

石炭粒子の割れに及ぼす急速加熱条件の影響

西村 勝*・天本 和馬*²

Effect of Rapid Heating Conditions on Crack of Coal Particle

Masaru NISHIMURA and Kazuma AMAMOTO

Synopsis : In the SCOPE21 coke making process, there is a preheating process which raise the temperature of coal particles up to about 400°C before coal charging. It is known that coal particles are broken into pieces when they are heated rapidly to over 1000°C in the DIOS process.¹⁾ It is undesirable that coal particles break into fine powder in preheating process of the SCOPE21. Because fine powder causes various troubles in coke making process such as carry over phenomenon. Then, effect of rapid heating condition on crack of coal particles from room temperature up to 380°C was investigated. Down flow type experimental apparatus was used in this study, and 6 kinds of coals were investigated about heat crack. From this investigation, next results were obtained.

- 1) Crack of wet coal particles, in the case of direct rapid heating from room temperature up to 380°C, was remarkable.
- 2) Degree of the heat crack of wet coal samples that R_o were about 0.7~0.8 was low in rapid heating.
- 3) Degree of the heat crack of coal particles, in the case of rapid heating up to 380°C after heating and drying below 250°C, became lower.

Preheating process was divided to two stages in the SCOPE21 coke making process. The first stage is the drying and preheating process in which coal particle is heated and dried and fine coal powder is separated in the same time. The second stage is the rapid heating tower process after the drying process. Obtained results were applied to the heating condition in two preheating processes.

Key words: coal; rapid heating; preheating; crack; heat crack; SCOPE21.

1. 緒言

(社)日本鉄鋼連盟では、1994年から2003年の10ヵ年に亘り次世代コークス炉SCOPE21の開発が行われた。

SCOPE21プロセスでは、Fig. 1に示すように石炭をコークス炉に装入する前に急速加熱をともなった予熱処理プロセスが設定され、第1段の流動層乾燥・分級機とそれと連続した第2段の最終的に約400°C程度までの予熱工程とし

て気流塔加熱が計画された。

石炭粒子を急速に加熱した場合には、粒子の熱割れ現象による微粉化が発生すること知られており、例えば石炭粒子が1000°Cを越えた加熱となるDIOSでも熱割れ現象が確認された。しかしDIOSの結果¹⁾は、1000°C以上という高温の条件でありSCOPE21プロセスでは必ずしも参考にはできない。SCOPE21の第1段の流動層乾燥・分級機で発生した微粉については、その分級機能により分級されその後

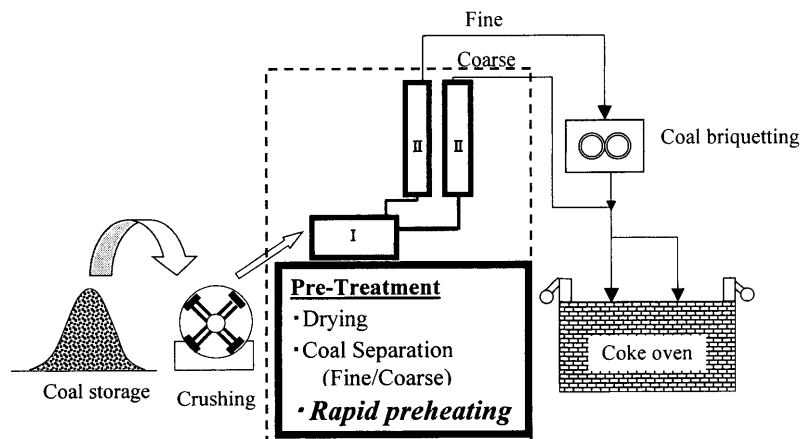


Fig. 1. Outline of the SCOPE21 coke making process.

平成16年1月6日受付 平成16年4月6日受理 (Received on Jan. 6, 2004; Accepted on Apr. 6, 2004)

* 関西熱化学(株) 研究開発センター (Research and Development Center, The Kansai Coke and Chemicals Co., Ltd., 1-1 Oh-hama-cho Amagasaki 660-0095)

*² カーボンテック(株) (KN CARBON TECH Co., Ltd.)

の熱間成形機に送られるために、微粉であるがための問題は発生しない。しかしながら、第2段の気流加熱塔では熱割れ等により発生した微粉は、そのままの形でコークス炉へ装入されることになるので、炉壁カーボンやキャリアオーバーの増加等の問題を引き起こすことになる。したがって、気流加熱塔では急速加熱による石炭粒子の熱割れを極力抑制する必要がある。そこで、本研究では、SCOPE21 プロセスの急速予熱工程に対し、室温から380°Cまでの急速加熱条件の変化による石炭粒子の熱割れ程度の変化について調査した検討結果について報告する。

2. 実験方法

2.1 石炭試料

急速加熱による熱割れを調べるために、Table 1に示す石炭化度の異なる6種類の石炭試料を用いた。各石炭は粉碎後、粒度調整(0.84~1.19 mm)を行って各試験に供した。

2.2 急速加熱実験装置

石炭粒子を急速に加熱する実験装置としては、Fig. 2に示すダウンフロー式の装置を用いた。装置は、Fig. 2に示すように、石炭とガスを金属製チューブ内に同伴させて外部から加熱し、石炭粒子自体を加熱する方式のものである。

流路系では、上方にガスを予備加熱するための環状の加熱炉があり、その中にスパイラル状になった流路チューブを設置し、石炭と同伴させる前にガスのみを所定の温度まで加熱するようになっている。次に予熱されたチューブ内のガス中へ石炭試料を導入する工程があり、流路チューブとT字状に結合された密閉可能な試料容器に一旦試料を入れてからチューブ中に導入されるようになっている。さらにガスと石炭試料が混合された後は下方のスパイラル状のチューブ内を下方へと向かって流れて行き、このスパイラルチューブの外側を取り巻く電気式加熱炉により石炭粒子試料およびガスが所定の温度にまで加熱される。このように、試料容器から経路に導入された石炭試料は、予熱ガスからの熱交換および外部加熱された流路チューブ管壁からの輻射熱により急速加熱される。

急速加熱された石炭粒子は、徐冷機構を備えた部分を通過し、石炭捕集器で捕集され加熱ガスと分離回収されるようになっている。

2.3 急速加熱条件の設定

試験での急速加熱条件の設定には、ガス予熱用および石炭粒子・ガス加熱用の電気炉の設定温度を所定の温度にして石炭粒子の加熱試験条件を変化させた。なお、試料容器についても外部を加熱できる仕様となっており、試験条件によって加熱温度を設定し、初期石炭試料温度を変化させた。

また、この装置では試料を加熱されたまま回収すると、

Table 1. Properties of coal samples.

Coal	Ash %	VM d%	Ro %	log MF log ddp _m
Luscar	9.0	23.6	1.16	1.75
Goonyella	9.2	26.4	1.12	3.09
Pittston MV	7.6	35.1	0.94	3.50
Witbank	7.8	34.2	0.74	0.95
Lemington	8.0	35.0	0.72	2.31
K-Prima	3.2	43.9	0.58	-

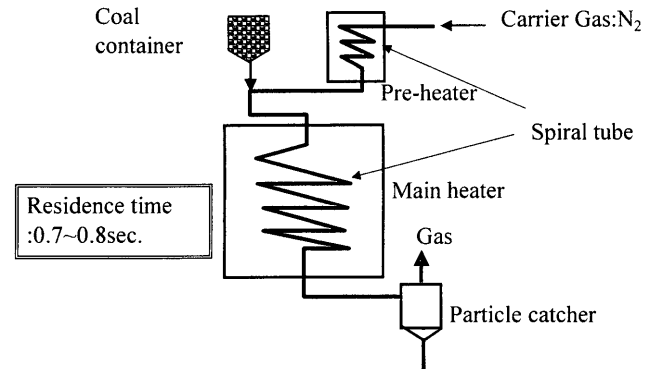


Fig. 2. Apparatus for rapid heating test of coal particle.

回収までに受ける保持時間の試料性状への影響、加熱状態で大気雰囲気下にて回収すると、酸化による影響を考慮し、これらの影響を除くために前述のように徐冷回収する装置の機構とした。したがって、石炭試料を貯めた状態で最終到達温度の確認はできないが、加熱流路の石炭と混合される直前のチューブ内ガス温度、さらに試料混合部と徐冷部との中間部分のチューブ内の温度を所望の温度に保持できるように設定制御されており、石炭温度はほぼこの設定温度に近似したものになると考える。そこで、以下の記述ではその設定制御温度を石炭粒子の加熱温度として述べる。

さらに、後述の「3.5 乾燥後石炭試料加熱時の石炭初期温度の影響」での乾燥法、初期温度の設定については次のようにした。室温レベルでは一旦窒素雰囲気中107°Cで1時間乾燥し室温まで冷却して試料供給容器に装填した。またその他温度レベルでは、試料容器を窒素雰囲気とし、試料容器の外部を取り巻く加熱ヒーターで所望の温度にして1時間加熱・乾燥させ初期温度とした。

2.4 石炭粒子の熱割れの評価法

熱割れ試験時の石炭粒子の急速加熱は、ガスとの接触時間が0.7~0.8秒、固気比は約0.8となるように、キャリアーガスであるN₂ガスの流量をマスフローメータにより制御した。

各種の条件で行ったダウンフロー式加熱処理装置での加熱処理後の石炭粒子の熱割れ評価は、加熱処理前の供試料の粒度(0.84~1.19 mm)と、加熱処理後に回収された石炭試料について測定された粒度を比較することにより行なった。なお、回収試料の粒度は、0.84 mm, 0.50 mm, 0.25 mmの目開きの篩で篩分し、0.25 mm篩下のものはさらにレーザー回折式粒度測定装置(島津製SALD2000)により測定

し平均粒径を求めた。

2.5 試験装置特性としての粒子割れの評価法

ダウンフロー式急速加熱装置では、石炭粒子が加熱ガスと同伴されてスパイラルチューブ内を短時間ではあるがチューブ内面と接触しながら滑り落ちてくる状況にある。したがって、石炭粒子とチューブとの接触により、石炭粒子の割れ・粉化が発生することが予想された。本装置による各石炭粒子の加熱時の熱割れのみを正しく評価するためには、装置特有の割れについて評価しておく必要がある。そこで、装置の加熱装置部分の電源を切った状態で加熱試験時と同様にキャリアガスを流通状態にして、6種類の石炭試料（水分2%調整）を、試験装置チューブ内を降下させた。降下後の回収石炭粒度を測定し装置特性の粉化としてデータ採取した。

この装置特有の石炭粒子割れを把握しておけば、加熱処理をさせた場合の急速加熱による割れのみを抽出して評価できる。

3. 実験結果および考察

3.1 ダウンフロー装置特有の石炭粒子割れ測定結果

装置特有の石炭粒子割れ程度の測定結果を Fig. 3 に示す。Fig. 3 は、石炭粒子が装置チューブ内を降下する前後の平均石炭粒子を求め、初期の平均粒径に対する降下後の石炭粒径との変化率、および降下後の平均粒径を、ビトリニット平均最大反射率 (\overline{Ro}) により示したものである。最も石炭化度の低い K-Prima 炭を除けば、石炭化度が高くなれば処理後の平均粒径は低下し、粒径の低下率は僅かに大きくなる傾向にある。これは、単純に石炭粒子がチューブ内を滑り落ちる際に管壁との接触などにより作用した外力から発生した機械的な割れが生じた結果であり、各石炭粒子の機械的な強度と関係するものと推察される。

石炭の外力による粉化については、石炭の粉碎性を示すハードグローブ指数 (H.G.I) 等がよく知られており、H.G.I は、石炭化度との関係で石炭化度が高いほど H.G.I は高くなり粉碎されやすくなるとされている^{2,3)}。実施した冷間での結果は、K-Prima 炭を除いて、石炭化度との関係において H.G.I と同様の傾向を示す。K-prima が傾向からはずれるのは、使用した装置試験法と H.G.I 試験法の2つの評価法が粉碎・粉化と同じく外力により発生するものであるが、2つの評価で別の破壊機構により割れが発生していることによるものか、それとも K-Prima 炭については石炭化度の他に大きく影響する因子があつて、その影響が大きく現れたことも考えられる。例えば、実施した試験ではその石炭組織分析を測定はしていないが、同じ石炭化度の石炭であっても、ビトリニットなどの活性成分が多い場合には、高い H.G.I を示す、すなわち粉碎されやすいことが報告^{2,4,5)}されている。実験に使用した試料とは別の同銘柄試

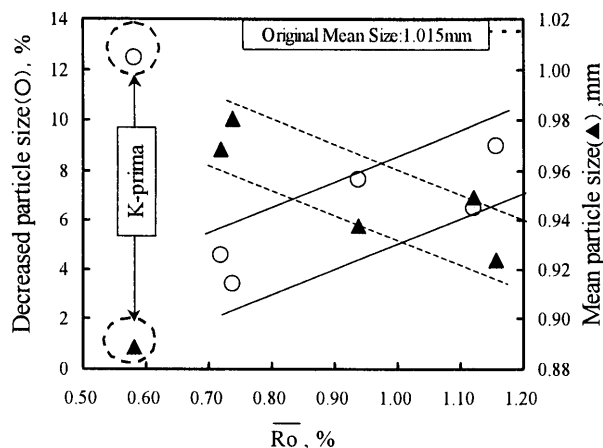


Fig. 3. \overline{Ro} of coal samples and Change of particle size after testing with apparatus in case of non heating (shows mechanical crack).

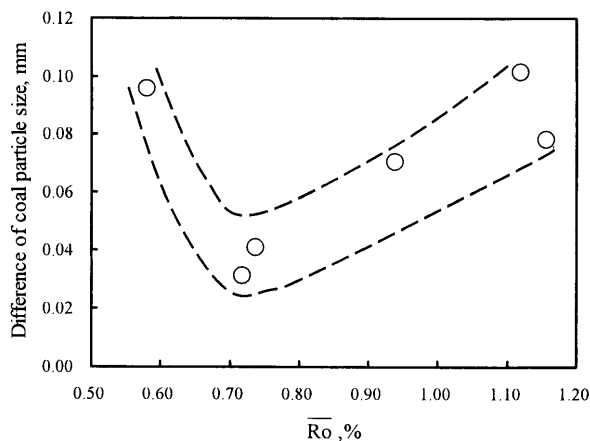


Fig. 4. \overline{Ro} of coal samples and the degree of heat crack. Heat crack (difference of mean particle size) = (Treated with the apparatus in non heating-rapid heating).

料の測定結果ではあるが、K-Prima 炭では全不活性成分量が 5% 前後と低い。したがって、その他石炭種より 10% 以上も活性成分が多く、粉碎されやすい組織成分が多いという特徴があるが、この装置を使用した場合の石炭粒子の割れによる粉化の石炭性状の影響は確定できない。ただ、この冷間試験から、装置特性としての割れの程度を使用石炭種ごとに把握することができ、加熱時の熱割れの程度から差し引くことで熱割れのみ値として評価することが可能となる。

3.2 熱割れに及ぼす石炭性状の影響

試験に用いた試料性状範囲では、高石炭化度炭ほど H.G.I のような粉碎されやすさの指数については高くなること^{2,3)}を述べた。ここでの試験は、水分を 2% 含む各石炭試料を室温から 380°C まで試験装置で急速に加熱した後の平均粒径を測定し、加熱時の熱割れを評価したものである。ここで測定した加熱処理後平均粒径値から 3.1 で示した装置特性の機械的割れとして測定した平均粒径値の差（冷間-熱間）を \overline{Ro} に対して Fig. 4 に示す。結果は、 \overline{Ro} との関

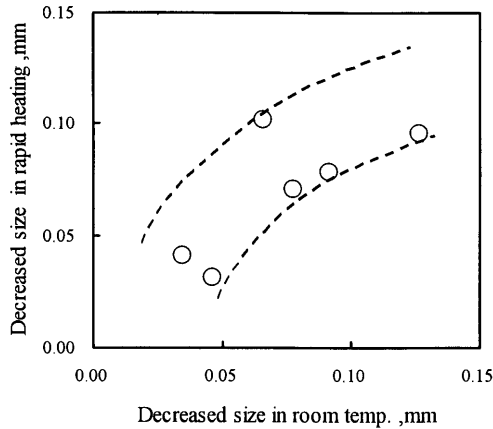


Fig. 5. Relationship between the degree of mechanical crack and the degree of heating crack of coal particles.

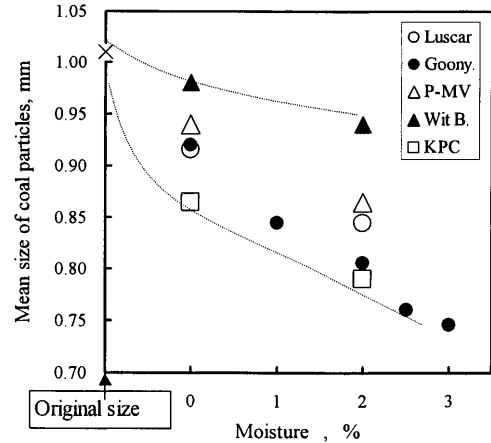


Fig. 6. Coal moisture and mean size of coal particle after rapid heating up to 380°C directly.

係でみればFig. 3と同様の傾向を示し、K-Prima炭を除き石炭化度が高くなるほど熱割れの程度は高くなることが認められ、用いた試料の範囲では、 \overline{Ro} が0.7~0.8程度の石炭が最も熱割れの程度が低いことが認められる。さらに、Fig. 5に、機械的割れによる平均粒径の低下量と、水分を含んだ石炭粒子を380°Cまで急速加熱した時の機械的割れ粒径変化量を差し引いた熱割れによる粒径低下量との関係を示す。機械的粒径低下量が高いものほど急速加熱時の熱割れも高くなる傾向を示し、常温での外力による割れが発生しやすい炭種は、ここで示した急速加熱時でも割れが発生しやすいことを示している。このような石炭試料間の差は、前述のように石炭化度差による粉碎のされやすさや、石炭組織成分量の差などが影響しているものと考えられるが、ここでは明確ではなく、結果として用いた試料範囲では $\overline{Ro}=0.6\sim0.7$ の試料で割れは少なかった。

3.3 急速加熱時の石炭水分の影響

SCOPE21プロセスの予熱工程での加熱の目的は、前述のように石炭粒子に急速加熱を付与することと、石炭水分の乾燥・除去を行うことである。そこでFig. 6に、室温から380°Cに種々の石炭粒子を急速加熱した場合の熱割れの程度について、試料水分と加熱後石炭粒子の平均粒径との関係を示す。いずれの石炭試料も試験範囲の水分では、水分が高いほど熱割れによる粒径低下が大きくなることがわかる。なお、乾燥された状態、すなわち水分が0%の試料では、Fig. 3に示す装置特性としての機械的な割れ程度の粒径低下のみを示していることがわかる。

この石炭の水分には、石炭構造と密接に関係する固有水分と石炭の構造や性質には関係のない付着水分に分けて考えることができる。このような水分を急速加熱工程では取り除き乾燥させることになるが、石炭の急速加熱工程内での石炭粒子の割れを考える場合、石炭構造と密接する固有水分領域の水分の影響を考えるべきである。すなわち、石炭粒子にある水分は、加熱により蒸発しその体積を増加さ

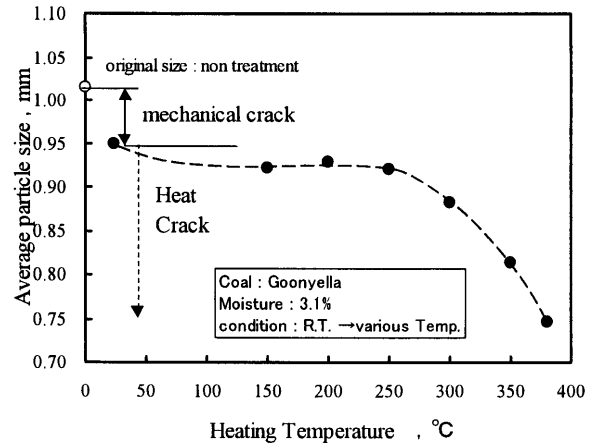


Fig. 7. Effect of heating temperature on crack of coal particle with coal moisture 3.1%.

せ、体積増加により一定空間内ではガス圧が上昇することになり、石炭粒子表面にある付着水分では石炭粒子外へ膨張していくのみであるのに対し、石炭粒子内にあるような固有水分では蒸発によるガス圧が石炭粒子自体に力として作用することになるものと推察されるからである。石炭粒子内で外力が加われば、その外力により石炭の割れにもつながることになるため、急速加熱時の石炭水分の影響では、使用した石炭範囲の固有水分の程度であるFig. 6に示すような試料水分調整範囲で試験した。このFig. 6からは、急速加熱時には、石炭粒子中の水分が粒子の熱割れに影響し、乾燥された状態であれば、使用装置の特性である機械的割れ程度になるということが理解できる。

3.4 急速加熱到達温度の熱割れに及ぼす影響

Fig. 6で示した結果のうち、石炭水分変化による急速加熱時粒径変化が最も大きく、またFig. 4に示したように試料中でも同水分時で急速加熱時の粒径低下の大きかった(最も割れやすかった)Goonyella炭を用い、室温から最高380°Cまでの種々の温度まで急速昇温させたときの、処理後平均粒径の変化についてFig. 7に示す。加熱温度が250°C程度までは使用した装置特性からの機械的粒子割れ

程度であるが、試験実施範囲で250°Cを超えた温度まで急速加熱した場合には、温度が高いほど粒子割れ程度が大きくなり、機械的粒子割れ以上の熱割れが発生し、温度上昇とともにその程度は大きくなることが認められる。Fig. 7の結果から、水分を含んだ石炭粒子を、250°Cを超えるような温度に急速に加熱することは、熱割れを生じさせるということが理解できる。加熱温度が高いほど水分蒸発後のガス化による体積膨張は大きく、石炭構造中すなわち石炭中に石炭化度の変化によりその径・量が変化して存在する気孔⁹内のガス圧は、気孔を通した粒子外への水蒸気流出抵抗との差として高まることになる。ガス圧が高まり、石炭気孔内から石炭に作用する力が破壊に対する石炭自体の強度を上回った場合に割れが発生するものと考えられる。その他には、粒子の加熱による熱応力発生の結果として対強度以上になったことも考えられる。いずれの割れの機構にしても、Fig. 7に示すようにGoonyella炭の場合、その石炭粒子の素材としての耐圧強度以上の力が作用しはじめる温度が250°Cに相当するものと考えられる。Fig. 6で述べたように、石炭粒子に水分が含まれない場合には、380°Cまで急速加熱させても熱割れがほとんど生じないことから、最高で250°Cまでの急速加熱で一旦乾燥させて水分を除去した後、所定の温度まで加熱すれば、石炭粒子の熱割れは抑制できることになる。

3.5 乾燥後石炭試料加熱時の石炭初期温度の影響

3.4では、250°Cまで急速に加熱して水分を蒸発除去させた場合には、石炭粒子の熱割れは、本試験の装置による機械的割れ程度であることを示した。SCOPE21の予熱工程では、石炭粒子の最終温度として380°C程度までが考えられており、水分を含むことによる熱割れを抑制するために250°Cまでに水分を蒸発させて、その後引き続き昇温することになる。そこでFig. 8は、水分を含んだ石炭粒子を乾燥のために割れが発生しない250°Cまでの温度として一旦何度まで上げて乾燥し、その後予熱工程の最終目標温度である380°Cまで上げればよいのかについて調べたものである。

石炭の水分は第1段の加熱（SCOPEの乾燥・分級工程）で除去されるが、その後の2段目に急速加熱する条件の変化により2段目で熱割れが発生し、それが大きなものになると前述のようにプロセス上好ましくないため、粉化からみた250°Cを上限とした一段目の加熱としては何度か適切であるかをFig. 8から考えた。

Fig. 8は、4種類の乾燥された石炭試料について示したもので、横軸に1段目の乾燥のための加熱温度を想定したもので、縦軸には各1段目加熱温度から2段目の380°Cまでの急速加熱処理後の平均粒径を示している。試料によりばらつきはみられるが、各試料とも250°C以下の乾燥温度では温度が高くなるほど平均粒径の低下がわずかに認められる。しかしその程度は小さく、装置特有の機械的割れ程度

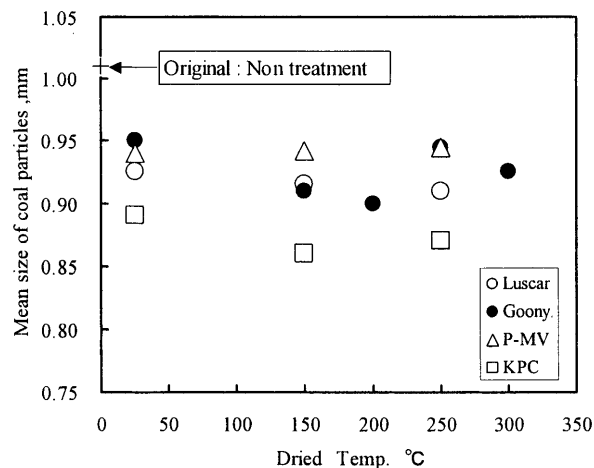


Fig. 8. Mean size of particles in rapid heating up to 380°C from various temperature at that dried rapidly.

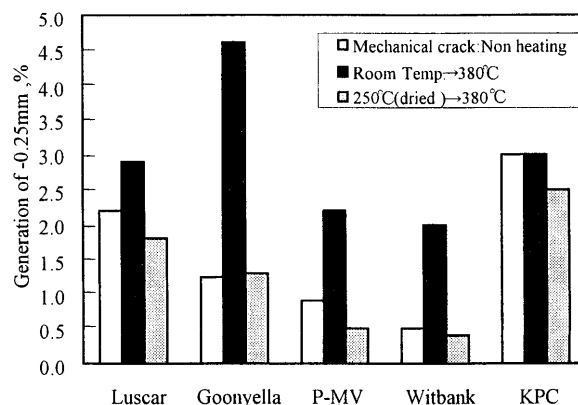


Fig. 9. Generation of fine powder (-0.25 mm) in 3 treatment conditions for various coal samples.

であり、石炭粒子が乾燥されていればいずれの乾燥温度から380°Cに急速加熱しても熱割れによる粉化への影響は小さいことがわかった。したがって、予熱工程1段目の乾燥温度の決定は、熱割れの観点からは、250°Cより低い温度で石炭中の水分が乾燥除去できる温度以上であれば問題はほとんど発生しないので、第1段の温度の設定は機器の材質の条件や乾燥時間などその他の条件により決定されることになる。

3.6 石炭粒子熱割れ時の微粉の発生

これまでの結果では、割れの発生の程度を各処理前後の平均粒径の変化で評価してきた。しかし、プロセス上問題となるキャリーオーバー等の影響としては、微粉の発生量が考慮されなければならない。そこで、ここではこれまで示した実施した試験で、①加熱しない冷間の機械的割れのみの場合、②水分3%の石炭を室温から直接380°Cまで急速加熱させた場合、③一旦250°C迄加熱・乾燥しその後380°Cまで急速加熱した場合、の3つのケースについて、その微粉発生として、0.25 mm篩下粉の発生量の測定結果をFig. 9に示す。また、各ケースの初期粒径に対する各処理後の粒径低下率と0.25 mm微粉の発生率との関係を

Fig.10に示す。5銘柄の試料の測定結果から、K-Prima炭を除き水分を含んだ石炭粒子を380°Cまで急速加熱した場合に微粉の発生量が最も多く、冷間での試験と一旦乾燥してから急速加熱した試験の場合には全ての試料で微粉の発生量はほぼ同じである。この結果、一旦250°Cで加熱乾燥した後に380°Cまで急速に加熱させても微粉のみが特異的には発生しないことがわかる。この結果から、SCOPE21プロセスの第2段急速加熱の気流塔では、乾燥された石炭粒子が供給される限り加熱条件による熱割れの面からの制約はほとんどないといえる。試験結果からは、割れによる粉の発生の問題についていえば、例えば気流塔内の塔壁との摩擦などの機械的な割れのみを考慮すればよいと考える。

3.7 急速加熱時熱割れのイメージ

ここまでの測定結果から、石炭粒子が乾燥された状態で急速加熱すれば熱割れはほとんど発生せず、また水分を含んでいても250°Cより低い温度までの急速加熱で乾燥予熱

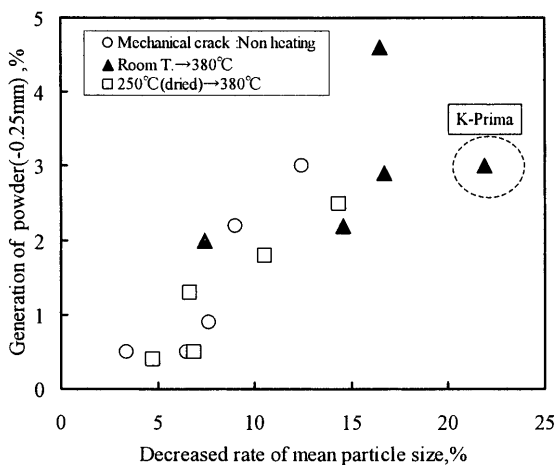


Fig. 10. Relationship between decreased rate of mean particle size to original mean size and generation of powder smaller than 0.25 mm in 3 treatment conditions.

するのであれば粒子が急速加熱装置内を通過する際に機械的割れ程度になることを示した。得られた結果から急速加熱時の熱割れのイメージについて、Fig.11に示す。

石炭中に存在する気孔などの空隙に存在するいわゆる固有水分といわれるような水分は、急速に加熱される時に蒸発・気化する。気化の速さは、与えられる熱エネルギー、ここでは加熱温度の高さに比例して速くなり、また温度が高いほど気化後のガス体積は高くなる。したがって、石炭構造中に水分があって、急速な加熱により爆発的に水分が蒸発気化し、十分に粒子外に放出されなければ気孔内のガス圧が上昇して石炭粒子の破壊・割れが発生しているのではないかと推察する。この試料間差は、石炭そのものの強度、気孔の大きさ・量によると考える。

4. 結言

本研究では、SCOPE21プロセスの石炭の炭化室への装入前の急速加熱工程の熱割れ粉化を抑制するのに適切な加熱条件を探索することを目的として、ラボ試験で加熱割れに及ぼす急速加熱条件の影響について検討を実施した。その結果、

- (1) 水分を含んだ石炭粒子を急速に室温から380°Cまで加熱すればそのときの熱割れは顕著に発生する。
- (2) 試験で用いた $\overline{Ro}=0.58\sim 1.16$ の石炭試料では(1)の急速加熱時の熱割れは \overline{Ro} が0.6~0.7程度の石炭で熱割れは最も小さい。
- (3) 試験範囲の3%までの石炭水分では、水分が高くなるほど(1)の急速加熱時熱割れ程度は高くなるが、一旦乾燥された石炭粒子を急速加熱した場合にはほとんど熱割れは発生しない。
- (4) だだ、水分を含んでいても250°Cまでの急速加熱であればほとんど熱割れが発生せず、その後ひき続いて380°Cまで急速加熱しても同様に熱割れはほとんど発生し

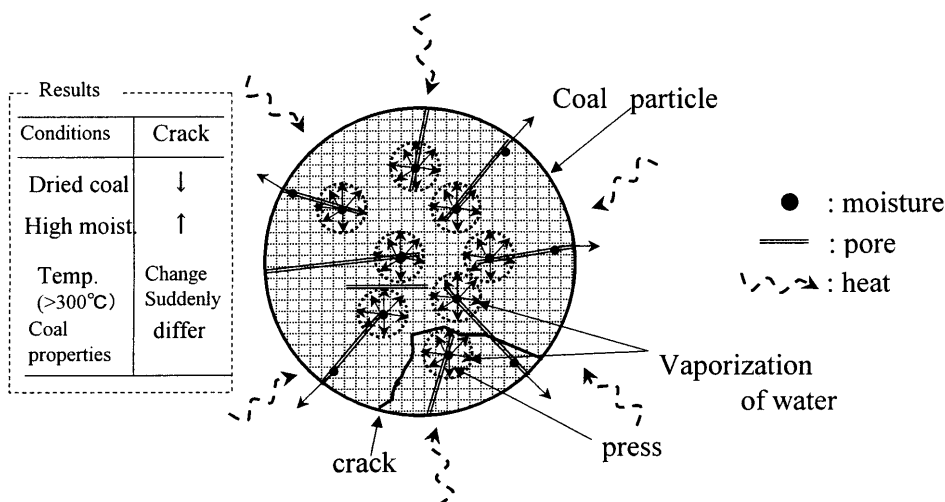


Fig. 11. Image of heat crack of coal particle heated rapidly.

ない。

ことを明らかにした。これらの結果はSCOPE21の予熱過程の各種加熱条件設定に反映された。

最後に、本研究は、石炭生産・利用技術振興費補助金の石炭の燃焼技術開発（石炭高度転換コークス製造技術）に係る研究の一環として実施されたものであり、ここに関係各位に感謝の意を表します。

文 献

- 1) H.Katayama, M.Kuwabara, T.Kawamura and G.Ohno: *CAMP-ISIJ*, **4** (1991), 37.
- 2) T.Miyagawa, Y.Muroki, M.Saga, T.Kuriyama and H.Isozaki: *Coke Circular*, **24** (1975), 118.
- 3) S.Yashima and H.Hashimoto: *Tetsu-to-Hagané*, **75** (1989), 17.
- 4) T.Ohki, J.Tanaka and T.Harada: *Shigen-to-Sozai*, **112** (1996), 37.
- 5) T.Maruyama: *J. Fuel Soc. Jpn.*, **44** (1965), 783.
- 6) P.L.Walker, Jr., S.K. Verma, J.Rivera-Utrilla and A.Davis: *Fuel*, **67** (1988), 1615.