様な傾向であるが、やはり低温での予備加熱により若干の強度増大がみられた。引張強度については加熱なしの場合に比し、400°Cでは若干、350°Cでは明らかに増大するとの傾向がみられ、特徴的である。しかしながらやはり450°Cでは再び強度の減少がみられた。気孔率についても、350°Cでの予備加熱により、小さい値が得られている。

両炭種とも、400°Cでは保持時間の強度あるいは気孔率への影響はほとんどみられないが、450°C以上では保持時間の増大により、若干の強度低下、気孔率の増大がみられる。

4. 実験結果および考察(流動層実験)

CERについて流動層を用いて予備加熱を行った石炭から

造ったコークスの性状を、Fig. 5に併せて示す。気流層実験から予想されたように、450°Cで予備加熱を行うと、流動層内での滞留時間のため強固なコークスは形成されなかった。従って、引張強度、気孔率は測定できなかった。しかしながら、予備加熱温度の低下とともに強度、特に引張強度は大きく増大し、予備加熱を行わなかった場合はもちろん、350°Cで気流層で予備加熱した場合よりむしろ大きな値を示した。これは、流動層の方が、周囲に熱容量の大きい粒子が多量に存在し、気流層よりさらに急速に加熱されたためではないかと思われるが、詳細には今後さらに検討する必要がある。一方、流動層内で保持時間があることは、強固なコークスの製造のためには、悪影響を及ぼさないものと考えられる。以上、流動層内での低温での急速予備加熱により、粘結性の低い炭からも強固なコークスが生成され、かつ、滞留(保持)時間の影響は少ないことが示された。

5. 結言

粘結炭(GOO)については、高温での急速加熱、長時間の保持による、若干の発泡性抑制、気孔率減少の効果がみられた。

微粘結炭(WIT, CER)については急速加熱時の加熱温度が一般的軟化温度付近を越えると生成コークスの強度が急激に低下する。そのとき加熱温度での保持時間が長くなると生成コークス強度も低下することが多い。中でも粘結性がさらに乏しいCERについては軟化温度以下の加熱の場合には、生成コークス強度はむしろ予備加熱により上昇した。さらに保持時間の影響もみられず、その意味で流動層のような滞留時間分布を有する急速加熱装置の採用も大きな障害とはならないものと考えられた。実際、流動層で350°Cまでの急速予備加熱を行ったところ、気流層から得られたコークス以上の強度が測定された。

本研究は(社)日本鉄鋼協会「コークス製造のための乾留制御部会」のもとで行われた。上記部会関係各位には研究上の討議に加わっていただいた。ここに記して感謝する。

文 献

- 1) 吉田 晋, 佐藤春三: 石炭技術研究所報告, 39 (1965), 1.
- 2) 滝沢 譲: 鉄と鋼, 78 (1992), 969.
- 3) 小島紀徳, 松方正彦, 南雲篤郎: コークス・サーキュラー, 41 (1992), 224.
- 4) 小島紀徳, 南雲篤郎: 鉄と鋼, 79 (1993), 1236.