(12) 特許協力条約に基づいて公開された国際出願

(19) 世界知的所有権機関
国際事務局

(43) 国際公開日
2022年2月24日(24.02.2022)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2022/039044 A1

(51) 国際特許分類:
C10B 57/04 (2006.01) *G01N 11/14* (2006.01)
G01N 33/22 (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2021/029201

(22) 国際出願日： 2021年8月5日(05.08.2021)

(25) 国際出願の言語： 日本語

(26) 国際公開の言語： 日本語

(30) 優先権データ：
特願 2020-137311 2020年8月17日(17.08.2020) JP

(71) 出願人：ＪＦＥスチール株式会社(**JFE STEEL CORPORATION**) [JP/JP]；〒1000011 東京都千代田区内幸町二丁目２番３号 Tokyo (JP).

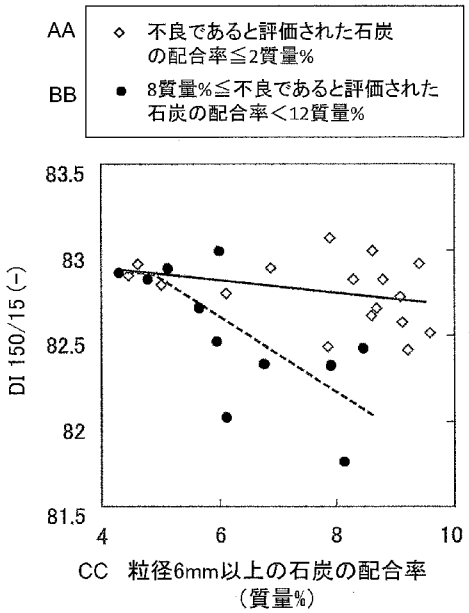
(72) 発明者：穐鹿 一穂(**AKISHIKA Issui**)；〒1000011 東京都千代田区内幸町二丁目２番３号ＪＦＥスチール株式会社知的財産部内 Tokyo (JP). 土肥 勇介(**DOHI Yusuke**)；〒1000011 東京都千代田区内幸町二丁目２番３号ＪＦＥスチール株式会社知的財産部内 Tokyo (JP). 井川 大輔(**IGAWA Daisuke**)；〒1000011 東京都千代田区内幸町二丁目２番３号ＪＦＥスチール株式会社知的財産部内 Tokyo (JP).

(74) 代理人：熊坂 晃，外(**KUMASAKA Akira** et al.)；〒1000004 東京都千代田区大手町二丁目７番１号ＪＦＥテクノリサーチ株式会社知的財産事業部内 Tokyo (JP).

(81) 指定国(表示のない限り、全ての種類の国内保護が可能)：AE, AG, AL, AM, AO, AT, AU, AZ,

(54) **Title:** PREPARATION METHOD FOR COAL OR BINDING MATERIAL, AND MANUFACTURING METHOD FOR COKE

(54) 発明の名称： 石炭または粘結材の調製方法およびコークスの製造方法



AA Percentage of coal evaluated as defective ≤ 2 mass%
BB 8 mass% ≤ percentage of coal evaluated as defective < 12 mass%
CC Percentage of coal with particle size of 6 mm or larger (mass%)

(57) **Abstract:** Provided is a preparation method for coal or a binding material to be used alone or in combination with another coal as a coke manufacturing starting material, wherein prior to delivery of said coal or binding material to a coke plant, the granularity thereof is adjusted such that particles having a size of 6 mm or larger constitute no more than 30 mass% of coal or binding material satisfying at least one of the following criteria: the degree of entangling (a-b)/a, which is represented by the height b at the inner wall of a container of semi-coke formed in the container by rotating a stirring element while heating the coal or binding material housed in the container and the height a of semi-coke adhered to the stirring element, is 0.20 or higher; and the height a is 30 mm or higher.

WO 2022/039044 A1

［続葉有］

BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN, CO, CR, CU, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IR, IS, IT, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, ME, MG, MK, MN, MW, MX, MY, MZ, NA, NG, NI, NO, NZ, OM, PA, PE, PG, PH, PL, PT, QA, RO, RS, RU, RW, SA, SC, SD, SE, SG, SK, SL, ST, SV, SY, TH, TJ, TM, TN, TR, TT, TZ, UA, UG, US, UZ, VC, VN, WS, ZA, ZM, ZW.

(84) 指定国(表示のない限り、全ての種類の広域保護が可能): ARIPO (BW, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SD, SL, ST, SZ, TZ, UG, ZM, ZW), ユーラシア (AM, AZ, BY, KG, KZ, RU, TJ, TM), ヨーロッパ (AL, AT, BE, BG, CH, CY, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, FR, GB, GR, HR, HU, IE, IS, IT, LT, LU, LV, MC, MK, MT, NL, NO, PL, PT, RO, RS, SE, SI, SK, SM, TR), OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GQ, GW, KM, ML, MR, NE, SN, TD, TG).

添付公開書類:

一　国際調査報告（条約第21条(3)）

(57) 要約：コークス製造原料として、単独または他の石炭と配合して用いる石炭または粘結材の調製方法であって、石炭または粘結材がコークス工場に入荷される前に、容器に収容される石炭または粘結材を加熱しながら撹拌子を回転させることで、容器に形成されるセミコークスの容器内における内側壁での高さｂと撹拌子に付着するセミコークスの高さａとで表される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａが０．２０以上、および、高さａが３０ｍｍ以上のうち少なくとも一方を満足する石炭または粘結材の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率を３０質量％以下に粒度調整する。

明　細　書

発明の名称 ：

石炭または粘結材の調製方法およびコークスの製造方法

技術分野

[0001]　本発明は、石炭や粘結材の軟化溶融特性を評価する評価方法を用いて、高強度のコークスを製造できるように、石炭または粘結材を粒度調整する調製方法、すなわち、粒度調整された石炭または粘結材の製造方法に関する。

背景技術

[0002]　高炉において溶銑を製造するために高炉原料として用いられる冶金用コークスは高強度であることが好ましい。コークスは強度が低いと高炉内で粉化し、高炉の通気性が阻害され、安定的な溶銑の生産が行えなくなる。したがって、高強度のコークスを得るために、コークス強度を低下させないという観点で、冶金用コークスの原料として石炭を評価する技術が求められている。

[0003]　特許文献１には、コークス炉におけるコークス化過程において、軟化溶融状態にある石炭がコークスの品質に大きな影響を与えることが記載されている。このように、石炭の評価では、石炭の軟化溶融状態の性質を正確に評価することが重要である。特許文献１に記載されている通り、その評価を行う方法として、ＪＩＳ－Ｍ８８０１に規定されているギーセラープラストメータ法による流動度の測定が知られている。

先行技術文献

特許文献

[0004] 特許文献1：特開２０００－３０４６７４号公報

非特許文献1：宮津隆ら、「多種配合計画ならびに原料炭の評価」、日本鋼管技報、ｖｏｌ．６７、１９７５年、ｐ．１２５－１３７

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0005] ギーセラープラストメータ法による流動度は、実際のコークス炉で起っている現象をシミュレートしているとはいえない点に問題があることが知られている。このため、ギーセラープラストメータ法で測定された石炭の流動度を指標にして、コークスの品質の推定を行うことは、精度という観点で十分ではないという課題がある。このため、冶金用コークスを製造する技術であって、石炭の流動度以外を指標としたコークスの製造技術が求められている。本発明は、このような従来技術を鑑みてなされたものであり、対象の石炭がコークスの強度を低下させる可能性があるかを評価し、コークス強度を低下させる可能性のある石炭の粒度を調整する石炭または粘結材の調製方法を提供することを目的とする。

課題を解決するための手段

[0006] 上記課題を解決するための手段は、以下の通りである。

［１］コークス製造原料として、単独または他の石炭と配合して用いる石炭または粘結材の調製方法であって、前記石炭または粘結材がコークス工場に入荷される前に、容器に収容される前記石炭または粘結材を加熱しながら撹拌子を回転させることで、前記容器に形成されるセミコークスの前記容器内における内側壁での高さｂと前記撹拌子に付着する前記セミコークスの高さａとで表される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａが０．２０以上、および、前記高さａが３０ｍｍ以上のうち少なくとも一方を満足する前記石炭または粘結材の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率を３０質量％以下に粒度調整する、石炭または粘結材の調製方法。

［２］コークス製造原料として、単独または他の石炭と配合して用いる石炭または粘結材の調製方法であって、前記石炭または粘結材がコークス工場に入荷される前に、容器に収容される前記石炭または粘結材を加熱しながら撹拌子を回転させることで、前記容器に形成されるセミコークスの前記容器内における内側壁での高さｂと前記撹拌子に付着する前記セミコークスの高さａとで表される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａが０．２０以上、および、前記高さａが３０ｍｍ以上のうち少なくとも一方を満足する前記石炭または粘結材

の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率が下記（１）式を満足するように粒度調整する、石炭または粘結材の調製方法。

粒径６ｍｍ以上の粒の含有率（質量％）≦３０＋０．５×（ＨＧＩ－６０）・・・（１）

上記（１）式のＨＧＩは、石炭または粘結材のハードグローブ粉砕性指数である。

［３］前記容器および前記容器に収容される前記石炭または粘結材を加熱しながら前記撹拌子を回転させる条件がギーセラー流動度の測定条件である、［１］または［２］に記載の石炭または粘結材の調製方法。

［４］コークス製造原料として、単独または他の石炭と配合して用いる石炭または粘結材の調製方法であって、前記石炭または粘結材がコークス工場に入荷される前に、予め複数の前記石炭または粘結材について、容器に収容される前記石炭または粘結材を加熱しながら撹拌子を回転させることで、前記容器に形成されるセミコークスの前記容器内における内側壁での高さｂと前記撹拌子に付着する前記セミコークスの高さａとで表される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは前記高さａと、複数の前記石炭または粘結材を他の石炭と混合して乾留して得られるコークスの強度との関係に基づいて、前記コークス製造原料として不良と判断される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲を定め、前記コークス製造原料として用いる前記石炭または粘結材であって、その絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａが前記コークス製造原料として不良と判断される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲である前記石炭または粘結材の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率を３０質量％以下に粒度調整する、石炭または粘結材の調製方法。

［５］コークス製造原料として、単独または他の石炭と配合して用いる石炭または粘結材の調製方法であって、前記石炭または粘結材がコークス工場に入荷される前に、予め複数の前記石炭または粘結材について、容器に収容される前記石炭または粘結材を加熱しながら撹拌子を回転させることで、前記容器に形成されるセミコークスの前記容器内における内側壁での高さｂと前

記撹拌子に付着する前記セミコークスの高さａとで表される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは前記高さａと、複数の前記石炭または粘結材を他の石炭と混合して乾留して得られるコークスの強度との関係に基づいて、前記コークス製造原料として不良と判断される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲を定め、前記コークス製造原料として用いる前記石炭または粘結材であって、その絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａが前記コークス製造原料として不良と判断される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲である前記石炭または粘結材の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率が下記（１）式を満足するように粒度調整する、石炭または粘結材の調製方法。

粒径６ｍｍ以上の粒の含有率（質量％）≦３０＋０．５×（ＨＧＩ－６０）・・・（１）

上記（１）式のＨＧＩは、石炭または粘結材のハードグローブ粉砕性指数である。

［６］コークス炉に装入される前に、前記石炭または粘結材の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率を５質量％以下に粒度調整する、［１］から［５］のいずれか一つに記載の石炭または粘結材の調製方法。

［７］前記石炭が産出される場所または前記粘結材が製造される場所から出荷される前に前記石炭または粘結材を粒度調整する、［１］から［６］のいずれか一つに記載の石炭または粘結材の調製方法。

［８］［１］から［７］のいずれか一つに記載の石炭または粘結材の調製方法で調製された石炭を乾留してコークスを製造する、コークスの製造方法。

［９］［１］から［７］のいずれか一つに記載の石炭または粘結材の調製方法で調製された石炭および粘結材を乾留してコークスを製造する、コークスの製造方法。

発明の効果

[0007] 本発明では、コークスの強度を低下させる可能性のある不良の石炭か否かを評価し、不良と評価された石炭の粒度を調整する。これにより、コークス強度を低下させる可能性のある石炭を用いたとしても製造されるコークスの

コークス強度の低下が抑制され、高強度の冶金用コークスの製造が実現できる。

図面の簡単な説明

[0008] [図1]本実施形態に係る石炭の軟化溶融特性の評価方法で用いられるギーセラープラストメータ１０の一例を示す鉛直断面図

[図2]不良と評価された石炭粒子２０が、不良と評価されなかった石炭粒子２２に配合された配合炭をコークス化した際の欠陥構造の生成状況を示す模式図

[図3]不良と評価されなかった石炭粒子２２のみが配合された配合炭をコークス化した際の欠陥構造の生成状況を示す模式図

[図4]不良と評価された石炭粒子２０を粉砕し、微細化された石炭粒子２４が、不良と評価されなかった石炭粒子２２に配合された配合炭をコークス化した際の欠陥構造の生成状況を示す模式図

[図5]Ａ炭およびＦ炭の最大粒径とドラム強度との関係を示したグラフ

[図6]配合炭中の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率と、コークス強度との関係を示すグラフ

発明を実施するための形態

[0009] 本発明では、石炭を収容する容器と当該容器内に配置された撹拌子とを有する装置で加熱して形成されるセミコークスの形状を指標として、当該石炭がコークス強度を低下させる可能性のある石炭か否かを評価する。そして、コークス強度を低下させる可能性のある石炭であると評価された場合に、当該石炭の粒度を事前に調整して、当該石炭をコークス製造原料として単独または他の石炭と配合して用いることで、製造されるコークスのコークス強度の低下を抑制できることを見出して本発明を完成させた。以下、本発明を本発明の実施形態を通じて説明する。

[0010] 図１は、本実施形態に係る石炭の軟化溶融特性の評価方法で用いられるギーセラープラストメータ１０の一例を示す鉛直断面図である。ギーセラープラストメータ１０は、評価対象の石炭を収容する容器１２と、当該容器１２

内に配置される撹拌子１４とを有する。ギーセラープラストメータ１０は、図示しない駆動装置をさらに有し、当該駆動装置により撹拌子１４が回転される。容器１２内に石炭を収容した状態で撹拌子１４を回転させ、容器１２を加熱し昇温させていくと、加熱された石炭が軟化溶融状態になる。軟化溶融状態の石炭は粘弾性体となって変形し、回転する撹拌子１４に絡みついていくが、石炭には形状を保つ力が働き、回転に抗する力が撹拌子１４に作用する。

[0011] ギーセラープラストメータ法では撹拌子１４に所定のトルクをかけた状態で撹拌子１４の回転速度を測定し、加熱中の最大の回転速度をギーセラー最高流動度ＭＦ（ｄｄｐｍ）として求める。測定値は、ＭＦの常用対数ｌｏｇをとって、ギーセラー最高流動度をｌｏｇＭＦで表すこともある。ギーセラープラストメータ法における石炭の加熱条件や容器１２の寸法などの測定条件は、ＪＩＳ　Ｍ　８８０１に規定されており、以下の通りである。

（１）深さ３５．０ｍｍ、内径２１．４ｍｍの容器に、直径４．０ｍｍの軸に軸と垂直に４本の横棒（直径１．６ｍｍ、長さ６．４ｍｍ、図１には不図示）を取り付けた撹拌子を入れる。

（２）容器内に５ｇの石炭を充填する。

（３）容器を３００℃または３５０℃に予熱した金属浴に漬けて、金属浴の温度が予熱温度に回復した後、昇温速度３℃／ｍｉｎの加熱を撹拌子の回転が停止するまで続ける。

[0012] なお、一番低い横棒と容器の底との距離は１．６ｍｍであり、横棒間の軸方向に沿った距離が３．２ｍｍである。中央の２本の横棒は回転方向に互いに１８０度異なった位置にあり、上下端の横棒も回転方向に互いに１８０度異なった位置にあり、中央の２本の横棒と上下端の２本の横棒は回転方向に互いに９０度異なった位置にある。ＡＳＴＭ　Ｄ２６３９に規定された条件もＪＩＳ　Ｍ　８８０１の条件と同様であり、ＡＳＴＭの方法を用いてもよい。また、ＩＳＯ　１０３２９やそれに対応した条件も用いることができる。ギーセラープラストメータを用いない場合、石炭を収容する容器は円筒状

とすることが好ましく、その内径の５～６０％の径を有する撹拌子を用いることが好ましい。撹拌子には横棒を設けることが好ましいが、横棒がなくても軟化溶融した石炭の撹拌子への絡みつきは発生する。

[0013] 石炭は加熱により軟化溶融して流動性を示し、さらに加熱することによって溶融物が再固化する。このため、ギーセラー流動度が測定された後、容器１２内には、石炭の再固化温度以上の温度で加熱された石炭がセミコークス１６となって収容される。石炭およびセミコークス１６は塑性体でもあるので、ギーセラー流動度の測定後には、セミコークス１６は、容器１２の内側壁に接触しつつも撹拌子１４に引っ張られて撹拌子１４に絡みつくように付着した形状を維持する。したがって、大抵の銘柄の石炭では、図１に示すように、撹拌子１４に付着しているセミコークス１６の容器１２の底面からの高さａが最も高く、容器１２の内側壁に接触しているセミコークス１６の底面からの高さｂが最も低くなる。石炭軟化溶融物のこのような挙動はワイセンベルグ効果として知られている。

[0014] 上述した高さａおよび高さｂは、測定後の容器１２を解体して測定できる。また、ギーセラー流動度の測定後に容器１２をマイクロフォーカスＸ線ＣＴ装置でスキャンして、セミコークス１６の形状の画像を得て、当該画像から高さａおよび高さｂを測定してもよい。マイクロフォーカスＸ線ＣＴ装置は、例えば、ニコン（株）製ＸＴＨ３２０ＬＣ、ＧＥセンシング＆インスペクション・テクノロジー（株）製ｐｈｏｅｎｉｘ ｖ｜ｔｏｍｅ｜ｘ ｍ３００などである。高さａおよび高さｂは、容器円周方向での位置による違いはほとんどないので、ある特定の断面での高さを測定すればよい。仮に、周方向の位置により、高さの違いがある場合には、複数断面で高さを測定し、これらの平均値を高さａおよび高さｂの値として用いてもよい。

[0015] ギーセラー流動度の測定後におけるセミコークス１６の形状は石炭の性状によって異なる。本発明者らは、容器１２内でのセミコークス１６の形状がコークスの強度に影響を及ぼすことを示す指標になると考え、セミコークス１６の高さａおよび高さｂで表される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａとコークス

強度との関係を調査し、絡みつき度（ａ－ｂ）／ａがコークス強度を低下させる可能性のある石炭か否かを評価する指標になることを確認した。さらに、本発明者らは、絡みつき度に代えて撹拌子１４に付着したセミコークス１６の高さａを採用しても、絡みつき度と同様にコークス強度を低下させる可能性のある石炭か否かを評価する指標となること確認した。

[0016] 絡みつき度（ａ－ｂ）／ａや高さａとコークス強度との関係の調査は次のように行った。絡みつき度（ａ－ｂ）／ａおよび高さａのコークス強度への影響を調査するため、石炭Ｔ～Ｙを用いて乾留試験を行った。用いた石炭の性状を表１に示す。乾留試験はコークス炉の乾留条件をシミュレート可能な電気炉を用い、装入嵩密度７５０ｋｇ／ｄｒｙ石炭で炉内に装入した配合炭を１０５０℃で６時間の条件で乾留してコークスを製造した。準備した石炭の性状及び絡みつき度（ａ－ｂ）／ａおよび高さａを表１に示す。

[0017] [表1]

項目	灰分 [%]	揮発分 [%]	Ro [%]	TI [%]	log MF [log ddpm]	高さa [mm]	高さb [mm]	絡みつき度
石炭T	7.8	35.7	0.87	14.6	4.19	33.4	17.3	0.48
石炭U	6.2	30.6	1.07	11.5	3.12	30.8	19.0	0.38
石炭V	6.8	42.1	0.62	20.2	4.35	29.4	26.0	0.12
石炭W	8.6	32.0	1.03	35.5	3.05	25.9	24.4	0.06
石炭X	8.1	34.1	0.95	29.0	2.70	27.0	25.1	0.07
石炭Y	7.3	33.8	0.93	33.9	2.49	26.0	21.6	0.17

[0018] 表１における「灰分」及び「揮発分」は、ＪＩＳ　Ｍ　８８１２の工業分析法による測定値（それぞれドライベース質量％）である。「Ｒｏ」は、ＪＩＳ　Ｍ　８８１６の石炭のビトリニットの平均最大反射率であり、「ＴＩ」は、ＪＩＳ　Ｍ　８８１６の石炭の微細組織成分の測定方法およびその解説に記載のＰａｒｒの式に基づいて算出した石炭組織分析におけるイナート量（体積％）である。「ｌｏｇＭＦ」は、ＪＩＳ　Ｍ　８８０１に規定されているギーセラープラストメータ法による流動度測定法で測定した最高流動度ＭＦの常用対数ｌｏｇの値である。表１に示すように、石炭Ｔ～Ｙの性状

はそれぞれ異なっている。

[0019] 表１の「絡みつき度」は、図１に示すギーセラープラストメータを用いて本実施形態に係る石炭の評価方法における高さａとｂとを測定し、当該a、ｂを用いて算出した絡みつき度（ａ－ｂ）／ａ値である。高さａ及びｂは、容器１１をニコン（株）製Ｘ線ＣＴ装置ＸＴＨ３２０ＬＣでスキャンして得られたセミコークスの断面形状の画像から実測することで測定した。

[0020] 表１で注目すべきは、石炭Ｔ及びＵは、高さａが３０ｍｍ以上であり、絡みつき度が０．２０以上であることである。石炭Ｙは、表１に示されるＲｏやＩｏｇＭＦの性状を鑑みると、石炭から冶金用コークスを製造する技術分野では標準的な石炭とみなせる。

[0021] 本実施例では、更に、石炭Ｔ～Ｘの各々と石炭Ｙとを２：８の割合で混合した２種の石炭からなる混合炭を乾留してコークスを製造した。得られたコークスの強度を表２に示す。

[0022] [表2]

項目	コークス強度 [DI 150/15]
混合炭TY	84.0
混合炭UY	83.6
混合炭VY	84.6
混合炭WY	84.3
混合炭XY	84.7

[0023] コークスの強度として、ＪＩＳ　Ｋ　２１５１の回転強度試験法に基づきコークスを所定量装入したドラム試験機を１５ｒｐｍで１５０回転させた後の粒径１５ｍｍ以上のコークスの質量割合を測定し、回転前との質量比×１００であるドラム強度「ＤＩ　１５０／１５」を求めた。表２では、２種の石炭からなる混合炭から得られたコークスの強度を記載してある。

[0024] 表２からわかるように、石炭Ｔまたは石炭Ｕを石炭Ｙと混合した混合炭から得られるコークスは、石炭Ｖ、Ｗ及びＸを石炭Ｙと混合した場合よりも、

コークスの強度が低くなっていることがわかる。石炭ＴとＵはいずれも絡みつき度（ａ－ｂ）／ａが０．２０以上あるいは高さａが３０ｍｍ以上である。このことから、絡みつき度（ａ－ｂ）／ａが０．２０以上の石炭はコークス製造用の原料石炭として不良であると評価できる。同様に高さａが３０ｍｍ以上の石炭もコークス製造用の原料石炭として不良であると評価できる。

[0025] このように、絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａが異なる複数の石炭を、他の石炭と混合し、混合炭を乾留して得られたコークスの強度と絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａとの関係を調査することにより、コークス製造用の原料石炭として不良であると評価される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲を定めることができる。この例では、評価対象の石炭Ｔ～Ｘを、同一の石炭Ｙに、石炭Ｔ～Ｘの混合量が一定となるように添加して、同じ条件で乾留してコークスを製造した。石炭を評価するための乾留試験の方法としては、この方法に限られず、例えば評価対象の石炭の添加量を一定として、残部の石炭の種類や混合量を調整して、評価対象石炭を含む混合炭の平均品位を一定に揃えるようにして試験を行ってもよい。この場合には平均品位として、加重平均反射率Ｒｏ、加重平均のｌｏｇＭＦ（ギーセラー最高流動度の常用対数値）を一定とすることが好ましい。

[0026] コークス強度と絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａとの関係に基づいて、コークス製造用の原料石炭として不良であると評価される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲を定めるには、例えば次のような方法に基づくことができる。高炉の操業においては、コークスの強度が低いと高炉の安定的な操業が不可能となる。従って、高炉の操業実績などに基づいて、高炉の操業を安定的に行えるコークスの強度を定め、コークス強度と絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａとの関係に基づいて、高炉操業を安定的に行えるコークス強度に対応した絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａを定める。絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａが、このように定められた値以下であれば、高炉操業が安定的に行えるが、この定められた値を超えると高炉の安定的な操業が難しくなる可能性が高いため、この定められた値を超え

る絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲を、コークス製造原料として不良と判断される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲として定めることができる。

[0027] ここではＪＩＳに定められた強度試験に基づいて、コークス原料として不良と評価される石炭の性状を定めているが、それ以外の強度指標を用いてもよい。ＪＩＳ法と類似の回転強度試験法としてはマイカム強度、タンブラー強度、Ｉ型ドラム強度などが知られており、ＩＳＯやＡＳＴＭの規格に従ってそれらの強度を求めることができる。また、コークスの圧縮強度などの機械的強度を用いてコークス原料として不良と評価される絡みつき度や高さの範囲を決めることもできる。

[0028] 絡みつき度が大きい石炭や、撹拌子１４に付着したセミコークス１６の高さａが大きい石炭は、軟化溶融状態では膨張性が過剰に大きく、加熱した後のコークス中で欠陥構造ができやすく、コークス強度に悪影響を与えると推測される。よって、本実施形態では、石炭の絡みつき度または高さａが所定の値以上である場合に当該石炭を、コークス強度を低下させる可能性のある不良の石炭と評価する。具体的には、ＪＩＳ等に定められたギーセラープラストメータ法による石炭の流動性の測定条件において、絡みつき度が０．２０以上、および、高さａが３０ｍｍ以上のうち少なくとも一方を満足する石炭を冶金用コークスの石炭として不良と評価する。なお、絡みつき度および高さａが大きいほど膨張性が大きすぎてコークス強度に悪影響があると判断できるので、絡みつき度と高さａの上限値は設けなくてよい。ただし、絡みつき度および高さａともに、測定値は石炭試料を収容する容器１２の大きさの制約を受ける。したがって、絡みつき度が０．２０以上、高さａが３０ｍｍ以上の値が測定可能な容器を用いて測定を行うことが好ましい。

[0029] 石炭の銘柄によってはセミコークス１６が撹拌子１４に全て引っ張られて、容器１２の内側壁にセミコークス１６が全く接触していない場合がある。その場合でも石炭は膨張性が過剰に大きいと推測されるので、絡みつき度を算出して石炭を評価することに支障はなく、ｂに０を代入して絡みつき度を

１と算出すればよい。

[0030] 不良と評価された石炭をコークスの原料石炭（原料炭）に使用すると、コークス化の際に粗大な欠陥を残し、かつ、薄い気孔壁の組織構造が形成されるので、製造されるコークスのコークス強度は低下する。しかしながら、本発明者らは、不良と評価された石炭をコークスの原料石炭として用いた場合であっても、不良と評価された石炭の粒度を調整することで強度低下を抑制できることを見出した。

[0031] 図２は、不良と評価された石炭粒子２０が、不良と評価されなかった石炭粒子２２に配合された配合炭をコークス化した際の欠陥構造の生成状況を示す模式図である。図２（a）はコークス化される前の状態を示し、図２（ｂ）はコークス化された後の状態を示す。不良と評価された石炭粒子２０は、コークス化の際に膨張して充填粒子間の空隙や粗大な欠陥２６に大きく浸透する。このため、薄い気孔壁が形成されるとともに、当該石炭粒子２０が元あった場所に粗大な欠陥２６が生じる。この薄い気孔壁の形成や粗大な欠陥２６により、不良と評価された石炭粒子２０を含む配合炭を用いて製造されるコークスではコークス強度の低下が発生する。不良と評価された石炭が単独で（他の石炭と配合されずに）乾留された場合でも、このような粗大な欠陥２６が発生する。これは不良と評価された石炭の層全体が膨張してしまうためであり、この現象によって欠陥が生成し、コークス強度の低下が発生する。発明者らは、このような欠陥の生成しやすさと、絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａとの相関を見出した。

[0032] 図３は、不良と評価されなかった石炭粒子２２のみが配合された配合炭をコークス化した際の欠陥構造の生成状況を示す模式図である。図３（a）はコークス化される前の状態を示し、図３（ｂ）はコークス化された後の状態を示す。不良と評価されなかった石炭粒子２２は、コークス化の際に充填粒子間の空隙や粗大な欠陥にあまり浸透しないので、厚い気孔壁が形成されるとともに、当該石炭粒子２２が元あった場所に粗大な欠陥が残らない。このため、不良と評価されなかった石炭粒子２２のみを用いて製造されるコークス

ではコークス強度の低下が発生しない。

[0033] 図４は、不良と評価された石炭粒子２０を粉砕し、微細化された石炭粒子２４が、不良と評価されなかった石炭粒子２２に配合された配合炭をコークス化した際の欠陥構造の生成状況を示す模式図である。図４（a）はコークス化される前の状態を示し、図４（ｂ）はコークス化された後の状態を示す。不良と評価された石炭はコークス化の際に充填粒子間の間隙や、粗大な欠陥に大きく浸透する。しかしながら、粒子が元あった場所に形成される欠陥は小さくなるので、これにより、不良と評価された石炭を含む配合炭を用いた場合であっても、当該石炭を粉砕して微細化された石炭粒子２４を用いることで製造されるコークスのコークス強度の低下が抑制される。

[0034] このように、不良と評価された石炭であっても当該石炭の粒度を事前に細かくしておくことで、コークス化の際に粗大な欠陥が生じることが抑制される。これにより、不良と評価された石炭を用いたとしても乾留後のコークスのコークス強度低下が抑制される。

[0035] また、配合炭に添加される粘結材も、同様のメカニズムによってコークス強度を低下させる原因となり得る。このため、粘結材がコークス工場に入荷される前に、不良と評価された石炭と同じ粒度まで、当該粘結材の粒度を調整することが好ましい。

[0036] 不良と評価された石炭を乾留前にどの程度まで細かくして配合すればコークス強度の低下を抑制できるか確認した所、乾留前、すなわちコークス炉に装入される石炭中の６ｍｍ以上の粒子の含有率を５質量％以下にすれば、コークス強度の低下を抑制できることを確認した。詳細は後述するが、石炭中の６ｍｍ以上の粒子の含有率を５質量％以下とすることで、不良と評価された石炭を８質量％以上１２質量％未満の範囲内で配合された配合炭を用いて製造されたコークスのコークス強度と、不良と評価された石炭を２質量％以下で配合された配合炭を用いて製造されたコークスのコークス強度とが同等となった。この結果は、石炭中の６ｍｍ以上の粒子の含有率を５質量％以下とすれば、不良と評価された石炭の配合率が８質量％以上１２質量％未満で

あっても当該石炭の配合率が２質量％以下であってもコークス強度が変わらないことを意味し、これにより、不良と評価された石炭を配合することによるコークス強度の低下が抑制できることがわかる。

[0037] 一般にコークスは、１０～１５銘柄の石炭が配合された配合炭を用いて製造される。その際、コークス工場に入荷した石炭や粘結材は、コークス製造に適した粒度にさらに細かく粉砕される。しかし、コークスを製造するコークス工場において、特定の銘柄の石炭のみを特定の粒度に調整することは操作が煩雑になるので好ましくない。このため、コークス製造工場に入荷される前に、不良と評価された石炭を予め粒度調整しておくことが好ましい。そうすれば、コークス炉に装入される前の粉砕工程でさらに細かく粉砕される。これにより、操作が煩雑になるコークス製造工場での粒度調整を行うことなく、製造されるコークスのコークス強度の低下を抑制できる。

[0038] 石炭中の６ｍｍ以上の粒子の含有率は、石炭の水分含有量を６質量％以下に乾燥させた状態で、所定の目開きの篩を用いて篩分け、篩上または篩下の粒子の全試料に対する質量比率から算出できる。石炭の水分含有率が６質量％以下であると、石炭の粒子同士が凝集し、擬似粒子を形成したり微粉が粗粒に付着したりしないので、粒度の測定値の誤差が生じない。このため、石炭中の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率の測定は、石炭の水分含有率を６質量％以下として測定することが好ましい。

[0039] コークス工場に入荷された石炭は、コークス工場でさらに粉砕され、その後にコークス炉に装入される。このため、コークス工場に入荷される前の石炭中の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率は必ずしも５質量％以下でなくてもよい。そこで、標準的なコークス工場における粉砕条件で石炭が粉砕された後に石炭中の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率が５質量％以下となる石炭の粒度を確認した。この結果、石炭中の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率を３０質量％以下にすれば、標準的な石炭粉砕条件で粉砕された後に粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率が５質量％以下になることがわかった。このため、不良と評価された石炭は、コークス工場への入荷より前に当該石炭中の粒径６ｍｍ以上

の粒子の含有率が３０質量％以下になるように粒度調整すればよく、コークス工場での粉砕により、コークス炉に装入される前に、当該石炭の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率は５質量％以下に粒度調整される。

[0040] ここで、石炭の粒度を調整する方法としては、例えば、石炭の粒度を細かくする場合には、石炭採掘段階で粒度が細かくなるように採掘する方法や、採掘後、出荷に至るまでの選炭工程や配合工程で粉砕や分級、篩い分けを実施することで粒度を調整してよい。炭鉱では、予め炭層ごとに産出される石炭の品位が測定されるので、絡みつき度も併せて測定し、その測定値に基づいて粒度を調整すればよい。石炭の粉砕には、公知のインパクトクラッシャーやハンマークラッシャーなどの粉砕機を用いてよく、また、これら粉砕機と篩とを組み合わせて用いることで、コークス強度の低下の原因となる石炭の粗粒部のみを取り出して粉砕できるので、より効果的に粒度を調整できる。なお、石炭の粒度は、採掘する場所や時期、装置、採掘後の搬送、保管などの種々の条件によって不可避的に変動するのでロット毎に異なる。従って、粒度の異なるロットを配合することで、石炭の粒度を調整してもよい。

[0041] さらに、石炭の硬さを考慮して石炭の粒度を調整してもよい。粉砕条件が同じであれば柔らかい石炭ほど細かく粉砕されるので、コークス工場における粉砕後の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率の目標値が５質量％以下で一定であるならば、柔らかい石炭は、コークス工場の粉砕機に供給される前の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率が大きくても、所定の目標値を満足できると考えられる。石炭の硬さの指標としてはＨＧＩ（ハードグローブ粉砕性指数）が一般に用いられることから、石炭中の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率が３０質量％の石炭が、標準的な石炭粉砕条件で粉砕されて当該石炭中の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率が５質量％以下になる石炭のＨＧＩを測定したところ、この石炭のＨＧＩは６０であった。なお、ＨＧＩは、ＪＩＳ　Ｍ　８８０１に記載の粉砕性試験方法により求められる指数である。

[0042] ＨＧＩが高い石炭ほど柔らかいことを意味するので、石炭のＨＧＩが１増加する（柔らかくなる）ごとにコークス工場の粉砕機に供給される前の粒径

６ｍｍ以上の粒子の含有率を０．５質量％増加させても、粉砕後の石炭の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率を５質量％以下にできることがわかった。この知見から、不良と判断された石炭がコークス工場に入荷される前、もしくは、当該石炭の産出場所から出荷される前の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率が下記（１）式を満足するように粒度調整することが好ましいことがわかる。

粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率（質量％）≦３０＋０．５×（ＨＧＩ－６０）・・・（１）

[0043] 石炭のＨＧＩは通常４０～１００の範囲に分布しているが、不良と評価された石炭のＨＧＩを測定したところ、約６０～８０であった。このため、上述したＨＧＩ６０の石炭は不良と評価された石炭のうち最も硬い石炭であるといえ、少なくとも、不良と評価させた石炭の粒径６ｍｍ以上の含有率を３０質量％以下にすれば、コークス工場において標準的な石炭粉砕条件で粉砕された後の当該石炭中の粒径６ｍｍ以上の含有率は５質量％以下になるといえる。なお、石炭のＨＧＩの変動を考慮し、不良と評価された石炭の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率を２０質量％以下にすることがより好ましい。

[0044] 本実施形態に係る石炭または粘結材の調製方法で粒度が調整される石炭は、個別銘柄の原料炭であり、コークス製造工場に入荷する時点、あるいは、石炭産出箇所から出荷される時点で単一のロットとして管理される原料炭の単位と定義する。ここで、単一のロットとして管理されるとは、そのロットからのサンプリングによる代表分析値をもってそのロット全体の性状を表現する場合、単一のロットとして石炭ヤードに積み付ける場合、同一の石炭槽に入れる場合、および、購買契約において単一のロットまたは単一の銘柄名として取引される場合などを含む。したがって、本実施形態において石炭が、コークス製造工場に入荷される前の段階で粒度調整される場合には、当該石炭は単一銘柄の原料炭と定義する。

[0045] コークス工場への入荷とは、コークス工場においてコークス製造に適した粒度に粉砕したり、他の銘柄の石炭と配合するためにコークス工場に付設された石炭ヤードや石炭ホッパーに受け入れることを意味する。例えば、臨海

地区にある製鉄所の場合は、原料岸壁に石炭を受け入れた後、コークス工場に付設された石炭ヤードに搬入される。この場合には原料岸壁での受け入れ時点をコークス工場への入荷とする。

[0046] また、石炭産出場所からの出荷とは、個別銘柄の石炭として山元あるいは、出荷基地から船舶、貨車、トラックまたはコンベアなどの輸送手段で送り出されることを意味する。本実施形態では、山元や出荷基地などから個別銘柄の石炭として出荷されれば、その出荷手段（船舶や貨車等）および出荷段階は問わない（貨車で出荷した後に船舶に積替えて出荷する場合は、どちらも出荷に該当する）。一旦、個別銘柄の石炭として認識されれば、不可避的なものを除いて、その後に組成や粒度が変化することはないからである。

実施例 1

[0047] 以下、不良と評価された石炭の最適な粒度を決定した方法を説明する。まず、加熱撹拌後のセミコークスの形状の違いがコークス強度に与える影響を確認した。１８種類の石炭（Ａ炭～Ｒ炭）と１種類の粘結材（粘結材Ｓ）について、ギーセラー流動度の測定後におけるセミコークスの形状測定を行なった。使用した石炭および粘結材の性状を表３に示す。表３のＲｏはＪＩＳＭ　８８１６の石炭のビトリニット平均最大反射率であり、ＬｏｇＭＦはギーセラープラストメータ法で測定した最高流動度（Ｍａｘｉｍｕｍ　Ｆｌｕｉｄｉｔｙ：ＭＦ）の常用対数値である。また、揮発分（ＶＭ）、灰分（Ａｓｈ）はＪＩＳ　Ｍ　８８１２の工業分析法による測定値である。

[0048]

[表3]

石炭	Ro [%]	log MF [log ddpm]	VM [質量%]	Ash [質量%]	絡みつき度 [-]	高さa [mm]
A炭	0.66	3.55	43.2	5.8	0.17	28
B炭	0.67	1.00	36.6	9.0	0.00	24
C炭	0.72	3.61	40.8	9.0	0.23	30
D炭	0.73	2.29	36.2	8.8	0.01	25
E炭	0.75	2.32	38.1	9.7	0.05	25
F炭	0.80	3.17	37.2	7.9	0.24	31
G炭	0.91	3.59	33.0	7.9	0.34	33
H炭	1.02	2.48	29.1	8.6	0.04	27
I炭	1.00	1.71	25.8	9.6	0.00	23
J炭	1.00	2.20	27.7	10.4	0.00	24
K炭	1.03	2.97	28.2	9.6	0.16	27
L炭	1.14	1.77	24.2	9.2	0.00	24
M炭	1.30	1.34	21.0	9.4	0.00	23
N炭	1.31	1.26	20.4	7.3	0.00	22
O炭	1.38	2.49	20.9	10.9	0.11	27
P炭	1.44	2.03	21.1	9.3	0.00	26
Q炭	1.54	0.00	16.6	8.3	0.00	23
R炭	1.62	0.70	18.8	9.6	0.00	24
粘結材S	-	4.8以上	-	1未満	1.00	35

[0049] 図１に示したギーセラープラストメータ１０を用いて、加熱撹拌後に形成されたセミコークス形状から高さａと高さｂとを測定し、絡みつき度（ａ－ｂ）／ａを算出した。表３に示した「絡みつき度」の列に示した値は絡みつき度（ａ－ｂ）／ａの値であり、「高さa」の列に示した値は、撹拌子に付着したセミコークスの高さaの値である。セミコークスの高さａと高さｂは、加熱撹拌後に容器１２をニコン（株）製ＸＴＨ３２０ＬＣでスキャンして得られたセミコークス１６の画像を用いて測定した。

[0050] 表３に示した石炭のうち、Ｃ炭、Ｆ炭およびG炭において絡みつき度（ａ－ｂ）／ａの値が０．２０以上であった。このため、Ｃ炭、Ｆ炭およびG炭を、コークス強度を低下させる可能性のある不良石炭であると評価した。なお、表３から、高さａの値が３０ｍｍ以上であるか否かでも不良石炭であるか否かを判断できることがわかる。

[0051] 従来のコークス強度を推定するための石炭配合理論において、コークス強度は主に、石炭のビトリニット平均最大反射率（Ｒｏ）と、ＬｏｇＭＦにより決定されると考えられてきた（例えば、非特許文献１参照）。したがって、配合炭全体の加重平均Ｒｏ、加重平均ＬｏｇＭＦが等しくなるように、種々の石炭を配合した配合炭を作製した（Ｒｏ＝０．９９、ＬｏｇＭＦ＝２．２）。Ａ炭ならびにＦ炭については、それぞれ粒径１ｍｍ未満の粒子の含有率が１００質量％、粒径３ｍｍ未満の粒子の含有率が１００質量％または粒径６ｍｍ未満の粒子の含有率が１００質量％となるように粉砕したものを用意し、これ以外の石炭については粒径３ｍｍ未満の粒子の含有率が１００質量％となるように粉砕し、これらの石炭を使用して６水準の配合炭（Ａ１～３およびＦ１～３）を作製した。これらの配合炭の配合率等を表４に示す。なお、表４における配合率の［％］は、すべて質量％である。

[0052]

[表4]

石炭	配合率					
	配合炭A1 [%]	配合炭A2 [%]	配合炭A3 [%]	配合炭F1 [%]	配合炭F2 [%]	配合炭F3 [%]
A炭	20	20	20	0	0	0
B炭	14	14	14	13	13	13
F炭	0	0	0	20	20	20
H炭	19	19	19	20	20	20
J炭	13	13	13	20	20	20
L炭	11	11	11	11	11	11
N炭	11	11	11	7	7	7
O炭	8	8	8	9	9	9
R炭	4	4	4	0	0	0
A炭、F炭最大粒径 [mm]	1	3	6	1	3	6
加重平均 Ro [%]	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99	0.99
加重平均 log MF [log ddpm]	2.2	2.2	2.2	2.2	2.2	2.2
DI 150/50 [-]	80.0	78.8	78.5	79.6	76.9	74.3
CSR [%]	58.0	55.9	55.2	57.6	50.5	47.5
MSI+65 [%]	53.0	51.8	51.5	52.4	49.5	46.7

[0053] ここで、Ａ炭は絡みつき度（ａ－ｂ）／ａの値が０．１７であるので不良ではないと評価される石炭である。一方、Ｆ炭は、上述したように、絡みつき度（ａ－ｂ）／ａの値が０．２４であるので不良と評価される石炭である。

[0054] 配合炭全体の水分含有量が８質量％になるように調整し、この配合炭１６ｋｇの嵩密度が７５０ｋｇ／ｍ^{3}になるように乾留缶に充填し、その上に１０ｋｇの錘を乗せた状態で、炉壁温度１０５０℃の電気炉内で６時間乾留した。その後、電気炉から乾留缶を取り出し窒素冷却し、コークスを得た。コークス強度は、得られたコークスを用いてＪＩＳ　Ｋ　２１５１の回転強度試験法に基づき、１５ｒｐｍ、１５０回転後の粒径１５ｍｍ以上のコークスの

質量割合を測定し、回転前との質量比をドラム強度ＤＩ１５０／１５として算出した。さらに、ＣＳＲ（熱間CO_2反応後強度、ＩＳＯ１８８９４法に準拠して測定）、マイクロ強度（ＭＳＩ＋６５）も測定した。これらの測定結果を表４に併せて示す。

[0055] 図５は、Ａ炭およびＦ炭の最大粒径とドラム強度との関係を示したグラフである。どの粒度においても、不良であると評価されたＦ炭が配合された配合炭から製造されたコークスの方が、不良でないと評価されたＡ炭が配合された配合炭から製造されたコークスに比べて強度が低いことが確認された。Ａ炭とＦ炭のR_oおよびｌｏｇＭＦの値は大きくは違わず、配合炭のR_oとｌｏｇＭＦの加重平均値も同じにした条件で実験を行なったにもかかわらず、コークス強度に差が見られたことから、本実施形態で測定された絡みつき度や高さaの値は、コークス強度に影響を及ぼす因子であり、かつ、従来用いられていたR_oやｌｏｇＭＦでは説明できない因子であることが確認された。

[0056] この試験結果から、絡みつき度が０．１７、高さａが２８ｍｍの石炭Ａを配合炭に加えるとコークス強度の低下を起こしにくいのに対し、絡みつき度が０．２４、高さａが３１ｍｍの石炭Ｆを配合炭に加えるとコークス強度の低下を起こしやすいことがわかる。従って、絡みつき度が０．２０以上、および、高さａが３０ｍｍ以上のうち少なくとも一方を満足する石炭を冶金用コークス製造用の石炭として不良と評価することが妥当であることがわかる。コークス強度の低下をより確実に防止したい場合には、不良と評価する基準を厳しくし、絡みつき度が０．１７超え、および、高さａが２８ｍｍ超えの少なくとも一方を満足する石炭を冶金用コークス製造用の石炭として不良と評価してもよい。また、不良でないと評価されたＡ炭を配合した配合炭と、不良と評価されたＦ炭を配合した配合炭の何れの場合も、石炭粒度を細かくすることで製造されるコークスのコークス強度が向上することが確認された。特に、不良と評価されたＦ炭を配合した配合炭の場合、その石炭の粒度を細かくすることに伴うコークス強度の向上が顕著に表れた。

[0057] 次に、不良であると評価された石炭をどの程度まで細かくすればよいかを

実コークス炉を用いて検討した。一般に、通常の実コークス炉の操業において、石炭は個別の銘柄を所定の配合比率で混合された後に粉砕される。この時、配合炭の粒度は、ある規定の篩目に配合炭を通過させた際の、全質量に対する篩上または篩下の質量割合で管理されている。

[0058] 不良と評価された石炭の粒径６ｍｍ以下の粒子の含有率を種々変更して作製した２種の配合炭（不良石炭の配合率≦２質量％の配合炭、および、８質量％≦不良石炭の配合率＜１２質量％の配合炭の２種）をそれぞれ実コークス炉で乾留し、乾留後のコークス強度としてドラム強度ＤＩ１５０／１５をそれぞれ測定した。使用した配合炭の平均性状（配合炭中における各石炭の特性値の各石炭の配合率に基づく加重平均値）、乾留温度（燃焼室温度）ならびに乾留後の炭中温度（炭化室の高さおよび幅方向中央部のコークスの温度）を下記表５に示す。なお、配合炭は平均性状、乾留温度ならびに乾留後炭中温度の変動幅が小さくなるように調製し、これらの因子がコークス強度に及ぼす影響を排除した。この測定結果から配合炭の粒径６ｍｍ以上の含有率とコークス強度との関係を確認し、不良と評価された石炭をどの程度まで粉砕すればよいか確認した。なお、表５の条件は、試験に用いた条件の一例であり、一般に配合炭の平均性状でＲｏが０．９～１．３％の範囲、ｌｏｇＭＦが２．３～３．０の範囲、水分が３～１２質量％の範囲、乾留後のコークス温度が９００～１２００℃の範囲の条件で良好なコークスが製造できる。

[0059] [表5]

配合炭平均性状	Ro [%]	0.98～1.02
	log MF [log ddpm]	2.6～2.8
	水分 [質量%]	8.5～10.5
乾留条件	乾留温度 [℃]	1090～1105
	乾留後炭中温度 [℃]	990～1115

[0060] 図６は、配合炭中の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率と、コークス強度との関係を示すグラフである。図６に示すように、不良と評価された石炭の配合

率が８質量％以上１２質量％未満と比較的多い場合には、粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率が増大し、全体の石炭粒度が粗くなると、製造されるコークスのコークス強度が大きく低下した。これに対し、不良であると評価された石炭の配合割合が２質量％以下の配合炭の場合には、石炭粒度が粗くなることによるコークス強度の低下は少なかった。このことは、全体として同じ粒度の配合炭であっても、その中に不良であると評価された石炭が含まれていると、当該配合炭から製造されるコークスのコークス強度が低下することを示している。

[0061] 一方、配合炭中の６ｍｍ以上の粒子の含有率が５質量％程度以下であれば、配合炭中に不良であると評価された石炭が８質量％以上１２質量％未満で含まれていても、製造されるコークスの強度は、当該不良と評価された石炭が含まれていない（２質量％以下）場合と同程度になった。この結果から、６ｍｍ以上の粒子の含有率が５質量％以下となるまで粉砕されれば、不良であると評価された石炭を配合することによるコークス強度の低下を抑制できることが推定される。絡みつき度の大きい石炭は、図２に示したような粗大な欠陥が形成されやすいので、粒径の大きな石炭粒子の含有量を減らすことで粗大な欠陥の生成が抑制され、コークス強度の低下を顕著に抑制できたものと考えられる。

[0062] 次に、個別銘柄の粒度調整によるコークス強度向上効果について説明する。表３に示したＧ炭の産地において、通常の採掘および選炭処理を行なって出荷されるＧ炭中の６ｍｍ以上の粒子の含有率は３９質量％であるが、選炭後のＧ炭をインパクトクラッシャーで粉砕して、Ｇ炭中の６ｍｍ以上の粒子の含有率を３０質量％に粒度調整した。この石炭をＧ′炭とする。Ｇ炭およびＧ′炭をコークス工場に入荷後、Ｇ炭またはＧ′炭の配合率を１０質量％とし、Ａ炭、Ｂ炭、Ｈ炭、Ｊ炭、Ｌ炭、Ｎ炭、Ｏ炭、Ｒ炭と配合して加重平均反射率＝１．０１％、加重平均ＩｏｇＭＦ＝２．４の配合炭を調製した。この時、Ｇ炭およびＧ′炭の絡みつき度は、表１で説明した方法と同じ方法で測定した。Ｇ炭およびＧ′炭の絡みつき度は０．３４であった。このため

、Ｇ炭を不良であると評価した。

[0063] Ｇ炭を配合した配合炭ｇ、Ｇ′炭を配合した配合炭ｇ′をそれぞれ、コークス工場に設置されたインパクトクラッシャーで粉砕し、３ｍｍ以下の粒子の含有率が７８質量％となるように粉砕した。粉砕後の配合炭ｇまたはｇ′の６ｍｍ以上の粒子の含有率は５．５質量％であった。この配合炭をコークス炉で稼働率１２５％の条件で乾留し、生成されたコークスを乾式消火した後、ＪＩＳドラム強度ＤＩ１５０／１５指数を測定した。この結果、配合炭ｇから生成されたコークスのドラム強度は８２．９であったのに対し、配合炭ｇ′から得られたコークスのドラム強度は８３．１であった。この結果から、コークス工場入荷前の個別銘柄の石炭を、石炭中の６ｍｍ以上の粒子の含有率を３０質量％に調整することで、不良と評価された石炭を用いたとしても製造されるコークスのコークス強度の低下が抑制され、高強度の冶金用コークスの製造が実現できることが確認された。

[0064] Ｇ炭を用いる代わりにＫ炭（産地からの出荷時の６ｍｍ以上の粒子の含有率３７質量％）を用いて、同様の試験を行なった。この結果、Ｋ炭中の６ｍｍ以上の粒子の含有率を３０質量％に粒度調整した場合としなかった場合においてどちらもコークス強度が８３．０であり、石炭の粒度を調整することに対するコークス強度の向上効果は確認されなかった。Ｋ炭は、セミコークスの絡みつき度が０．１６であって０．２０未満であり、撹拌子に付着したセミコークスの高さが２７ｍｍであり３０ｍｍ未満である。したがって、Ｋ炭は、不良でないと評価される石炭であり、このような石炭の粒度を事前に調整しても製造されるコークスのコークス強度は向上しないことが確認された。この結果から、本実施形態に係る石炭または粘結材の調製方法で、石炭が不良か否かを評価し、不良と評価された石炭を粒度調整することで製造されるコークスのコークス強度の低下を抑制でき、これにより、高強度の冶金用コークスの製造が実現できることが確認された。また、石炭が不良か否かを評価し、不良と評価された石炭を選択して粒度調整することで、粒度調整する石炭の量が少なくなるので、コークス製造に要する負荷の低減や省エネ

ルギー化にも寄与できる。

符号の説明

[0065] １０　ギーセラープラストメータ

１２　容器

１４　撹拌子

１６　セミコークス

２０　不良と評価された石炭粒子

２２　不良と評価されなかった石炭粒子

２４　微細化された石炭粒子

２６　粗大な欠陥

請求の範囲

[請求項1] コークス製造原料として、単独または他の石炭と配合して用いる石炭または粘結材の調製方法であって、

前記石炭または粘結材がコークス工場に入荷される前に、

容器に収容される前記石炭または粘結材を加熱しながら撹拌子を回転させることで、前記容器に形成されるセミコークスの前記容器内における内側壁での高さｂと前記撹拌子に付着する前記セミコークスの高さａとで表される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａが０．２０以上、および、前記高さａが３０ｍｍ以上のうち少なくとも一方を満足する前記石炭または粘結材の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率を３０質量％以下に粒度調整する、石炭または粘結材の調製方法。

[請求項2] コークス製造原料として、単独または他の石炭と配合して用いる石炭または粘結材の調製方法であって、

前記石炭または粘結材がコークス工場に入荷される前に、

容器に収容される前記石炭または粘結材を加熱しながら撹拌子を回転させることで、前記容器に形成されるセミコークスの前記容器内における内側壁での高さｂと前記撹拌子に付着する前記セミコークスの高さａとで表される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａが０．２０以上、および、前記高さａが３０ｍｍ以上のうち少なくとも一方を満足する前記石炭または粘結材の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率が下記（１）式を満足するように粒度調整する、石炭または粘結材の調製方法。

粒径６ｍｍ以上の粒の含有率（質量％）≦３０＋０．５×（ＨＧＩ－６０）・・・（１）

上記（１）式のＨＧＩは、石炭または粘結材のハードグローブ粉砕性指数である。

[請求項3] 前記容器および前記容器に収容される前記石炭または粘結材を加熱しながら前記撹拌子を回転させる条件がギーセラー流動度の測定条件である、請求項１または請求項２に記載の石炭または粘結材の調製方

法。

[請求項4] コークス製造原料として、単独または他の石炭と配合して用いる石炭または粘結材の調製方法であって、

前記石炭または粘結材がコークス工場に入荷される前に、

予め複数の前記石炭または粘結材について、容器に収容される前記石炭または粘結材を加熱しながら撹拌子を回転させることで、前記容器に形成されるセミコークスの前記容器内における内側壁での高さｂと前記撹拌子に付着する前記セミコークスの高さａとで表される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは前記高さａと、複数の前記石炭または粘結材を他の石炭と混合して乾留して得られるコークスの強度との関係に基づいて、前記コークス製造原料として不良と判断される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲を定め、

前記コークス製造原料として用いる前記石炭または粘結材であって、その絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａが前記コークス製造原料として不良と判断される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲である前記石炭または粘結材の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率を３０質量％以下に粒度調整する、石炭または粘結材の調製方法。

[請求項5] コークス製造原料として、単独または他の石炭と配合して用いる石炭または粘結材の調製方法であって、

前記石炭または粘結材がコークス工場に入荷される前に、

予め複数の前記石炭または粘結材について、容器に収容される前記石炭または粘結材を加熱しながら撹拌子を回転させることで、前記容器に形成されるセミコークスの前記容器内における内側壁での高さｂと前記撹拌子に付着する前記セミコークスの高さａとで表される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは前記高さａと、複数の前記石炭または粘結材を他の石炭と混合して乾留して得られるコークスの強度との関係に基づいて、前記コークス製造原料として不良と判断される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲を定め、

前記コークス製造原料として用いる前記石炭または粘結材であって、その絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａが前記コークス製造原料として不良と判断される絡みつき度（ａ－ｂ）／ａまたは高さａの範囲である前記石炭または粘結材の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率が下記（１）式を満足するように粒度調整する、石炭または粘結材の調製方法。

粒径６ｍｍ以上の粒の含有率（質量％）≦３０＋０．５×（ＨＧＩ－６０）・・・（１）

上記（１）式のＨＧＩは、石炭または粘結材のハードグローブ粉砕性指数である。

[請求項6] コークス炉に装入される前に、

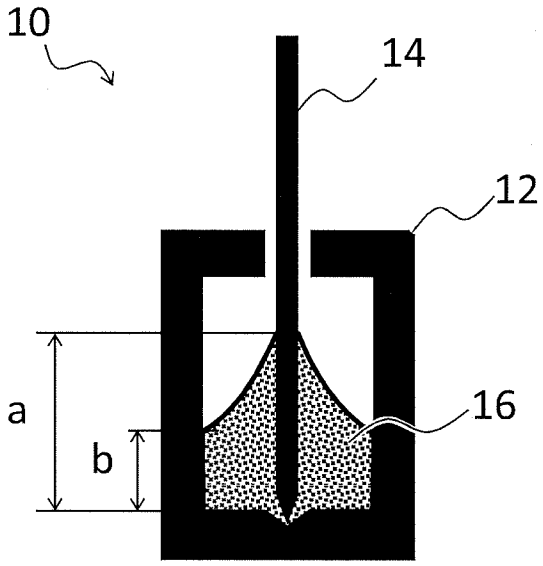
前記石炭または粘結材の粒径６ｍｍ以上の粒子の含有率を５質量％以下に粒度調整する、請求項１から請求項５のいずれか一項に記載の石炭または粘結材の調製方法。

[請求項7] 前記石炭が産出される場所または前記粘結材が製造される場所から出荷される前に前記石炭または粘結材を粒度調整する、請求項１から請求項６のいずれか一項に記載の石炭または粘結材の調製方法。

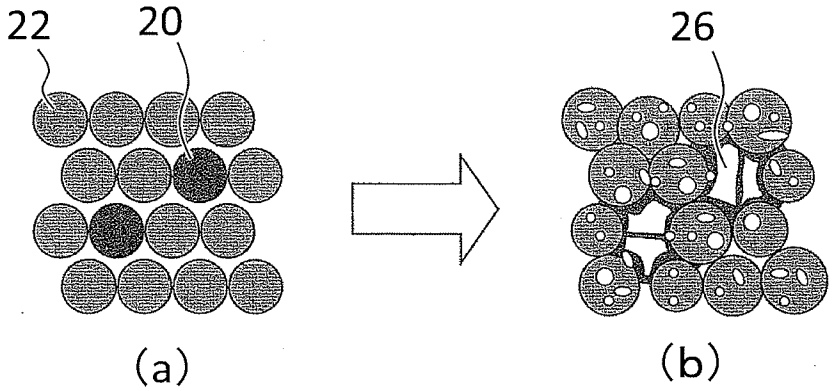
[請求項8] 請求項１から請求項７のいずれか一項に記載の石炭または粘結材の調製方法で調製された石炭を乾留してコークスを製造する、コークスの製造方法。

[請求項9] 請求項１から請求項7のいずれか一項に記載の石炭または粘結材の調製方法で調製された石炭および粘結材を乾留してコークスを製造する、コークスの製造方法。

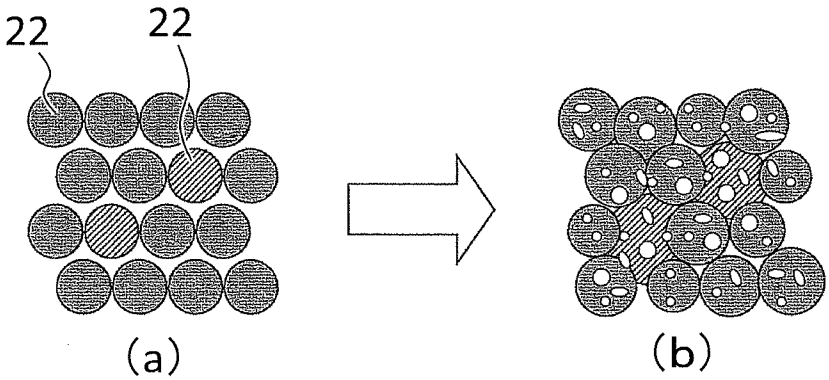
[図1]



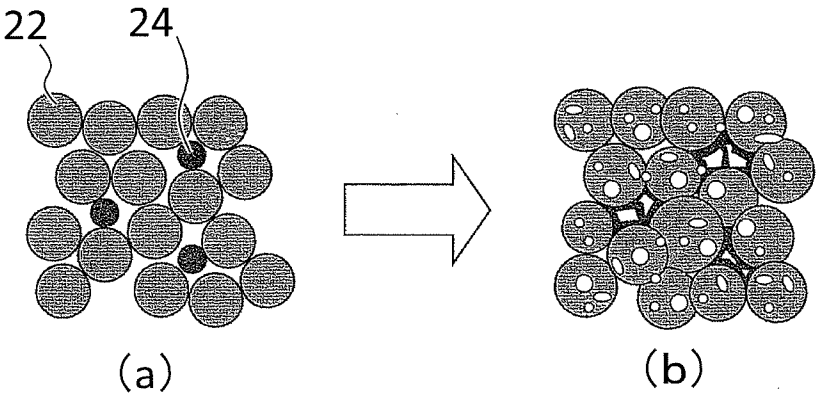
[図2]



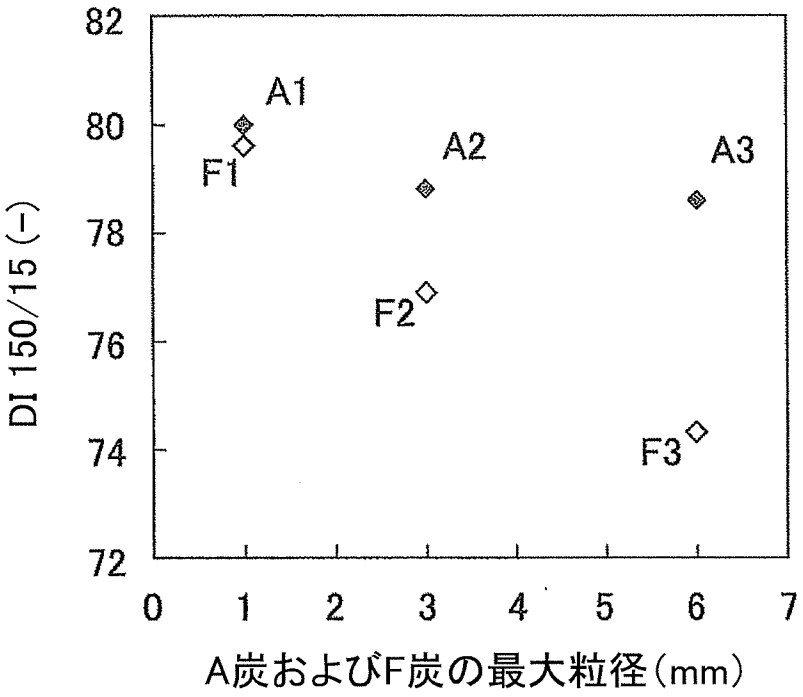
[図3]



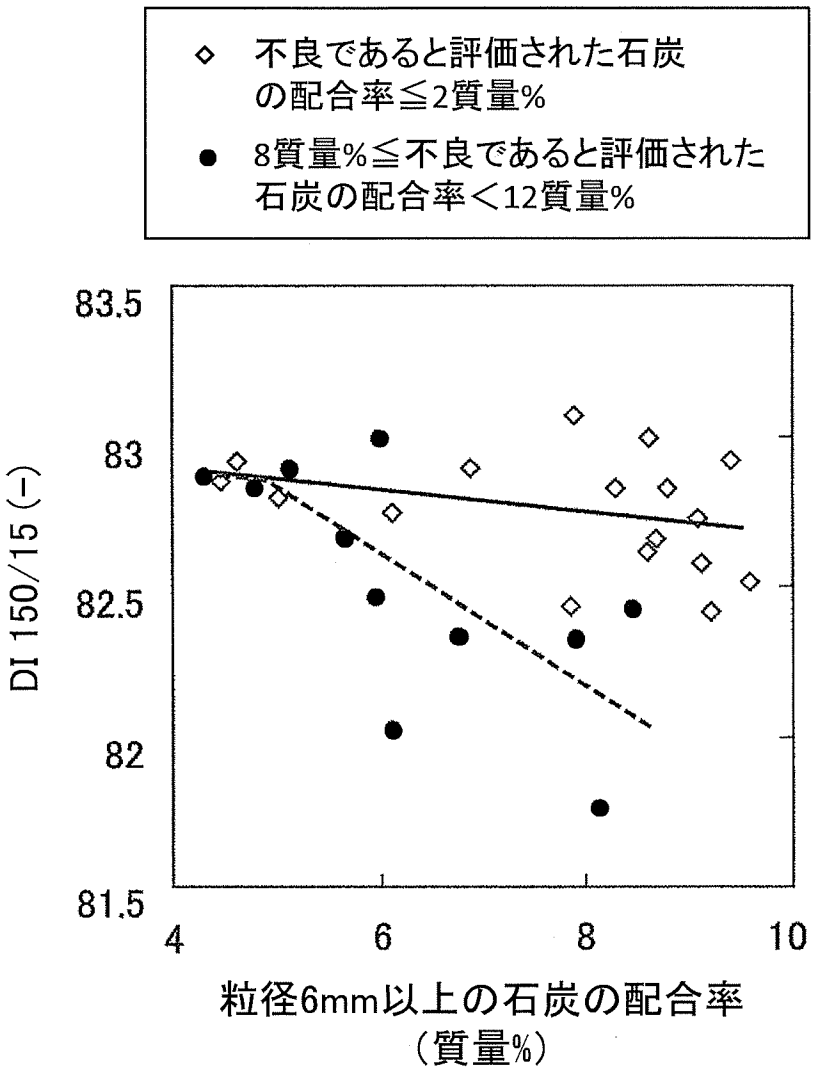
[図4]


22
24
(a)
(b)

[図5]


82
80
78
76
74
72
DI 150/15 (−)
A1
A2
A3
F1
F2
F3
0
1
2
3
4
5
6
7
A炭およびF炭の最大粒径(mm)

[図6]


◇ 不良であると評価された石炭の配合率≦2質量%
● 8質量%≦不良であると評価された石炭の配合率＜12質量%
83.5
83
82.5
82
81.5
DI 150/15 (−)
4
6
8
10
粒径6mm以上の石炭の配合率
（質量%）

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2021/029201

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C10B 57/04(2006.01)i; ***G01N 33/22***(2006.01)i; ***G01N 11/14***(2006.01)i
FI: C10B57/04; G01N11/14 D; G01N33/22 A

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

C10B57/04; G01N33/22; G01N11/14

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Published examined utility model applications of Japan 1922-1996
Published unexamined utility model applications of Japan 1971-2021
Registered utility model specifications of Japan 1996-2021
Published registered utility model applications of Japan 1994-2021

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	WO 2013/128866 A1 (JFE STEEL CORP.) 06 September 2013 (2013-09-06) claims	1-3, 6-9
A		4-5
X	JP 2012-72388 A (JFE STEEL CORP.) 12 April 2012 (2012-04-12) paragraphs [0064]-[0077]	1-3, 6, 8-9
X	JP 2001-323281 A (NIPPON STEEL CORP.) 22 November 2001 (2001-11-22) claims	1-3, 6, 8-9
P, A	WO 2020/189294 A1 (JFE STEEL CORP.) 24 September 2020 (2020-09-24)	1-9

☐ Further documents are listed in the continuation of Box C. ☑ See patent family annex.

* Special categories of cited documents:
"A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
"E" earlier application or patent but published on or after the international filing date
"L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
"O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
"P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed
"T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
"X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
"Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art
"&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search	Date of mailing of the international search report
06 October 2021	**19 October 2021**
Name and mailing address of the ISA/JP **Japan Patent Office (ISA/JP)** **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Authorized officer Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2021/029201

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
WO 2013/128866 A1	06 September 2013	US 2015/0007493 A1 claims	
		EP 2821774 A1	
		AU 2013227894 A1	
		CN 104145181 A	
JP 2012-72388 A	12 April 2012	WO 2012/029987 A1 paragraphs [0064]-[0077]	
		EP 2612894 A1	
		CN 103180414 A	
		KR 10-2013-0081702 A	
JP 2001-323281 A	22 November 2001	(Family: none)	
WO 2020/189294 A1	24 September 2020	(Family: none)	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2021/029201

A.　発明の属する分野の分類（国際特許分類（ＩＰＣ））

C10B 57/04(2006.01)i; G01N 33/22(2006.01)i; G01N 11/14(2006.01)i
FI: C10B57/04; G01N11/14 D; G01N33/22 A

B.　調査を行った分野

調査を行った最小限資料（国際特許分類（ＩＰＣ））

C10B57/04; G01N33/22; G01N11/14

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

日本国実用新案公報	１９２２－１９９６年
日本国公開実用新案公報	１９７１－２０２１年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２１年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２１年

国際調査で使用した電子データベース（データベースの名称、調査に使用した用語）

C.　関連すると認められる文献

引用文献のカテゴリー*	引用文献名　及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する請求項の番号
X	WO 2013/128866 A1（ＪＦＥスチール株式会社）06.09.2013（2013-09-06） 請求の範囲	1-3,6-9
A		4-5
X	JP 2012-72388 A（ＪＦＥスチール株式会社）12.04.2012（2012-04-12） [0064]-[0077]	1-3,6,8-9
X	JP 2001-323281 A（新日本製鐵株式会社）22.11.2001（2001-11-22） 特許請求の範囲	1-3,6,8-9
P, A	WO 2020/189294 A1（ＪＦＥスチール株式会社）24.09.2020（2020-09-24）	1-9

☐ Ｃ欄の続きにも文献が列挙されている。

☑ パテントファミリーに関する別紙を参照。

＊　引用文献のカテゴリー
“A” 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの
“E” 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの
“L” 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献（理由を付す）
“O” 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献
“P” 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願の日の後に公表された文献
“T” 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と抵触するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの
“X” 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの
“Y” 特に関連のある文献であって、当該文献と他の１以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの
“&” 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日	国際調査報告の発送日
06.10.2021	19.10.2021

名称及びあて先
日本国特許庁(ISA/JP)
〒100-8915
日本国
東京都千代田区霞が関三丁目４番３号

権限のある職員（特許庁審査官）
森　健一　4V 9263
電話番号 03-3581-1101 内線 3483

国際調査報告
パテントファミリーに関する情報

国際出願番号
PCT/JP2021/029201

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
WO 2013/128866 A1	06.09.2013	US 2015/0007493 A1 Claims EP 2821774 A1 AU 2013227894 A1 CN 104145181 A	
JP 2012-72388 A	12.04.2012	WO 2012/029987 A1 [0064]-[0077] EP 2612894 A1 CN 103180414 A KR 10-2013-0081702 A	
JP 2001-323281 A	22.11.2001	（ファミリーなし）	
WO 2020/189294 A1	24.09.2020	（ファミリーなし）	