

鉄内装型コークス製造プロセスの開発

Development of Carbon Iron Composite Process

庵屋敷孝思 ANYASHIKIA Takashi JFE スチール スチール研究所 製鉄研究部 主任研究員(課長)
深田喜代志 FUKADA Kiyoshi JFE スチール スチール研究所 製鉄研究部 主任研究員(課長)・工博
藤本 英和 FUJIMOTO Hidekazu JFE スチール スチール研究所 製鉄研究部 主任研究員(副課長)・工博

要旨

近年、製鉄プロセスにおいて、地球温暖化抑制に対する革新的な省エネルギー技術の開発が必要となってきた。製鉄プロセスでの革新的な省エネルギー、高炉での抜本的な低還元材比操業を実現させる手段として、熱バランスの改善と還元平衡(熱保存帯温度)を積極的に制御する方法がある。本報では、低還元材比操業を実現させる手段として、熱保存帯温度に着目、コークスの高反応性と鉄鉱石の還元を両立させるための革新的な原料「鉄内装型コークス」を開発した。鉄内装型コークスは、石炭と鉄鉱石(ペレットフィード)を混合し熱間成型により圧密して製造した。圧密された成型物を乾留して得られる新たな高炉用原料、鉄内装型コークス製造プロセスに関する基礎的な検討を行った結果、以下のことが明らかとなった。(1) 熱間成型によりノーバインダーで鉄内装型コークス用原料の成型が可能であった。(2) 鉄鉱石 40%、石炭 60% 配合で 2 000 N 以上の圧潰強度を有する鉄内装型コークスの製造可能性を確認した。また、その還元率は、70% 以上であった。(3) 鉄内装型コークスは CRI (coke reactivity index) 50% 以上であり、典型的な表面反応を示した。また、1 700°C 熱処理後も溶融、分離現象は認められなかった。

Abstract:

In recent years, the development of innovative energy saving technologies for preventing global warming has become necessary. Means of realizing innovative energy saving in the steel manufacturing process and radical low reduction agent ratio (RAR) operation in the blast furnace include improvement of the heat balance and active control of the reduction equilibrium (temperature of thermal reserve zone). As a means of realizing low RAR operation, this paper describes the development of an innovative raw material "carbon iron composite" for satisfying both high coke reactivity and iron ore reduction, focusing on the temperature of the thermal reserve zone. Carbon iron composite is produced by mixing coal and iron ore (pellet feed) and densification by hot briquetting, followed by carbonization of the briquetted materials. The results of a fundamental investigation of the production process for carbon iron composite as the new blast furnace burden material obtained by carbonization of the densified briquettes clarified the following: (1) It was possible to form briquettes as raw material for carbon iron composite by hot briquetting without using a binder. (2) The possibility of producing carbon iron composite with a compression strength of more than 2 000 N using a mixture of 40% iron ore and 60% coal was confirmed. The reduction ratio of the product exceeded 70%. (3) Carbon iron composite has a coke reactivity index (CRI) of more than 50% and displayed a typical surface reaction. Melting and separation phenomena were not observed after heat treatment at 1 700°C.

1. はじめに

日本鉄鋼業は国内 CO₂ 排出の 14% を占め、製鉄プロセスは全工程の 70% と圧倒的に高く、これまで環境に配慮し

ながら省エネルギー技術の開発に積極的に取り組んできた。しかしながら、至近の資源価格の急騰を背景に、鉄鋼業においても原燃料の価格変動を吸収しうる資源対応力に富む製鉄プロセスの保有が必要である。さらに、我が国は 2010 年以降にコークス炉など製鉄大型設備の更新を迎える。将来にわたり、日本の鉄鋼業が国際競争力の優位性を確保するためには、上記対応の加速が必要であり、省エネ

ルギー・環境（地球温暖化抑制）・高生産・資源対応力（劣質資源の改質）・省力化をすべて満足する革新的な製鉄技術の創製が強く望まれている。

基礎基盤技術に関しては、ヨーロッパの鉄鋼業界ではCO₂削減を目的としたULCOSプロジェクト（Ultra Low CO₂ Steelmaking）を立ち上げ、各社精力的に研究開発中である。日本では、鉄鋼各社の共同プロジェクトとして、1999～2003年度に文部科学省の国家プロジェクト「エネルギー半減・環境負荷ミニマムを目指した高炉における革新的精錬反応に関する研究」、2003～2005年度に日本鉄鋼協会の研究会「高炉限界現象研究会」を実施し、日本発の省エネルギー・CO₂削減プロセスが検討された。しかし、いくつかのシーズ技術は生まれているが、プロセス構築までには至っていないのが現状である。

高炉法において、高炉内の反応効率を向上させる技術は、還元材比を低下させ、CO₂の排出抑制効果が期待できるといって極めて重要であるが、その中でも高反応性コークスを使用して、高炉内熱保存帯温度を低下させる方法¹⁾が有望と考えられている。

そこでここでは、前述したシーズ技術を活用して、高炉の低還元材比操業による省エネルギー（CO₂排出量削減）、一般炭や低品位鉄石などの劣質原料の多量使用による資源対応力の強化を目的に、既存のコークス製造プロセスや焼結製造プロセスによらない、原料の石炭と鉄鉱石を混合、熱間成型した石炭／鉄鉱石の複合成型物を乾留し、一部被還元された粉状鉄源を内包した鉄内装型コークス製造プロセスの基礎検討結果について報告する。

2. 実験方法

2.1 熱間成型試験

熱間成型実験は、図1に示す移動層型石炭加熱装置と熱間成型ユニットを備えた成型機を用いて行った。成型機の主な仕様としては、最大加圧力40t、ロールの最大回転数10回転/min、原料押し込み用のスクリーフィーダーの最

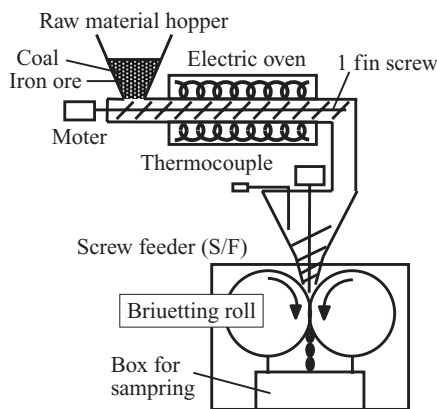


図1 熱間成型試験装置概略図

Fig.1 Schematic illustration of hot briquetting machine

大回転数140回転/min、ロール径400mm、ロール幅120mmである。また、カップ形状はピロー型とマセック型で、カップ容積はピロー型が50cm³（60×46×14mm）、マセック型が18cm³（39×39×19mm）の2種類である。

熱間での成型性の評価は、成型歩留および成型物の強度をみているが、これら評価因子に対する制御因子としては、成型圧、成型温度、ロールカップ容量、ロール回転数および原料押し込み用スクリーフィーダーの回転数などが考えられる。ここでは、ロールカップ容量が成型歩留と成型物の強度に対する影響を調査した。成型条件を表1に示す。成型線圧は3.5t/cm一定で成型した。成型温度は、スクリーフィーダー上のホッパー内の成型試料温度とし、110～130℃の領域である。

成型実験の方法を以下に示す。所定の粒度、配合に調整した石炭および鉄鉱石を図1に示す熱間成型装置の原料ホッパーに入れて、単羽根型のスクリーフィーダーを備えた移動層型石炭加熱装置を通して所定の温度まで昇温した。昇温された原料は、ロールの上部に設置されたスクリーフィーダーホッパーに投入した後、所定のロール回転数、所定のスクリーフィーダーの回転数で熱間成型を行った。一回の成型実験で約20kgの石炭と鉄鉱石の混合試料を使用し、成型物はロール下部のサンプリングボックスから採取した。

使用した石炭の工業分析値、平均最大反射率および流動性を表2に示す。平均最大反射率はJIS M 8816に準じて測定した。流動性は、ギーセラープラストメーターにて最高流動度をJIS M 8801に準じて測定した。石炭の粒度は3mm以下が100%となるように粉碎した。鉄鋼石は微粉鉄鉱石のペレットフィードを使用した。レーザー回折・散乱式粒度分布計で測定した粒径は、74μm以下の重量割合が

表1 成型条件

Table 1 Briquetting condition

Briquetting pressure	3.5 t/cm
Rotation number of roll	3 rpm
Rotation number of S/F	35 rpm
Briquetting temperature	110–130°C
Cup volume	18, 50 cm ³
Breeding ratio Coal/ore	60%/40%
Total mass of raw materials	20 kg

Iron ore: Pellet feed Coal: Slightly caking coal
rpm: Revolutions per minute

表2 石炭性状

Table 2 Coal properties

VM (Dry basis, %)	Ash	Ro (%)	MF (logddpm)
35.3	8.8	0.70	1.5

VM: Volatile matter Ro: Reflectance of coal
MF: Maximum fluidity ddmp: Dial division per minute

表3 微粉鉄鉱石の化学分析結果

Table 3 Chemical composition of the iron ore

								(mass%)
T-Fe	FeO	SiO	Al ₂ O ₃	CaO	MgO	Mn	TiO ₂	
67.50	0.21	1.31	0.73	0.01	0.01	0.11	0.07	

表4 混合試料の性状

Table 4 Raw material properties

Mixing ratio		Composition					
Iron ore	Coal	T-Fe	Fe ₂ O ₃	FeO	Ash	C	H
40.0	60.0	27.1	38.5	0.2	5.2	45.6	2.9

Iron ore: Pellet feed Coal: Slightly caking coal

81%である。表3に微粉鉄鉱石の化学分析結果を示す。

2.2 乾留試験

石炭と微粉鉄鉱石の混合試料を電気加熱式石炭乾留炉²⁾で乾留して鉄内装型コークスを製造した。混合試料の性状を表4に示す。実験では、360×270×400 mmの乾留缶に成型物同士が接しないように粉コークスを敷詰め、乾留炉内に入れ、炉壁温度1100℃で炭中温度が850℃になる条件で6時間乾留した。乾留後鉄内装型コークスは、窒素気流中で乾式消化した。

2.3 成型物および鉄内装型コークスの評価

サンプリングした成型物について成型歩留、圧潰強度を測定した。成型歩留は、サンプリングした成型物全量中の1 mm以上の重量百分率を示す成型歩留Iと割れを含まない成型物全量中の原形の重量百分率を示す成型歩留IIを測定した。圧潰強度測定は、オートグラフを用いて行った。鉄内装型コークスの評価は、成型物と同様に圧潰強度を測定し、さらに、高温特性試験として、高温反応試験と高温熱処理試験を行った。高温反応試験は、CO₂反応装置³⁾を用いて反応温度1100℃でCO₂100%のガスを流通させて行い、反応率が20%になるように反応時間を調整した。高温熱処理試験は、高温熱間ドラム試験装置⁴⁾を用いて、熱処理温度1700℃でアルゴン濃度100%の雰囲気中で1時間反応させた。

3. 実験結果および考察

3.1 熱間成型試験の歩留と圧潰強度

写真1に成型物の概観写真と成型物断面の光学顕微鏡写真を示す。成型温度110~130℃は、石炭の軟化溶融開始温度よりも遥かに低い温度ではあるが、成型物は原形を留めている。軟化溶融温度近傍の温度で成型された成型物のミクロ構造⁵⁾とは異なるが、石炭粒子の隙間に微粉鉄鉱石が

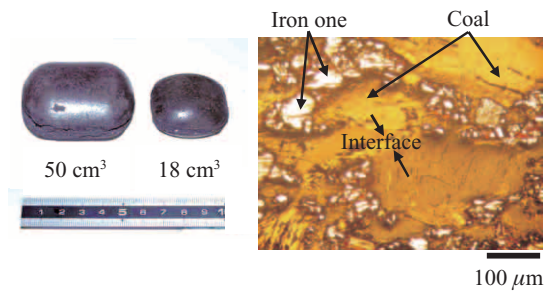


写真1 成型物の概観写真と成型物断面の光学顕微鏡写真
Photo 1 Appearance and sectional photograph of hot briquette

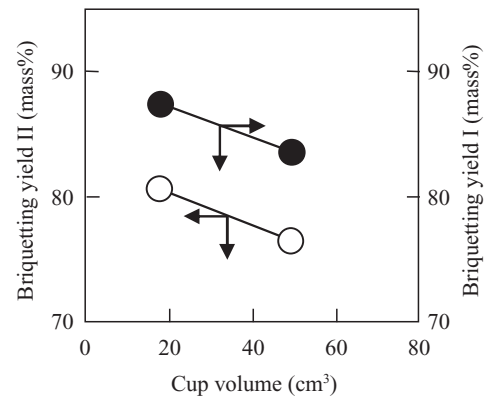


図2 成型歩留に対するカップ容量の影響
Fig. 2 Effect of briquetting cup volume on briquetting yield

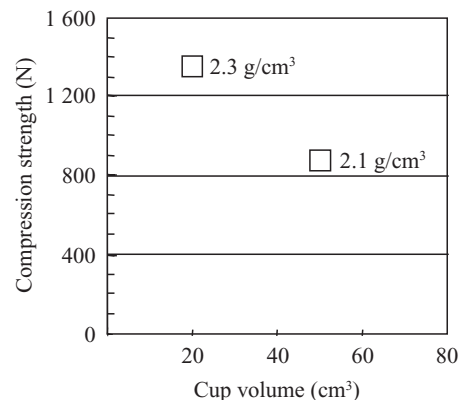


図3 圧潰強度に対するカップ容量の影響
Fig. 3 Effect of briquetting cup volume on compression strength of briquette

進入した状態で圧密されており、ノーバインダーでも圧密化により成型物の製造が可能であることが分かった。

図2と3に石炭60 mass%に微粉鉄鉱石40 mass%を配合して成型した時のカップ容量に対する成型歩留と圧潰強度の結果を示す。カップ容量が小さいほど、成型歩留、圧潰強度ともに向上している。これは、ロール回転数が一定条件では、成型ロールに供給される混合試料の量は等しくなるため、成型ロールのカップサイズが小さくなり、深さ方向の厚みが薄いほど成型圧が成型物全体に良く伝わり成型性が向上し、見掛密度が高くなったためと推察される。

これにより成型物の強度向上のためには、見掛密度が重要な要因の一つであることが分かった。

3.2 鉄内装型コークスの性状

3.2.1 概観と圧潰強度

写真2に乾留前後の概観写真とその断面写真および鉄内装型コークス組織の偏光顕微鏡写真を示す。成型物の乾留歩留は69%、還元率は76%であり、熱処理にともなう割れや亀裂の発生は認められなかった。これは流動性および膨張率が低い石炭を使用したため、割れや亀裂の発生が抑制されたと推察される。鉄内装型コークス中鉄鉱石が隣接するコークスを消費し還元され、周囲のコークス組織がポラスになっている状況が観察された。しかしながら、鉄内装型コークスの圧潰強度は4000 N以上であり、室炉コークスよりも高い値を示した(図4)。流動性が低い石炭を使用したため、熱可塑性の発現と圧密による粒子間距離の短縮化の相乗効果によって、石炭粒子の密着強度がより強固になっているものと推察される。

3.2.2 鉄内装型コークスの高温反応特性

写真3に反応前とCO₂反応装置で1時間反応させた鉄内

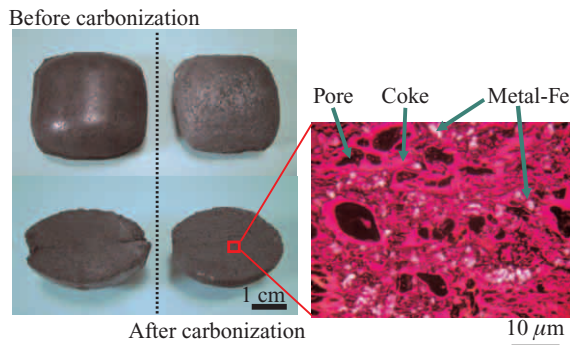


写真2 乾留前後の概観写真および鉄内装型コークス組織の偏光顕微鏡写真

Photo 2 Appearance of hot briquette and Polarization microscopic photograph of hot briquette after carbonization

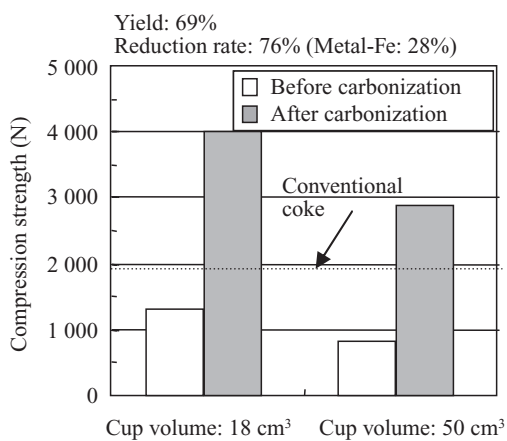


図4 乾留前後の圧潰強度比較

Fig. 4 Properties of carbon iron composite

装型コークスの断面写真および偏光顕微鏡写真を示す。反応温度1100℃では、反応形態が反応律速と塊内拡散律速との境界となる。そのため1100℃での反応性は、コークスの気孔構造に加え、コークスの組織の反応性に依存すると考えられる。鉄内装型コークスは、表面から反応が進行しており、典型的な高反応性コークスの特徴を示した。鉄分を含めた反応率は26.6%であったが、コークス基準で試算したCRI (coke reactivity index)³⁾は53%であり、通常室炉コークスの2倍以上の値を示しながらも、圧潰強度2000 N以上を維持しており(図5)、高炉内での粉化抑制が期待される。写真4に高温熱間ドラムを用いて、1700℃

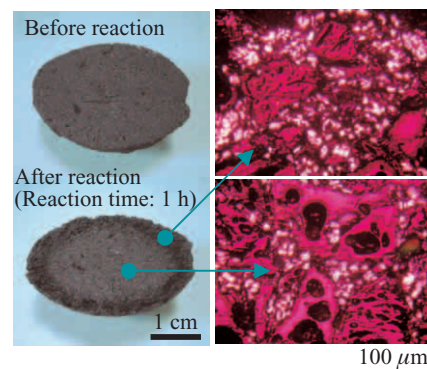


写真3 CO₂反応前後の断面写真および偏光顕微鏡写真

Photo 3 Comparison of sectional view between the reacted and the non-reacted carbon iron composite

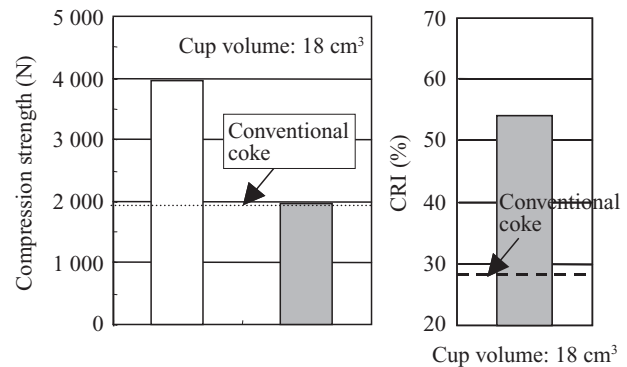


図5 CO₂反応前後の圧潰強度およびCRI

Fig. 5 Comparison of compression strength between the reacted and the non-reacted carbon iron composite

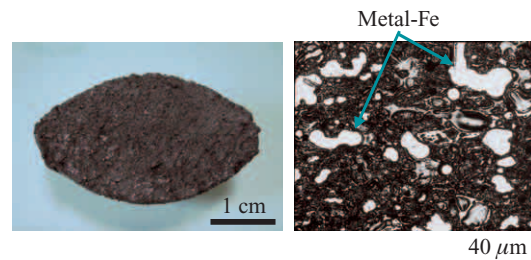


写真4 1700℃熱処理した鉄内装型コークスの概観写真および金属顕微鏡写真

Photo 4 Sectional photograph and microscopic photograph

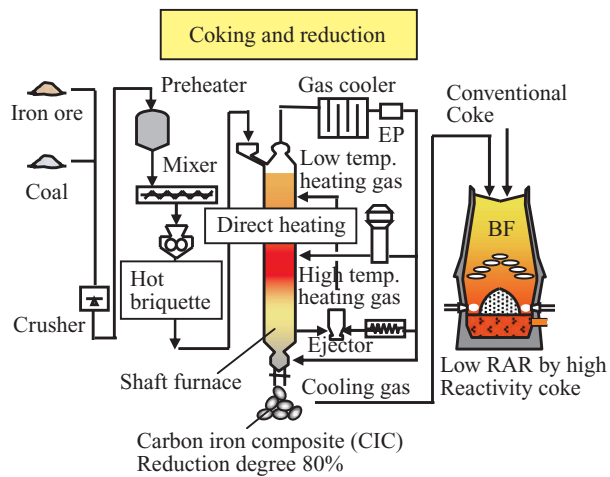


図6 鉄内装型コークスの製造プロセスイメージ図

Fig.6 Carbon iron composite process

で熱処理した鉄内装型コークスの概観写真、金属顕微鏡写真を示す。鉄の熱膨張による熱割れ挙動は、認められなかった。高温熱処理により、溶融した金属鉄が隣接する金属鉄と凝集し、大きな組織として成長していることが観察された。

3.3 鉄内装型コークス製造プロセスのイメージ

鉄内装型コークス製造プロセスのイメージ図を図6に示す。所定の粒径に粉碎された鉄鉱石および石炭は、所定の比率で配合され、熱間成型によりノーバインダーで圧密される。圧密された成型物は、高温羽口、低温羽口を備えた直接加熱方式の堅型乾留炉に装入され、金属鉄を含有する鉄内装型コークスが製造される。鉄内装型コークスは高反応コークスとして、室炉コークスの一部代替として使用され、高炉での低還元材比操業が期待される。

4. おわりに

鉄鉱石と石炭を熱間成型により圧密し、圧密された成型物を乾留して得られる新たな高炉用原料、鉄内装型コーク

ス製造プロセスに関する基礎的な検討を行った結果、以下のことが明らかとなった。

- (1) 熱間成型によりノーバインダーで鉄内装型コークス用原料の成型が可能であった。
- (2) 鉄鉱石 40 mass%、石炭 60 mass% 配合で 2000 N 以上の圧潰強度を有する鉄内装型コークスの製造可能性を確認した。また、その還元率は、70% 以上であった。
- (3) 鉄内装型コークスは CRI50% 以上であり、典型的な表面反応を示した。また、1700℃ 熱処理後も溶融、分離現象は認められなかった。

本研究によって得られた成果は、大部分が基礎的な検討結果であるが、原料選択、配合条件、成型条件、乾留プロセスなどの最適化を詳細検討することにより、老朽化したコークス炉の更新、高炉での低還元材比操業に大きく貢献するプロセスになると確信している。

参考文献

- 1) 城博, 井田四郎, コークス・サーキュラー, 1958, vol. 8, p. 33.
- 2) Fujimoto, H.; Itagaki, S.; Shimoyama, I.; Fukada, K.; Ariyama, T. Tetsu-to-Hagané. 2003, vol. 89, p. 1198.
- 3) Nishi, T.; Haraguchi, H.; Nishimoto, K. J. Fuel Soc. Jpn. 1982, vol. 61, p. 1067.
- 4) Okuyama, Y.; Shiode, T.; Sato, S.; Jurumada, A. Tetsu-to-Hagané. 1987, vol. 15, p. 1877.
- 5) Kasai, A.; Matsui, Y.; Noma, F.; Iwakiri, H.; Shimizu, M. Tetsu-to-Hagané. 2001, vol. 87, p. 313.



庵屋敷孝思



深田喜代志



藤本 英和