

微粉炭の成形性に及ぼす熱間成形条件の影響

松浦 慎*・佐々木 正樹*・加藤 健次*²・中嶋 義明*³

Effect of Hot Briquetting Conditions on Briquettability of Preheated Fine Coals

Makoto MATSUURA, Masaki SASAKI, Kenji KATO and Yoshiaki NAKASHIMA

Synopsis : A double-roll briquetting machine was selected to conduct hot briquetting of the preheated fine coal without binder. Since a scale-up theory for the briquetting machine has not been established, its diameter was set at 1200 mm as the same size as that of commercial scale machine.

We were obtained as following findings about the effects of hot briquetting conditions on briquettability.

(1) The relation between the residence time of coal in a hopper and gas pressure in a void of packed bed was clarified. Enough residence time is effective means to prevent increase of gas pressure during hot briquetting of the preheated fine coal.

(2) When the briquetting temperature is more than 360°C, gas pressure in a void of packed bed rises rapidly over 5 kPa and the yield of briquette is decreased. In order to control gas pressure in a packed bed to 5 kPa or less, it is necessary to control the briquetting temperature 360°C or less.

Key words: hot briquetting; fine coal; SCOPE21; cokemaking; coal; rapid preheating.

1. 緒言

将来のコークス炉のリプレース問題に備え、現行のコークス炉の持つ、①低生産性、②エネルギー多消費型プロセス、③環境問題、④炭種制約などの諸課題を解決するための新たなコークス製造プロセス(SCOPE21)¹⁾の開発が進められてきた。SCOPE21プロセスは事前処理設備で石炭を400°C近くまで急速に予熱し、予熱炭をコークス炉へ装入することで生産性の大幅な向上を図る事が最大の特徴である。

室炉式コークス製造プロセスでは炉頂部の装入口から炭化室へ石炭を装入する際に炭化室から上昇管を介して炉外に流出するような粉をキャリアオーバーと呼び、このキャリアオーバーがコークス炉炉壁カーボン付着量の増加を招き操業の支障となるとともに、タール中に不純物が混入してタール品質を低下させる原因の一つとなっている。従来は装入炭中の水分(通常は4~10%)の影響で微粉が擬似粒子化されてキャリアオーバーの抑制に寄与していた。しかしながら予熱炭の場合にはキャリアオーバーの増加が予想されるため、キャリアオーバーを抑制する手段を新たに検討する必要がある。これを解決するための技術要素として、装入炭中の微粉部分を熱間成形により塊成化する技術が求められた。さらに熱間成形することで装入嵩密度の向上効果も期待できる。

石炭を塊成化する技術については、成形炭装入法^{2,3)}や

成形コークス製造法^{4,5)}などがこれまでに開発されているが、SCOPE21プロセスのように石炭を完全に乾燥させた後に300°C以上まで石炭を予熱して、さらにバインダーを使用しない条件のもとで熱間成形を行う技術についてこれまでに検討された例は少ない。従来、石炭を成形するためには、成形性を改善するためのバインダーとして、タールピッチやアスファルトなどの添加物を用いるか、粘結炭の熱可塑性を活用する方法がとられてきた⁶⁾。しかしながら、上記のバインダーは300°C以上では気化したり、粘性が低下して成形物の強度が低下するなどの問題が生じるため使用できなかった。現在、成形温度300°C以上で使用でき、かつコークス品質への影響を及ぼさないバインダーは存在しないのが現状である。

そこで、SCOPE21プロセスでは、高温の微粉炭をノーバインダーで成形する技術の確立を目指し、ロール径φ400 mmの成形機を用いた基礎研究で、バインダーを添加しない条件であっても微粉炭の温度が300°C以上であれば熱間成形が可能であることを確認した⁷⁾。

一方、熱間成形技術の実機化には、実機規模の成形機を用いて安定操業運転技術を確立することが極めて重要である。

本報では、パイロット試験において、実機規模のロール径での熱間成形試験を行い、熱間成形条件の検討を行った。特に重要である成形直前の高温微粉炭の事前脱気と石炭の加熱温度の成形性に及ぼす影響について検討し、安定した

平成16年1月5日受付 平成16年6月21日受理 (Received on Jan. 5, 2004; Accepted on June 21, 2004)

* 新日本製鐵(株)名古屋製鐵所(Nagoya Works, Nippon Steel Corp., 5-3 Tokaimachi Tokai 476-8686)

*² 新日本製鐵(株)環境・プロセス研究開発センター(EPC, Nippon Steel Corp.)

*³ 新日本製鐵(株)大分製鐵所(Oita Works, Nippon Steel Corp.)

熱間成形を行うための成形条件に関する知見を得たので報告する。

2. 実験方法

2.1 石炭試料

実験に使用した非微粘結炭(A)と粘結炭(B)の工業分析値とギーセラー流動性を Table 1 に示す。

実験には非微粘結炭と粘結炭を各々 50% 配合した試料を使用した。

2.2 熱間成形方法

2.2.1 石炭処理方法

試験装置の模式図を Fig. 1 に示す。石炭の急速加熱処理は以下の手順で実施した。初めに、流動層乾燥分級機にて石炭の乾燥と 250°C までの予熱を行い、0.5 mm を分級点として微粉炭と粗粒炭を分離する。流動床の標準運転条件は、石炭投入速度 5.8 t/h、ガス温度 295°C、循環風量 26,500 Nm³/h である。次に、微粉炭を気流加熱塔に供給し、気流加熱塔内で所定の温度に急速加熱処理する。気流加熱塔の標準運転条件は、石炭投入速度 2.4 t/h、ガス温度 430°C、ガス流量 12,500 Nm³/h である。急速加熱処理を行った微粉炭（以下、加熱微粉炭と記す）を熱間成形機に連続的に供給して、成形炭を製造した。

2.2.2 成形方法

(1) 原料の供給方法

熱間成形機の模式図を Fig. 2 に示す。加熱微粉炭は成形機上部に設置したホッパー（以後、成形機上ホッパーと記す）に連続的に投入され、成形機運転中にホッパー内の石炭装入レベルを一定に保つように投入量を調整した。石炭装入レベルは静電容量式レベル計で測定した。石炭は成形機上ホッパーから成形機直上のスクリーフィーダーへ供給され、スクリーフィーダーによって成形ロールへ石炭が強制供給される。スクリーフィーダーの回転数は max 225 rpm の範囲で調整可能である。

滞留時間は、成形機上ホッパー内の石炭重量と成形炭処理速度との関係から、投入された石炭が成形機上ホッパー内を通過するのに要する時間として式(1)を用いて算出した。

$$t = V_{\text{hopper}} \times \rho / R \dots \dots \dots (1)$$

t : 滞留時間 [h]

V_{hopper} : 石炭装入レベルでのホッパー容積 [m³]

ρ : 石炭嵩密度 [kg/m³]

R : 成形機処理速度およびホッパー投入速度 [kg/h]

滞留時間の調整は、成形機上ホッパーでの石炭装入レベルを変化させることで調整した。

(2) 成形ロール

成形ロールは、Fig. 2 および Table 2 の仕様を示すように、

Table 1. Properties of coal samples.

Coal	Proximate analysis		Gieseler
	VM	ASH	Plastometer
	(daf%)	(dry%)	MF
Coal A	38.0	9.2	1.70
Coal B	26.8	9.0	2.70

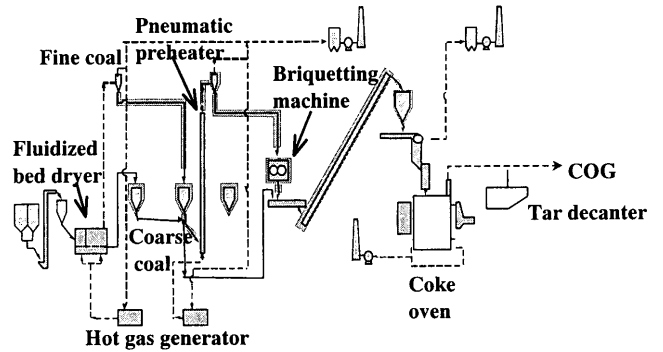


Fig. 1. Schematic diagram of the pilot plant.

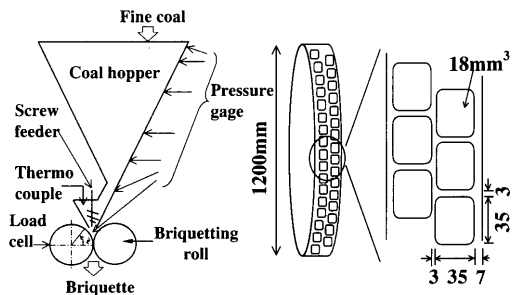


Fig. 2. Experimental apparatus for the hot briquetting of coal.

Table 2. Specification of the pilot plant.

horizontal pressure at ε=0	5,000kg/cm
briquetting roll	1200mmØ×87mmW
briquette pocket design	18mm ³ 35mm×35mm×8.5mm 200 pockets

実機相当の直径 1200 mm、幅 87 mm である。ロールポケットは 18 mm³ のマセック型であり、ロール幅方向に 2 列配置された形状である。成形ロールは可動ロールと固定ロールから構成されており、可動ロールには一定の油圧がかかるようになっている。可動ロールによるフリーギャップ方式のため、石炭供給量が変化した場合でも成形反力を一定とした運転が可能である。

成形ロール反力は可動ロール側に設置したロードセルによって計測した。

(3) 成形状態の評価

成形機のロール回転数は max 13 rpm まで調整可能であるが、通常はロール回転数 6 rpm で運転を行い、成形反力が 20~25 t になる様に押込スクリーを 50~100 rpm の範囲で

調整し、成形を開始してから1時間後に成形データが安定していることを確認して、下記の測定を行った。

①ガス圧力の測定：石炭層内のガス圧力は成形機設備の内壁表面に圧力取り出し口を設け、圧力計により測定した。圧力計はYAMATAKE製DSTJ3007を使用しゲージ圧を測定した。測定範囲は $-2\sim 20$ kPaの範囲であった。測定位置は成形機上ホッパーに5ヶ所、スクリーフィーダーに1ヶ所、ロール中心から300 mm上に1ヶ所の合計7ヶ所とした。ガス圧力は成形を開始してから1時間後の30秒間のデータを平均して用いた。ガス圧力は成形開始と終了の10分間程度は経時変化を伴うが、成形機上ホッパーへの石炭供給速度と成形機での処理速度がバランスしている期間のガス圧力は ± 0.5 kPaのばらつきの範囲で推移しており、定常状態とみなせると判断した。また、ロール中心から300 mm上部に設置した圧力計の指示値を粉体ガス圧と定めて成形性の評価に用いた。

②成形温度の測定：成形時の石炭温度は、スクリーフィーダーに設置した熱電対で測定し、成形温度と定義した。成形温度は $310\sim 370$ °Cの範囲であった。

③成形時の石炭熱分解ガス発生量の評価：成形中に発生する熱分解ガスが成形に及ぼす影響を検討するため、パイロットプラント試験とは別に、一定温度で保持した場合の石炭の重量減少速度を熱天秤（真空理工製TDG7000）を用いて測定した。測定は以下の手順で行った。石炭100 mgを白金セルに充填し、 N_2 ガス雰囲気中で $100^\circ C/min$ の昇温速度で一旦 $380^\circ C$ まで加熱した。その後所定の温度で保持を行い、石炭の重量減少速度を測定した。使用した石炭の粒径は1 mm以下とした。粒径が1 mm以下の場合、1秒以内に外表面と中心の温度が同じになるため $100^\circ C/min$ の昇温速度であっても試料を均一に加熱できると考えられる。温度制御は試料中心に設置した熱電対で行った。

2.2.3 成形炭品質評価方法

成形炭のサンプリングと歩留評価：成形炭のサンプリングは、Fig. 1に示す成形機下部とチェーンコンベアを接続する位置にサンプリングシュートを設置して、成形直後の成形物をサンプリングした。成形歩留は、サンプリング重量に対する1 mm以上の割合で評価した。

3. 結果と考察

3.1 粉体ガス圧と成形性

粉体ガス圧と成形歩留の関係を図3に示す。粉体ガス圧が5 kPa以上では、粉体ガス圧の上昇に伴い成形歩留が低下した。粉体ガス圧の増加は、粉体の圧縮に伴い空隙率が減少する際の気体発生量が増加したためであると推察できる。今回、ロール回転数6 rpmでの結果を示したが、ロール回転数4~13 rpmの範囲についても粉体ガス圧が5 kPa以上では成形歩留が低下することを確認している。

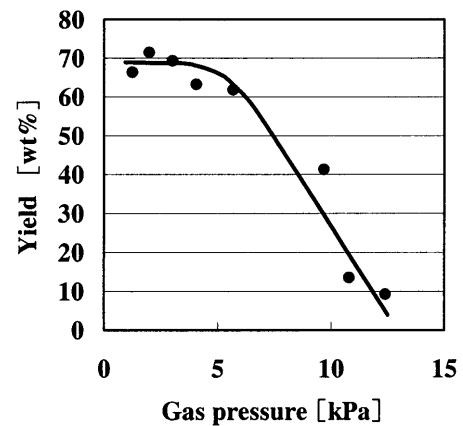


Fig. 3. Relation between gas pressure generated during briquetting and yield.

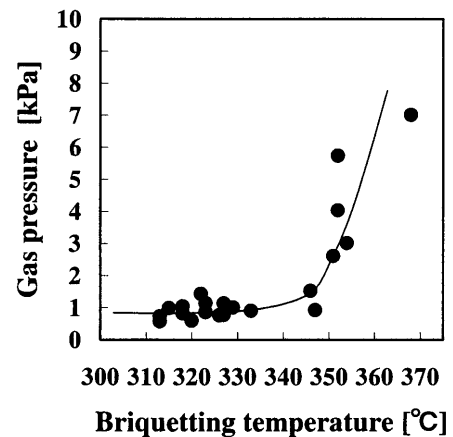


Fig. 4. Relation between briquetting temperature and gas pressure generated during briquetting.

従って、高歩留で成形を安定に行うためには粉体ガス圧を5 kPa以下に抑えることが重要であり、そのためにはロールで圧縮成形される直前の粉体の嵩密度を低下させない事が重要である。

次に、成形温度と粉体ガス圧の関係をFig. 4に示す。成形温度が $350^\circ C$ 以下の場合、粉体ガス圧は約1 kPaで一定であるが、 $350^\circ C$ 以上になると粉体ガス圧の増加が見られる。さらに $360^\circ C$ 以上では粉体ガス圧が5 kPa以上に上昇した。このように、 $300^\circ C$ 以上の成形温度では、石炭から発生する熱分解ガスが粉体ガス圧に及ぼす影響について検討する必要があることが明らかとなった。

そこで、①成形機上ホッパーでの事前脱気の嵩密度へ及ぼす影響、②高温微粉炭から発生する熱分解ガスが粉体ガス圧に及ぼす影響についてさらに検討を行った。

3.2 事前脱気の成形性に及ぼす影響

成形機上ホッパー内での滞留時間を変化させたときの石炭層内のガス圧を図5に示す。成形機の運転条件はロール6 rpm、成形温度 $315^\circ C$ である。成形機上ホッパー内の石炭装入レベルはLとHであり、滞留時間はそれぞれ7分と45分である。試験方法でも述べたように、本報告では

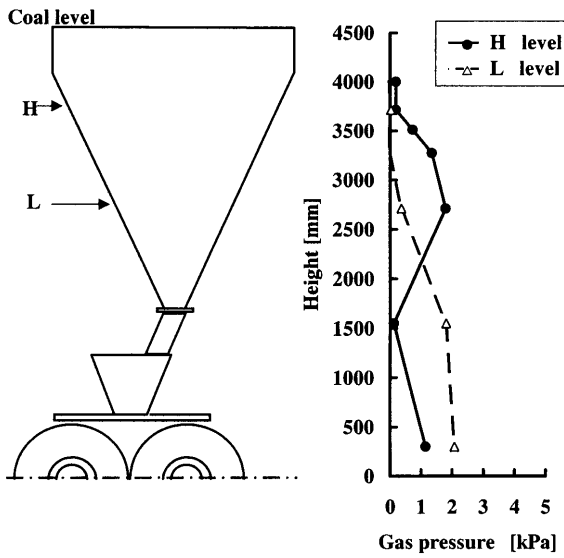


Fig. 5. Gas pressure distributions in a briquetting machine and coal hopper.

ロール上300mmの位置でのガス圧を粉体ガス圧と定めて評価を行っている。いずれの条件でも粉体ガス圧は5kPa以下であるが、両条件の結果を比較すると、滞留時間45分での粉体ガス圧は約1kPaであり、滞留時間7分での粉体ガス圧と比べて約1/2と低い事が分かった。これは、滞留時間が長いほど、成形直前のロール位置での石炭層の嵩密度が高く、粉体を圧縮成形する際の気体発生量が少なくなったことを意味している。滞留時間を45分とした条件で、高さ1500mmの位置で圧力が0kPaになるのは、この部分を移動する石炭の空隙率が上下の空隙率に比べて高いためと考えられる。

同じく滞留時間を45分とした条件で、高さ2000mmから4000mmにかけて粉体層内のガス圧が高くなった。この結果は、成形機上ホッパーで気体の発生が生じていること、つまり滞留時間の確保により事前脱気が進んでいることを示していると考えられる。

ホッパー内に静置させた場合の微粉炭の充填状態を考えた場合、初期の嵩密度は一般に0.5kg/m³程度であるが時間の経過とともに徐々に脱気して0.8kg/m³程度まで嵩密度が増加する。滞留時間を確保することは、ホッパー内の石炭の脱気挙動がこの静置した状態に相当しているものと考えられる。また実際の成形運転を考えた場合には、成形機上ホッパーへの石炭投入速度と成形速度をバランスさせれば成形機上ホッパー内の脱気状況は定常状態になっていると考えられる。

そこで、成形機上ホッパーに投入された石炭がロール成形されるまでの嵩密度変化に伴う気体発生速度を推定した。

加熱微粉炭の熱間成形を行う場合、成形前の石炭充填層の嵩密度が500~800kg/m³であるのに対して、成形炭の見掛け密度の測定結果は約1200kg/m³である。なお石炭の嵩

密度は、300°Cの石炭を200mm³の容器に300mmの高さから落下させ、容器に充填された重量から求めた値である。落下直後の嵩密度は500kg/m³であり、振動を加えながらさらに容器に石炭を充填した場合の嵩密度は800kg/m³であった。ここで嵩密度の変化に伴う気体発生量は(2)式で表される。

$$V_g = R \left(\frac{1}{BD_1} - \frac{1}{BD_2} \right) \dots\dots\dots (2)$$

V_g : 気体発生速度 [m³/h]
 R : 成形機処理速度およびホッパー投入速度 [kg/h]
 BD_1 : 圧縮前嵩密度 [kg/m³]
 BD_2 : 圧縮後嵩密度 [kg/m³]

今回、検討条件は成形機上ホッパー内の石炭装入レベルを高さ2700mm（滞留時間7分）と高さ3700mm（滞留時間45分）とした場合の2条件とした。推定にあたり以下の仮定をおいた。①成形機上ホッパーに投入された時点での石炭嵩密度を500kg/m³とする。②高さ3700mmの石炭装入レベルに投入した条件において、高さ700mm位置に石炭が到達した時の嵩密度を800kg/m³とする。③高さ2700mmの石炭装入レベルに投入した条件において、高さ700mm位置に到達した時に嵩密度を600kg/m³とする。④その後、それぞれの嵩密度の状態から、成形ロールにより圧縮成形されロール中心位置で1200kg/m³まで圧縮成形される。⑤ホッパー内の石炭温度は外表面を断熱材とヒーターで一定温度となるよう保持される。⑥発生したガスのホッパー内の移動は考慮しない。

上記の仮定に基づき算出したガス発生速度の高さ方向分布をFig. 6に示す。高さ300mmでのガス発生速度は、石炭装入レベル3700mmの条件とした場合に約0.5Nm³/hであり、石炭装入レベル2700mmの条件とした場合のガス発生速度の約1.0Nm³/hと比較して、約1/2となった。発生ガスの系外への抜け方がいずれの条件で変わらないと仮定すると、この結果は、石炭装入レベルをHとした場合に石炭装入レベルをLとした場合と比べて、粉体ガス圧の実測値が1/2となる現象をよく表現していると考えられる。ロール近傍に限定すると、発生したガスの抜け方はロール間の機械的な隙間から抜けるものが大部分であると考えられる。この部位でも嵩密度が高い条件の方がガス圧が低くなっていることから、ガス圧に与える影響はガスの抜け方よりもガス発生量の方が大きいと考えられる。

以上の結果は、石炭装入レベルを高く設定し滞留時間を十分に確保することが、粉体ガス圧を低く抑えるための有効な手段であることを示唆している。

3.3 成形温度が成形性に及ぼす影響

熱間成形を行う300°C以上の温度領域では、石炭から発生する熱分解ガスが成形性に及ぼす影響について検討する

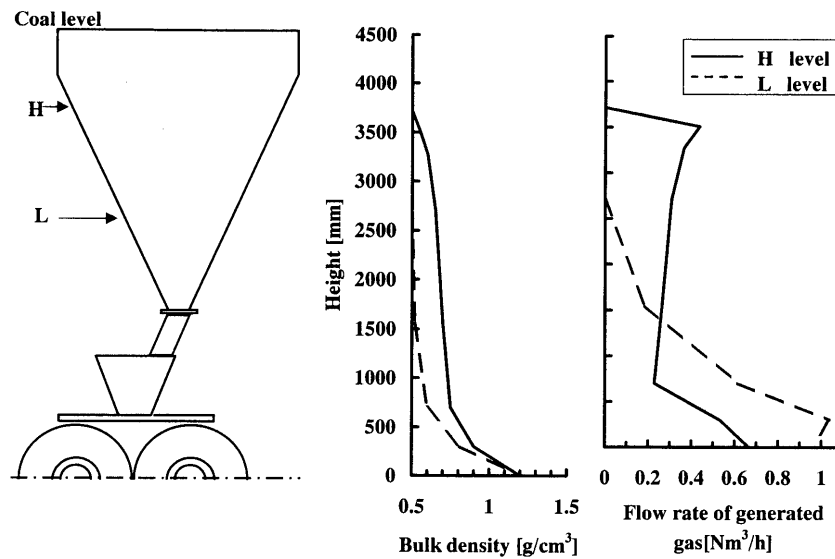


Fig. 6. Gas volume distributions in a briquetting machine and coal hopper.

必要がある。ここでは、成形温度が成形性に及ぼす影響を明らかにするために、石炭温度と熱分解ガス発生速度との関係について検討した。

石炭保持温度と重量減少速度の関係を Fig. 7 に示す。300°C から 330°C の間では石炭の重量減少はほとんどなく、350°C にかけて徐々に重量が減少しはじめ、360°C 以上になると急激に減少している。このように、Fig. 4 に示した成形温度を上げた場合に粉体ガス圧が増加する挙動と、Fig. 7 で示した熱分解ガスの発生が増加する挙動は、いずれも 360°C を境界として急激に増加する点が一致している。

充填層内で発生したガスが Fig. 8 に示すように 1 次元的に流れる場合には、充填層内のガス流速と圧力の関係は式 (3) で表される。発生ガス速度 F と差圧 ΔP は比例関係にある。このため、発生ガス速度が増加した場合には ΔP が増加する。 P_2 が一定の場合にはすなわち P_1 が増加することが説明できる。

$$\frac{\Delta P}{L} = \frac{150 \cdot (1 - \epsilon)^2}{\epsilon^3 \cdot D_p^2} \mu \cdot \frac{F}{A} \dots\dots\dots (3)$$

- ΔP : 差圧 [kPa/m]
- L : 距離 [m]
- ϵ : 空隙率 [-]
- D_p : 粒径 [m]
- μ : 粘度 [Pa·s]
- F : ガス発生速度 [m³/s]
- A : 面積 [m²]

このことから、成形温度が 360°C 以上で粉体ガス圧が急激に上昇する原因は熱分解ガス速度が増加するためであると考えられる。

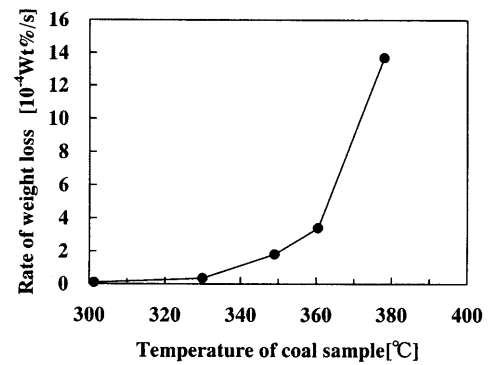


Fig. 7. Relation between temperature and weight loss speed.

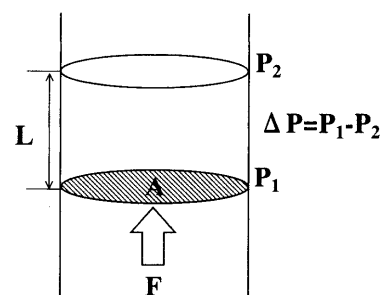


Fig. 8. Illustration of gas flow in packed bed.

従って、粉体ガス圧が 5 kPa 以下の条件で成形を行うためには、成形温度が 360°C 以下となるように運転条件を定める必要があることが明らかとなった。

4. 結言

実機規模のロール径での試験を行い、適正な熱間成形条件について、以下の知見を得た。

- (1) 成形を安定に行うためには、粉体ガス圧を 5 kPa 以

下に抑えることが重要である。

(2) 成形機上ホッパーでの滞留時間と粉体ガス圧の関係を明らかにした。滞留時間を十分に確保する事が粉体ガス圧の増加を防ぐ有効な手段である。

(3) 成形温度を360°C以上に上げると粉体ガス圧が急激に上昇することが明らかとなった。粉体ガス圧を5 kPa以下にするためには、成形温度を360°C以下にする必要がある。

本研究は石炭生産・利用技術振興費補助金の石炭燃焼技術開発(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) K.Nishioka: Proc. 1st Int. Cong. on Science and Technology of Iron-making (ICSTI '94), ISIJ, Tokyo, (1994), 378.
- 2) M.Yoshinaga, T.Sanada, T.Okuhara, M.Utunomiya and H.Yamamoto: *Seisen Kenkyu*, **288** (1976), 1.
- 3) H.Matsunami: *Coke Circular*, **13** (1964), 63.
- 4) S.Ida: *Nenryo Kyokai-shi*, **51** (1972), 544.
- 5) T.Okuhara, T.Nishi, H.Nakama, T.Saito, S.Sakurai, K.Yuta, N.Nishihara and K.Yoshimi: *Seisen Kenkyu*, **299** (1979), 19.
- 6) 木村秀雄, 藤井修治: 第3版(増補版)石炭 化学と工業, 三共出版, 東京, (1984), 310.
- 7) K.Hanaoka, K.Nushiro and I.Ikawa: *CAMP-ISIJ*, **16** (2003), 103.