(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
2025年3月20日(20.03.2025)

WIPO | PCT

(10) 国際公開番号
WO 2025/057471 A1

(51) 国際特許分類:
C10B 57/04 (2006.01) *C10B 53/02* (2006.01)

(21) 国際出願番号： PCT/JP2024/016347

(22) 国際出願日： 2024年4月25日(25.04.2024)

(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 2023-148706 2023年9月13日(13.09.2023) 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).

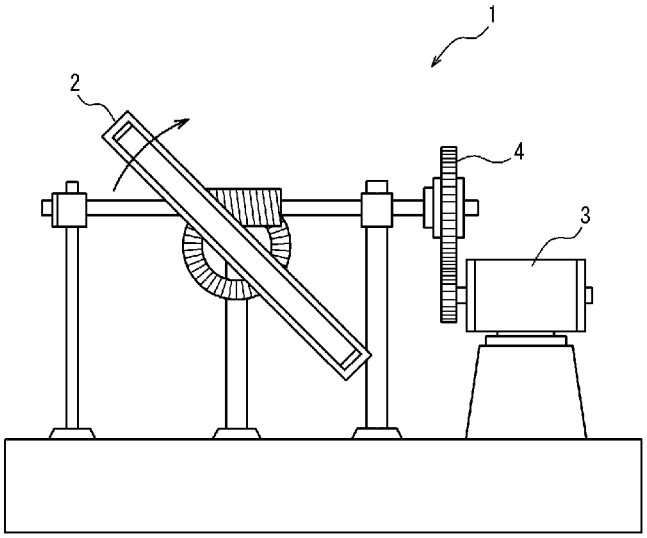
(72) 発明者：河合 佑哉(**KAWAI Yuya**)；〒1000011 東京都千代田区内幸町二丁目２番３号 ＪＦＥスチール株式会社 知的財産部内 Tokyo (JP). ▲高▼嶋 孝徳(**TAKASHIMA Takanori**)；〒1000011 東京都千代田区内幸町二丁目２番３号 ＪＦＥスチール株式会社 知的財産部内 Tokyo (JP). 土肥 勇介(**DOHI Yusuke**)；〒1000011 東京都千代田区内幸町二丁目２番３号 ＪＦＥスチール株式会社 知的財産部内 Tokyo (JP). 山本 哲也(**YAMAMOTO Tetsuya**)；〒1000011 東京都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). 松井 貴(**MATSUI Takashi**)；〒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：杉村 憲司 (**SUGIMURA Kenji**)；〒1000013 東京都千代田区霞が関三丁目２番１号 霞が関コモンゲート西館３６階 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, BA, BB, BG, BH, BN, BR, BW, BY, BZ, CA, CH, CL, CN,

(54) **Title:** COKE PRODUCTION METHOD

(54) 発明の名称： コークスの製造方法



(57) **Abstract:** Provided is a means for: presenting a novel indicator for a biomass-derived raw material for replacing a portion of coal that is used for producing coke used in a blast furnace; and producing coke having high strength even when a biomass-derived raw material is mixed with coal. Biomass in which the microstrength index ($MSI_{0.21}$) of test coke obtained by dry-distilling the biomass alone is at least 45 is mixed with mixed coal to produce coke.

WO 2025/057471 A1

［続葉有］

CO, CR, CU, CV, CZ, DE, DJ, DK, DM, DO, DZ, EC, EE, EG, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, GT, HN, HR, HU, ID, IL, IN, IQ, IR, IS, IT, JM, JO, JP, KE, KG, KH, KN, KP, KR, KW, KZ, LA, LC, LK, LR, LS, LU, LY, MA, MD, MG, MK, MN, MU, 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, CV, GH, GM, KE, LR, LS, MW, MZ, NA, RW, SC, 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, ME, 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：

— 国際調査報告（条約第21条(3)）

(57) 要約：高炉に用いられるコークスの製造に使用される石炭の一部を置換するバイオマス由来の原料についての新たな指標を提示し、石炭にバイオマス由来の原料を配合した場合であっても強度の高いコークスを製造する手段を提供する。バイオマスを単独で乾留して得られる試験用コークスのマイクロ強度指数（$MSI_{0.21}$）が４５以上であるバイオマスを配合炭と配合してコークスを製造する。

明　細　書

発明の名称 ： コークスの製造方法

技術分野

[0001]　本発明は、原料の一部にバイオマスを使用するコークスの製造方法に関する。

背景技術

[0002]　コークスは、石炭を乾留して得られる炭素を主体とした塊状の生成物である。高炉で使用される高炉用のコークスは、熱源及び還元材として機能するとともに、高炉内の通気性や通液性を確保する支持材としての機能も有する。そのため、高炉の操業を安定して行うために、塊状のコークスは機械的な強度が求められる。

[0003]　高炉用のコークスの製造には、複数の種類の石炭を所定の割合で配合した配合炭が使用される。配合炭をそのままで、あるいは成型した後、１０００℃以上の温度で乾留することによって、石炭同士が結合した塊状のコークスが得られる。配合炭の一部に粘結炭と呼ばれる軟化溶融しやすい性質を有する石炭を使用することによって、強度の高いコークスを得ることができる。

[0004]　コークスの強度を管理するための指標として、従来から石炭に関する２種類の測定値が使われている。そのひとつは、日本産業規格 Ｍ ８８１６：１９９２「石炭の微細組織成分及び反射率測定方法」に規定されるビトリニットの平均最大反射率（以下、「Ｒｏ」という。）である。石炭のＲｏの値が高いほど炭化度が高く、コークスの基質の強度が高くなる傾向がある。もうひとつは、日本産業規格 Ｍ ８８０１：２００４「石炭類－試験方法」に規定されるギーセラープラストメーターの最高流動度（以下、「ＭＦ」という。）である。石炭のＭＦの値が高いほど、加熱によって軟化溶融し、流動しやすい傾向がある。

[0005]　近年、温室効果ガスのひとつである二酸化炭素の大気圏への排出量を削減することによって、地球温暖化への影響を緩和しようとする社会的な取り組

みが加速している。このため、コークスの原料である石炭の一部をバイオマス等のカーボンニュートラル原料に置き換える検討が進められている。例えば、特許文献１には、３００超～４００℃で加熱処理された木質系バイオマス原料を石炭と混合してコークス炉で乾留するコークスの製造方法が記載されている。また、特許文献２には、バイオマスを少なくとも１０００℃以上に加熱して熱分解させ、得られた直径１ｍｍ以下の固形分のバイオマスチャーを配合炭に添加する高炉用高反応性コークスの製造方法が記載されている。

先行技術文献

特許文献

[0006] 特許文献1：特開２００５－２７２５６９号公報

特許文献2：特開２０１４－７７０８６号公報

発明の概要

発明が解決しようとする課題

[0007] コークスの原料である石炭の一部をバイオマスに由来する原料に置き換えようとすると、置換する割合がわずかであっても、得られるコークスの強度が著しく低下することがある。

[0008] 従来技術においてコークスの強度を管理する指標として有効なＲｏ及びＭＦは、いずれも石炭について測定することを前提とした指標である。このため、バイオマスに由来する原料のみからなる試料についてＲｏ及びＭＦを測定しようとしても、石炭とバイオマスでは性状が大きく異なるため、測定を実行することが不可能であるか、仮に測定することができたとしても、その測定値をコークスの強度を管理する指標として使用することができない。そこで、コークスの強度を管理するための新たな指標が求められている。

[0009] 本発明は上記の課題に鑑みてなされたものであり、その目的は、高炉に用いられるコークスの製造に使用される石炭の一部を置換するバイオマス由来の原料についての新たな指標を提示し、石炭にバイオマス由来の原料を配合

した場合であっても強度の高いコークスを製造する手段を提供することである。

課題を解決するための手段

[0010] 本特許出願に係る発明者らは、原料の一部にバイオマスを使用したコークスの強度が低下する原因を明らかにするために、強度が低下した塊状のコークスの内部に存在する欠陥について詳しい観察を行った。観察の結果、バイオマスに由来する原料が含まれるコークスでは、バイオマスに由来する部分の強度が低く、周囲からの応力が加わるとその部分が破壊されやすいことを見出した。すなわち、バイオマスに由来する部分が破壊の起点となることで、コークス全体の強度が低下していると推定された。

[0011] また、発明者らは、さまざまな種類のバイオマス由来の原料について、微視的な強度の指標のひとつであるマイクロ強度指数を調査した結果、原料となるバイオマスの種類によってマイクロ強度指数が大きく異なることを発見した。そして、バイオマスのマイクロ強度指数を新たな指標として、配合炭と配合するのに好適なバイオマスを選択的に使用することでコークスの強度の低下を抑制することが可能であることを見出し、本発明を完成させた。

[0012] 上記の目的を達成するために発明者らが完成させた本発明の要旨構成は、以下のとおりである。

[0013] ［１］コークス製造用の配合炭にバイオマスを所定の割合で配合して混合物とし、前記混合物を乾留してコークスを製造するに際し、

前記バイオマスを単独で乾留して得られた試験用コークスのマイクロ強度指数が４５以上である

ことを特徴とする、コークスの製造方法。

［２］前記マイクロ強度指数が、６０以上である、

上記［１］に記載のコークスの製造方法。

［３］前記試験用コークスの乾留を行う温度が、１０００℃である、

上記［１］又は［２］に記載のコークスの製造方法。

［４］前記バイオマスの無水ベースにおける揮発分が、６．０質量％以上

である、

上記［１］から［３］までのいずれかに記載のコークスの製造方法。

［５］前記バイオマスが、パーム椰子殻及び木質バイオマスの少なくとも一方を含む、

上記［１］から［４］までのいずれかに記載のコークスの製造方法。

［６］前記バイオマスが、未加熱状態のバイオマスを熱処理して得られた炭化バイオマスでなる、

上記［１］から［５］までのいずれかに記載のコークスの製造方法。

［７］前記混合物に占める前記バイオマスの割合が、１．０質量％以上、１０質量％以下である、

上記［１］から［６］までのいずれかに記載のコークスの製造方法。

［８］前記バイオマスにおいて粒度が３．０ｍｍ以下であるバイオマスの割合が７０質量％以上であり、かつ、前記配合炭において粒度が３．０ｍｍ以下である配合炭の割合が７０質量％以上である、

上記［１］から［７］までのいずれかに記載のコークスの製造方法。

発明の効果

[0014] 本発明によれば、高炉に用いられるコークスの製造に使用される石炭の一部を置換するのに好適なバイオマス由来の原料の性状が明らかになる。これにより、石炭にバイオマス由来の原料を配合した場合であっても強度の高いコークスを製造することができる。また、化石燃料由来の二酸化炭素の排出量を削減することができる。

図面の簡単な説明

[0015] [図1]機械的衝撃を加えるための試験装置の例を示す模式図である。

発明を実施するための形態

[0016] 以下、本発明を実施するための形態について詳細に説明する。

[0017] 一実施形態において、本発明に係るコークスの製造方法は、コークス製造用の配合炭にバイオマスを所定の割合で配合して混合物とし、前記混合物を乾留してコークスを製造するに際し、前記バイオマスを単独で乾留して得ら

れた試験用コークスのマイクロ強度指数が４５以上であることを特徴とする。

[0018] ［バイオマス］

本実施形態において「バイオマス」とは、現在の生態系に存在する動植物に由来する有機性の産業資源をいう。バイオマスを構成する有機物は、その形態を変えながら生態系の内部を循環している。バイオマスを燃焼したときに発生する二酸化炭素は、もともと動植物が成長するとき生体に取り込まれた炭素を起源とするため、大気中の二酸化炭素総量の増減には影響を与えず、いわゆるカーボンニュートラルの状態にあるとみなされる。これに対し、化石燃料を燃焼したときに発生する二酸化炭素は、現在の生態系から隔絶された地下資源を起源とするため、カーボンニュートラルの状態にはないと考えられている。よって、石炭や石油などの化石燃料は、本実施形態におけるバイオマスに含まれない。

[0019] 本実施形態において使用されるバイオマスは、農業、林業、畜産業及び水産業などの分野で生産される生産物並びに生産の過程で発生する廃棄物のうち、産業資源として利用可能なものであって、後述する所定の条件を満たしていれば、どのような種類のバイオマスであってもよい。好ましい実施形態において、バイオマスは、パーム椰子殻（ｐａｌｍ　ｋｅｒｎａｌ　ｓｈｅｌｌ）及び木質バイオマスの少なくとも一方を含む。パーム椰子殻は、パーム椰子の実から椰子油を採取した後の副産物として生成するバイオマスである。コストが安く、適度な強度を有するため、本実施形態に用いるバイオマスとして好適である。木質バイオマスは、スギ、マツ、ヒノキ等の針葉樹や、ケヤキ、シラカバ、ユーカリ等の広葉樹の木材でなるバイオマス等が挙げられる。木材の部位は限定されない。木質バイオマスには、建築や製紙に利用された木材の廃材や、林業で生じる間伐材等の未利用部位も含まれる。製材で生じるおがくずは代表的な木質バイオマスのひとつである。

[0020] バイオマスの粒度は、３．０ｍｍ以下の割合が７０質量％以上１００質量％以下であることが好ましい。３．０ｍｍ以下の割合が７０質量％以上１０

０質量％以下であれば配合炭と均質に混合することができる。より好ましい粒度の範囲は３．０ｍｍ以下の割合が１００質量％である。粒度の下限は設けない。すなわち、粒度は０（ゼロ）よりも大きければよい。

[0021] バイオマスの粒度が３．０ｍｍ以下の割合が７０質量％未満である場合には、バイオマスを粉砕することによって、粒度が３．０ｍｍの割合が７０質量％以上１００質量％以下になるように調整することができる。粉砕による粒度の調整は、バイオマスに対して行ってもよく、後述する炭化したバイオマスに対して行ってもよく、これらの両方に対して行ってもよい。バイオマス又は炭化バイオマスの粉砕には、公知の粉砕機を用いることができる。

[0022] 本明細書において「粒度」とは、日本産業規格 Ｚ ８８０１－１：２０１９「試験用ふるい－第１部：金属製網ふるい」に規定された試験用ふるいの公称目開きに相当する。すなわち、Ｘｍｍよりも大きい粒度を有する粉粒体とは、公称目開きＸｍｍのふるいでふるい分けした際にふるい上に残る粉粒体である。Ｙｍｍ以下の粒度を有する粉粒体とは、公称目開きＹｍｍのふるいでふるい分けした際にふるい下に落下する粉粒体である。

[0023] 大量のバイオマスを工業規模で生産する場合には、ふるいによる分級又は粉砕による粒度の調整あるいはこれらの両方の工程を省略することによって、歩留まりを高め、生産コストを低減することができる。この場合において、質量を基準とするバイオマスの粒度分布における粒度が３．０ｍｍ以下であるバイオマスの割合が７０質量％以上であることが好ましい。粒度の調整を行わない場合において、粒度が３．０ｍｍ以下であるバイオマスの割合は８０質量％以上であることがより好ましく、９０質量％以上であることがさらに好ましい。粒度が３．０ｍｍ以下であるバイオマスの割合の上限は１００質量％である。質量を基準とするバイオマスの粒度分布は、例えば、生産された大量のバイオマスから採取された試料について、目の開きの異なる複数のふるいを用いてふるい分けされた粉粒体の重量を測定する方法や、試料にレーザを照射する方法などの公知の方法によって求めることができる。

[0024] 粉砕する前にバイオマスを熱処理して炭化しておくことは必須ではないが

、好ましい実施形態において、未加熱状態のバイオマスを熱処理して炭化バイオマスを得ることによって、バイオマスの粉砕性を向上することができる。

[0025] バイオマスの炭化を目的とする熱処理においては、バイオマスを空気が遮断された雰囲気で熱処理する。バイオマスの熱処理を行う際の雰囲気を空気が遮断された雰囲気とすることによって、バイオマスの燃焼の進行が妨げられ、バイオマスの炭化を行うことができる。空気が遮断された雰囲気を実現するには、例えば、空気の流入が阻害され、不活性ガスが流通される空間を形成する容器を用意し、その容器の内部にバイオマスを装入して熱処理を行えばよい。

[0026] バイオマスの熱処理を行う温度は、粉砕性や揮発分が好適な範囲になるようにバイオマスの種類によって適宜調整すればよい。例えば、バイオマスとしてパーム椰子殻を使用する場合は、熱処理を行わないパーム椰子殻をそのまま使用することが可能であり、４００℃以上で熱処理すると炭化が進行して粉砕性が向上するためより好ましい。一方、熱処理を行う温度が、７００℃以下であれば後述する揮発分が好適な範囲となるので好ましく、６００℃以下であれば、さらに好ましい。バイオマスを熱処理する温度は、炭化の進行の観点からは高い方がより好ましく、揮発分の観点からはより低い方がより好ましい。なお、本明細書において「熱処理温度」とは、熱処理を行うときのバイオマスの最高到達温度をいう。

[0027] 熱処理を行う時間は、バイオマスの種類や、一度に熱処理を行うバイオマスの質量によって異なるが、１分以上、６０分以下であることが好ましい。より好ましい熱処理時間は１０分以上である。より好ましい熱処理時間は３０分以下である。なお、本明細書において「熱処理時間」とは、熱処理を行うときのバイオマスの温度が熱処理を行う温度に到達した時点から熱処理温度の保持を停止するまでの時間をいう。

[0028] ［配合］

本実施形態に係るコークスの製造方法において、コークス製造用の配合炭

にバイオマスを所定の割合で配合して得られる混合物を乾留してコークスを製造する。配合炭に配合されるバイオマスは、未加熱状態のバイオマスであってもよく、熱処理して得られた炭化バイオマスであってもよい。配合炭は、コークスの製造に適した配合炭であれば、どのような配合炭であってもよい。コークスの製造に適した配合炭とは、その配合炭のみを原料として乾留を行うことによって、強度の高いコークスを製造することができるような配合炭をいう。配合炭がコークスの製造に適した配合炭であるか否かは、配合炭のＲｏ及びＭＦの値から予測することができる。粘結炭が配合された配合炭は、コークスの製造に適した配合炭の例である。

[0029] コークス製造用の配合炭の粒度は３．０ｍｍ以下である割合が７０質量％以上１００質量％以下であることが好ましい。配合炭の粒度が粗い場合、性状が異なる石炭等の成分の混合物を使用するコークス製造において、性状分布が生じてしまう。そのため、配合炭の粒度は３．０ｍｍ以下である配合炭の割合が７０質量％以上となるようにすることが好ましい。さらに好ましくは、３．０ｍｍ以下である配合炭の割合は７５質量％以上である。一方、粒度が細かくなりすぎると、コークス炉に装入される配合炭の嵩密度が低下し、コークス強度の低下要因となる場合があるので、３．０ｍｍ以下の割合は９０質量％以下とすることが好ましく、８５質量％以下とすることがさらに好ましい。

[0030] コークス製造用の配合炭にバイオマスを所定の割合で配合することで得られる混合物において、混合物に占めるバイオマスの割合は１．０質量％以上であれば二酸化炭素排出量の削減に有意な効果が得られ、１０質量％以下であれば得られたコークスの強度が著しく低下することがないので、１．０質量％以上、１０質量％以下であることが好ましい。より好ましいバイオマスの割合は２．０質量％以上、７．０質量％以下である。

[0031] 本発明に係るコークスの製造方法において、配合炭とバイオマスを所定の割合で配合して得られる混合物は、格別に混合に特化した操作を行わなくても混合が十分に促進される場合がある。そのような場合の具体例を挙げれば

、ベルトコンベアで搬送される混合物が次のベルトコンベアに落下する場合、配合炭とバイオマスを配合した後に粉砕設備を用いて粉砕する場合、配合炭とバイオマスを配合した後に石炭調湿設備を用いて攪拌しながら水分量を調整する場合、などがある。これらのような場合、混合のための設備及びコストを削減することができるので、好ましい。

[0032] 混合物において、配合炭とバイオマスは均一に混ざり合っていることが好ましい。これにより、加熱時に軟化溶融しないバイオマスが一か所に偏在して、乾留工程の後も固まらずに残ってしまうという不具合を未然に防止することができる。混合が不十分な場合には、配合炭とバイオマスを混合するために、混炭機を使用することができる。混炭機としては、例えば、対流混合が主体のミキサーや、せん断混合が主体のミキサー、対流混合とせん断混合が複合的に起こるミキサーなどを使用することが出来る。ここで、対流混合とは、試料の対流と拡散を主体とする混合であり、せん断混合とは、試料のせん断、衝突、摩砕などを伴う混合である。

[0033] ［乾留］

本実施形態に係るコークスの製造方法では、コークス製造用の配合炭にバイオマスを所定の割合で配合することで得られる混合物を乾留してコークスを製造する。混合物は、コークス炉に装入されて空気が遮断された雰囲気で加熱されることにより乾留される。

[0034] 乾留温度は、９００℃以上であれば十分な強度のコークスが得られる。９５０℃以上であればより好ましい。一方で、乾留温度が１２５０℃を超えると加熱に莫大なエネルギーが必要になる上に、コークスの熱分解が生じて強度が低下する場合がある。そのため、乾留温度は１２５０℃以下であることが好ましく、１１００℃以下であることがより好ましい。なお、本明細書において「乾留温度」とは、乾留中の混合物の最高到達温度をいう。

[0035] ［マイクロ強度指数］

本実施形態に係るコークスの製造方法では、バイオマスを単独で乾留して得られた試験用コークスを粉砕し、得られた粉粒体を目の開きが１．１８ｍ

ｍのふるいを通過し目の開きが０．６０ｍｍのふるいを通過しない粉粒体に分級し、分級された粉粒体に衝撃を加えたときの質量粒度分布において、目の開きが０．２１ｍｍのふるいを通過しない粉粒体の質量百分率であるマイクロ強度指数が４５以上であることを特徴とする。このようにして求められたマイクロ強度指数は、$MSI_{0.21}$という記号で表される場合がある。

[0036] 本実施形態においては、コークスを製造するための混合物とは別に、マイクロ強度指数を評価するための少量の試験用コークスを用意する。試験用コークスは、評価しようとするバイオマスを単独で乾留することによって得ることができる。試験用コークスを用意する際に使用するバイオマスには、原料の種類及び熱処理の条件が、コークスの製造に供するバイオマスと同一であるものを使用する。好ましくは、コークスの製造に供するバイオマスから採取した少量のサンプルを単独で乾留することによって、試験用コークスを得る。試験用コークスは、混合物の乾留によって製造されるコークスのうちバイオマスに由来する部分に相当する試料である。試験用コークスの作製にあたり、乾留条件の中でも特に最高到達温度がコークスの強度への影響が大きい。そのため、バイオマスを乾留して試験用コークスを製造するときの最高到達温度は、コークス製造時の乾留温度と同程度とすることが好ましく、９００℃以上１２５０℃以下とすることが好ましい。

[0037] 好ましい実施形態において、試験用コークスの乾留を行う温度が、１０００℃である。１０００℃で乾留を行えば、試験用コークスの炭化が十分に進行するので、マイクロ強度指数を評価する試料として好適である。温度以外の典型的な乾留の条件を例示すると、バイオマスをるつぼに充填した後、るつぼを加熱炉に装填し、窒素雰囲気中で１分間あたりの温度上昇幅を３℃に制御しながら試料の温度が１０００℃に到達するまで加熱する。次に、試料の温度を１０００℃で６０分間維持して炭化を進行させる。その後、窒素雰囲気のまま炉内で自然冷却させる。

[0038] 本明細書においてマイクロ強度指数（$MSI_{0.21}$）は以下の測定手順で測定される値である。乾留後の試験用コークスを粉砕し、目の開きが１．１８

ｍｍのふるいを通過し目の開きが０．６０ｍｍのふるいを通過しない粉粒体に分級する。分級して得られた試験用コークス試料２．０ｇと直径１０．５ｍｍの鋼球１２個を直径２６ｍｍ×長さ３０５ｍｍの円筒容器内に入れて密閉する。円筒容器を２５ｒｐｍで８００回転させることによって試験用コークス試料に衝撃を加える。試験後の試料を円筒容器から取り出し、目の開きが０．２１ｍｍのふるいを通過しない粉粒体の重量を求め、その重量を試験に供した試験用コークス試料の重量で割った質量百分率を、本実施形態におけるマイクロ強度指数（$MSI_{0.21}$）とする。

[0039] 図１は、試験用コークスに衝撃を加えるための試験装置の例を示す模式図である。この試験装置１は、円筒形の鋼製の容器２と、容器２を回転させるためのモータ３及びギア４を備えている。円筒形の容器２は、円筒の長さ方向の中央の位置に回転軸を備えている。回転軸は容器２の中心線に垂直になるように配置されており、回転軸の方向は水平方向に固定されている。モータ３を回転させることによって、容器２は、回転軸のまわりを飛行機のプロペラのように回転する。容器の回転に伴う鋼球の落下によって、容器の内部で試験用コークスに衝撃が加えられる。

[0040] 試験用コークスの粉砕は、粉砕機による粉砕、その他の公知の手段によって行うことができる。粉砕及び分級によって粒度を整える目的は、マイクロ強度指数の評価において、粉砕前の試験用コークスに内在する亀裂や大きさが数ｍｍ程度の大きな気孔等のマクロな欠陥による測定値への影響を排除することである。試験用コークスを粉砕する過程において、亀裂や大きな気孔等が破壊の起点となって粉砕が進むので、粉砕後の粉粒体を用いてマイクロ強度指数を測定することによってマクロな欠陥の影響を排除することができる。したがって、粉砕後の試験用コークスを用いて測定されるマイクロ強度指数は、マクロな欠陥の影響を受けない試験用コークスの基質部分の強度、すなわち基質強度のよい指標となる。これにより、マイクロ強度指数が高いほど、試験用コークスの基質強度が高いことを意味する。

[0041] 本実施形態では、ふるいを用いて粉粒体の分級を行う。ふるいの「目の開

き」とは、金網の網目における隙間のサイズをいう。粉粒体の粒度（最大粒径）がふるいの目の開きよりも小さければ粉粒体はふるいを通過して落下し、粉粒体の粒度がふるいの目の開きよりも大きければ粉粒体はふるいを通過しないでふるいの上に残る。目の開きが異なる２以上のふるいを用いることによって、粉粒体の粒度を所定の範囲に調整することができる。

[0042] ふるいの目の開きは、「メッシュ」と呼ばれる単位で表される場合がある。メッシュとは、金網の長さ１インチあたりの線又は隙間の数である。メッシュ数が大きいほどふるいの目は細かくなる。メッシュ数が同一のふるいであっても、金網を構成する線が太い場合は、細い場合に比べて目の開きが小さくなる。例えば、市販のふるいで目の開きが１．２０ｍｍに近いもののメッシュ数は１４メッシュであるが、同じ１４メッシュのふるいであっても線の太さによって目の開きは若干変化する。本実施形態においては、目の開きに幅を設けているので、市販されているふるいの中から目の開きがこの範囲に入るものを選択して使用することができる。

[0043] 本実施形態においては、マイクロ強度指数が４５以上である。マイクロ強度指数の下限値を４５に定めた理由は、バイオマスを含まない配合炭を乾留して得られたコークスについて同じ条件で測定されたマイクロ強度指数の値が概ね４５だからである。配合炭についてのマイクロ強度指数と同等か又はそれ以上のマイクロ強度指数を有するバイオマスを混合した混合物を用いてコークスを製造すれば、バイオマスに由来する部分が起点となる破壊の進行を防止することができる。これにより、コークス全体の強度が向上する。マイクロ強度指数は、好ましくは６０以上である。

[0044] 本実施形態に規定するマイクロ強度指数を満足するバイオマスを使用すれば強度の高いコークスを製造することができる理由について詳しいことは分からないが、おそらく以下のような理由によると考えられる。上述のとおり、バイオマスに由来する原料が含まれるコークスでは、バイオマスに由来する部分の基質強度が低いために、周囲からの応力が加わるとその部分が破壊されやすい場合がある。ただし、バイオマスに由来する部分の基質強度は配

合炭に由来する部分の基質強度に比べて常に低いわけではなく、配合炭と混合するバイオマスの種類によって、得られるコークスの強度が低下する場合としない場合とがある。

[0045] 上述のとおり、本実施形態に規定するマイクロ強度指数は、バイオマスの種類や使用部位によって異なる。本実施形態においては、衝撃を加えた後のバイオマスの質量粒度分布において、目の開きが０．２１ｍｍのふるいを通過しない粉粒体の質量百分率であるマイクロ強度指数が４５以上であるバイオマスだけを選別し、選別されたバイオマスのみを混合工程及び乾留工程で使用する。あるいは、マイクロ強度指数が４５以上となるように、バイオマスの種類及び使用部位並びに製造条件を調整してもよい。これらの条件を満足するバイオマスを使用することによって、強度の高いコークスを製造することができる。

[0046] ［揮発分］

好ましい実施形態において、バイオマスの無水ベースにおける揮発分が、６．０質量％以上である。本実施形態におけるバイオマスの揮発分の分析は、日本産業規格 Ｍ ８８１２：２００４「石炭類及びコークス類－工業分析方法」に規定された方法に準じて行う。無水ベースにおける揮発分を採用することによって、バイオマスに事後的に水分が付着した場合であっても、揮発分を適正に管理することができる。

[0047] この好ましい実施形態においては、バイオマスについて揮発分を分析し、揮発分が６．０質量％以上であるバイオマスだけ選別し、選別されたバイオマスのみを混合工程及び乾留工程で使用する。あるいは、揮発分が６．０質量％以上となるように、炭化工程における熱処理の条件を調整してもよい。揮発分が６．０質量％以上のバイオマスを使用することによって、強度の高いコークスを製造することができる。より好ましい実施形態において、バイオマスの無水ベースにおける揮発分が７．０質量％以上、さらに好ましい実施形態においては１０質量％以上である。

[0048] 揮発分が６．０質量％以上のバイオマスを使用すれば強度の高いコークス

を製造することができる理由について詳しいことは分からないが、おそらく以下のような理由によると考えられる。石炭を乾留してコークスを製造する過程では、３００℃以上の温度域で石炭が軟化溶融して互いに接着した後、５００℃以上の温度域で石炭が再度固化して全体が固体となる。その後、１０００℃まで加熱されると石炭に含まれる揮発分の放出に伴い収縮が起こる。この過程において、石炭に含まれる揮発分が多ければ多いほど、揮発分の放出に伴う石炭の収縮量が大きくなると考えられる。これと同様に、バイオマスに含まれる揮発分が多ければ多いほど、揮発分の放出に伴うバイオマスの収縮量も大きくなると考えられる。

[0049] バイオマスに含まれる揮発分が６．０質量％未満である場合は、バイオマス由来の部分がほとんど収縮せずに、その周囲の配合炭由来の部分が収縮する結果、バイオマス由来の部分に応力が加わって破壊が生じると考えられる。好ましい実施形態においては、バイオマスに含まれる揮発分が６．０質量％以上であるため、バイオマス由来の部分とその周囲の配合炭由来の部分が同程度に収縮する。このため、バイオマス由来の部分の破壊が抑制され、コークスの強度が高まると考えられる。

[0050] バイオマスに含まれる揮発分は、バイオマスの熱処理温度が高いほど少なくなる。これは、バイオマスの熱処理温度が高いほどバイオマスから揮発分が放出されるためであると考えられる。したがって、バイオマスについて測定された揮発分が６．０質量％未満である場合には、バイオマスの熱処理温度をより低い温度に変更するか、あるいはバイオマスの熱処理を行わないようにして、バイオマスの揮発分が６．０質量％以上になるように調整すればよい。揮発分は、熱処理温度の変更のほか、熱処理時間の変更、使用するバイオマスの種類の変更などによっても調整することができる。これらの手段のうち、熱処理の温度を変更する手段が、制御が容易である点で好ましい。

[0051] 好ましい実施形態において、バイオマスの無水ベースにおける揮発分の下限値は６．０質量％以上とするが、上限値については特に定めはない。しかし、熱処理を全く行わないバイオマスの揮発分はおよそ７５質量％であるの

で、このことを考慮すれば、揮発分は８０質量％を超えないことが好ましい。

[0052] 以上に説明したように、好ましい実施形態においては、揮発分が所定の範囲内にあるバイオマスを使用することによって、強度のより高いコークスを製造することができる。揮発分が６．０質量％以上となるような熱処理の条件は、使用するバイオマスの種類により異なるが、概ね７００℃以下の温度で熱処理を行うことによって、揮発分を６．０質量％以上に調整することができる場合が多い。

[0053] ［強度の評価］

本発明による効果は、本実施形態に係るコークスの製造方法によって得られたコークスの強度を評価することによって確認することができる。コークスの強度を評価する方法にはさまざまな方法があるが、なかでも日本産業規格 Ｋ ２１５１：２００４「コークス類－試験方法」に規定するドラム法による回転強度によって評価する方法は、高炉での使用で問題となるコークスからの粉の生成を模擬した試験となっており、現在日本で最も広く用いられているので、好ましい。ドラム法とは、試料を規定のドラム試験機に挿入し、規定の速度で規定の回転数だけ回転させた後、所定のふるいでふるい分け、区分ごとにその質量を求め、試料に対する加算分率（％）をドラム強度指数（記号：ＤＩ）として表す方法である。

[0054] 後述するように、本明細書の実施例では、ドラムの回転数を１５０回転とし、ドラム試験機に挿入されたコークスの質量に対する、回転後に目の開きが１５ｍｍのふるいを通過しなかったコークスの質量の割合をドラム強度指数（％）とした。ドラム強度指数は、ドラム試験機の中で回転させても１５ｍｍ以下の大きさに粉砕されなかったコークスの質量割合を示す。ＤＩの値が大きいほど、コークスの強度が高いことを示す。

実施例

[0055] 以下、本発明の実施例について説明する。なお、本発明の実施形態は以下の実施例に限定されるものではなく、本発明の実施形態は、本発明の要旨を

逸脱しない範囲で任意に変更することができる。

[0056] Ｒｏが１．０％、ＭＦの常用対数値（ｌｏｇ（ＭＦ／ｄｄｐｍ））が２．５である配合炭を用意した。この配合炭を粉砕して、粒度が３．０ｍｍ以下の割合が１００質量％に調整された配合炭を作製した。バイオマスとして、パーム椰子殻及びスギの２種類のバイオマスを用意した。これらのバイオマスの一部について、空気が遮断された雰囲気でバイオマスの温度が４００℃、５００℃、６００℃又は７００℃の目標温度に到達してから３０分間温度を保持して熱処理を行い、炭化バイオマスを得た。これらの未加熱状態のバイオマス及び炭化バイオマスを粉砕して、粒度が３．０ｍｍ以下の割合が１００質量％に調整されたバイオマスを作製した。

[0057] 得られたバイオマスをるつぼに充填し、窒素雰囲気中で１分間あたりの温度上昇幅を３℃に制御しながら１０００℃に到達するまで加熱した後に１０００℃で６０分間維持して乾留を行った。その後、窒素雰囲気のまま炉内で自然冷却させて、試験用コークスを得た。得られた試験用コークスを粉砕し、分級して、目の開きが１．１８ｍｍのふるいを通過し、目の開きが０．６０ｍｍのふるいを通過しない試料を得た。分級した試験前粒度を有する試験用コークスのマイクロ強度指数（$MSI_{0.21}$）を測定した。また、同じバイオマスについて、無水ベースの揮発分を測定した。得られた測定値を表１に示す。

[0058]

[表1]

表１

	原料				配合率（%）
	種類	熱処理温度（℃）	マイクロ強度指数	揮発分（%）	
実施例1	パーム椰子殻	－	63.2	74.6	2.0
実施例2	パーム椰子殻	－	63.2	74.6	5.0
実施例3	パーム椰子殻	400	62.7	21.6	2.0
実施例4	パーム椰子殻	400	62.7	21.6	5.0
実施例5	パーム椰子殻	500	62.8	19.8	2.0
実施例6	パーム椰子殻	500	62.8	19.8	5.0
実施例7	パーム椰子殻	500	62.8	19.8	7.0
実施例8	パーム椰子殻	600	63.4	11.2	2.0
実施例9	パーム椰子殻	700	60.2	6.0	2.0
比較例1	スギ	500	13.8	21.0	5.0
比較例2	スギ	700	14.6	6.7	2.0
比較例3	スギ	700	14.6	6.7	5.0
参考例	配合炭100%（バイオマスの混合なし）				

下線は本発明の範囲外であることを示す。

[0059] 上記の測定結果によれば、バイオマスがパーム椰子殻の場合のマイクロ強度指数は、熱処理の有無や熱処理の温度にかかわらず、６０．２以上、６３．４以下の値を示した。これらの値は、配合炭のマイクロ強度指数の値である４５よりも大きかった。また、揮発分の値は、熱処理を行わないパーム椰子殻では７４．６％であり、熱処理の温度が高いほど減少した。熱処理温度が７００℃のときの揮発分は６．０％であった。一方、バイオマスがスギの場合のマイクロ強度指数は、熱処理の温度にかかわらず、１３．８以上、１４．６以下の低い値を示した。熱処理温度が７００℃のときの揮発分は６．７％であった。

[0060] 次に、混合物に占めるバイオマスの配合率が２．０％、５．０％又は７．０％になるように配合炭とバイオマスを配合し、さらに水分が８．０質量％となるように調整した混合物を、バイオマスの種類ごとに各１６ｋｇ用意した。この混合物をステンレス製の容器に充填し、窒素ガスを流通させた電気炉に挿入して加熱し、乾留を行った。容器における混合物の嵩密度は無水ベースで７７５ｋｇ／ｍ^{3}であった。炉壁温度１０５０℃に設定された電気炉に混合物が充填された容器を装入し、装入から６時間炉壁温度を保持して乾留を行った後、室温の窒素ガスが流通している冷却設備に容器を移して冷却を

行い、原料にバイオマスを含むコークスを得た。また、ドラム強度指数を比較するために、参考例の配合炭のみを同じ条件で乾留することによって、原料にバイオマスを含まない配合炭１００％のコークスを得た。次に、得られたコークスについてドラムの回転数が１５０回転、ふるいの目の開きが１５ｍｍの条件でドラム強度指数（ＤＩ）を測定した。得られた測定値を表２に示す。

[0061] [表2]

表２

	DI (%)
実施例1	79.3
実施例2	78.1
実施例3	79.0
実施例4	78.7
実施例5	79.3
実施例6	78.4
実施例7	78.0
実施例8	78.6
実施例9	77.3
比較例1	76.8
比較例2	76.5
比較例3	64.1
参考例	79.2

[0062] 表１及び表２によれば、マイクロ強度指数が４５以上であるバイオマスが混合された実施例１から９までのコークスにおいては、ＤＩはいずれも７７以上の値を示した。このＤＩの値は、コークスの強度が高炉での使用に耐え得る強度であることを意味する。また、揮発分が７．０質量％以上である実施例１から８までのコークスにおいては、ＤＩはいずれも７８以上の値を示した。これらのコークスは、ＤＩが参考例である配合炭の値により近く、強度が特に優れたコークスである。一方、マイクロ強度指数が低い値を示した比較例１から３までのコークスでは、ドラム強度指数に大きな低下が見られた。これらの事実から、本発明に係るコークスの製造方法によれば、従来技術よりも確実な予測のもとに強度の高いコークスを製造できることが分かる。

産業上の利用可能性

[0063] 本発明に係るコークスの製造方法によれば、コークスの原料である石炭の一部をバイオマスに由来する原料に置き換えた場合であっても、高炉での使用に耐える強度の高いコークスを製造することができる。

符号の説明

[0064] 1 試験装置

2 容器

3 モータ

4 ギア

請求の範囲

[請求項1] コークス製造用の配合炭にバイオマスを所定の割合で配合して混合物とし、前記混合物を乾留してコークスを製造するに際し、

前記バイオマスを単独で乾留して得られた試験用コークスのマイクロ強度指数が４５以上である

ことを特徴とする、コークスの製造方法。

[請求項2] 前記マイクロ強度指数が、６０以上である、

請求項１に記載のコークスの製造方法。

[請求項3] 前記試験用コークスの乾留を行う温度が、１０００℃である、

請求項１又は２に記載のコークスの製造方法。

[請求項4] 前記バイオマスの無水ベースにおける揮発分が、６．０質量％以上である、

請求項１から３までのいずれかに記載のコークスの製造方法。

[請求項5] 前記バイオマスが、パーム椰子殻及び木質バイオマスの少なくとも一方を含む、

請求項１から４までのいずれかに記載のコークスの製造方法。

[請求項6] 前記バイオマスが、未加熱状態のバイオマスを熱処理して得られた炭化バイオマスでなる、

請求項１から５までのいずれかに記載のコークスの製造方法。

[請求項7] 前記混合物に占める前記バイオマスの割合が、１．０質量％以上、１０質量％以下である、

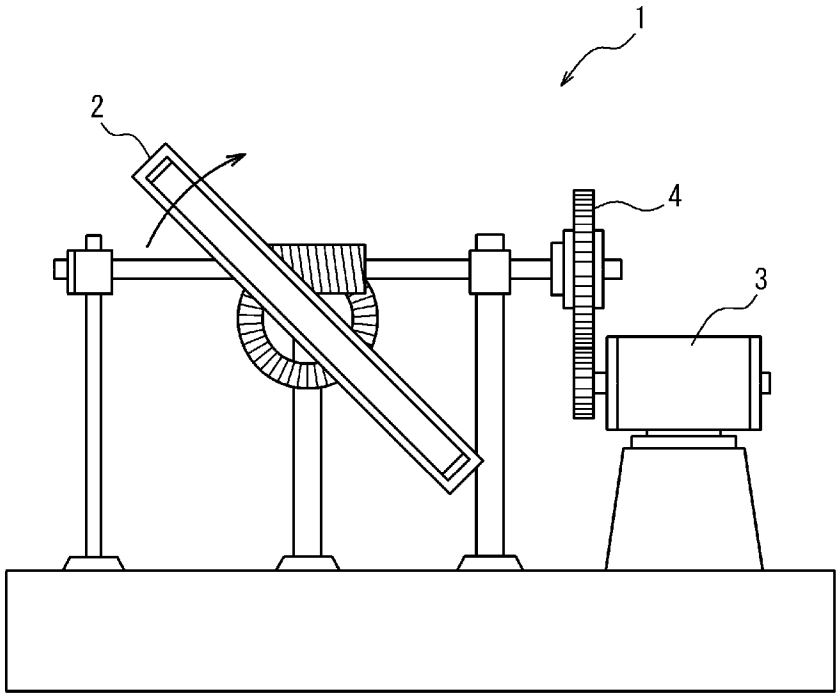
請求項１から６までのいずれかに記載のコークスの製造方法。

[請求項8] 前記バイオマスにおいて粒度が３．０ｍｍ以下であるバイオマスの割合が７０質量％以上であり、かつ、前記配合炭において粒度が３．０ｍｍ以下である配合炭の割合が７０質量％以上である、

請求項１から７までのいずれかに記載のコークスの製造方法。

WO 2025/057471 PCT/JP2024/016347

[図1]



INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.
PCT/JP2024/016347

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

C10B 57/04(2006.01)i; ***C10B 53/02***(2006.01)i
FI: C10B57/04; C10B53/02

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)

C10B1/00-57/18

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 1971-2024
Registered utility model specifications of Japan 1996-2024
Published registered utility model applications of Japan 1994-2024

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	KR 10-2020-0113330 A (HYUNDAI STEEL COMPANY) 07 October 2020 (2020-10-07) paragraphs [0040], [0073]-[0075]	1-7
Y	paragraphs [0040], [0073]-[0075]	8
Y	WO 2019/220808 A1 (KABUSHIKI KAISHA KOBE SEIKO SHO) 21 November 2019 (2019-11-21) paragraphs [0025]-[0026]	8
A	JP 2016-079198 A (NATIONAL INSTITUTE OF ADVANCED INDUSTRIAL SCIENCE AND TECHNOLOGY) 16 May 2016 (2016-05-16) entire text, all drawings	1-8
A	WO 2009/001610 A1 (NIPPON PETROLEUM REFINING CO., LTD.) 31 December 2008 (2008-12-31) entire text	1-8

☐ 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
"D" document cited by the applicant in the international application
"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
12 June 2024	**25 June 2024**

Name and mailing address of the ISA/JP	Authorized officer
Japan Patent Office (ISA/JP) **3-4-3 Kasumigaseki, Chiyoda-ku, Tokyo 100-8915** **Japan**	Telephone No.

INTERNATIONAL SEARCH REPORT
Information on patent family members

International application No.
PCT/JP2024/016347

Patent document cited in search report	Publication date (day/month/year)	Patent family member(s)	Publication date (day/month/year)
KR 10-2020-0113330 A	07 October 2020	(Family: none)	
WO 2019/220808 A1	21 November 2019	(Family: none)	
JP 2016-079198 A	16 May 2016	(Family: none)	
WO 2009/001610 A1	31 December 2008	US 2010/0181228 A1 entire text EP 2166062 A1 CN 101679872 A KR 10-2010-0039333 A	

国際調査報告

国際出願番号
PCT/JP2024/016347

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; C10B 53/02(2006.01)i
FI: C10B57/04; C10B53/02

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））

C10B1/00-57/18

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	１９７１－２０２４年
日本国実用新案登録公報	１９９６－２０２４年
日本国登録実用新案公報	１９９４－２０２４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	KR 10-2020-0113330 A (HYUNDAI STEEL COMPANY) 07.10.2020 (2020-10-07) [0040],[0073]-[0075]	1-7
Y	[0040],[0073]-[0075]	8
Y	WO 2019/220808 A1 (株式会社神戸製鋼所) 21.11.2019 (2019-11-21) [0025]-[0026]	8
A	JP 2016-079198 A (国立研究開発法人産業技術総合研究所) 16.05.2016 (2016-05-16) 全文,全図	1-8
A	WO 2009/001610 A1 (新日本石油精製株式会社) 31.12.2008 (2008-12-31) 全文	1-8

☐ 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
“D” 国際出願で出願人が先行技術文献として記載した文献
“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
12.06.2024	25.06.2024

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）
川嶋　宏毅 4V 2669
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/JP2024/016347

引用文献	公表日	パテントファミリー文献	公表日
KR 10-2020-0113330 A	07.10.2020	（ファミリーなし）	
WO 2019/220808 A1	21.11.2019	（ファミリーなし）	
JP 2016-079198 A	16.05.2016	（ファミリーなし）	
WO 2009/001610 A1	31.12.2008	US 2010/0181228 A1 全文 EP 2166062 A1 CN 101679872 A KR 10-2010-0039333 A	