

## 科学研究費助成事業 研究成果報告書

平成 28 年 6 月 6 日現在

機関番号：17102

研究種目：基盤研究(B) (海外学術調査)

研究期間：2013～2015

課題番号：25303030

研究課題名(和文) 低品位炭の自然発火防止に関わる海外オンサイト試験

研究課題名(英文) On-site Test at Overseas to Prevent Spontaneous Combustion of Low Rank Coal

研究代表者

佐々木 久郎 (Sasaki, Kyuro)

九州大学・工学(系)研究科(研究院)・教授

研究者番号：60178639

交付決定額(研究期間全体)：(直接経費) 13,100,000円

研究成果の概要(和文)：本研究ではインドネシアおよび中国の石炭鉱山の石炭試料を用いてオンサイト試験を実施した。新鮮な低品位炭を石炭鉱山から運搬した約1tonまでの試料で試験を実施し、Frank-Kamenetskii式で取りまとめを行った。試験に使用した石炭試料は日本で工業分析および示差熱分析を実施した。オンサイト試験結果と基礎データに基づいて自然発火プロセスの数値モデルを構築し、1tonオーダーの低品位炭の堆積量に対する温度上昇過程のヒストリーマッチングを実施した。さらに実際の石炭鉱山の払い跡の孔隙率をパラメータとした酸化発熱領域の数値シミュレーションを実施した結果、グラウト注入が有効であることを明らかにした。

研究成果の概要(英文)：In this study, on-site tests on spontaneous combustion were carried out at the place close to the coal mining area in Indonesia and China. The on-site tests were conducted and plotted with Frank-Kamenetskii's equation using maximum 1ton fresh low-rank coal samples transferred from the coal mines. Industrial analysis and differential thermal analysis were measured for the coals used for the on-site tests. Based on on-site test results and measured basic data, a numerical model of spontaneous combustion process of the low-rank coal has been constructed. In particular, with respect to coal deposition amount in ton order, we have carried out history matching of the temperature rise process of internal coal deposition layer, and numerical simulations applied to the oxidation area vs. porosity at goaf in the actual scale of coal mine. It has become clear that the grouting is effective to control the oxidation area to prevent spontaneous combustion in the goaf.

研究分野：地球資源システム工学

キーワード：資源開発 低品位炭 自然発火 オンサイト試験 インドネシア 中国

### 1. 研究開始当初の背景

再生可能エネルギーの拡大は日本の緊急課題であるが、経済性と量的面で不安要因をもつ。一方、石炭は多様な地域に賦存し、さらに石炭埋蔵量の約50%は亜炭や褐炭等の低品位炭で、その改質技術が開発されてきた。そのガス化利用については日本が高い技術を有するため再び注目されている。褐炭などの低品位炭は世界中に広く分布し、全世界の石炭資源の半分の可採埋蔵量を有している。例えば、中国の低品位炭は、内モンゴル自治区に多く賦存しており、安価である特長を有する。ただし、水分が重量の半分以上(多い場合は66%)と多いことから、運搬と利用のためには乾燥が不可欠である。また、細孔容積が大きい(隙間が多い)ことや腐植酸や酸素分も多く含むため、酸化活性度が高い反面、発熱量は10 MJ/kg~20 MJ/kgの範囲であり、低い。したがって、低品位炭は高含水率で輸送コストが掛かる割に、燃料としては低発熱量のためエネルギー効率は低く、用途が限られてきた。また、褐炭の燃焼は二酸化炭素排出量や煤煙が多いことから、環境負荷が大きいことで、欧州などでは地球温暖化対策上、褐炭の使用は政治的な問題ともなっている。

### 2. 研究の目的

低品位炭は自然発火し易いという欠点を有するため、生産サイトや輸送路での自然発火防止対策を早急に確立する必要がある(図1参照)。過去多くの自然発火の研究が実施されたが、採掘後かなり時間経過した少量の粉碎試料を用いた実験結果に基づいて、自然発火防止方法は十分議論できていない。一方、十分な堆積層実験を実施するためには、インドネシアなどから数トンの石炭を短時間に輸入する必要があるが、発火の危険性が高く、その実施は困難である。

本研究の目的は、インドネシアおよび中国の海外研究機関の協力を得て、採掘直後の低品位炭を用いた堆積層実験によって経過時間に伴う水分蒸発や酸素消費等をオンサイトで測定し、その自然発火防止対策を早期に確立し、低品位炭のガス化複合発電の実現に寄与することにある。

### 3. 研究の方法

インドネシアおよび中国におけるオンサイト試験では、堆積している石炭類の自然発火危険性を評価するための基本的なデータを取得した。インドネシアではサイロ型の試験装置(図2)を、中国においては異なった堆積体積に対して熱発火限界温度( $T_c$ 値)を測定する試験装置(図3)を現地で製作し、測定システムを構築した。

一般に、実験室の恒温槽内で安全を考慮して扱うことができる石炭堆積量は、10cmの立方体(0.001 $m^3$ , 700g)程度が限度であった。したがって、10 $m^3$ オーダーの堆積量に対する石炭の限界温度を予測するためには少なくとも1 $m^3$ の石炭堆積量に対する $T_c$ 値が信頼度を高めるために求められる。一方、低品位炭の場合は、採掘後に長期の輸送時間を経た石炭サンプルで

はその性質(とくに水分)が大きく変化しているため、採掘直後のサンプルを使用することが適当である。とくに、中国・遼寧省において1 $m^3$ オーダーのワイヤーメッシュバスケット試験による低品位炭の発熱特性と熱発火限界温度の試験方法によるオンサイト試験を実施した。



図1 インドネシア石炭鉱山における低品位炭パイルにやける自然発火の状況(2013年9月)



図2 インドネシアにおける石炭鉱山敷地内に設置した低品位炭の自然発火測定用オンサイト試験装置(右:サイロ型試験装置)

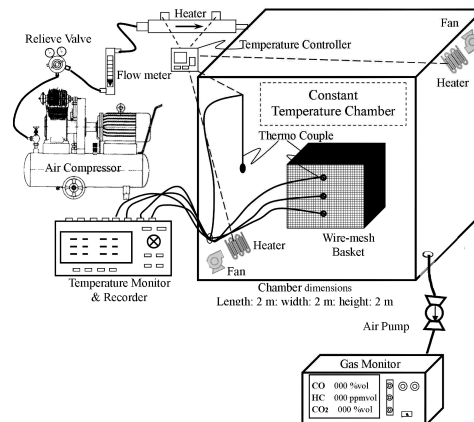


図3 中国遼寧省における低品位炭のワイヤーメッシュバスケット試験装置全体

#### (1)石炭堆積条件および堆積量と限界温度との関係

石炭が低温酸化により発火に至るためには、堆積状況や粒度、発熱反応速度、熱伝導率や比熱等の熱物性値、空気や水分や触媒作用を有する物質の介在、石炭の酸化履歴など、多くの因子が影響する。とくに、その場の石炭が外部あるいは周辺から熱を得たことによる石炭温度の上昇が発火を左右する主要条件であり、発熱速度と放熱速度のバランスは大きさや酸素の供給を担う通気抵抗やガス拡散係数などの堆積層の多孔質層内部条件と堆積量(大きさ)によって左右される。とくに堆積量(長さ)に対する限界温度の変化を定量的に明らかにする必要がある。

石炭が一定形状をなして堆積されるとき、その内部で発熱が生じた場合、発生した熱は堆積層の外部表面から雰囲気中へ逸散する。したがって、内部の石炭温度は発熱量と放熱量との差によって温度が変化する。とくに、石炭温度の上昇と共に発熱量は指数関数的に増大(アレニウスの法則)し、遂には発煙と発火を誘発する。このような発熱量と熱放散量とが平衡から急速に非平衡に移行する温度が限界温度  $T_C$  値( $^{\circ}\text{C}$ )である。

各堆積条件、とくに堆積量に対して限界温度を測定し、より大きな堆積量に対する限界温度を予測することで、堆積層の温度に関わる安全管理が可能となる。 $T_C$  値を実験的に測定する試験法としては、市販流通用の包装状態にある物質を対象とする等温貯蔵試験や自然発火性試験装置(SIT-2)による試験等が試みられてきたが、これらの試験法では、サイズや自然対流条件を包含した評価方法として十分に確立されたものとは言えない。ただし、実規模試験もコストと時間の制約から困難である場合が多い。

以上のことから、Frank-Kamenetskii の熱発火限界条件式に基づき、信頼性が担保できる適当な量の石炭試料を用いた発熱反応に関するパラメータや熱物性値および熱発火限界温度( $T_C$  値)を予測し、その後図2に示したサイロ内の石炭層の温度上昇を水分の蒸発・凝縮を考慮した数値シミュレーションによるヒストリーマッチング、さらには実際の石炭鉱山・払い跡での発熱現象の予測に適用する一連の研究が必要とされる。

#### (2) 限界温度の推定手順

図3に示すように、自然対流を許容するメッシュで覆ったボックスに石炭を堆積させ、異なった温湿度雰囲気中に石炭を充填したワイヤメッシュバスケット(立方の辺長  $L$ )を設置し、内部の石炭パイルの中心温度の時間曲線( $t-T$  曲線)を測定する。この測定は、破碎した石炭の堆積層の中心領域での発熱速度と自然対流による放熱速度のバランスにより、温度が時間的に変化する。このとき、温度上昇が活性化され燃焼に至るか温度低下するか境界となる温度として熱発火限界温度  $T_{CSIT}$  を決定した。

#### (3) $1\text{m}^3$ サイズの石炭限界温度の試験

中国・遼寧工程技術大学との共同研究として、

最大  $1\text{m}$  の辺長をもつワイヤメッシュバスケットに内モンゴルの石炭鉱山において採掘された新鮮な褐炭を用いた石炭堆積層のオンサイト試験を実施した。異なったサイズのワイヤメッシュバスケットを用いた試験結果を Frank-Kamenetskii の熱発火限界条件式に基づいてプロットすることで、熱発火限界温度の堆積量に対する予測式と石炭の発熱速度式を得ることができる。

#### 4. 研究成果

本報告では、石炭などの自己発熱を伴う堆積層に対する熱発火限界温度( $T_C$  値)の測定法に関し、Frank-Kamenetskii 式に基づいた限界温度の評価試験装置、試験手順および評価手法を記述した。とくに、実用的な石炭層の温度管理を実施する上での信頼性の高い予測データを提供するため、 $1\text{m}^3$  サイズの試験結果が限界温度の予測する上で重要であることを説明し、中国で実施している試験結果が得られた。

中国・遼寧省におけるオンサイト試験において観測された  $1\text{m}^3$  のワイヤメッシュ内の低品位炭から発煙した状況写真を図4に示す。この直後に、安全のため消火を実施した。



図4 中国のオンサイト試験において観測された低品位炭の発煙 (2014年8月)

#### (1)インドネシアにおけるサイロ型貯炭層のオンサイト試験結果

2013年10月にインドネシアで実施したサイロ型試験装置における約5日間における経過時間に対する温度上昇過程の測定結果を図5に示す。石炭水分が多く含まれ、その蒸発と凝縮が石炭層内の熱移動を促進したことから、層内の温度の最大値は  $46^{\circ}\text{C}$  に留まり、自然発火は、蒸発による乾燥が生じない環境ではその発生が抑制されることが明らかになった。

#### (2)中国におけるワイヤメッシュバスケット法によるオンサイト試験結果

インドネシアでのオンサイト試験結果を考慮し、2014年8月に、中国・遼寧省において、石炭試料周辺の環境温度を制御するワイヤメッシュバスケット法による堆積量を種々変化させた石炭層の温度上昇過程の測定を実施した結果の一例( $L=100\text{cm}$ , 体積  $1\text{m}^3$ , 環境温度  $=80^{\circ}\text{C}$ )を図6に示す。環境温度が  $80^{\circ}\text{C}$  で、約12日後に温度が上昇し、発煙を伴う発火に至った(図4)。

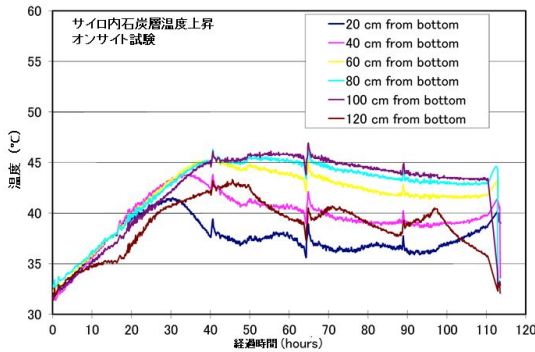


図5 インドネシアにおけるサイロ型試験装置における経過時間に対する温度上昇曲線 (2013年10月)

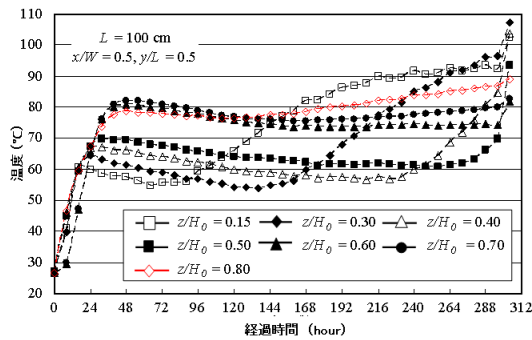


図6 100cmワイヤ-メッシュバスケット試験結果 (環境温度=80) の状況 (2014年8月)

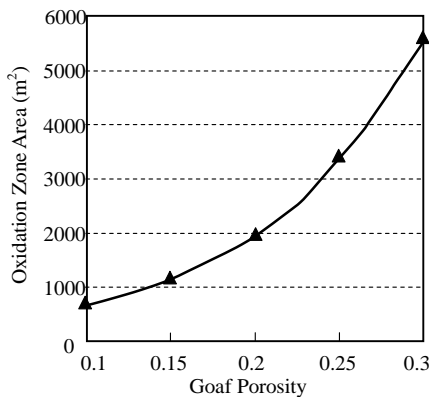


図7 グラウト注入による払い跡の孔隙率に対する酸化発熱領域との関係に関する数値シミュレーション結果 (2015年8月)

### (3)石炭鉱山の自然発火に関する酸化領域の数値シミュレーション

$T_{CSIT}$  および石炭試料の活性化エネルギーの測定結果に基づいて、熱流体解析コード FLUENT を使用した数値解析モデルを構築し、図5に示したサイロ内の石炭温度上昇過程のヒストリーマッチングを実施した。さらに、石炭鉱山の長壁式採炭切羽の払い跡での残炭の自然発火に関する数値シミュレーションを実施した。その結果から、払い跡が酸素濃度によって3つの領域に分類できること、グラウトスラリーを払い跡に注入する場合には孔隙率が減少し、酸化発

熱領域が小さくなる挙動を示すことが予測された(図7)。この効果は、実際のモデルとした払い跡におけるチューブバンドルによる酸素濃度の測定結果からも裏付けられたことから、グラウトスラリー注入が残炭の自然発火防止に有効であることが明らかになった

## 5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

(雑誌論文) (計 5 件)

Yongjun Wang, Xiaoming Zhang, Yuichi Sugai, Kyuro Sasaki: A study on preventing spontaneous combustion of residual coal in a coal mine goaf, Journal of Geological Research, Volume 2015, Article ID 712349, 8 pages, (2015).

Ferian Anggara, Kyuro Sasaki, Yuichi Sugai, Swelling measurements of a low rank coal in supercritical CO<sub>2</sub>, Int. Journal of Geosciences, 4-5, pp.863-870, 2013.

Zhigang Li, Xiaoming Zhang, Yuichi Sugai, Jiren Wang, Kyuro Sasaki: Measurements of gasification characteristics of coal and char in CO<sub>2</sub>-rich gas flow by TG-DTA, Journal of Combustion, Volume 2013, Article ID 985687, 15 pages, 2013.

Yongjun Wang, Kyuro Sasaki, Yuichi Sugai, Xiaoming Zhang, Measurement of critical self-ignition temperatures of low rank coal, Proc. 14th Coal Operators' Conference (COAL2014) (Australia, Wollongong), pp. 339-343, 2014.

Kyuro Sasaki, Yongjun Wang, Yuichi Sugai, Xiaoming Zhang, numerical modelling of low rank coal for spontaneous combustion, Proc. 14th Coal Operators Conference (COAL2014) (Australia, Wollongong), pp.344-349, 2014.

(学会発表) (計 9 件)

Arif Widiatmojo, Kyuro Sasaki, Yuichi Sugai: The Effect of Air Humidity to Coal Pile Spontaneous Combustion in Low Temperature, 5th World Conference on Applied Sciences, Engineering and Technology (Ho Chi Minh City University of Technology, Vietnam), 2016.

嶋谷典高, 菅井裕一, 佐々木久郎: 炭層への空気圧入による低温酸化反応に関する検討, 資源・素材学会平成28年度春季大会(東京大学), 2016.

佐々木久郎, 王永軍, 王聡, 菅井裕一, 張曉明: ワイヤ-メッシュバスケット法による低品位炭の自己発火限界温度に関わるアップスケール試験, 資源・素材2015(松山), 2015.

佐々木久郎, 菅井裕一, 大年亜令士, 王聡: 石炭層における原位置燃焼およびガス化に関する数値シミュレーション, 資源・素材2014(熊本), 2014.

佐々木久郎, 菅井裕一, Wang Yongjun,

Woidiatomojo Arif, Nuhindro Priagung Widodo, 張曉明: 低品位炭の自然発火性に関する堆積容量に対する熱発火限界温度の測定, 資源・素材 2014(熊本), 2014.

Yongjun Wang, Kyuro Sasaki, Yuichi Sugai, Xiaoming Zhang: Measurement of Critical Self-Ignition Temperatures of Low Rank Coal, 14th Coal Operators' Conference (COAL2014) (Australia, Wollongong), 2014.

Kyuro Sasaki, Yongjun Wang, Yuichi Sugai, Xiaoming Zhang: Numerical Modelling of Low Rank Coal for Spontaneous Combustion 14th Coal Operators' Conference (COAL2014) (Australia, Wollongong), 2014.

佐々木久郎, Wang Yongjun, Arif Widiatomojo, 菅井裕一, 張曉明: 低品位石炭の自然発火性の試験, 平成 25 年度資源・素材学会秋季大会 (資源・素材 2013 札幌), 2013.

佐々木久郎, 菅井裕一, 王永軍, 張曉明: 高濃度 CO<sub>2</sub> 雰囲気中の石炭の加熱特性と自然発火性の測定における課題, 資源・素材学会平成 25 年度春季講演会, 2013.

(図書) (計 0 件)

(産業財産権)

出願状況 (計 0 件)

取得状況 (計 0 件)

(その他)

## 6. 研究組織

### (1) 研究代表者

佐々木 久郎 (SASAKI, Kyuro)  
九州大学大学院工学研究院・教授  
研究者番号: 60178639

### (2) 研究分担者

菅井 裕一 (SUGAI, Yuichi)  
九州大学大学院工学研究院・准教授  
研究者番号: 70333862