炭化室内 X 線断層撮影に基づくコークス 論 文 気孔率分布推定モデルの開発

白石 勝彦*・桜井 義久*・坂輪 光弘*2

Model for Estimating Coke Porosity Distribution Based on X-ray Computerized Tomogram in Coke Oven

Katsuhiko SHIRAISHI, Yoshihisa SAKURAI and Mitsuhiro SAKAWA

Synopsis :

Several kinds of coal were carbonized by using the coke oven with X-ray computerized tomography scanner (CT oven). Estimation of apparent density distribution of the coal charge during carbonization was successfully carried out by using the scanner.

(1) The coal charge expands owing to the swelling pressure in the plastic layer during the early carbonization period.

(2) The density distribution of the plastic layer is V-shape.

The estimation model of the coke porosity distribution is developed based on these phenomena. The validity of the model is confirmed through the CT oven.

Key words : coal; coke; porosity; estimation model; X-ray computerized tomography scanner.

1. 緒 言

近年,製鉄業を取り巻く経済情勢の変化から製鉄コストの大幅削減が望まれる.高炉用コークスの製造においても室炉式コークス炉の高効率化が緊急の課題である. 高効率化を図るために,石炭の乾留挙動の解明は必要不可欠の研究課題である.

従来の乾留過程の研究は装入する石炭の性状と得られ たコークスの性状から乾留挙動を推定するのが主であつ た¹⁾⁻⁶⁾. その中で,西岡ら¹⁾は石炭の加熱挙動から炭化 室内における石炭の乾留機構を推定し,炉幅方向のコー クス品質推定モデルを開発した.

このような研究では乾留途中の情報はクエンチ試料の 状況から推察されていた.しかし,クエンチ操作により 高温下の状況がそのまま凍結されたか,あるいは軟化層 のような脆弱な部分が取扱い中に壊れないかなど情報の 正確さの点で疑問があつた.

著者らは、人体と石炭およびコークスの構成元素が類 似していることに着目して、医療の分野で発達したX線 断層撮影装置(X線 CT:X-ray Computerized Tomography Scanner)を検出端とする石炭の乾留試験 装置(以下X線 CT 乾留試験装置と略記する)を開発 した⁷⁾. この装置を用いて石炭の乾留挙動を観察し,得 られた断層像(CT像:Computreized Tomogram)から 乾留途中の密度変化を定量化することに成功した. さら にこのデータに基づいて,コークス品質に大きな影響を 及ぼす炉幅方向コークス気孔率分布を推定するモデルを 開発したので報告する.

X線 CT による乾留途中の炭化室内密度分布 の測定

2·1 X線 CT 乾留試験装置

実験に用いたX線 CT 乾留試験装置の外観を Photo. 1 に示す. その主な仕様は以下のとおりである.

- (1)炭化室:50 mm(W)×50 mm(L)×150 mm(H)
 - (1) 灰化主: 50 mm(1) / 100 mm(1) / 100 mm(1)
- (2)加熱温度:常用 1100°C
- (3)X線出力:120kV 350mA(max.)
- (4)撮影時間:2.7~9s
- (5)スライス幅:2~10 mm

昭和 61 年 4 月本会講演大会にて発表 昭和 62 年 3 月 10 日受付(Received Mar. 10, 1987)

^{*} 新日本製鉄(株)製銑研究センター日吉研究分室 (Ironmaking Technology Lab. stationed at Hiyoshi, Nippon Steel Corp., 1618 Ida Nakahara-ku Kawasaki 211)

^{*2} 新日本製鉄(株)製銑研究センター日吉研究分室 工博 (Ironmaking Technology Lab. stationed at Hiyoshi, Nippon Steel Corp.)

1862

2.2 乾留進行状況の観察結果

Table 1 に性状を示した Saraji 炭と Blue creek 炭の 乾留進行状況観察結果を, Photo. 2~3 に示す.後述す るように, CT 像から粉炭層,軟化層,およびセミコー クス層を区別することができる.き裂の生成状況も観察 できる. CT 像では密度の低い部分が白く表示されるの で,炉頂空間部およびき裂によつて生じた空間部とほぼ 同じ程度まで軟化層の密度が減少していることが判明し た.また Photo.3 に示すように,乾留初期に装入炭の 表層に生成したセミコークスが装入炭の表面を覆うま で,装入炭は全体として膨張することが分かつた.

2.3 炭化室内密度分布の測定方法

本来, X線 CT は測定断面における X線吸収率分布 を測定する装置である.本実験で使用した X線 CT で は,水を0,空気を-1000と定義した CT 値で X線 吸収率を表示し, CT 値の大小に基づいて測定対象断面

Table 1 Properties of coals.

Table 1. Tropercies of coars.				
Coal	VM (% d.)	Max. fluidity (log ddpm)	Total dilatation (%)	
Saraji Blue creek	19.2 24.5	2.40 3.27	70 209	
1498 Er St	网络希尔人	線電影子会社	na sy fity synno	
後回を回る		27章后,武策兵		
8 J 🖬				
5 % 4 8 1				
			- Alexandre	
- 73 M				

unica din talah

Photo. 1. Coke oven with CT scanner.



Saraji coal; Wall temperature: A 20°C, B 840°C, C 1030°C Photo. 2. Observation of the changes from coal to coke by the coke oven with CT scanner.

の CT 像を表示する. X線吸収率は密度に比例すると 言われており, CT 像を構成する CT 値のデータから密 度分布を推定することが可能である. しかし, 実際に密 度分布を算出するには,以下の三つの問題があつた.

(1)水素の影響⁸⁾

他の元素とは異なり水素だけは密度とX線の吸収率の 関係が異なる.石炭とコークスでは水素の含有率に差が あるので,その影響が懸念される.

(2)シェーディングの影響⁹⁾

撮影領域外であつても、X線が通過する面に物質があ ると、その物質によるX線の吸収の影響で測定対象のX 線吸収率に誤差が生ずる.本実験で用いたX線 CT 乾 留試験装置の場合、X線 CT の保護のため乾留炉の外 周を水冷ジャケットで覆つている.Photo.4 に乾留炉 を取り除いた水冷ジャケットのみの CT 像と写真の直 線 a に沿つた CT 値分布を併記した.乾留炉を取り除



Blue creek coal; Wall temperature: A 20°C, B 640°C, C 1 030°C Photo. 3. Observation of the changes from coal to coke by the coke oven with CT scanner.



CT value distribution b was measured along the line a Photo. 4. Computerized tomogram of the space in the water jacket.



CT value distribution b was measured along the line a Photo. 5. Computerized tomogram of the oven walls.

いているため CT 像の中間部はたんなる空間である. すなわち, CT 像の中間部では CT 値は -1000 で一定 となるはずである.しかし,水冷ジャケットによるX線 の吸収の影響で Photo.4 のような湾曲した分布とな る.その影響を補正する必要がある.

(3)端部効果¹⁰⁾

密度が高い物質と極端にX線吸収率が低い物質の境界 近傍では CT 値に誤差が生じる. X線 CT 乾留試験装 置では炭化室壁として 1.63 g/cm³ の高密度炭素材を使 用している. Photo. 5 に石炭を装入しない状態で撮影 した炭化室壁のみの CT 像と写真の直線 b に沿つた CT 値分布を併記した. 炭化室壁および炭化室空間では CT 値が一定となるはずであるが, 炭化室壁表面近傍で CT 値に誤差が生じている. その補正が必要である.

石炭を充填した炭化室の CT 値分布,石炭を充填し ない炭化室壁のみの CT 値分布,および炭化室を取り 出した水冷ジャケットのみの CT 値分布を模式的に Fig. 1 (a)~(c) に示す.石炭を均一に装入しても石炭 を充填した炭化室の CT 値分布 (a) は水冷ジャケット および炭化室壁の影響で一定値ではない.炭化室壁の CT 値分布 (b) および水冷ジャケットのみの CT 値分 布 (c) は乾留途中で変化しない.そこで,あらかじめ 測定した炭化室壁の CT 値分布 (b) および水冷ジャ ケットのみの CT 値分布 (c) を石炭装入時の CT 値分 布 (a) から差し引いて乾留途中の密度分布を算出した. その結果 Fig. 1 (d) に示すように,装入炭層内でほぼ 均一な CT 値分布を得ることができた.

X線吸収率から密度を算出する際の水素の影響を検討 するために、上述の方法を用いて、充塡密度の異なる石



(c) The oven walls

(d) The coal charge (corrected data)

Fig. 1. CT value distribution of CT oven.



Fig. 2. Relation between the bulk density and CT value.

炭およびコークスの充填密度の測定を行つた.Fig. 2[†] に示すように,上記補正 CT 値と充填密度の間にはよ い相関があり,石炭およびコークスでは水素の影響を考 慮せず測定可能であることが分かつた.

2・3 乾留途中の炭化室内密度分布測定結果

X線 CT 乾留試験装置の炭化室に Table 1 に示した Saraji 炭と Blue creek 炭を 1:1 の割合で配合した配

[†] Fig. 2 中, 0.65 g/cm³ 以下の 3 点は 0.7~0.8 g/cm³ 程度に充填した 部分と空間部を合わせた部分の平均密度と平均 CT 値の関係をプ ロットした。





Fig. 3. Density distribution of the coal charge during carbonization.

合炭を水分 8%, 装入密度 0.75 g/cm³ の条件で装入した.上述の方法を用いて炭化室内における乾留途中の密度分布を算出した結果を Fig. 3 に示す.乾留開始時, 石炭充填層の嵩密度は湿炭ベースの装入密度と等しい値である.乾留開始後,まず湿炭から水分が蒸発する.それに伴つて,石炭充填層の嵩密度は乾留ベースの装入密度まで炉壁近傍から順次減少する (Fig. 2(b)).その後, Fig. 3(c)および(d)に見られるようなV字形に嵩密度が減少している部分が現れる.このV字形の部分は CT 像では Photo. 2~3 の(b)に見られるような白い帯状の部分に対応している.石炭の軟化開始温度および再 固化温度⁵⁾の昇温速度依存性は次の実験式で示される.

 $T_{sof}(HR) = T_{sof}(1) + 2.74 \cdot \log(HR) \cdots (1)$

 $T_{std}(HR) = T_{std}(1) + 60.34 \cdot \log(HR) \cdots (2)$ $ttil_{l}$

HR: 3°C/min を基準とする無次元化昇温速度(一) T_{sof}(HR), T_{sof}(1): HR および 3°C/min における軟化

開始温度(°C)

 $T_{sld}(HR), T_{sld}(1): HR$ および 3°C/min における再固化



Fig. 4. Comparison between the position of the plastic layer estimated from CT and that from temperature.

温度(°C)

そこで、この関係式と炭化室内の測温結果から軟化層の 位置を推定し、X線 CTから得られたV字形の密度分 布を示す位置を比較した.その際、密度変化勾配が炭化 室幅方向1mm当たり0.05g/cm³以上となる位置がV 字形の密度分布を示す部分の両端であると定義した. Fig.4に示すように測温結果から得られた軟化層の位 置とX線 CTから得られたV字形の密度分布の部分は よく一致しており、V字形の密度分布を示す部分は軟化 層であるとした.また軟化層近傍の粉炭層では嵩密度が 装入密度より高くなつている場合がある.この密度増加 の理由としては軟化層で発生した熱分解ガスの一部が粉 炭層側へ流れ、ちようど軟化層と粉炭層との境界でター ル凝縮層ができたことおよび膨張圧により粉炭層が圧縮 されたことが考えられる.

3. 気孔率分布推定モデル

3・1 モデルの考え方

X線 CT 乾留試験装置を用いる乾留試験結果に基づき、コークスの気孔率分布が決まる過程についてつぎの 三つを考慮した.①乾留初期に炉壁近傍の石炭が軟化する。それとともに、装入した石炭は全体として炉頂空間 部に向かつて膨張し始める。その膨張は軟化層の外側を 完全にセミコークス層が覆うまで起こる。その結果、最 後に得られるコークスの見掛密度は装入密度から予期さ れる値より低下する。②軟化層を介する粉炭層からセミ コークス層への物質移動過程がある。既に報告している ように¹⁰⁾軟化層では熱分解ガスの発生に伴つて高いガ ス圧が生じている¹¹⁾. その圧力により軟化した石炭は 膨張する.軟化層内のガス圧は軟化層中央部で高く,軟 化開始位置および再固化位置で低い. そのため軟化層中 央部の大きなガス圧により,再固化位置近傍の軟化した 石炭はセミコークス層に圧着される. ③セミコークス層 における収縮過程がある.収縮によりコークスとなるま でに見掛密度が増加する.

(1)乾留初期における装入炭全体の膨張

乾留初期に起こる装入炭全体としての膨張によるコー クスの密度低下の程度を評価する.この膨張による密度 の減少率は、炉壁とコークス間、き裂、および炭中中心 部に生成する空隙を体積項で考慮したコークスの平均嵩 密度と装入密度の比(R)で次式のように定義した.

 $R = BD \cdot (1 - VM) / \rho^*$ (3) ttl,

BD:装入密度(t-dry coal/m³)

VM:100%d.を1とする装入炭の揮発分(一)

ρ*:炉壁とコークス間,き裂,および炭中中心部に生成した空隙を体積項として考慮したコークスの平均嵩密度(t/m³)

Rをモデルで用いるためには石炭性状および乾留条件の関数にする必要がある。そこで、石炭および乾留条件を変えて乾留実験を行い、(3)式に基づいて BD およ $U \rho^*$ を CT で測定した。R と炭化室壁の昇温速度および装入炭の揮発分との間に良好な相関関係が認められるので、R は次式で表した。

 $R = -2.820 \cdot 10^{-3} \cdot (HR)^2 + 13.8 \cdot 10^{-3} \cdot (HR)$

HR:3°C/min を基準とする炭化室壁の昇温速度(一) 軟化層では高いガス圧が生じており、この装入炭の全体 としての膨張は軟化層の膨張に起因していると考えた. そこで、上述の R からセミコークス層での収縮の影響 を補正した密度比(R_{sul})を次式のように定義した.

 $R_{swl} = R/(1 - \varepsilon_{sh\tau}(T))^2$ (5) $zz \in C$,

T:1000°C を基準とするコークスの無次元化温度(一) $\epsilon_{shr}(T): T$ まで加熱した時のコークスの線収縮率(一) 次項で述べる軟化層を介する石炭層からセミコークス層 への物質収支において(4),(5)式より求めた R_{sucl} を 用いて、軟化した石炭のうち($1/R_{sucl}$)は上部方向へ流 出する部分として取り扱う.なお、実炉では装入炭の自 重の影響のため $R_{sucl} < 1$ となり、上部から軟化層へ流入 する項として働く、実炉適用の際には別途考慮する必要 がある. (2)軟化層を介する石炭層からセミコークス層への物 質移動

炉高方向 $h \sim h + \Delta h$ および炉長方向 $l \sim l + \Delta l$ の区間 における炉幅方向一次元物質収支をガス体として流出す る揮発分を除いて考える. 石炭層, 軟化層およびセミコー クス層間の物質収支の考え方を Fig. 5 に示す. 乾留経 過時間が t から $t + \Delta l$ まで進むと, 再固化位置が x か ら $x + \Delta x \sim$, 軟化層の幅が $W_p(t)$ から $W_p(t + \Delta t) \sim$ 変化する. すなわち, A'部の石炭がセミコークス層に 流出し, B'部の石炭が軟化層へ流入する. また, B''部の石炭は上部へ流出する. そこで, 軟化層を介する物 質収支式として(6)式が得られる.





Fig. 5. Mass transfer among coal layer, plastic layer, and semi-coke layer.



40 min after start of carbonization: Riverside coal A : Resolidification point B : Softening point

Fig. 6. Density distribution of the coal charge.

- 63 -

 $\rho^{c}{}_{\rho \cdot ave}(t + \Delta t) \cdot W_{\rho}(t + \Delta t)$

$$-\rho^{c}_{\rho \cdot ave}(t) \cdot W_{\rho}(t) = \rho^{c}_{coal}(t) \cdot (W_{\rho}(t + \Delta t))$$

 $- W_{\rho}(t) + \Delta X(t)) / R_{swl}$

 $-\rho^{c}_{coke}(t)\cdot\Delta X(t) \quad \dots \qquad (6)$

ここで, $\rho_{p-ave}^{c}(t)$:時刻tにおける揮発分を除いた軟化 層の平均密度 (t/m^{3})

 $\rho^{c}_{coal}(t)$:時刻 $t \sim t + \Delta t$ 間に軟化する粉炭層の揮発分を除いた嵩密度 (t/m^3)

ρ^c_{coke}(t):時刻 t~ t+Δt 間に生成するセミコークス層の 見掛密度(t/m³)

 $\Delta X(t)$:時刻 $t \sim t + \Delta t$ 間に再固化位置が移動する距離 (m)

ところで、軟化層の密度分布は Fig. 6 に示されるよう に、最小密度を示す位置が中央となる V字形の折れ線で 表すことができる.そこで、石炭層、軟化層およびセミ コークス層の密度の間には(7)式の関係も同時に成立す る.

 $\rho^{c}_{\rho \cdot ave}(t) = (\rho^{c}_{coal}(t) + \rho^{c}_{coke}(t))$

軟化層の最小密度は文献 11)の式より求めた軟化層の

発生ガス圧,昇温速度,装人炭の全膨張率の関数として 次式のような実験式が得られた.

 $\rho_{p-min}(t) = 1/(1.970 \cdot P_{max}(t)) - 1.994 \cdot 10^{-3}$

 $-0.893 \cdot TD - 0.1233 \cdot HR_{\rho}(t))$ (8)

ここで、*P_{max}(t)*:時刻*t*における1N/m²を基準とする 軟化層での無次元化最高ガス圧(一)

TD:100% を1とする装入炭の全膨張率(一)

 $HR_p(t)$:時刻 tにおける 3°C/min を基準とする軟化層の無次元化昇温速度 (一)

また,軟化層での密度が最小となる位置では石炭の揮発 分の 42.6%(原料炭の一つである Blue creek 炭の熱天 秤測定結果を用いた)がまだ揮発分として残留している と仮定して,次式により ρ^c_{p.min}(1) に換算する.

 $-\rho^c_{\rho-\min}(t) = \rho_{\rho-\min}(t) \cdot (1 - VM)/$

(1-0.426・VM)(9) ここで、

 $\rho_{p-min}^{c}(t): 揮発分補正した軟化層の最小密度(t/m³)$ $<math>\rho_{p-min}(t): 揮発分補正前の軟化層の最小密度(t/m³)$ そこで、(6)~(9)式を連立して再固化位置におけるセミコークスの見掛密度を算出することができる.その際、軟化開始位置近傍における粉炭層の密度増加の影響も考慮する必要がある.その密度増加の程度は位置によつて



Fig. 7. Composition of model for estimating coke porosity.

異なる.そこで、軟化開始位置近傍の密度を炉壁からの 距離の関数として、(10)式の実験式を得た.(6)、(7) 式の ρ^{c}_{coal} は(10)式の値を用いる. ρ^{c}_{coal} は(10)式の値を用いる. ρ^{c}_{coal} (t) = BD(1 - VM)・ (1.000 + 0.7574·(X/Woven)) + 0.9728·(X/Woven)² - 18.31·(X/Woven)³ + 36.05·(X/Woven)⁴ - 27.35·(X/Woven)⁵ ... (10) ここで、X:炉壁からの距離(m) Woven:炭化室幅(m) (3)セミコークス層での収縮 セミコークス化した石炭は加熱処理によつて収縮す る.C. MEYER¹²⁾は、セミコークスの収縮率が 600°C ま では熱処理温度と石炭の VM によつて決まり、600°C

以上では熱処理温度のみの関数として表せることを報告 している. このデータを用いて,セミコークス層におけ る線収縮率を次式で表した.

 $\varepsilon_{sh\tau}(T) = (0.163 \cdot VM - 0.0138)$

 $(T - T_{sld})/(0.6 - T_{sld}) [T < 0.6]$ (11) $\varepsilon_{shr}(T) = (0.163 \cdot VM - 0.0138) + 2.71 \cdot T^5$

 $-8.265 \cdot T^{4} + 8.388 \cdot T^{3} - 2.789 \cdot T^{2}$

 $\epsilon_{shr}(T): T$ まで加熱した時のセミコークスの線収縮率(-)

T_{std}:1000°Cを基準とする無次元化再固化温度(-) 3·2 モデルの構成

コークスの炉幅方向気孔率分布推定モデルの構成を Fig.7にしめす.本モデルでは炉幅方向の一次元伝熱 モデル¹³⁾と前述のX線CTによる炭化室内における石 炭の密度変化機構検討結果を考慮した石炭の密度変化モ デルを組み合わせて気孔率の推定を行う.なお、気孔率 はコークスの真密度を1.9g/cm³と仮定して(13)式の関 係から算出する.

 $\rho_{\rm en}$: コークスの見掛密度 (g/cm³)

 ρ_{tr} : コークスの真密度 (g/cm³)

3.3 推定結果と実測値との対応

X線 CT 乾留試験装置で乾留したコークスの気孔率 分布の実測値と本報告で述べたモデルで推定した結果を Fig. 8 に示した.実験に使用した配合炭の性状と乾留 条件は Table 2 に示した. Fig. 8 に示すように,推定 値と実測値はよく一致した.なお炉壁近傍および炉壁か らの距離が 8,16 mm 付近で不連続な気孔率変化が見ら



Fig. 8. Result of estimation of coke porosity.

 Table 2.
 Properties of blend coal and coking condition.

<i>VM</i>	Total dilatation	Bulk density	Moisture
(% d.)	(%)	(g/cm ³)	(%)
21.6	53.3	0.75	8.0

れる. これは炉壁近傍で昇温速度が大きく変化している こと,8mm 付近では(10)式に示した軟化層近傍の石炭 層の密度増加が極大値をとること,および16mm 付近 では左右の軟化層が合体する時の密度分布変化を不連続 的な変化と仮定しているためである.

コークスの真密度を温度の関数とすべき点、および石 炭からガスおよびタールとして流出する量を昇温速度お よび最高到達温度の関数にすべき点は、今後の課題であ る.また、X線 CT 乾留試験装置ではセミコークス層 での収縮を補正した密度比(R_{suel})が1以上であるが、 実炉では R_{suel}が1以下となる.これは炉寸法の違いに より装入炭の自重が装入炭全体の膨張に関係してくるた めと考えられる.この点は実炉適用の際の重要なポイン トである.

4. 結 言

X線 CT 乾留試験装置を用いて,炭化室内における 石炭の乾留進行状況の観察を行つた.得られた CT像 から乾留途中の密度変化現象を定量化することに初めて 成功した.その結果軟化層ではV字型の密度分布をして いることが分かつた.これらの結果を基にしてコークス の気孔率分布推定モデルを開発した.このモデルから推 定した気孔率分布は実測値とよく一致していることを確 認した.

- 文 前 1) 西岡邦彦,吉田周平:鉄と鋼,70 (1984), p. 358
- 2) D. MERRICK: Fuel, 62 (1983), p. 540
- 3) 吉野義雄, 土橋幸二, 小松義文, 山口岐夫: コークスサー キュラー, 33 (1984), p. 239 4) 荒牧寿弘, 美浦義明, 桜井義久, 坂輸光弘: 鉄と鋼, 71
- (1985), S16
- 5) 荒牧寿弘,美浦義明,桜井義久,坂輸光弘:鉄と鋼,71 (1985), S17
- 6) 三浦隆利, 深井 潤, 松林久雄, 大谷茂盛: 鉄と鋼, 71 (1985), p. 1872
- 7) 坂輸光弘, 白石勝彦, 桜井義久, 下村泰人: 燃協誌, 66 (1987), p. 259

- 8) D. H. MAYLOTTE, E. J. LAMBY, P. G. KOSKY and L. St. PETERS: Proceedings of 41st AIME Ironmaking Conference, Pittsburgh, Pensylvania (1982), p. 297
- 9) 岩井喜典編: 電子工学シリーズ 9 CT スキャナー (1982), p. 50 [コロナ社]
- 10) 電子工学シリーズ9 CT スキャナー(岩井喜典編) (1982), p.75 [コロナ社]
- 11) 坂輸光弘, 桜井義久: 第21 回石炭科学会議発表論文集 (1984), p. 245
- 12) C. MEYER: Dissertation T. U. Clausthal (1980)
- 13) 田中敬八郎,神尾 進,中川洋治,紫原康彦:鉄と鋼,71 (1985), S1