

氏名	肥田行博
授与学位	工学博士
学位授与年月日	昭和 57 年 10 月 13 日
学位授与の根拠法規	学位規則第 5 条第 2 項
最終学歴	昭和 39 年 3 月 早稲田大学理工学部金属工学科卒業
学位論文題目	焼結鉍製造工程における窒素酸化物低減に関する 研究
論文審査委員	東北大学教授 大森 康男 東北大学教授 高橋 愛和 東北大学教授 岡部泰二郎 東北大学教授 大谷 茂盛

論文内容要旨

近年における製鉄技術のめざましい進歩は、自溶性焼結鉍の多量使用によって支えられてきたと言っても過言ではない。昭和48年の石油危機を契機として経済成長は急激に低下し、脱オイル、省エネルギーが最大の課題とされるに至ったが、高炉のオイルレス化にともなって装入物の降下異常が多発するなど安定操業の維持が難しくなっており、焼結鉍多量配合の要求は従前以上に大きいと言える。

一方、高度経済成長はいくつかの公害問題をひき起すことになった。とりわけ窒素酸化物 (NO_x) については抑制の難しいことと、移動発生源である自動車の増加が影響し、人工密集地域では依然として汚染が続いている。鉄鋼業では、焼結鉍製造過程で発生するNO_xは特に多く、全体の40～50%を占め、しかも焼結鉍生産量にほぼ比例して増加するので、その対策は重要かつ緊急な課題とされた。これまでに新設の焼結機で乾式排煙脱硝設備の設置された例があるが、焼結機と同程度の広大な敷地とクリーンエネルギーを必要とし、また触媒の寿命の問題から事前に脱硫する必要があるなど問題が多い。既設の焼結機に適用が可能で、しかも可及的に焼結鉍価格の上昇を抑え得る対策の開発が重要と考えられるが、実機での報告例はない。

本論文は、経済的効果の大きな焼結操業すなわちコークス燃焼改善によるNO_x低減技術の開発を目的とし、単一粒子によるコークス燃焼実験を基礎に、充てん層による燃焼実験、焼結鋼実験、最後に実機試験を行って確立するまでの一連の体系的な実験的研究の結果を述べたものであり、7

章よりなる。

第1章は「緒論」であり、本研究の目的と意義について述べた。

第2章では、「焼結排ガス中窒素酸化物低減に関する従来の研究」について、本研究の目的と関連づけて概説した。とくに経済的に有利なコークス燃焼改善によるNO_x低減法の開発は遅れており、その解決にはNO生成機構の解明とコークス粒子表面近傍のガス組成分布調整法の研究が必要であることを説明した。

第3章では、「コークス燃焼過程におけるNO生成機構と抑制原理」について実験的な検討を行った。

焼結排ガスNO_xはコークス中N由来するFuel NOであることが確認できたので、単一粒子のコークス試料をAr-O₂気流中で燃焼し、コークス表面近傍のCO、CO₂、NO濃度分布と温度分布を測定した。

まず、通常の高炉用のコークスでは以下のごとく、従来の固定発生源でのNO_xの大部分を占めるThermal NOの場合とは全く違った結果を得た。

- (1) コークス予熱温度および導入ガス中O₂濃度の高いほど、またガス流速が早いほど高温燃焼し、コークス表面でのCO生成は活発になってNOは抑制される。
- (2) コークス粒径の大きいほど、粒子温度は上昇してNO発生量は減少する。

また、CO₂でガス化処理、あるいは粉末コークスを成型した高气孔率のコークス試料でもNOの抑制の著しいことが明らかとなったが、通常のコークスの場合とは違って、燃焼温度の上昇やコークス試料表面近傍でのCOの増加は認められなかった。

つぎに、ガス組成分布から図1に示す境界層内のNO転換率(コークス中NがNOに転換した割合)の分布を求めてFuel NO生成機構について検討した。図1からNO生成には、①コークス表面での反応と、②境界層内で活性なN化合物が酸化する2つの反応過程があることが明白である。また、全NO

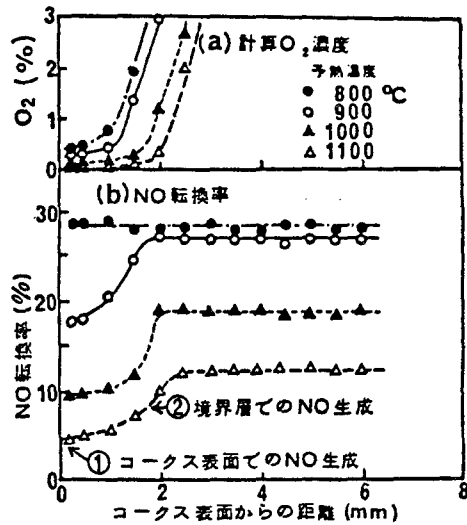


図1 境界層における計算O₂濃度とNO転換率の分布

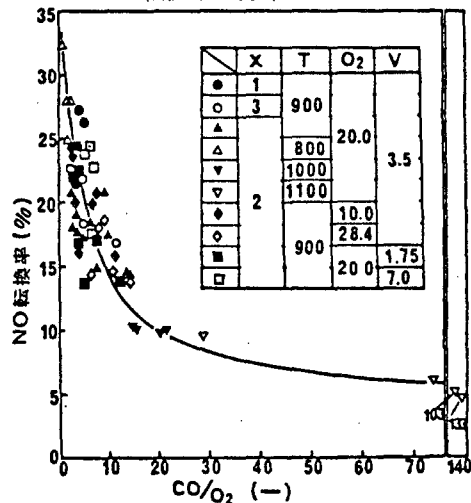


図2 燃焼コークス表面から0.5mm以内におけるCO/O₂とNO転換率の関係

中の多くを占める上記①のNOはコークス表面近傍のO₂濃度と密接な関係のあることがわかる。

NO転換率をコークス表面から0.5mm以内のCO/O₂で整理すると図2の関係が得られ、コークス表面近傍でのCO/O₂を高めることが、Fuel NO抑制の基本原則となることが明らかとなった。

さらに、このFuel NO抑制の原理で、先の高気孔率コークスでのNO低減が矛盾なく説明できることを述べた。

第4章は「焼結鉍製造工程におけるFuel NO抑制に関する基礎研究」であり、基礎実験結果をもとにしていくつかの低NO_x焼結技術を提案した。

焼結層を理想化したアルミナ球とコークスからなる充てん層の燃焼実験を行って、まず前出のFuel NO抑制原理が焼結層のごとき充てん層に適用できることを明らかにした。

その抑制原理によれば、単一粒子では不可能なコークス配合量の増加、発熱原料の配合などの供給熱量の上昇も、コークス予熱温度を高めたときと同じNO抑制効果があるといえる。その実験による検証結果の一例が図3である。また、発熱原料もNO抑制効果の大きいことを確認した。

焼結原料中の粉コークスは種々の状態で賦存する。その賦存状態によって燃焼性は変るはずである。そこで、図3に併記したごとく、実機原料擬似粒子を理想化した4種の粒子をアルミナとコークスから調製して、燃焼実験を行った。燃焼速度は図4に示すごとく、微粉コークスをアルミナの核粒子に附着させたC形粒子で最も早く、アルミナ粉で包まれた粗粒コークスのS形では最低となる。NO転換率は前掲図3に示すように、実機の実用範囲である0.05g/cm³以上のコークス量では、燃焼速度の早い粒子ほど低下する。その理由についても、先のFuel

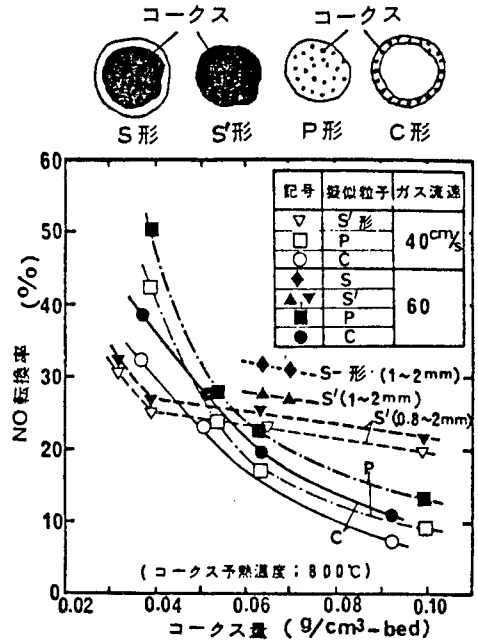


図3 NO転換率におよぼすコークス配合量およびガス流速の影響

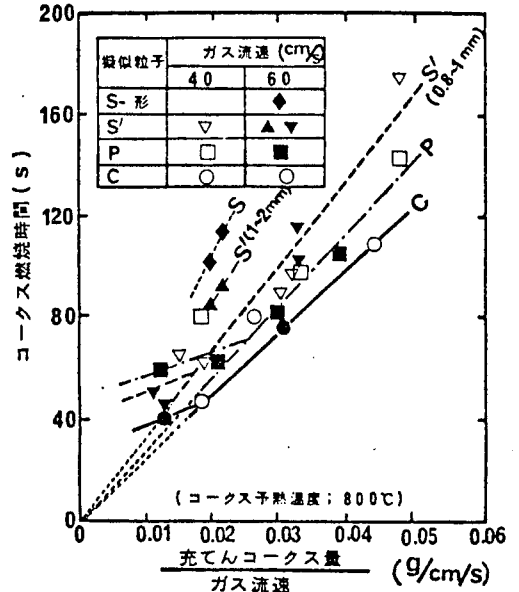


図4 コークスの燃焼性と擬似粒子構造の関係

NO抑制原理で説明できることを述べた。

つぎに、焼結層内におけるNOの還元について検討し、NOの還元率は大きくみても5~10%以下と小さく、焼結層でのNO抑制の主要点は単一粒子の燃焼の場合と同じく、燃焼コークス表面のCO/O₂を高めることであることを明らかにした。

また、前章でNO抑制効果の大きかったコークスの高气孔率化について、粉コークスの一部を燃焼し1400℃の高温で脱NとCO₂によるガス化を行う処理法(“部分燃焼法”と略記)を考案し、1t/dの規模の実験を行った。処理コークスはCO₂のガス化によって10~100μの大きな気孔が処理前の0.26g/cm³から0.37g/cm³といちじるしく増大し、充てん層による燃焼実験でのNO転換率は未処理の場合の1/2以下となりNO対策として可能性のあることを述べた。

以上の結果から、焼結鉍製造過程でのNO抑制には供給熱量の増加、あるいはコークス燃焼性を高めて高温燃焼させることが重要となることが明らかであり、これら燃焼条件を満す焼結作業について具体的な検討を行って、いくつかの低NO_x技術を導いた。

第5章は「焼結鍋実験によるNO低減効果の確認」についての記述である。すなわち、前章で導かれた低NO_x焼結技術について、NO抑制の基礎となる(1)供給熱量の増加、(2)擬似粒子中コークス賦存状態の改善、(3)コークス気孔率の増大の面から分類し、効果確認のための焼結鍋実験を行った。

供給熱量のNO抑制効果については図5のようにまとめられ、点火と保熱用のガス燃料やコークス配合量を増加するよりも、発熱原料や結晶水の少ない鉍石を配合する場合の方が効果が大きいことを明らかにした。すなわちNO転換率は配合原料1kg当りに熱量を1Kcal高めると、前者では絶対値で0.07%低下するのに対して後者では0.24%減少する。

鉄鉍石の粗粒化、生石灰添加、コークス途中添加、コークスの微粉砕などによる擬似粒子中コークス賦存状態改善は、前章の燃焼実験と同じく燃焼性を向上してNOの抑制を行うことを

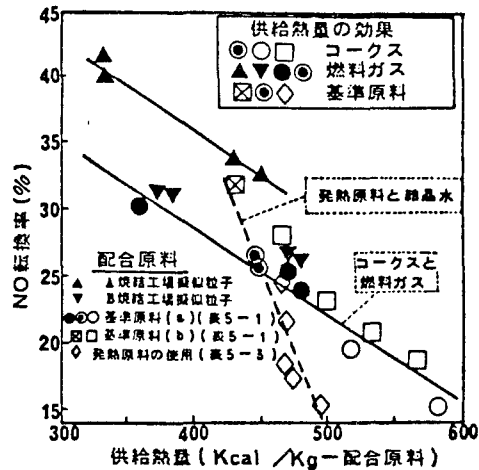


図5 NO転換率におよぼす供給熱量の影響

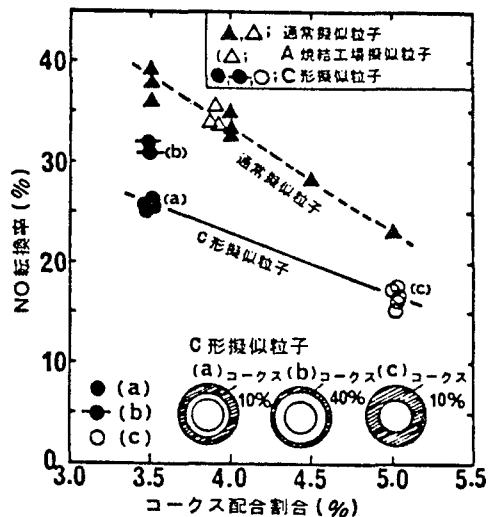


図6 C(コンポジット)形コークスのNO抑制効果

確認した。とりわけC形コークスのNO抑制効果は大きく、コークス全量を微粉碎してC形化した場合には図6に示すごとく、NO転換率は通常の擬似粒子のときのほぼ2/3に低下することを明らかにした。さらに生石灰添加ではC形コークスの増加のほかに擬似粒子強度の上昇も寄与していること、コークス途中添加では鉬石粒度あるいはコークス粒度の小さいときに、S形コークスのS'形化効果が大きくなり、NO転換率は低くなることを示した。

気孔率を高めた前章の部分燃焼法処理コークスについては、約30%の脱N率に加えて、NO転換率は未処理コークスの場合の60%程度となり、その結果NO発生量はほぼ60%減少し、効果の大きいことを述べた。

第6章では「実機における低NO_x焼結技術の確立」について、地方自治体の定める厳しい総量規制に対処することができたA焼結工場を代表例として述べた。

実機で低NO_x焼結技術を確立する際の主要点は、(1)低NO_x技術の選択、ならびに(2)試験操業の積み重ねと徹底的な操業解析であった。

実操業では変動因子が非常に多く、精度のよい解析法がなかったため、(a)擬似粒子中コークス賦存状態の定量法と、(b)排ガス中CO、CO₂、O₂、NO濃度とほぼ50の操業因子から解析するNO抑制およびコークス燃焼性の評価法について開発した。

A焼結工場では、大型高炉の高位安定操業を維持するために、優良焼結鉬の多量供給が強く要請された。そこで、前章で効果を確認した低NO_x技術の中から、コークスの燃焼性向上を可能とする擬似粒子中コークス賦存状態の改善を柱とする対策を採用し、そのために造粒設備をはじめとする付帯設備の増強を行って試験操業を繰り返した。その結果、図7、図8に示すように生石灰添加、コークス分割添加などによって目標通りの擬似粒子の改善とコークス燃焼

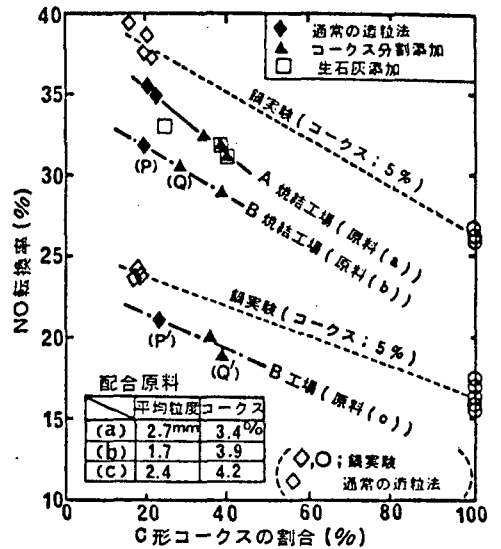


図7 C形コークス増加によるNOの低減

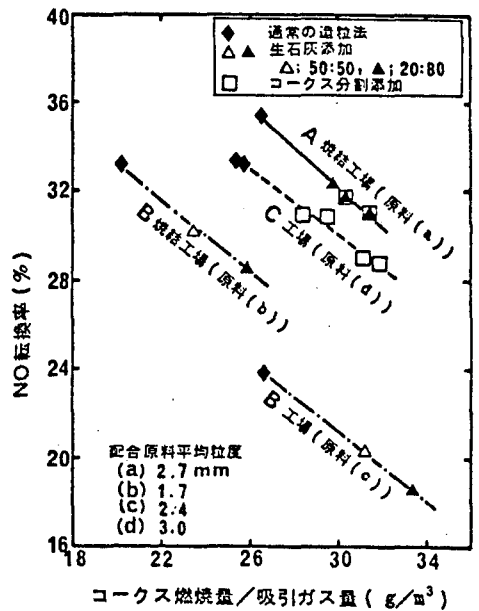


図8 コークス燃焼性とNO転換率の関係

性の向上が達成され、公害防止協定で定められたNO_x低減を可能にすることができた。

第7章は「結論」である。焼結操業改善による低NO_x技術を実機で確立するまでの各章の研究成果について取りまとめて記述した。本研究成果はいくつかの焼結工場において、焼結鉱品質、生産性などその製鉄所の要求条件を考慮した最適な組合せで採用されており、NO_x排出規制を達成するとともに、焼結鉱価格上昇の抑制に貢献している。

審査結果の要旨

銑鋼一貫製鉄所の焼結工場で発生する窒素酸化物、NO_xはとくに多く、全体の40～50%を占め、しかも焼結鉱生産量にほぼ比例して増加するため、国が定める排出基準とそれに上乘する地方自治体の定める総量規制の下で、NO_x低減技術を開発することが重要かつ急務とされている。本論文は、コークスの燃焼条件とNO_x生成の関連性を基礎的に研究し、その抑制原理を確立したのち、焼結鍋実験および焼結工場の実機操業におけるNO_x低減技術達成に至る一連の研究成果をまとめたもので、全編7章よりなる。

第1章は緒論である。

第2章は焼結プロセスの排煙NO_x対策に関する従来の研究および技術を概括している。

第3章では、単一コークス粒子の燃焼実験を行い、燃焼中のコークス周囲のガス組成と温度の分布を極めて巧妙な実験手法を用いて測定し、コークス予熱温度および導入ガスの酸素濃度が高いほど、ガス流速が早いほど高温燃焼が達成され、コークス表面でのCO生成の促進によりNO_xの抑制が可能であるという重要な結果を見出し、燃料由来の窒素による窒素酸化物、fuel NO_xの生成機構を解明してその抑制原理を明らかにしたことは、学術的に優れた知見である。

第4章では、焼結層を理想化したアルミナ球とコークスより成る充填層を用い、コークス燃焼速度とNO_xの化学変化の実験を行い、第3章において導いたNO_x抑制原理が充填層においても成立することを立証している。さらにNO_x転換率の低減策として予めコークスを部分燃焼する方法、焼結原料の事前粒化処理により生ずる擬似粒子中のコークス賦存状態の改善ならびに発熱原料の添加による供給熱量の局所集中化などの効果が大であることを明らかにしている。

第5章は、実機を良くシミュレートする焼結鍋実験を行い、第4章において提案した諸NO_x低減策の効果を定量的に評価している。すなわち、コークス部分燃焼法により、その処理を行わないコークスのNO_x転換率に比べ40%低減し、約30%の脱窒率と合わせてNO_x発生量は約60%低減できること、また擬似粒子中のコークス賦存状態の改善によりNO_x転換率は通常の擬似粒子の場合と比べ約35%低減することを明らかにしている。

第6章では、第5章において効果を確認した低NO_x焼結技術を組合せ、焼結鉱の品質および生産性を確保した上で地方自治体の定める総量規制を達成し得た焼結工場の実例を示し、本研究のNO_x低減技術が広範囲の焼結条件で達成されたことを述べている。

第7章は結論である。

以上要するに、本論文はfuel NO_x生成機構とその抑制原理に関する基礎的研究をもととして焼結操業改善による低NO_x技術について体系的な実験的研究を行うことにより排煙脱硝設備を設けることなく、焼結工場のNO_x規制に対処できる技術を確立したもので、金属工学の発展に寄与するところが少なくない。

よって、本論文は工学博士の学位論文として合格と認める。