

高熱伝導度炭化室壁を有する試験炉で乾留した コークスの性状と生産性

笠井 昭人*・岩切 治久*・上條 綱雄*

Quality and Productivity of Coke Carbonized by
Experimental Oven Constructed Chamber Wall Made of High Thermal Conductivity Material
Akito KASAI, Haruhisa IWAKIRI and Tsunao KAMIO

Synopsis : In order to clear the effect of thermal conductivity of chamber wall on coke quality and productivity, coke was carbonized at the range from 800°C to 1000°C by a test coke oven. The chamber width was from 200mm to 450mm and was equal to that of a conventional coke oven. Using the chamber wall made of stainless steel as a high thermal conductivity material, the wall temperature of combustion chamber side was same as that of coke oven chamber side. Then, the following results were obtained.

- (1) When the heating rate in coal bed at the range from 400°C to 500°C was equal to that of conventional coke, the size, drum index and reactivity of coke carbonized about 850°C were equal to that of conventional coke.
- (2) Increasing the heating rate, the drum index of coke carbonized at medium temperature using low fluidity blend coal became high.
- (3) When coke was carbonized under the condition of wall temperature from 800°C to 850°C, the coking time and productivity were same as that of conventional coke.

Therefore, increasing thermal conductivity of chamber wall, quality and productivity of coke carbonized at medium temperature were equal to that of conventional coke oven.

Key words : coke ; medium temperature carbonization ; thermal conductivity of chamber wall ; thickness of chamber wall ; chamber width ; heating rate.

1. 緒言

日本の室炉式コークス炉は1970年代前後に建設されたものが大半であり、大型コークス炉の寿命を30～35年とする、21世紀初頭に訪れるコークス炉の更新は大きな問題となってくる¹⁾。高炉法が基本的な製鉄法である限り、塊状のコークスは必要不可欠である。従来の室炉式コークス炉を再度建設する場合の問題点として、(1)莫大な設備投資が必要、(2)CO₂問題に代表される地球環境への影響²⁾、(3)コークス炉からの乾留ガス漏れ、粉塵、タール等による労働環境問題の改善が必要、等が挙げられる。なかでも莫大な初期設備投資は経営上大きな問題である。

そこで、上記課題を解決するものとして、近年新しいコークス製造プロセスの開発³⁻⁹⁾が試みられている。特に、中低温乾留法に関しては、(1)生産性向上による設備費の低減、(2)乾留熱量低減による省エネルギー、(3)CO₂、NO_x排出量の低減等が可能であるとの観点から、基礎的に検討⁵⁻⁹⁾が進められている。岩切ら^{10,11)}は、小型レトルト炉を用いて

600～900°Cの中低温域で乾留したコークス性状の調査と一次元の伝熱シミュレーション計算から、高強度の中低温乾留コークスを製造するために必要な炉温、石炭層内昇温速度と昇温速度に及ぼす炭化室壁熱伝導度、壁厚、炉幅の影響を基礎的に検討しているが、実機規模での評価は十分ではない。

そこで本研究では、炉幅を実炉サイズに模擬した試験乾留炉において中低温域で実サイズのコークスを製造し、炭化室壁材に高熱伝導度材料を用いた場合のコークスの性状と生産性について検討した。

2. 実験方法

2・1 乾留炉

試験乾留炉^{11,12)}の概略図をFig. 1に示す。加熱はコークス炉ガスの燃焼により行った。炭化室は炉幅、材質(熱伝導度)、壁厚が容易に変更可能なレトルト形式とした。

レトルトの仕様をTable 1に示す。レトルトサイズは、高

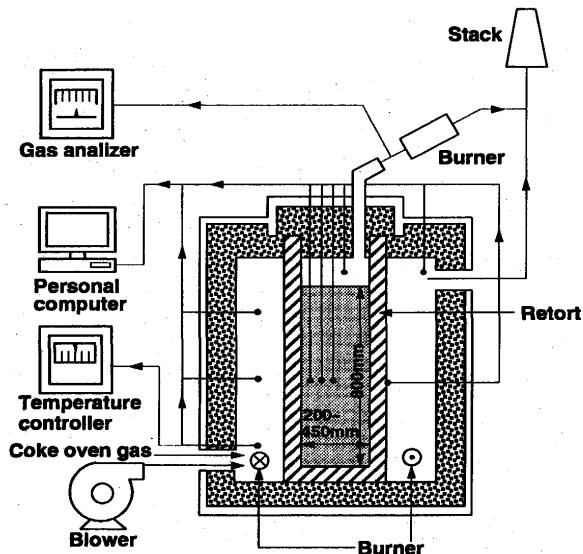


Fig. 1. Schematic diagram of test coke oven.

Table 1. Physical property and size of coke oven chamber.

Retort No.	Chamber wall			Chamber width (mm)
	Material	Thermal conductivity (W/mK)	Thickness (mm)	
A	Stainless steel	22	8	300
B				450
C	Silicon carbide	12	50	200
D				300
E				450
F	Fire brick	1.5	110	450

さ1100mm(装炭高さ800mm), 奥行き800mmで, 炉幅のみ200mm, 300mm, 450mmの3水準に変更した。炭化室壁熱伝導度の影響を検討するため, 热伝導度が大幅に異なるステンレス鋼, 炭化けい素, 耐火レンガをレトルトの壁材に用いた。レトルトの壁厚は, 耐火レンガの場合は現行の室炉を基準に110mmとした。一方, ステンレス鋼と炭化けい素は熱伝導度が高いことから壁内の温度低下が小さいと考えられるので, 壁厚はレトルトの構造強度を保つのに必要な厚さとしてそれぞれ8mm, 50mmとした。炉幅は, 耐火レンガの場合は現行の室炉を基準に450mmとした。炉幅が変化した時の生産性とコークス品質に及ぼす影響を検討するため, ステンレス鋼の場合の炉幅は300mm, 450mmの2水準, 炭化けい素の場合の炉幅は200mm, 300mm, 450mmの3水準とした。

2・2 試料

用いた配合炭の性状として, ギーセラー最高流動度とビトリニットの平均最大反射率をTable 2に示す。基準となる

Table 2. Properties of blend coal.

No.	log(maximum fluidity (-))	Mean maximum reflectance (%)
a	2.52	1.13
b	2.55	1.08
c	2.35	1.09
d	2.15	1.09
e	1.86	1.10

配合炭aと, 配合炭aに比してビトリニットの平均最大反射率が1.08~1.10と小さく, ギーセラー最高流動度を変化させた配合炭b~eを用いた。配合炭は3mm以下の重量割合が80%, 水分は8%で, 嵩密度が無水ベースで700kg/m³になるようレトルトに充填した。

2・3 乾留方法

石炭をレトルトに充填した後, 予熱してある炉にレトルトを装入し乾留した。炉温は炉下段のバーナー近傍の熱電対により制御した。ガスフリューの温度は800~1150°Cに, 炉壁の平均温度は790~1050°Cに変化させた。乾留後のコークスは, 窒素雾囲気中で乾式冷却した。

本試験では, コークス層の高さ方向, 奥行き方向, 炉幅方向の中心が炉壁設定温度より50°C低い温度に到達した時点を乾留の終了とし, 以下, この時のコークス層高さ方向, 奥行き方向の中心で炉幅方向の壁側, 中間部, 中心部3点の算術平均温度を最終コークス温度とした。また, 升温中の石炭が軟化溶融する400~500°Cの升温速度は, 炉壁から炉幅の1/4の距離の石炭層内升温速度で代表させた。レトルトFを用い, コークス温度約1000°Cで乾留したコークスを現行室炉法のコークスとみなし, 高温乾留コークスとした。

2・4 コークス性状評価方法

(1) コークス粒度

試料は, 窒素冷却したコークスケーキのうち, 上下方向及び奥行き方向からの伝熱の影響を受けていると考えられる, 高さ方向の上下200mmずつ, 奥行き方向の前後200mmずつをそれぞれ除いた部分である。コークス粒度は, JIS落下試験装置を用いて2mの高さから試料の全量を2回落下させた後の算術平均から求めた。

(2) ドラム強度指数

試料は, コークス粒度測定後試料から粒度構成が等しくなるように採取した25mm以上のコークス10kgである。ドラム強度指数DI₁₅₀は, JIS K 2151に準じ, JISドラム試験機を用いて150回転した後の15mm以上の重量割合である。

(3) 反応性

反応性RIは, 20±1mmに整粒したコークス200gを内径75mmのステンレス製レトルトに充填し, JIS還元炉を用いて1100°Cで5Nl/minのCO₂ガスと2時間反応した後の重量減

少割合から求めた。

3. 実験結果および考察

3・1 石炭層内400°C~500°Cの昇温速度

乾留中のガス温度変化、石炭層内温度変化の一例として、レトルトAでコークス温度約850°Cの場合をFig. 2に示す。

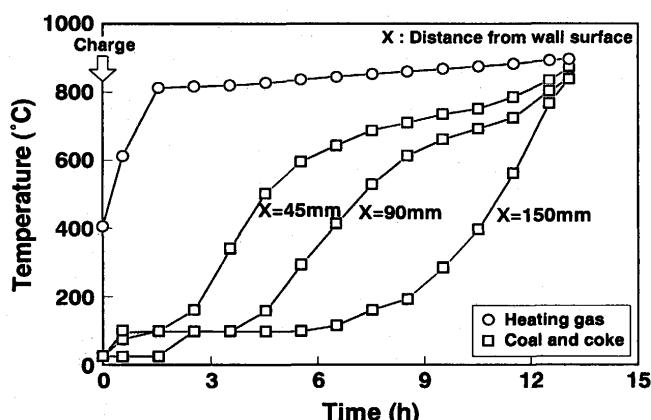


Fig. 2. Changes of temperature during carbonization.

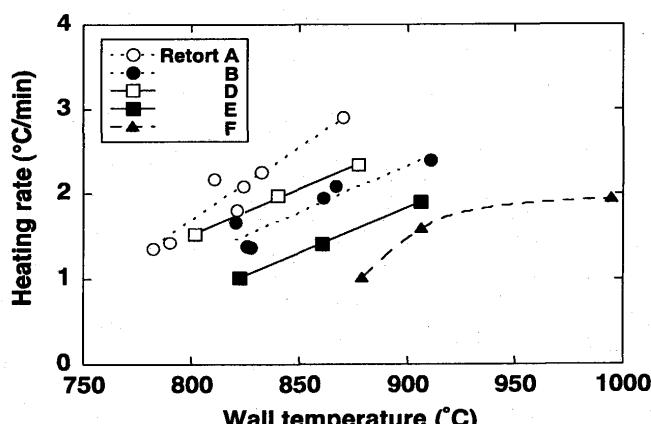
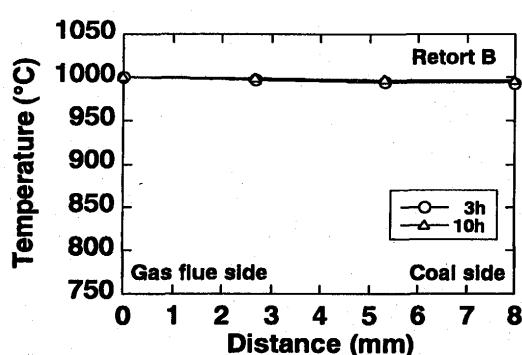


Fig. 3. Relationship between heating rate and wall temperature.



ガス温度は、レトルトを炉に装入した直後、一旦400°C程度まで低下しているが、約2時間後には回復し、その後、炉の蓄熱により若干上昇している。以下、ガス温度が回復してから乾留終了までの高さ方向と奥行き方向の中心で、ガスフリュー側の炉壁温度の算術平均値を炉壁温度とした。

乾留過程における石炭層内400~500°Cの昇温速度はコークスの気孔の形成を介して塊コークス性状に大きな影響を与える¹⁰⁾。石炭層内400~500°Cにおける昇温速度を調べ、炉壁温度との関係をFig. 3に示す。いずれのレトルトを用いた場合も、昇温速度は炉壁温度の上昇とともに大きくなっている。炉幅450mmの場合について壁材の影響を見ると、同一炉壁温度では、壁材の熱伝導度が高いほど昇温速度は高くなっていることがわかる。高温乾留時の昇温速度は約2°C/minであるのに対し、レトルトAの時は約810°C、レトルトBの時は約860°Cで同等の昇温速度となっている。

ここで、一次元非定常熱伝導方程式を基礎式としたコークス炉内伝熱シミュレーションモデル¹³⁾を用い、レトルトB、Fの場合のレトルト炉壁内温度分布を計算した。ガスフリュー側炉壁の初期温度が1000°Cで、炉幅が450mmの場合の所定時間後のレトルト炉壁内温度分布の計算結果をFig. 4に示す。壁材の熱伝導度が高く壁厚が薄いレトルトBの場合は、乾留開始から3時間後でも炉壁内ではほとんど温度低下を起していない。一方、壁材の熱伝導度が低く壁厚が厚いレトルトFの場合は、10時間後では炉壁内で150°C程度、20時間後でも100°C以上温度低下している。したがって、同一炉壁温度で比較した場合、壁材に熱伝導度の高い材質を用いた方が石炭層側の炉壁温度が高く、石炭層内昇温速度が高くなることがある。すなわち、石炭層内で同一昇温条件を得るために炉壁温度を低下することが可能になる。

3・2 コークス性状

(1) コークス粒度

コークス温度とコークス粒度の関係を、炉幅450mmの場合についてFig. 5に示す。いずれのレトルトを用いた場合も、コークス温度が高くなるとコークス粒度は直線的に小さくなっている。同一コークス温度で比較すると、壁材の熱伝導度が高い方がコークス粒度は小さくなっている。これは、

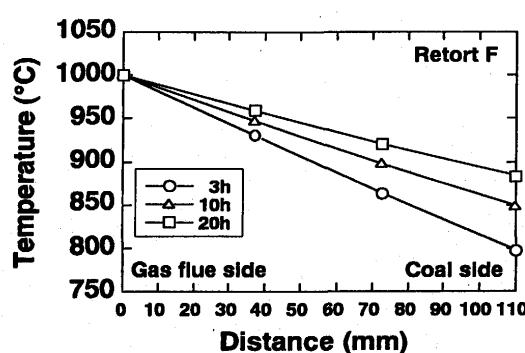


Fig. 4. Temperature distributions in chamber wall.

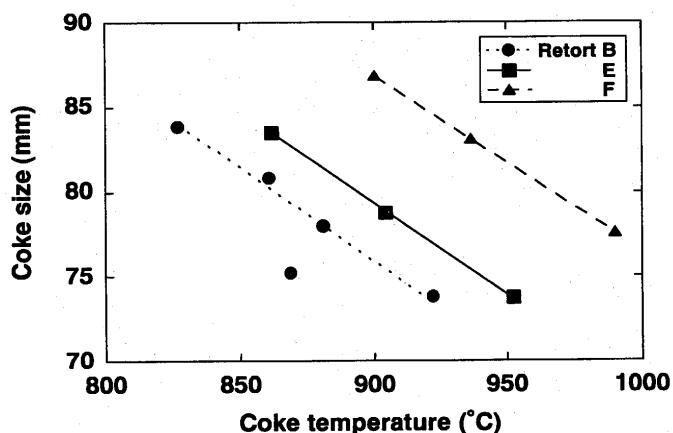


Fig. 5. Relationship between coke size and coke temperature.

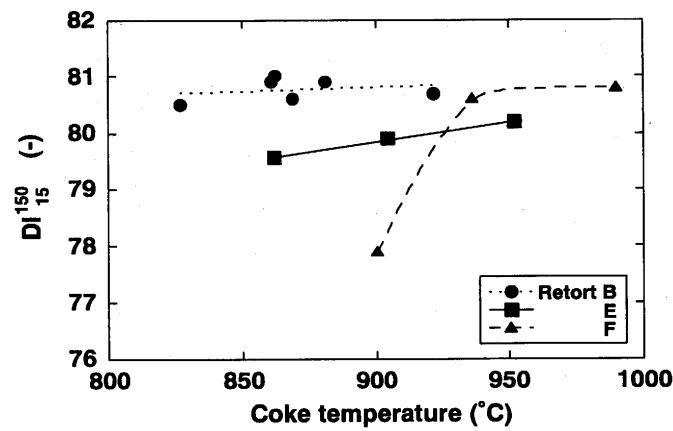


Fig. 6. Relationship between drum index and coke temperature.

石炭層側の炉壁温度が高く、再固化以降の石炭層内昇温速度が高くなるため、亀裂の発生が増加したもの¹⁴⁾と推察される。また、レトルトBを用いた場合、コークス温度が880°C程度で高温乾留と同等のコークス粒度となっている。

(2) ドラム強度指数

コークス温度とドラム強度指数の関係を、炉幅450mmの場合についてFig. 6に示す。レトルトFを用いた場合、コークス温度の低下に伴いドラム強度指数は大きく低下している。一方、レトルトB, Eの場合、ドラム強度指数に及ぼすコークス温度の影響は比較的小さい。また、同一コークス温度で壁材の影響を見ると、壁材の熱伝導度が高い方がドラム強度指数は高くなっている。さらに、レトルトBの場合、高温乾留より150°Cも低い850°C程度でも高温乾留と同等のドラム強度指数を示している。

(3) 反応性

反応性とコークス温度の関係の一例を、炉幅450mmの場合についてFig. 7に示す。いずれのレトルトを用いた場合も、コークス温度が低くなると反応性は高くなっている。同一

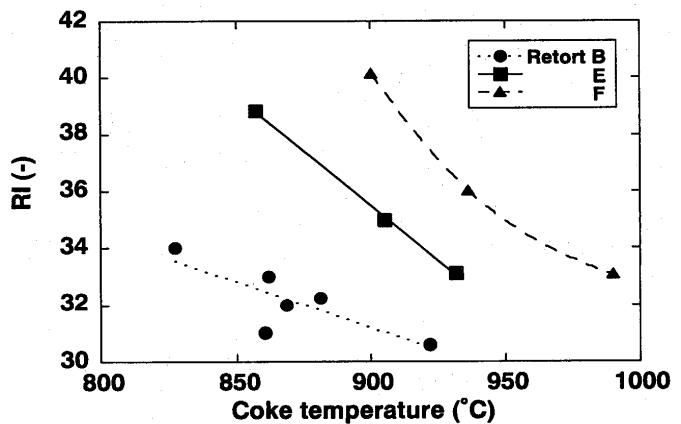


Fig. 7. Relationship between reactivity and coke temperature.

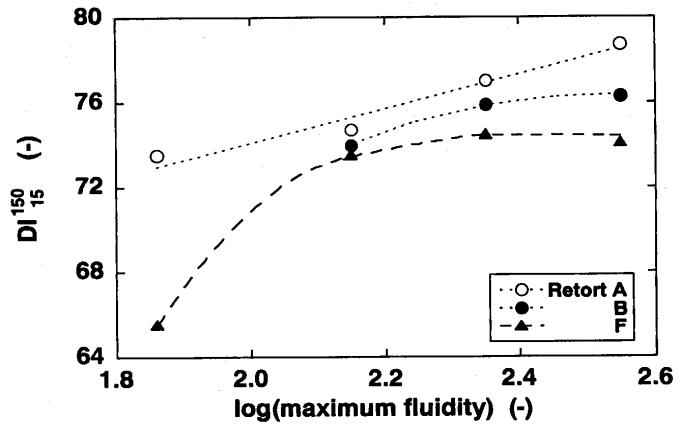


Fig. 8. Relationship between drum index and maximum fluidity of coal.

コークス温度で比較すると、壁材の熱伝導度が高い方が反応性は低くなっている。また、レトルトBの場合、コークス温度850°C程度で高温乾留と同等の反応性を示している。

以上より、粒度、ドラム強度指数、反応性のいずれについてもレトルトBを用いると、コークス温度850°C程度で高温乾留と同等の品質が得られている。この時、石炭層内400~500°Cの昇温速度は約2°C/minであり、高温乾留時とほぼ同じである。すなわち、高温乾留と同程度のコークス品質を得るには、石炭層内400~500°Cの昇温速度を高温乾留と等しくすることが必要であることがわかる。

(4) 配合条件の影響

ドラム強度指数とギーセラー最高流動度の関係を、ビトリニットの平均最大反射率がほぼ一定でギーセラー最高流動度が異なる配合炭b~eを用いた場合についてFig. 8に示す。ここで、レトルトAとBのコークス温度は約850°C、レトルトFのコークス温度は約1000°Cで、石炭層内400~500°Cの昇温速度はレトルトAの時がレトルトB, Fの時より多少高い。

炉幅450mmのレトルトBとFのドラム強度指数は、ギーセ

ラー最高流動度が $2.15\sim2.55$ の範囲ではレトルトBの方が多少高くなっている。レトルトFの場合、ギーセラー最高流動度が約2.1以下ではドラム強度指数が大きく低下している。一方、炉幅300mmのレトルトAの場合、ギーセラー最高流動度 $1.86\sim2.55$ の範囲でギーセラー最高流動度の低下に伴うドラム強度指数の低下幅は小さく、ギーセラー最高流動度 1.86 の配合炭を用いても、高温乾留でギーセラー最高流動度 2.55 の配合炭を用いた場合と同等のドラム強度指数を維持している。一般に、昇温速度を大きくすると流動性は高くなる¹⁵⁾ことが知られており、昇温速度が上昇すると応力が集中しにくい丸い気孔が形成¹⁰⁾されるとともに、流動性の向上と発泡による気孔壁の接着性の向上効果がコークス強度の改善に寄与すると考えられる。そこで、流動性が 2.15 以下の流動性支配領域と考えられる領域について見ると、レトルトFでの大幅な強度低下とレトルトAでのわずかな強度低下の差は昇温速度に依存した流動性の差であることがわかる。一方、流動性が 2.15 以上の平均最大反射率支配領域と考えられる領域でも昇温速度の影響が認められる。これは、昇温速度上昇効果のうち、気孔壁の接着性を高める発泡作用によるものと推察される。

3・3 生産性

(1) 乾留時間

乾留時間はフリュー温度で管理されているので、乾留時間と炉壁温度の関係を、炉幅450mmの場合についてFig. 9に示す。レトルトFで炉壁温度約 1000°C の高温乾留時の乾留時間は約21時間で、実際の室炉式コークス炉の平均的乾留時間とほぼ同等である。いずれのレトルトを用いた場合も、炉壁温度の低下とともに乾留時間は増加しているが、同一炉壁温度で比較すると、壁材の熱伝導度が高くなると石炭層内昇温速度が高くなるため、乾留時間は短くなっている。レトルトBの乾留時間は、炉壁温度を 850°C に低下しても約19時間で、高温乾留時より約2時間短くなっている。

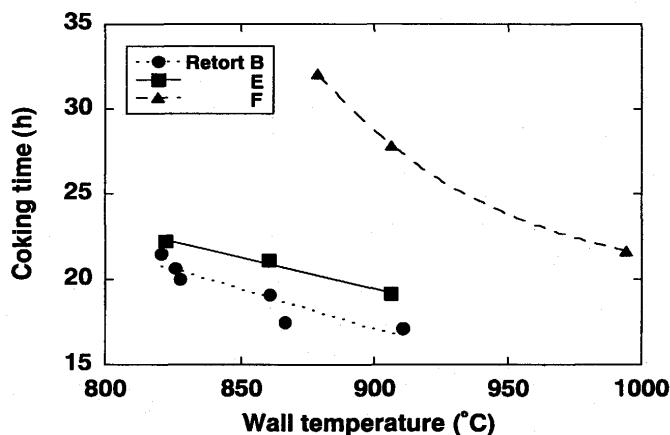


Fig. 9. Relationship between coking time and wall temperature.

(2) 生産性

炭化室内石炭の伝熱は炉壁二方向からの伝熱と考えられる。そこで、炉幅方向の単位面積A(m^2)当たりの生産量を生産性P($\text{kg}/\text{m}^2\cdot\text{h}$)として、生産性は次式より求めた。

$$P = m / (2tA)$$

ここで、 $m(\text{kg})$ は無水ベースでのレトルト内石炭重量、 $t(\text{h})$ は乾留時間である。

生産性と炉壁温度の関係をFig.10に示す。生産性は炉壁温度が高くなるとほぼ直線的に高くなっている。炉幅450mmで比較すると、レトルトFの高温乾留時の生産性は $7.3\text{kg}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ であるが、壁材の熱伝導度が高いレトルトBの生産性は炉壁温度 850°C で約 $8\text{kg}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 、レトルトEの生産性は 850°C で約 $7.5\text{kg}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ であり、炉壁温度が 150°C 程度低くても高温乾留と同等以上の生産性が得られている。炉幅が 300mm であるレトルトAの生産性は、炉壁温度 800°C で約 $7.5\text{kg}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ 、炉壁温度を 850°C にすると約 $9\text{kg}/\text{m}^2\cdot\text{h}$ となり、高温乾留時の約1.2倍となっている。

(3) 乾留時間と炉幅の関係

室炉式コークス炉の乾留時間と炉幅W(mm)の関係は、定数nを用いると一般に次の関係式¹⁶⁻¹⁸⁾で表される。

$$t \propto W^n$$

乾留時間に与える炉幅の影響の実験値及び計算値をFig.11に示す。計算には前述のシミュレーションモデル¹³⁾を用いた。計算時の乾留終了は、壁材に耐火レンガを用い、ガスフリュー温度 1100°C の場合は炭化室内炉幅方向中心部が 1000°C になった時点である。同様に、壁材にステンレス鋼を用い、ガスフリュー温度 900°C の場合の乾留終了は、炭化室内炉幅方向中心部が 850°C になった時点である。

壁材に耐火レンガを用いた場合の計算によるn値は1.22で、実炉規模の試験乾留炉の結果¹⁸⁾とほぼ一致している。ステンレス鋼を用いた場合の計算によるn値は1.59で、炉幅を狭くした時に乾留時間低減効果が大きくなっている。一方、実

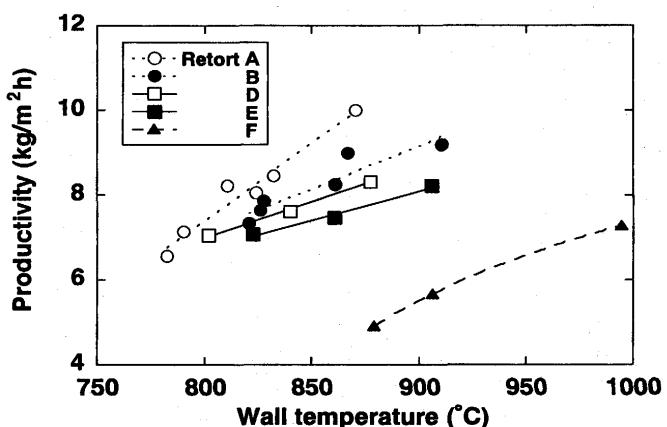


Fig. 10. Relationship between productivity and wall temperature.

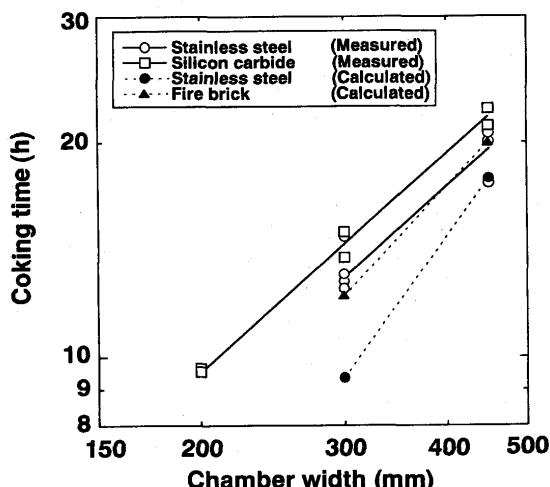


Fig. 11. Effect of chamber width on coking time.

験によるn値は、壁材にステンレス鋼を用いコークス温度850～870°Cの時は1.10、炭化けい素でコークス温度850～900°Cの時は1.01である。

n値の実験値が文献値¹⁶⁻¹⁸⁾及び計算値より多少小さな値となっている原因は、(1)実際の室炉式コークス炉は炉高と炉長に比して炉幅の割合が非常に小さく、石炭層は炉壁からの一次元の伝熱に近いのに対し、本試験乾留炉は炉幅の割合が炉高と炉長に比較的近く、石炭層内伝熱が三次元的伝熱の影響を受けている可能性があること、(2)乾留終了温度を一定値ではなく、炉温に応じて変化させたことによると推察される。したがって、実炉サイズのコークス炉を考えた場合、壁材がステンレス鋼で炉幅が狭い時の乾留時間は今回の実験値よりさらに短くなる可能性がある。

4. 結言

炉幅を実炉サイズに模擬した試験乾留炉において中低温域で実サイズのコークスを製造し、炭化室壁熱伝導度が

コークスの性状と生産性に及ぼす影響について検討した。炭化室壁材に高熱伝導度材料としてステンレス鋼を用いた場合、以下の知見を得た。

(1) 850°C程度の中低温域で乾留したコークスの粒度、ドラム強度指数、反応性を従来室炉の高温乾留と同等に維持するには、高温乾留と同程度の石炭層内400～500°Cの昇温速度を確保する必要がある。

(2) 石炭層内昇温速度を増大させることにより、ギーセラー最高流動度の低い配合炭のドラム強度指数は中低温域の乾留でも向上する。

(3) 炭化室壁材の熱伝導度を向上することにより、800～850°Cの炉壁温度で乾留しても、高温乾留と同等の生産性が得られる。

文 献

- 1) 滝沢 譲：鉄と鋼, 78 (1992), 969.
- 2) 井上清彦：日本機械学会誌, 94 (1991), 316.
- 3) G.Nashan:Cokemaking Int., 2 (1990), 19.
- 4) 奥原捷晃：石炭利用技術研究発表会講演集, 石炭技術研究所, (1987), 127.
- 5) 持田 熊, 光来要三：鉄と鋼, 77 (1991), 471.
- 6) 山本保典, 有馬 孝, 奥原捷晃：材料とプロセス, 1 (1988), 1004.
- 7) 有馬 孝, 西 啓, 奥原捷晃：材料とプロセス, 2 (1989), 28.
- 8) 鈴木喜夫, 板垣省三, 森下良彦, 塚田鋼二, 根本謙一：鉄と鋼, 72 (1986), S853.
- 9) 板垣省三, 鈴木喜夫, 三谷成康：材料とプロセス, 4 (1991), 133.
- 10) 岩切治久：鉄と鋼, 78 (1992), 1314.
- 11) 岩切治久, 上條綱雄, 小林 熊, 北村雅司, 天本和馬：材料とプロセス, 5 (1992), 74.
- 12) H.Iwakiri, T.Kamijo and I.Kobayashi : The First Int. Cong. of Science and Technology of Ironmaking, (1994), 360.
- 13) 馬伏弘恭, 上村信夫, 秋田弘道, 田村繁彦：材料とプロセス, 2 (1989), 916.
- 14) 板垣省三, 鈴木喜夫, 下山 泉, 深田喜代志, 田原 勉, 石黒宏樹：材料とプロセス, 7 (1994), 932.
- 15) D.W.Van Krevelen : COAL SCIENCE AND TECHNOLOGY 3 COAL Typology - Chemistry - Physics - Constitution, Elsevier Scientific Publishing Company, (1981), 274.
- 16) 鈴木喜夫, 船曳佳弘：鉄と鋼, 69 (1983), S813.
- 17) 有馬 孝, 小林勝明, 奥原捷晃：鉄と鋼, 72 (1986), S841.
- 18) W.Rohde, D.Habermehl and C.Flockenhaus : Proc. of the 41st Ironmaking Conf., (1982), 325.