

## 学 位 論 文 題 名

## 気孔構造制御による高強度コークス製造に関する研究

## 学位論文内容の要旨

わが国のコークス製造は、鉄鉄生産量の1/2にあたる約4000万トンの膨大な量にのぼる。高炉製鉄法において、コークスは主原料として、①通気・通液を確保するための充填材、②加熱のための燃料、③鉱石の還元剤、の三つの役割があり、その品質は高炉の生産性を大きく左右するため、徹底した改良研究が行われている。高炉に最適なコークスの性質は、高炉の炉形、鉱石性状、装入物分布、操業緒元などによってことなる。一般には、炉内の重荷重、降下にとまなう摩擦、 $\text{CO}_2 \cdot \text{H}_2\text{O}$ によるガス化反応などに耐え得る、機械的・化学的破壊に強い高強度コークスが必要とされている。このようなコークス性状の改善には、これまで、原料炭の活性成分と不活性成分のバランス、活性成分の質と流動性、などを指標とした配合理論を基礎とする手法が中心を占めていた。本研究ではこれら配合技術をふまえ、コークスの気孔構造に注目してミクロな観点からコークス強度の組織学的解明を行ったものである。その結果、高炉環境に耐え得る高強度コークスを製造するには、気孔形状の制御が重要であり、そのための新しいプロセスが提案された。

第1章は緒論であり、これまでのコークス研究および本研究の学問的背景などを明らかにした。

第2章はコークスの気孔構造の形成過程を基礎的に検討し、モデル化を試みたものである。コークス気孔構造の骨格は、400～500℃において石炭粒子が膨張し隣接する粒子と熔融結合する際にできあがる。これがコークス強度を左右する。良好なドラム回転強度を有するコークスの気孔構造は、大小の気孔が連結することなく分散し、一つの気泡は球状を呈して角張らず、応力集中を軽減する形状のものがよい。このような気孔構造を得るには、石炭粒子が充填層の空隙を埋めるに十分な量の膨張をすることが基本である。これには石炭種の選択と同時に、充填密度を高くして充填層の空隙を少なくすること、400～500℃における昇温速度を高くして粒子の膨張率を高くすることが必要であることがわかった。また、粘結性の少ない石炭あるいは炭材粒子の配合もコークスの組織と気孔構造制御の改善に資することができる。この場合、分散状態の制御が重要で、揮発分が低い場合には細かく、揮発分が高い場合には粗い粒子として配合することがコークス強度、とくに高炉内でのガス化反応による劣化を軽減するのに効果的であることがわかった。

第3章は石炭とその他炭材の分散制御による高強度コークス製造法について研究したものである。

コークスの篩下である細粒ブリーズをコークス原料として再配合し、これを適度に分散させてコークス粒度を制御する研究を行った。これは廃物の再利用という観点からも重要な技術である。従来、ブリーズを添加すると強度が低下するとされていたが、ブリーズの粒度を0.15mm以下に粉碎し、石炭の流動性(FI)を2.3以上にすると、健全なコークス組織と気孔構造が得られ、強度の高いコークスが製造可能であることが明らかとなった。本方法は実機に適用され、コークス粒径の増大に応用されている。

安価な微粘結炭を多量使用する技術は、原料を輸入に頼るわが国にあって特に重要な開発案件である。高揮発分微粘結炭を微粒にして添加すれば、コークスの気孔壁に取り込まれて多孔質な気孔壁を形成し、粒度が粗いと粘結炭との結合強度が低下する。結果として、回転ドラム強度に対する微粘結炭の最適粒度域は平均粒度で4～6mmに存在することが明らかになった。一方、反応による劣化に対しては、微粘結炭添加によりコークスの反応性が高くなると、反応後の塊コークスの劣化が少なくなる。さらに、配合微粘結炭の粒度が粗いほど選択的反応による気孔壁の局部的劣化が少なくなり、反応後強度が高いことが明らかになった。これらの知見は、実機微粘結炭配合量14%の高率使用技術となって結実し、コークスの低価格化に貢献している。

第4章は諸種の方法により石炭の充填嵩密度を向上させ、高強度コークスを得る方法について研究したものである。

形状の均一な成型炭を配合して石炭の充填密度向上をはかり、高強度コークスを製造する方法が検討された。これには成型炭の膨張性調整による圧密結果の制御も期待できる。成型炭を配合したとき、コークスの強度は粉炭部分の強度で決定され、成型炭由来のコークスの性状にほとんど依存しない。そして、膨張性が小さい石炭は成型炭として配合すると原料炭として使用可能なことがわかった。それにより、良質な強粘結炭の使用量を70%から50%にまで低減することに成功した。

石炭中の水分が低いと、装入炭の嵩密度が高くなることが知られている。本研究では水分散布によらない安価な発塵防止法を開発し、水分低下によるコークス強度の向上を図った。すなわち、流動層乾燥機により分級された粒子あるいは全装入炭に結合剤を0.3%添加する方法により、造粒処理して発塵を抑制できた。この結果、装入炭の嵩密度が750kg/m<sup>3</sup>から850kg/m<sup>3</sup>に増加し、ドラム回転強度を大幅に向上できた。

第5章は乾留速度制御に高強度コークスの製造法について述べたものである。コークス炉内の

伝熱について基礎的な検討を加え、石炭が十分に膨張し強固なコークス組織と気孔構造を形成するための加熱条件、コークス炉の条件について明らかにした。

まず、炭化室内の伝熱について、①炭化室内での水分の蒸発と凝縮、②石炭の膨張と収縮、③熱分解ガスの発生と分解、を考慮したコークス炉伝熱シミュレーションモデルを開発した。推定結果は、炭化室内温度変化の実測とよく一致した。`ついで、炭化室伝熱シミュレーションモデルを用い、石炭層の昇温速度を適切に保つ炉体条件および温度条件を計算した。結果は、炭化室壁に金属などの高熱伝導度材料を使用すれば、高温によらずして乾留が可能ながわかった。400～500℃の昇温速度が3.5K/min以上、コークス温度800℃以上で乾留したコークスは高温乾留と同じコークス気孔構造になる可能性が示唆された。これを実証するため、200kg/chの試験炉により、実物大コークスを製造して炭化室炉壁材質、炉幅とコークスの品質および生産性の関係を調べた。ステンレス鋼の炭化室を用いる場合、コークス温度が800～900℃の範囲では、回転ドラム強度などのコークス品質は高温乾留コークスと同レベルであること、乾留時間が短縮されることを検証した。炉壁温度850℃、幅300mmのステンレス鋼の炭化室では、炭化室容積が実炉の60%で同じ生産量が得られ、乾留熱量は15%低くなる。また、金属製の燃焼室および炭化室壁として、25% Cr 鋼が耐食性の点で適当であった。

第6章は総括で、本研究を総括し、成果の要約と今後の課題をまとめた。

## 学位論文審査の要旨

主 査 教 授 石 井 邦 宜  
副 査 教 授 千 葉 忠 俊  
副 査 教 授 真 田 雄 三

コークスは鉄鋼生産の主原料として、わが国において約4000万トンの膨大な量が生産されている。高炉製鉄法におけるコークスの役割は、①通気・通液を確保するための充填材、②加熱のための燃料、③鉱石の還元剤、の三つであり、炉内の重荷重、降下にとまなう摩擦、CO<sub>2</sub>やH<sub>2</sub>Oによる反応劣化に耐え得るよう、高強度であることが必要とされている。現行のコークス製造は、主に経験則的な配合技術に基づいてなされており、理論的、工学的発展が課題となっている。本論文は、コークス中の気孔構造に注目してコークス強度の組織学的解明を行い、気孔構造の制御

法，安価原料の使用法，新しい乾留プロセスなどについて提案したものである。

第1章は緒論であり，本研究の学問的背景などを明らかにした。

第2章はコークス中気孔の形成過程を基礎的に検討したものである。

コークス気孔構造の骨格は，400～500℃において石炭粒子が膨張し隣接する粒子と熔融結合する際にできあがる。これがコークス強度を左右する。良好なドラム回転強度を有するコークスの気孔構造は，大小の気孔が連結することなく分散し，一個の気泡は球状を呈して角張らず，応力集中を軽減する形状のものがよい。このような気孔構造を得るには，石炭粒子が充填層の空隙を埋めるに十分な量だけ膨張することが必要で，①石炭の配合，②充填密度を高くして石炭層の空隙を少なくする。③400～500℃における昇温速度を高くして粒子の膨張率を高くする，などが重要であることを明らかにした。また，粘結性の少ない石炭あるいは炭材粒子を配合する場合，その分散状態の制御が不可欠で，揮発分が低い場合は細かく，高い場合は粗い粒子として配合することが効果的であることを見いだした。

第3章はコークスブリーズや安価な微粘結炭を利用したコークス製造法について研究したものである。

コークスの篩下である細粒ブリーズを再利用して，コークス粒度を制御する場合，ブリーズの粒度を0.15mm以下に粉碎し，石炭の流動性（FI）を2.3以上にすると，健全なコークス組織と気孔構造が得られ，強度の高いコークスが製造可能であることを示した。本方法は，コークス粒径の増大策として実機に適用されている。

高揮発分微粘結炭を添加した場合は，反応がコークス粒子表層部に集中して起こり，塊としてのコークス粒子の劣化が抑制される。微粘結炭の添加粒度は4～6mmが適当で，気孔壁の局部的劣化も少なくなることを実験的に明らかにした。これらの知見は実機微粘結炭配合量14%の高率使用技術となって結実し，コークスの低価格化に貢献している。

第4章では石炭の充填密度向上による高強度コークス製造法を検討した。

成形炭配合により，充填密度の向上と，さらに高膨張による圧密効果が期待できる。このとき，コークス強度は原料炭部分の強度で決定され，成型炭由来のコークス性状に依存しない。そして成型炭には，膨張性の低い石炭が有利であることを示した。そして，これらの知見に基づき，良質な強粘結炭の使用量を70%から50%にまで低減することに成功した。装入炭の嵩密度向上については，水分低下と結合剤添加を組み合わせた方法を開発し，装入炭の嵩密度を750kg/m<sup>3</sup>から850kg/m<sup>3</sup>に増加させることに成功した。

第5章は乾留速度制御によるコークス製造法について述べたものである。

コークス炉内で、石炭が十分に膨張し強固なコークス組織と気孔構造を形成するためのコークス炉の熱的条件を検討した。まず、炭化室内の伝熱について、①炭化室内での水分の蒸発と凝縮、②石炭の膨張と収縮、③熱分解ガスの発生と分解、を考慮したコークス炉伝熱シミュレーションモデルを開発した。そして、これを用いた計算により、炭化室壁に金属などの高熱伝導度材料を使用すれば、高温にたよらずして乾留が可能なことを見いだした。400～500℃の平均昇温速度を3.5kg/min以上とし、コークス乾留温度800℃以上で製造したコークスは高温乾留と同様なコークス気孔構造が得られる。ステンレス鋼の炭化室を用いた大型炉による実証試験では、炉壁温度850℃で、炭化室容積を実炉の60%に、そして乾留熱量の15%減を実現できた。なお、金属製の燃焼室および炭化室壁として、25% Cr 鋼が耐食性の点で適当であることも明らかにしている。

第6章は総括で、本研究を総括し、成果を要約したものである。

これを要するに、本論文で、気孔構造制御による高強度コークス製造法を新しく提案したものであり、鉄鋼工学の進歩に寄与するところ大である。

よって、著者は、博士（工学）の学位を授与される資格あるものと認める。