

解説

受賞技術-20

石炭資源拡大を可能とする省エネルギー型 コークス製造技術 (SCOPE21)

Innovative New Cokemaking Technology for Expanding Raw Coal Resources
and Saving Energy (SCOPE21)

藤川秀樹

Hideki Fujikawa

新日鐵住金(株) 本社
設備・保全技術センター
プラントエンジニアリング部(製鉄)
コークスエンジニアリング室 主幹

1 緒言

現在、国内で稼働中の数十炉団に上るコークス炉の殆どが、昭和40年代の高度経済成長期に集中的に建設されており、稼働年数は平均で40年を超過し、老朽化が進んで来ている。この為、一部の製造所では既にコークス炉のリプレースが開始されており、今後更に本格化するものと考えられる。一度稼働し始めると数十年間、動き続けるコークス炉にとって、このリプレースを行うこのタイミングは、現状抱えるコークス製造上の問題点を解決する絶好の機会ととらえられている。

一方、コークス製造プロセスを取り巻く環境は年々厳しさを増して来っており、石炭資源対応力、生産性、環境対応力および省エネルギーの更なる向上が求められている。

この背景の下、来るべき集中的なリプレースに合わせ、従来のコークス炉が抱える諸課題を解決する手段として、次世代コークス製造プロセス (SCOPE21; Super Coke Oven for Productivity and Environmental enhancement toward the 21st century) の開発が、(社) 日本鉄鋼連盟と(財) 石炭利用総合センター(現JCOAL; (財) 石炭エネルギーセンター) が中心となり、1994年から2003年まで産官学が一体となったオールジャパンのプロジェクトとして推進された¹⁻⁸⁾。10年に亘り開発された成果をもとに、2008年、大分製鐵所でSCOPE型コークス炉の実機1号機が、2013年には名古屋製鐵所で実機2号機が建設され、両設備とも順調に稼働の上、所定の成果を上げている⁹⁻¹²⁾。本稿ではSCOPE21プロセスの概要とその開発経緯および実機化について概説する。

2 SCOPE21 プロセスの概要¹³⁾

2.1 SCOPE21プロセスの狙い

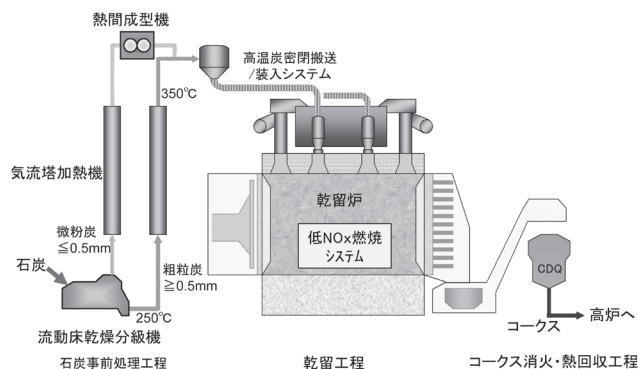
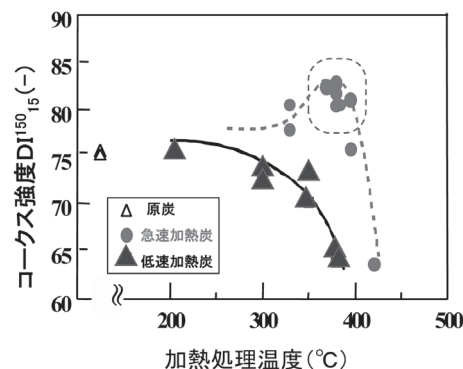
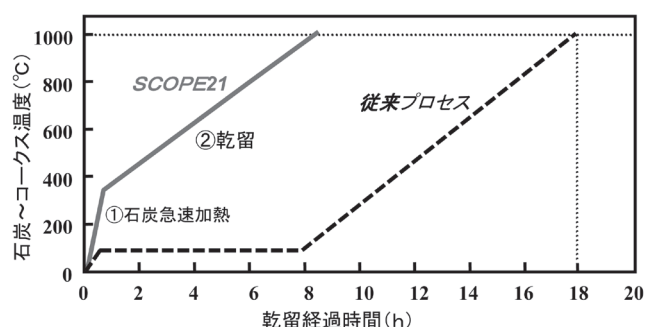
SCOPE21プロセスの開発にあたり、抜本的に従来型の室炉式コークス製造プロセスの生産性を極限まで向上させる方法を検討した。従来のコークス炉では、乾留時間18hのうち炉内の石炭の乾燥が終了するのに8~10h程度を要している。コークス炉に装入する前の石炭事前処理工程で水分の乾燥・加熱を急速に行えば、コークス炉での乾留時間を短縮でき、全体としての生産性を大幅に向上できる可能性がある。この発想から、本開発ではコークス炉の事前処理工程として石炭の急速加熱技術の適用を検討した。

その検討過程で、急速加熱により石炭が改質されることが発見され、その効果で劣質炭(非微粘結炭)の使用比率を大幅に上昇させる可能性のあるプロセスとして開発が進められた。

2.2 SCOPE21プロセスの特徴

図1にSCOPE21のプロセスフローを示す⁵⁾。コークス製造用に使用される石炭は、流動床乾燥分級機によって乾燥された後、後段の急速加熱工程で石炭粒子を均一に加熱する事と温度制御性を高める事を目的に、比較的粗い石炭(以後、粗粒炭と呼ぶ)と細かい石炭(以後、微粉炭と呼ぶ)とに分級される。そして、粗粒炭と微粉炭は気流塔加熱機にて別々に330~380℃まで急速加熱され、微粉炭は成形機で熱間成形された後粗粒炭と混合され、高温炭のまま密閉搬送システムを介してコークス炉へ装入される。コークス炉にはSCOPE21で開発された低NO_x型燃焼構造が適用されている。

SCOPE21プロセスでは、高温に加熱した石炭を乾留する事で、炭化室内でのコークス乾留に必要な時間を短縮する事が出来、生産性の大幅な向上と省エネを図る事が出来る(図2)⁵⁾。

図1 SCOPE21 プロセスフロー⁵⁾図3 急速加熱処理がコークス強度に及ぼす影響⁶⁾図2 SCOPE21と従来法の乾留時間の比較⁵⁾

更に、石炭をコークス炉に装入する前の事前処理工程にて、石炭の急速加熱による改質効果の発現により、劣質炭（非微粘結炭）の使用比率を大幅に上昇させることが可能となる。

2.3 石炭急速加熱によるコークス製造技術

事前処理工程で石炭を高温に加熱してコークス炉で乾留すれば、コークス製造に要する時間が短縮され、コークス炉の生産性を飛躍的に向上することができる。一方、石炭をコークス炉に装入する前にコークス炉と同程度の乾留速度で、徐々に200°C以上に加熱すると、石炭中の粘結成分が一部散逸するため、コークス強度が低下することや石炭が一部軟化溶融する事により、搬送や貯留などの石炭のハンドリング性が低下する事が懸念される。そこで、SCOPE21の開発では、石炭を事前処理工程で加熱する際の限界温度について調査した^{14,16)}。

その結果、石炭を事前処理工程で330～380°Cに急速加熱処理した場合には、石炭の軟化溶融性が向上する事から、コークス強度が向上する事が予測された。更には、石炭処理量200gの小型気流塔加熱装置を用いて、昇温速度 1×10^4 °C/minで急速加熱処理した後に、小型乾留炉に装入し実際にコークスを焼成して得られたコークス強度を測定した結果、加熱処理しない場合よりコークス強度が向上する結果が得られた。

すなわち、石炭が軟化を開始する400°Cに近い温度まで急速に加熱した後に乾留すると、コークス強度が改善される可能性があることが発見された。更に実機相当のコークス塊の強度評価を行うために、粘結炭および非微粘結炭を各々50 mass%配合した石炭試料を使用して、石炭急速加熱試験装置（90kg/回程度）を用いて実機相当のコークス塊の強度試験を行った。

この実験装置を用いて、石炭を急速加熱する際の石炭の到達温度を330～420°Cに変化させて、石炭の急速加熱温度とコークス強度の関係を調べた。

試験結果を図3に示す。急速加熱処理した場合には、330～380°Cの範囲で DI_{150} が3～6ポイント向上することがわかった。以上の試験結果から、石炭を330～380°Cに急速加熱処理することによって、コークス強度が向上することが明らかになった¹⁴⁾。また、急速加熱処理工程においても搬送や貯留と言った石炭のハンドリングが可能である事も判明した。

2.4 急速加熱によるコークス強度向上メカニズム

石炭の構造と軟化溶融に対する急速加熱処理の影響について、NMR（核磁気共鳴法）を用いて詳細に検討した^{17,18)}。

試料としては非微粘結炭である原炭とその急速加熱炭（100°C/min）および低速加熱炭（10°C/min）の3種類を用いた。これらの試料を、軟化溶融し再固化するまで加熱しながら、NMRマイクロイメージング法による直接観測を行った。高温での軟化溶融過程を高分解能でin-situ観測するために、新たなプローブを開発して用いた。

石炭加熱過程のNMRマイクロイメージング法による直接観測結果からmobile成分（以下、軟化溶融成分と記す）量を算出した結果を図4に示す。温度上昇に伴って石炭中の軟化溶融成分が増加し、約400～430°Cで最大値を示す。この温度は、ギーセラープラストメータ法（JIS M 8801）で得られた最高流動度温度とほぼ一致する。石炭の再固化反応が始まる475°C以降で軟化溶融成分が急激に減少する。この一連の

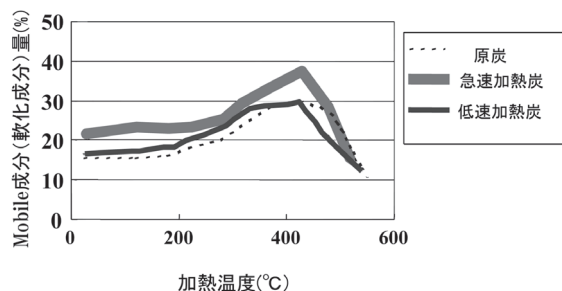


図4 原炭，急速加熱炭および低速加熱炭の粘結成分量の比較¹⁴⁾

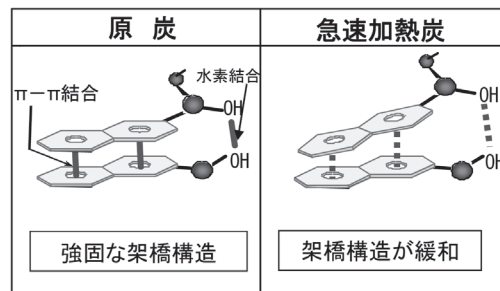


図6 急速加熱による石炭の架橋構造の緩和

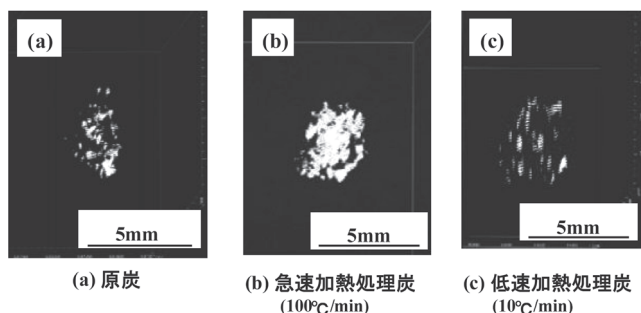


図5 原炭および加熱処理炭のNMRイメージング測定結果¹⁴⁾

挙動は、加熱処理方法の異なるこれらの3種類の石炭試料に共通している。

急速加熱炭は、原炭および低速加熱炭に比べて室温レベルから軟化溶融成分が多い。低速加熱処理炭は、原炭に比べて室温レベルでの軟化溶融成分はやや多いが、400℃以上に加熱された領域では発現する軟化溶融成分は少なくなっている。

図5に原炭、急速加熱処理炭について、それぞれの最大軟化溶融温度における *in-situ* NMRイメージング測定結果を示す。原炭および低速加熱炭は、溶融していない部分が多く存在している。これに対して急速加熱処理炭は、石炭粒子内の溶融領域が明らかに拡大している事が確認された。

このメカニズムについては、急速加熱により石炭が有する分子間の相互作用、即ち、水素結合や $\pi-\pi$ 相互作用等の非共有結合による分子間相互作用が低下して構造緩和が起こり、易動性成分 (mobile成分) が増加し、その結果、石炭中の軟化成分が増加して石炭の軟化性が改善されコークス強度が向上すると考えている (図6)。

3 技術開発内容

3.1 石炭急速加熱技術

SCOPE21プロセスは、石炭を330～380℃に急速加熱することを基本として構築された。急速加熱の実現のため、石炭

加熱装置として気流塔加熱機の採用が考えられた。気流塔加熱機では高温の加熱ガスと石炭が並流で接触する。石炭は伝熱が遅く、また粒度分布をもっており、粗粒は徐々に昇温するが、微粉は比較的速やかにガス温度まで昇温するので、加熱条件によっては380℃以上に過加熱されて、品質劣化や粘着トラブルを招く恐れがある。

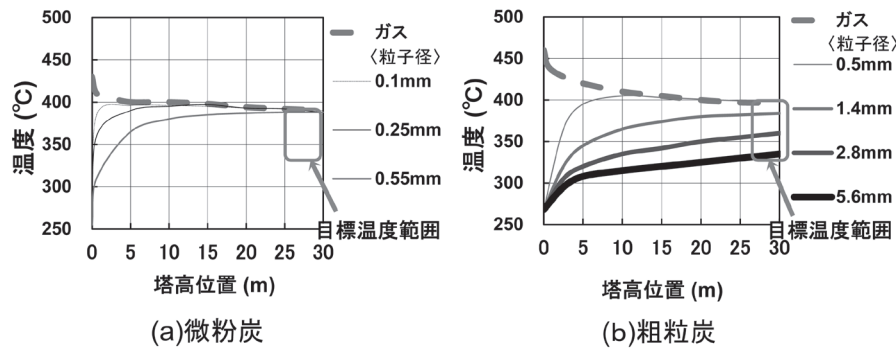
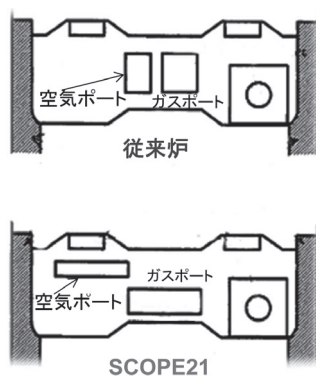
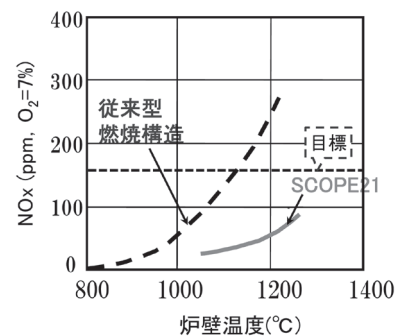
そこで、本プロセスでは、気流塔加熱機の前段に流動床乾燥分級機を設置し、石炭を250℃程度まで乾燥・予熱することにより気流塔加熱機の負荷を低減するとともに、加熱に時間を要する粗粒炭と比較的加熱の容易な微粉炭に分級し、それぞれ別個に気流塔加熱機で急速加熱する方式を採用した。

流動床乾燥分級機で加熱、分級された石炭は、気流塔加熱機を使用して約330～380℃まで急速加熱処理される。前述のように、石炭は約400℃以上では熱分解し粘結成分が散逸するため石炭の軟化溶融性が低下しコークス強度が低下する。このため、気流塔加熱機における石炭加熱時の温度制御は非常に重要である。

気流塔加熱機に求められる機能は、流動床乾燥分級機によって約200～250℃に予熱された石炭を約330～380℃まで均一に急速加熱することである。さらに、気流塔加熱機の内部で石炭を落炭させないように、加熱ガス流速を設定する必要がある。

気流塔加熱機内部で石炭を落炭させないために、下部の加熱ガス入口に整流板および分散板を設置し、ガス流速分布の調整を可能としている。

気流塔加熱機の運転条件を検討するために、気流塔加熱機内におけるガス流速分布計算および伝熱計算による石炭の加熱特性を評価するソフトシミュレーターを開発した¹⁹⁾。このソフトシミュレーターを用いて、粗粒炭および微粉炭を各々適正な温度範囲まで急速加熱処理し、過加熱を防止するための加熱ガス温度およびガス流量条件を計算した。伝熱計算により気流塔加熱機の出側における石炭温度を推算した結果、各粒度分布の石炭は目標とする温度範囲 (330～380℃) まで加熱されることがわかった (図7)。実績値の評価を行うために、パイロットプラント気流塔加熱機の内部ガス温度を測定

図7 気流塔加熱機塔頂部での石炭粒子到達温度の推算値¹⁸⁾図8 燃焼室底部の構造(平面図)²²⁾図9 炉壁温度と燃焼排ガスNOxの関係²²⁾

した結果、ガス温度の計算値と実測値はよく一致していることを確認した²⁴⁾。また、5.6mm以上5%（質量比）の粒度分布をもつ粗粒炭をパイロットプラントで急速加熱処理した場合、気流塔加熱機内での落炭がほとんど無い事が確認された。このように、粒度分布を有する石炭粒子を過加熱することなく目標の温度範囲内に急速加熱できる技術が開発された。

3.2 コークス炉低NOx燃焼技術

新設コークス炉の燃焼排ガス中のNOx濃度は170 ppm以下に規制されており、既設のコークス炉に比べて一段とNOxを低減させなければコークス炉の新設は難しい状況にある。そこで、NOx低減を目的とした燃焼構造の開発を、燃焼シミュレーション計算を利用して進めるとともに、実機大の燃焼試験炉を設置してNOx低減効果の検証試験を実施した²³⁾。

コークス炉のNOxは、燃焼空気中の窒素を起源とするサーマルNOxが大部分を占めている。NOx低減のためには、燃焼室に底部から送り込まれた燃料ガスと空気とが下部で急速に混合しないことが必要である。そのために、シミュレーション計算結果等をもとに、多段燃焼構造（空気3段吹込み）を採用するとともに、図8の平面図に示すようなコークス炉の燃焼室底部の燃料ガスポートと空気ポートの配置変更を行っ

た。更には、この図には示されていないが、燃料が通過する蓄熱室から燃焼室底部の間に設けられたダクトの傾斜角を適正化し、吐出する燃料ガスと空気の急速混合を回避させている。これらの開発の結果、実機大燃焼試験炉において、図9に示すように最高炉壁温度においても、NOx濃度100ppm以下という挑戦的な目標を達成することができた²³⁾。

これらの成果により、SCOPE21プロセスの技術的見通しが得られ、パイロットプラントによる技術確立へと進んだ。

4 パイロットプラント操業試験

石炭事前処理～乾留炉の一貫した設備機能を有するパイロットプラントが名古屋製鐵所構内に建設され、2002年3月から2003年3月まで操業試験を行った。パイロットプラントのプロセスフローを図10に、外観を図11に示す。

パイロットプラントの石炭事前処理設備は、石炭処理量が6t/hで、実機設備の1/20のスケールである。乾留炉は1窯でコークス炉の炉長は実機の1/2の8m、炉幅は実機と同じ寸法の450mm、炉高は7.5mで実機同等の寸法の設備である。パイロットプラント試験操業は、低炉温条件で設定した第1次操業（炉温：1100～1150℃）と高炉温条件の第2次操業（炉温：1200～1280℃）の2段階に分けて、約1年間実施し、コー

クスの乾留試験は合計で440回実施された^{20,25)}。

パイロットプラント試験までの研究開発段階で取り組まれた主な新技術の開発成果は、以下のとおりである。

(1) 石炭資源有効利用技術

従来のコークス製造方法では、粘結性が低い非微粘結炭を多量に使用すると、コークス強度が低下する。そのため、従来のコークス炉では約20%程度しか非微粘結炭を使用できなかった。これに対して、SCOPE21プロセスでは石炭を330～380℃に急速加熱処理することにより石炭の粘結性が向上し、コークス化性が向上する。また、原料炭中の微粉炭を塊成化することにより、石炭の充填密度が上昇しコークス化性が向上する。

これらの効果により、パイロットプラント操業では、コークス強度 DI_{150}^{150} が82.3から84.8まで2.5向上する事（急速加熱効果0.9、充填密度向上効果1.0、コークス組織の均質化効果0.6）が確認され、非微粘結炭の配合比を20%から50%へ拡大出来る事が確認された（図12）⁵⁾。

(2) コークス生産性向上技術

生産性向上を目標に、石炭事前処理工程により装入石炭をハンドリング可能な熱分解開始温度近傍（350～400℃）まで急速加熱すること、炭化室壁の高熱伝導化・薄壁化、および均一加熱により、通常乾留の炭中温度1000℃より低い

温度で窯出しすることで乾留時間の大幅な短縮を目指した。

パイロットプラント操業において、装入炭温度330℃、炉温1250℃の条件では、従来法に比べてSCOPE21条件では乾留時間を17.5hから7.4hまで短縮することが可能であり、充填密度上昇効果と合わせて、SCOPE21プロセスでは生産性を従来の2.4倍まで向上可能であると評価された（図13）。また、高温、高速乾留にも関わらず、コークス炉操業の課題とされるカーボン付着は通常操業並みで微粉炭の成形がカーボン生成の抑制に極めて有効であると確認された²¹⁾。

(3) 環境対応技術

新たに開発された低NO_x燃焼構造により、コークス炉の

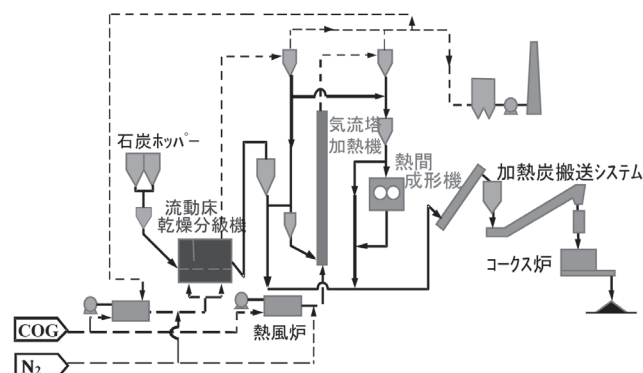


図10 パイロットプラントの設備フロー⁵⁾

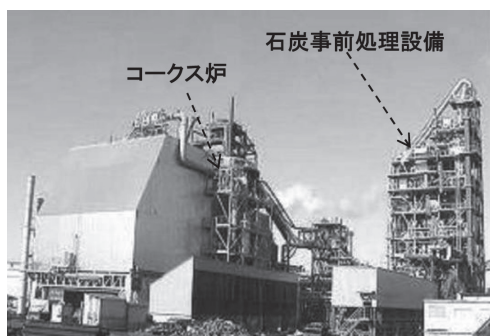


図11 パイロットプラントの外観⁵⁾

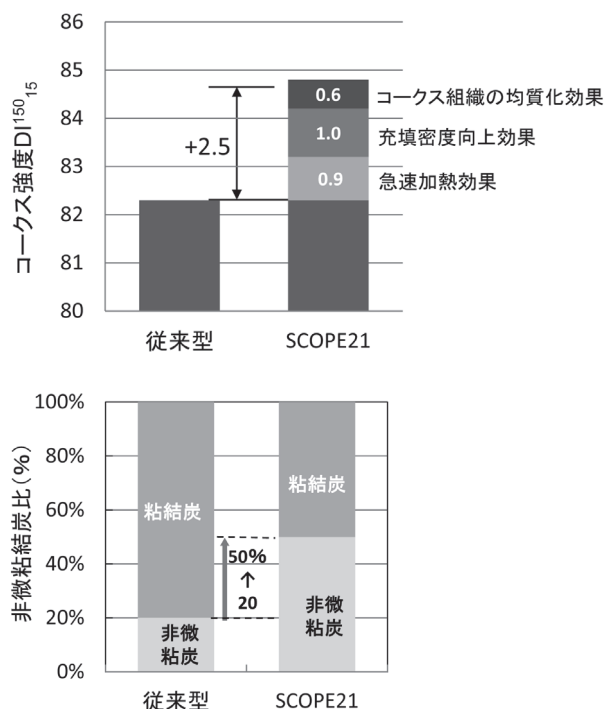


図12 SCOPE21における非微粘炭増使用効果⁵⁾

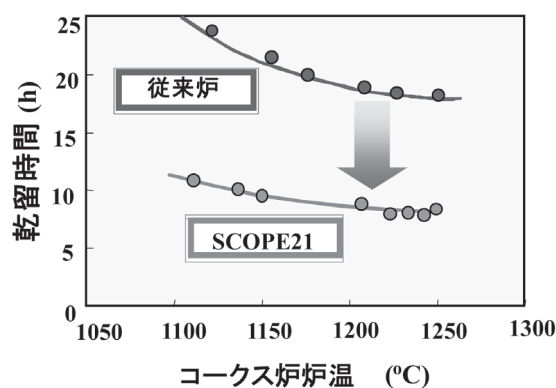


図13 SCOPE21における生産性の向上⁵⁾

最高炉温においても燃焼排ガス中NO_x濃度を従来と比較して飛躍的に低下できることが確認された²³⁾。

5 SCOPE21の実機化と成果

上記の国家プロジェクトSCOPE21の研究開発成果を取り入れた実用炉第1号機が、2006年4月～2008年4月にかけて、大分製鐵所に建設された（大分第5コークス炉）^{9,12)}。表1に設備仕様を、図14に外観を示す。コークス炉本体の建設工事は2008年1月に完了し、同年2月1日にコークス炉に石炭が初めて装入され、翌日、初窯出しが行われた。その後、石炭事前処理設備、コークス炉、改質チャンパー（CDQ；Coke Dry Quenching）全系による総合運転が行われ、2008年5月に竣工した。

大分第5コークス炉のコークス生産能力は100万t/年であり、石炭を装入して乾留する炭化室は64窯とコンパクト化されている。炭化室の炉幅は0.45m、炉高6.7m、炉長16.6mである。原料炭はまず、流動床乾燥分級機で微粉炭と粗粒炭に分級される。粗粒炭は気流塔加熱機で約350℃まで急速加熱され、微粉炭は塊成機で塊成化された後に粗粒炭と混合され、石炭はコークス炉に250℃で装入される。主な特徴は、1) 石炭急速加熱処理による①コークス強度向上（非微粘結炭配合率拡大）、②乾留時間短縮、③乾留エネルギー低減、2) ガ

ス単段、空気3段供給＋排ガスサーキュレーション方式による低NO_x型燃焼構造、3) コークス炉全移動機械（装炭車、押出機、ガイド車、消火車）FA無人運転である。

2008年2月1日のコークス炉稼働開始以降、順次稼働率を上昇させ、装入炭温度250℃において、炉温1270℃で乾留時間13h（稼働率184.5%）を達成し、非微粘結炭配合率50%以上で、安定した操業を継続している。

図15に第5コークス炉稼働開始以降（2008～2012年）の非微粘結炭配合率とコークス強度DI¹⁵⁰₁₅の実績を示す。石炭配合中の非微粘結炭配合率の平均値は56.7%と当初の計画50%を大幅に上回っており、DIの平均値は86.7であり、当初計画以上のコークス強度が達成されている。また、COG専焼の炉温1270℃条件で、燃焼排ガス中のNO_x濃度は、操業全域において155ppm未満となっており、新設炉規制値の170ppm以下を十分達成している。

大分第5コークス炉における1年間のエネルギー削減量を評価した結果、コークス生産量100万t/年時の1年間の重油使用量の削減量は9.43万klに相当する。これは、CO₂排出量では1年間に25.6万tのCO₂削減に相当する。

さらに2013年には、名古屋製鐵所でSCOPE21の実機2号機（名古屋第5コークス炉）が稼働を開始し、順調に操業している（図16）。

表1 大分第5コークス炉の設備仕様

項目	仕様
コークス生産量	100万t/年
石炭処理量	155t/h
装入炭温度	250℃
炭化室数	64
炭化室寸法 H×L×W(m)	6.7×16.6×0.45

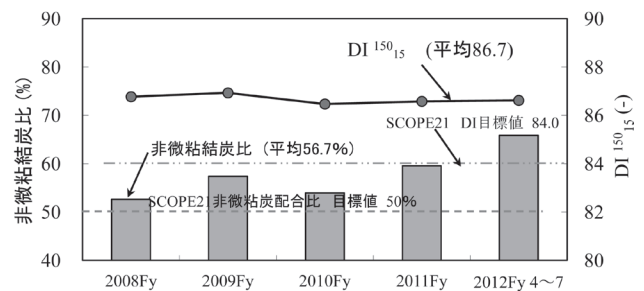


図15 大分第5コークス炉のコークス強度および非微粘結炭配合率の実績推移



図14 大分第5コークス炉の外観⁹⁾



図16 名古屋第5コークス炉の外観

6 結言

SCOPE21プロセスは、日本鉄鋼協会を始めとする各種部会・研究会からのシーズ提案や物理的・化学的アドバイスと国からの強力な支援の下、鉄鋼業界およびコークス専門メーカーが企業の枠を越えて、共通の問題意識を持ち、共通の目的・目標に向かって、その課題に果敢かつ粘り強く取り組んで成し得た成果である。近年、鉄鋼の世界的な需要および生産の拡大により鉄鋼原料の需給は逼迫し、その価格は高騰している。特に、比較的埋蔵量の乏しい良質な原料炭はその傾向が一層強くなっている。これらの資源問題に加え、生産・コスト、環境・エネルギーにおいてもコークス製造プロセスを取り巻く環境は年々厳しさを増して来ると考えられる。SCOPE21プロセスは、石炭資源の有効利用および地球温暖化防止対策(CO₂削減)に直接的に貢献できるコークス製造プロセスである。今後、わが国の鉄鋼業の国際競争力の強化と地球温暖化問題への解決に大きく貢献するとともに、技術革新の牽引役として大きな役目を果たして行くと同時に、今回の産官学一体となったオールジャパンの取り組みが、グローバル化の進む新時代に相応しい、地球上に山積する課題解決の為の知恵出しの場として発展して行く事を期待したい。

参考文献

- 1) 西岡邦彦：鉄と鋼, 82 (1996) 5, 353.
- 2) 西岡邦彦：日本エネルギー学会誌, 75 (1996) 10, 12.
- 3) S.Kubo：3rd International Cokemaking Congress, Belgium, (1996), 279.
- 4) K.Nishioka：3rd International Cokemaking Congress, Belgium, (1996), 285.
- 5) 西岡邦彦, 大島弘信, 杉山勇夫, 藤川秀樹：鉄と鋼, 90 (2004) 9, 614.
- 6) 松浦慎, 佐々木正樹, 齋藤公児, 加藤健次, 古牧育男：鉄と鋼, 89 (2003) 5, 565.
- 7) 加藤健次：第179回西山記念技術講座, 日本鉄鋼協会編, (2003), 61.
- 8) K.Kato, K.Nishioka, I.Sugiyama, H.Oshima and H.Fujikawa：21st International Pittsburgh Coal Conference, Osaka, (2004)
- 9) 加藤健次：石炭利用の最新技術と展望, 三浦孝一監修, 石炭エネルギーセンター編, シーエムシー出版, (2009), 193.
- 10) 土井一秀, 野口敏彦, 藤川秀樹, 塩田哲也, 横溝正彦, 加藤健次, 中嶋義明, 植松宏志：CAMP-ISIJ, 22 (2009), 782.
- 11) 尾方良普, 土井一秀, 野口敏彦, 藤川秀樹, 横溝正彦, 加藤健次, 中嶋義明：第46回石炭科学会議発表論文集, (2009), 40.
- 12) 加藤健次, 鈴木豊：日本エネルギー学会誌, 92 (2013), 985.
- 13) 大河内記念会：第59回(平成24年度)大河内賞 業績報告書 石炭資源拡大を可能とする省エネルギー型コークス製造技術(SCOPE21)
- 14) 松浦慎, 佐々木正樹, 加藤健次, 中嶋義明：鉄と鋼, 90 (2004) 9, 656.
- 15) 加藤健次, 松浦慎, 佐々木正樹, 坂輪光弘, 古牧育男：日本エネルギー学会誌, 83 (2004), 868.
- 16) 深田喜代志, 板垣省三, 下山泉：鉄と鋼, 90 (2004) 9, 641.
- 17) 齋藤公児, 畠山盛明, 松浦慎, 加藤健次, 古牧育男：鉄と鋼, 85 (1999) 5, 195.
- 18) 齋藤公児, 古牧育男, 加藤健次：鉄と鋼, 86, (2000) 2, 79.
- 19) 松田雄市, 横溝正彦, 佐々木正樹, 松浦慎：鉄と鋼, 90 (2004) 9, 648.
- 20) 窪田征弘, 有馬孝, 加藤健次, 松浦慎, 中居裕貴, 佐々木正樹, 杉山勇夫：鉄と鋼, 90 (2004) 9, 686.
- 21) 上坊和弥, 國政秀行, 須山真一：鉄と鋼, 90 (2004) 9, 721.
- 22) 栗山壽志, 吉田周平, 武富洋文, 須山真一：鉄と鋼, 90 (2004) 9, 673.
- 23) 吉田周平, 高瀬省二, 内田誠, 佐地孝文, 小山博之, 山本雅章：鉄と鋼, 90 (2004) 9, 679.
- 24) 松浦慎, 中居裕貴, 佐々木正樹, 加藤健次：鉄と鋼, 90 (2004) 9, 715.
- 25) 有馬孝, 窪田征弘, 加藤健次, 松浦慎, 中居裕貴, 佐々木正樹, 杉山勇夫, 山本雅章：鉄と鋼, 90 (2004) 9, 734.

(2015年9月14日受付)