

AE計測による石炭地下ガス化（UCG）燃焼・ガス化体積の推定

板倉，賢一
室蘭工業大学環境科学・防災研究センター

濱中，晃弘
九州大学大学院工学研究院地球資源システム工学部門

蘇，発強
室蘭工業大学環境科学・防災研究センター

猪股，英紀
室蘭工業大学環境科学・防災研究センター

他

<https://hdl.handle.net/2324/6793761>

出版情報：Memoirs of the Muroran Institute of Technology. 66, pp.29-37, 2017-03-24. Muroran Institute of Technology

バージョン：

権利関係：© 2017 室蘭工業大学



AE 計測による石炭地下ガス化 (UCG) 燃焼・ ガス化体積の推定

板倉 賢一^{*1}, 濱中 晃弘^{*2}, 蘇 発強^{*1}, 猪股 英紀^{*1}, 佐藤 孝紀^{*1},
高橋 一弘^{*1}, 出口 剛太^{*3}, 児玉 淳一^{*4}

Estimation of Combustion and Gasification Volume in Underground Coal Gasification (UCG) Process by means of AE Monitoring

Ken-ichi ITAKURA, Akihiro HAMANAKA, Fa-qiang SU, Hidenori INOMATA, Kohki SATOH,
Kazuhiro TAKAHASHI, Gota DEGUCHI and Jun-ichi KODAMA

(原稿受付日 平成 28 年 12 月 22 日 論文受理日 平成 29 年 2 月 10 日)

Abstract

To recover coal gas and heat energy from an underground coal seam abandoned for either technical or economic reasons, we are developing safe and efficient Underground Coal Gasification (UCG) techniques. A typical UCG system has two wells drilled from the surface into a coal seam with some separation of injection from production. The wells are connected underground by various linking techniques. After creating a combustion reactor in an underground coal seam, air and oxygen flow through the injection well. Heat energy and gases are collected from the production well. In this process, the fracturing activity inside the coal seam serves an important role for enlargement of the gasification zone because the surface area oxidization increases continuously by coal cracking. On the other hand, excess fractures inside the coal seam and surrounding rock can induce gas leakage, underground water contamination, subsidence, etc. Therefore, monitoring and control of fracturing activity in underground areas constitute key technologies for efficient and safe UCG development.

To monitor fracturing activity, we used Acoustic Emission (AE) monitoring during UCG model experiments using artificial coal seam. Through the experiments, it was found that the combustion and gasification volume in the coal seam was possible to estimate from the AE source location data. Therefore, AE monitoring is a useful tool to evaluate combustion reactors for efficient and safe UCG systems.

Keywords : *UCG, underground coal gasification, AE, acoustic emission, fracturing*

*1 室蘭工業大学 環境科学・防災研究センター

*2 九州大学 大学院工学研究院地球資源システム工学部門

*3 NPO 法人地下資源イノベーションネットワーク

*4 北海道大学 大学院工学研究院環境循環システム部門

1 はじめに

IEA (International Energy Agency) の報告¹⁾によると、化石燃料の中では圧倒的に石炭の埋蔵量が多く、世界75カ国で産出可能といわれている。世界の発電量においても、石炭が最も多く使われ、今後もその傾向は変わらないと予測されている。

我が国においても、近年、天然ガスの需要が増大しているが、エネルギー源としては原油について石炭が多く、この割合は今後も変わらないであろう²⁾。その石炭の99%は、輸入に依存しているのが現状である。しかしながら、我が国の石炭が既に枯渇したわけではない。経済的、技術的な理由で採炭に値しない未利用石炭が、約300億トンある。しかも、深度を6,000mまで下げると、北海道だけでも5,000億トンと見積もられている³⁾。現在の我が国の石炭使用量で換算すると、約2,800年分に相当する。こうした未利用石炭資源の活用技術の一つに、石炭の地下ガス化 (UCG : Underground Coal Gasification) がある。

図-1 は、一般的な UCG の概念図である。地下の炭層に2本のボーリング孔を穿ち、炭層内で連結 (リンクング) し、炭層に着火した後、一方から酸化剤 (空気と酸素の混合ガス) を送り他方から生成ガスを回収する⁴⁾。

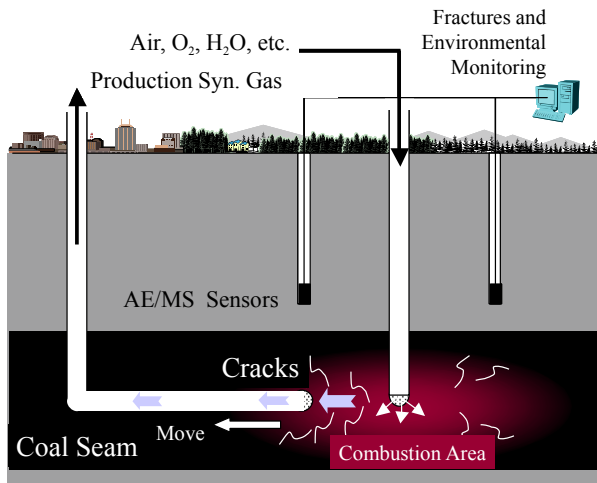


図-1 リンキング方式の石炭地下ガス化 (UCG)

これにより、地上の設備は簡便になり、石炭灰、ガス化残滓等の処理が不要になる。すなわち、経済的で低環境負荷型な石炭利用方法である。

生成ガスの活用方法としては、ニーズに応じて合成天然ガス、アンモニア化学肥料、メタノール、軽油、ナフサ、発電等に利用される。これは、対象とする石炭の炭質にもよるが、地表から送風する空気や酸素、水蒸気の割合に応じて、生成ガス成分の割合を、ある程度制御できるからであり、UCGの利点の一つでもある。

このUCGを、我が国の浅部 (0~1,200m深度) の未利用石炭に適用するには、解決しなければならない問題がある。経済性を考慮すると、厚層かつ連続した石炭層に対して複数のボーリングを掘削し、大規模なUCGを展開する必要があるが、我が国の浅部にはそのようなUCG展開に適した石炭層が少ない。また、浅部ではUCGの燃焼空洞周辺に発達した炭層・岩盤内のき裂により、地上へのガス漏洩、地盤沈下、地下水汚染の危険性がある。図-2は、過度な炭層や岩盤の破壊が引き起こす岩盤工学的な問題を表している。

一方で、燃焼領域周辺の熱応力による炭層内のき裂は、ガス化効率を左右する。すなわち、き裂の進展により酸化比表面積が増大し、燃焼・ガス化が連鎖反応として進展する。これにより、燃焼・ガス化領域が拡大、移動する。図-3は、この破壊による燃焼・ガス化領域の拡大を表した図である。

このように UCG に伴う炭層内の破壊活動は、安全性とガス化効率に関する二面性を有している。いずれの場合も、ガス化に伴う破壊活動の監視と制御が重要になる。本研究では、この破壊活動に注目し、破壊の監視として破壊音 (AE : Acoustic Emission) 計測法を検討してきた⁵⁾。特に、炭層内の温度変化と AE 発生頻度の関係、および AE 震源標定結果を用いた石炭の燃焼・ガス化領域の推定を試みている。以下に、人工炭層を用いた UCG モデル実験で計測した AE 活動に関して得られたいくつかの知見を報告する。

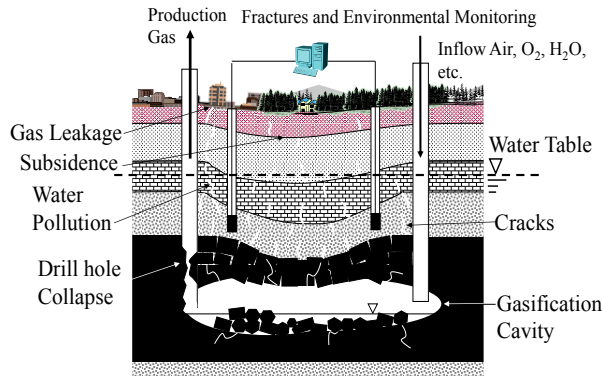


図-2 石炭地下ガス化の岩盤工学的問題

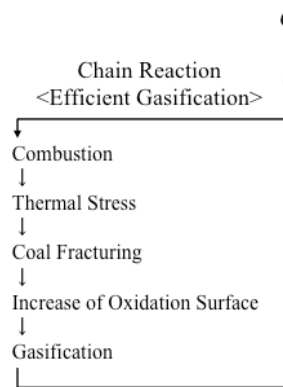


図-3 炭層破壊と石炭の燃焼・ガス化

2 人工炭層 UCG 実験

人工炭層 UCG 実験の全体図を、図-4 に示す。鋼製タンク内に、塊炭と粉炭の混合石炭を圧密充填することで、 $0.6 \times 0.55 \times 2.74$ m (幅×高さ×長さ) の人工炭層 (約 1.1 トン) を作製し、直径 45 mm、厚さ 1 mm のステンレス製の穴開きパイプ (パンチングパイプ) を埋設することにより注入孔、生産孔、リンキング孔を再現した。図中の Injection Hole 1 と Injection Hole 2 が空気と酸素の混合気体を注入する孔であり、Production Hole が生成ガスを回収する生産孔である。使用した石炭は、株式会社砂子組・三笠露天坑の美唄層の石炭である (表-1)。

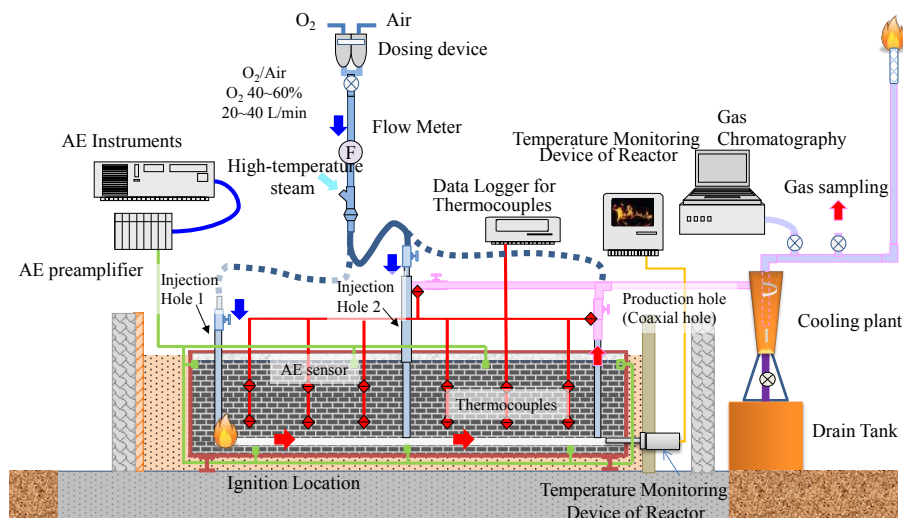


図-4 人工炭層を用いた石炭地下ガス化実験システム

表-1 美唄層石炭の代表的な工業分析値と元素分析値

水分 (%)	灰分 (%)	揮発分 (%)	固定炭素 (%)	全硫黄 (%)	発熱量 (MJ/kg)
3.20	17.42	37.97	41.41	2.05	26.35

C (%)	H (%)	N (%)	S (%)	O (%)
3.20	17.42	37.97	41.41	2.05

この人工炭層を用いて、リンキング方式2種類と同軸方式1種類の、三つの実験を行った。ここで、リンキング方式とは、酸化剤を送る注入孔と生産ガスを回収する生産孔の2本の孔を用いる方法である。同軸方式とは、1本の孔に二重管を入れ、内管を注入孔、外管を生産孔として用いる方法である。

・実験1：生産孔の下部で着火し、Hole 1から酸化剤を供給してHole 1方向に燃焼・ガス化領域を誘導する計画であったが、実際にはHole 1の孔底から燃焼・ガス化が進行、拡大した。この間、Hole 2は、閉じた状態になっている。酸化剤の全流量は25～29L/min、酸素流量は約20L/min（酸素濃度74～81%）である。この実験の終了時には、Hole 1から二酸化炭素を注入して消火した。

・実験2：生産孔の孔底で着火を試みたが、燃焼・ガス化が進行したのは、Hole 2の孔底からであった。この実験では、Hole 1を閉じ、Hole 2から酸化剤を供給し、生産孔からガスを回収した。酸化剤の全流量は20L/min、酸素流量16L/min（酸素濃度80%）である。終了時には、Hole 2から窒素を注入して消火した。

・実験3：Hole 1とHole 2を閉じた状態で、生産孔に同軸管（二重管）を設置して、生産孔周辺の石炭を対象に、同軸試験を実施した。酸化剤の流量と酸素割合は、当初の全流量を18L/min、酸素流量13L/min（酸素濃度74%）で開始した。しかし、1時間程度で同軸管の先端部分が溶断したため、その後、同軸管を交換して、全流量10L/min、酸素流量5L/min（酸素濃度53%）から、全流量28L/min、酸素流量21L/min（酸素濃度75%）まで段階的に流量と酸素の割合を増加させた。終了時には、二酸化炭素を注入して消火した。

実験1と実験2で、着火個所から燃焼・ガス化を進行できなかったのは、着火時の供給酸素濃度が比較的高かったことと（80%程度）、リンキング孔内の粉炭の影響と考えられる。

本報告では、その中で最も安定して生成ガスを回収でき、尚且つAE活動が活発であったHole 2を用いた2回目の実験2の結果について述べる。

(1) 実験装置

実験中は、K型熱電対（SUS310S; Chino 製）およびデータロガー（GL220; Graphtec 製）を用いて炭層内温度を計測した。AEの検出には、圧電型加速度トランスデューサ（620HT; Teac 製）を用い、AE波形をアンプ（SA-611; Teac 製）によって増幅の後、デジタル・オシロスコープ（GR-7000; Keyence 製）でAE波形全体を記録した。図5、6に熱電対および圧電型加速度トランスデューサの配置を示す。尚、本報告では、AE4からAE10の7個のトランスデューサにより検出されたAE波形を解析の対象にした。生成ガスの成分分析は、PC制御によりサンプリングから分析までを自動的に行うことが可能なマイクロガスクロ（Micro GC 3000A; Agilent Technologies 製）を用いて、1時間毎に分析した。分析対象としたガス成分は、酸素（O₂）、窒素（N₂）、二酸化炭素（CO₂）、水素（H₂）、一酸化炭素（CO）、メタン（CH₄）、エチレン（C₂H₄）、エタン（C₂H₆）、プロピレン（C₃H₆）、プロパン（C₃H₈）である。

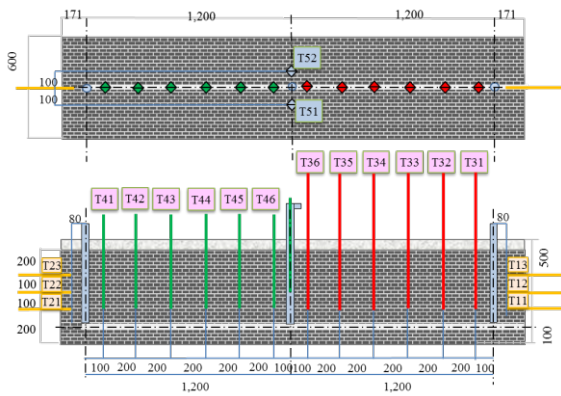
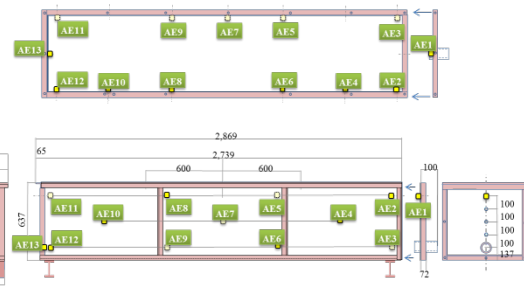


図-5 熱電対配置図 (上：平面図, 下：側面図)


 図-6 圧電型加速度トランスデューサの配置図
(上：平面図, 下：側面図)

(2) 実験手順

人工炭層への着火には、市販の着火剤と木炭を用いた。加熱した木炭を図-4 の生産孔 (Production Hole) の孔底に投入し、生産孔から黒煙が上がり石炭への着火を確認した後に、注入孔 (Hole 2) から酸素と空気の混合気体を注入した。燃焼・ガス化は 45 時間継続し、実験終了時には、注入孔から窒素を注入して消火した。

3 実験計測結果

(1) 炭層温度

炭層内温度を図-7 に示す。炭層内温度は生産孔の孔底で着火したにもかかわらず、注入孔の両側の熱電対 (T46 と T36) の温度が急上昇し数時間でピーク値 (約 1,300℃) に達した後、800℃まで徐々に低下する傾向を示した。これらの熱電対に続いて、リンキング孔と直交する注入孔周辺に設置した熱電対 (T51 と T52) の温度が急上昇し、10～15 時間経過時点でピーク値 (1,200～1,300℃) に達し、その後 800℃まで徐々に低下していった。更に 10 時間経過後には、T46 と T36 の外側に配置した熱電対 (T35 と T45) も徐々に温度上昇を示し、最終的には 600℃以上を示している。

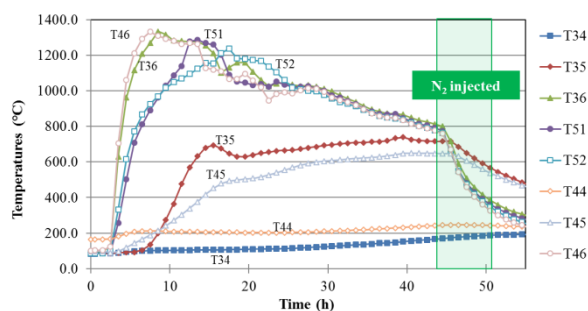


図-7 炭層内温度と AE イベント数の経時変化

以上より、燃焼・ガス化領域は注入孔 (Hole 2) 下部からその周囲の上部に向かって、さらには注入孔からリンキング孔に沿って外側に拡大していったものと推察できる。燃焼・ガス化領域が着火箇所周辺からではなく、注入孔付近から始まった原因は明らかでないが、室内規模の実験では燃焼チャンネルのスケールが石炭の熱伝導率や透過性と比較し小さいため、逆燃焼実験の実施が困難であることが報告されており⁶⁾、本実験においても燃焼チャンネルの長さが火炎の移動速度に対して十分でなかったため、燃焼領域が注入孔付近へ急速に移動したと推察される。

(2) 生成ガス濃度および反応石炭量の推定

図-8 は、生成ガスの主要成分の濃度変化を示している。図-8 より、着火後 CO 濃度が急激に増加し、それに相反して CO₂ 濃度が低下していることがわかる。H₂ 濃度は時折急増しているが、おおよそ 10%前後で推移している。CO 濃度がピーク値を過ぎ徐々に減少する間、CO₂ 濃度は徐々に増加していき、実験終了時点では CO 濃度は 10%を下回り、CO₂ が 50~60%を占めている。発熱量のピークは CO 濃度のピークと一致しており、およそ 12 MJ/m³である。

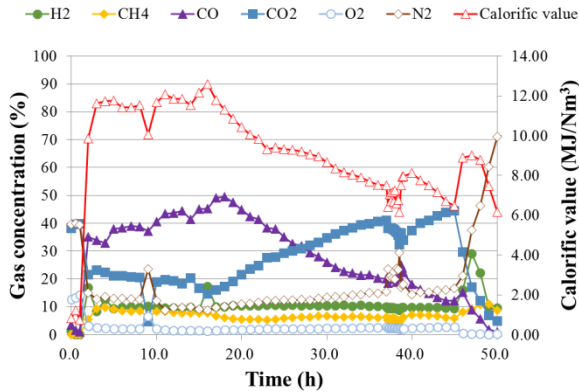


図-8 生成ガスの主要成分の濃度変化

次に、生成ガス濃度の結果より化学量論に基づく石炭の反応式の酸素収支を求め、反応石炭量を推定した。海保らは、石炭ガス化の反応式を (1) 式のように表すことで、生成ガスの H₂、CO、CO₂、CH₄ の濃度 (dry, N₂ free) を p、q、r、s とすると、酸素収支 α と水収支 β が、m、n 及び p、q、r、s によって表せることを示した^{7), 8)}。



すなわち、酸素収支 α は (2) 式で表せる。

$$\alpha = (q + 2r - p - 2s) / 2(q + r + s) + (0.5m - n) / 2 \quad (2)$$

また、酸素収支 α が求まると、(3) 式により注入酸素量 (反応した酸素量) から反応石炭量を求めることができる。

$$\text{反応石炭量 (kg)} = \text{酸素注入量 (mol)} / \alpha \times 12 / 1,000 \times C (\%) / 100 \quad (3)$$

以上より、本実験により得られた生成ガス濃度の結果に (1) ~ (3) 式を適用すれば、約 52.4kg の石炭が燃焼・ガス化により反応したと推定される。

4 AE計測による燃焼・ガス化領域の推定

実験中に計測された AE 波形を用いて、AE 震源標定を試みた⁹⁾。結果を図-9 に示す。ここで、震源位置を球で表し、球の大きさは相対エネルギーを反映している。相対エネルギーは、AE 震源位置における AE 波形の最大振幅値を二乗した値であり、破壊の規模を反映している。同図では、AE の発生時期に関

して前期を赤、中期を緑、後期を青で表している。

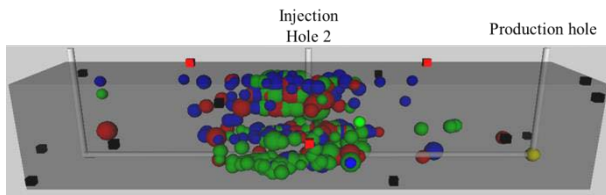


図-9 AE 震源標定解析結果

図-9より、着火した生産孔下部ではなく、注入孔周辺で多くのAEが発生していることがわかる。また、AEの発生時期と領域に関して、前期に発生したAEは注入孔周辺に集中している一方で、中期や後期では注入孔の上部に広がるような形状でAEが発生していると考えられる。これらの結果は、前節の炭層温度結果と調和的である。

次に、AE震源標定結果を用いて、燃焼・ガス化に伴う反応石炭量の推定を試みた。すなわち、3次元形状に対する要素分割法であるドロネー三角形分割法¹⁰⁾およびボクセル法を用いた反応石炭量の推定を試みた。ドロネー三角形分割法では、AE震源標定で得られた3次元点群データから、点群を逐次添加法により四面体で結合し、構築された立体モデルの体積を評価する。本手法では、相対エネルギーが0.01以下のAEデータと、AE震源分布の重心から一定距離以上のAEを除外して体積評価を行った。

ボクセル法では、図-10のような3次元形状の立体を格子点上の立方体（ボクセル）の集合として表現し、発生したAEの相対エネルギーに応じて一定範囲のボクセルに値を入力し、最終的にボクセルに入力された値の総和を反応石炭の体積として評価する。本手法では、相対エネルギーとボクセル体積の関係式として、本手法によって得られる反応石炭量が生成ガスの成分から推定された反応石炭量に近い値を示すように、(4) 式を試行錯誤的に定めた。

$$y = 6.14 x \quad (4)$$

ここで、 x ：相対エネルギー、 y ：ボクセルの体積（L）である。

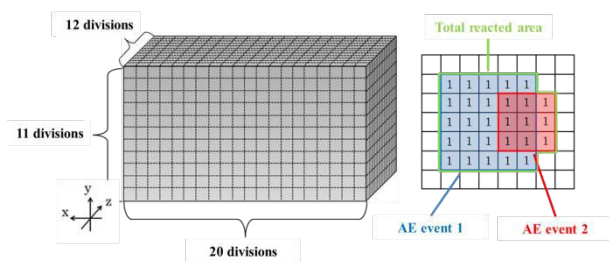
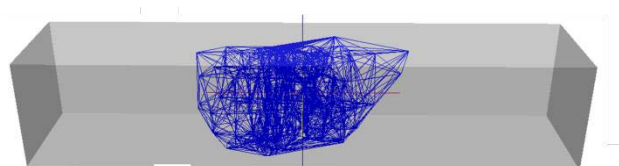


図-10 ボクセル表現

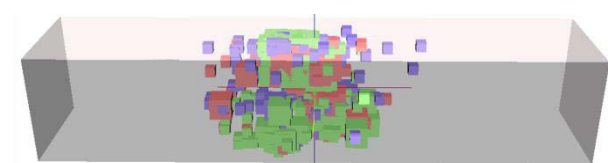
図-11 (a)、(b)にドロネー三角形分割法およびボクセル法による燃焼・ガス化領域の推定図を示し、表-2にそれぞれの手法による反応石炭量の推定結果を示す。

ドロネー三角形分割法より推定された体積＝79.9 Lから求めた反応石炭量は71.9 kgとなり、ガス分析結果から推定した反応石炭量と比べると、27.1%の誤差がある。この大きな誤差の原因としては、ドロネー四面体分割法の特徴上、凸形状で立体モデルを構築するため、燃焼領域が非凸形状である場合、過大に燃焼領域を推定してしまうことが挙げられる。また、本手法では、AE震源データを点群データとして取り扱っており、AEの相対エネルギーを考慮していないことも問題点として挙げられる。したがって、燃焼・ガス化体積の正確な推定のために、解析に用いる適切な点群データの選定、解析を行うデータ範囲の分割、AEの相対エネルギーに応じた大きさのボクセルや球を震源に与えて燃焼・ガス化体積を表現するなどの改善が必要である。

ボクセル法より推定された体積=65.8 L から求めた反応石炭量は 59.2 kg となり、ガス分析結果から推定した反応石炭量 52.4 kg と比較して近い値となった。ただし、今回用いた相対エネルギーとボクセル体積の関係を示す(4)式は今回の実験結果を基に試行錯誤的に定めたものであり、汎用的に用いることのできる式とは言い難い。したがって、燃焼・ガス化領域の推定の精度を向上させるために、AE 相対エネルギーだけでなく、温度分布と生産ガス成分も考慮して震源体積を与えるなど更なる改善が必要である。



(a) ドロネー四面体分割



(b) ボクセル法

図-11 燃焼・ガス化領域の推定

表-2 AEによる反応石炭量の推定結果

(石炭の乾燥密度 = 0.9 g/cm³として算出)

Methods vs Coal Consumed	Gas Analysis	Delaunay Triangulation	Voxel
Cavity volume (L)	N/A	79.9	65.8
Coal consumed (kg)	52.4	71.9	59.2

Methods vs Coal Consumed	Cavity volume (L)	Coal consumed (kg)
Gas Analysis	N/A	52.4
Delaunay Triangulation	79.9	71.9
Voxel	65.8	59.2

5 おわりに

破壊音 (AE) 計測によるAE震源標定結果と炭層温度計測による燃焼・ガス化領域の推定結果は調和的であり、AE計測による燃焼・ガス化領域の推定および可視化が可能であることがわかった。また、逐次添加法によるドロネー四面体分割法とボクセル法による体積推定では、いずれの手法においても燃焼・ガス化体積の正確な推定に課題を残したが、燃焼・ガス化領域を推定する新たな方法として活用できる見通しを得た。

今後は、AE震源標定結果(3次元点群データ)から、より精度の高い燃焼・ガス化領域の可視化技術の確立を目指す。また、実規模のUCGを見据えた、リアルタイム監視・可視化システムの開発も計画している。

謝辞

本研究は、北海道三笠市、(株) 砂子組、石炭地下ガス化研究会、室蘭工業大学環境科学・防災研究センター、並びに文部科学省科学研究費補助金基盤研究 (B) (21360441)、基盤研究 (A) (15H02332) の支援を受けて実施した。関係各位に、謝意を表す。

文献

- (1) Burnard, K.: International Energy Agency: Power Generation from Coal: An Ongoing Challenge, *Clean Coal Day*, Tokyo, Japan, 8-9 September, 2014.
- (2) Sumita, T.: Ministry of Economy, Trade and Industry, *Japan's Energy Policy and the Direction of Coal Policy*, Clean Coal Day, Tokyo, Japan, 8-9 September, 2014.
- (3) 株式会社環境総合テクノス：二酸化炭素炭層固定化技術開発成果報告書, 2004.
- (4) 黒岩忠春：石炭の地下ガス化, 炭鉱双書 7, 技術書院, 1961.
- (5) Su, F., Nakanowatari, T., Itakura, K., Ohga, K. and Deguchi, G. : Evaluation of Structural Changes in the Coal Specimen Heating Process and UCG Model Experiments for Developing Efficient UCG Systems, *Energies*, 6, 2013, p. 2386-2406.
- (6) Yong, C., Jie, L., Zhanqing, W., Xiaochun, Z., Chenzi, F., Dongyu, L., and Xuan, W.: Forward and reverse combustion gasification of coal with production of high-quality syngas in a simulated pilot system for in situ gasification, *Applied Energy*, 131, 2014, p. 9-19.
- (7) Kaiho, M., Yasuda, H. and Yamada, O. : A method of estimating the reaction process of coal gasification from the composition of gas produced, *Proc. of 45th Conf. of the Coal Science*, 45, 2008, p. 60-61.
- (8) Su, F., Itakura, K., Deguchi, G., Ohga, K. and Kaiho, M.: Evaluation of Energy Recovery from Laboratory Experiments and Small-scale Field Tests of Underground Coal Gasification (UCG), *J. of MMIJ*, 131(5), 2015, p. 203-218.
- (9) 吉田令, 板倉賢一, 佐藤孝紀, 蘇発強, 高橋一弘, 北川将大, 松原慎治, 小川智史, 大賀光太郎, 児玉淳一, 阪本直樹, 出口剛太：AE 計測法を用いた石炭の地下ガス化 (UCG) 実験における燃焼空洞の評価, 資源・素材学会春季大会講演集, 12(1), 2015, p. 1-5.
- (10) 今井浩, 今井桂子：3 角形分割と凸多面体, 数理解析研究所講究録, 934, 1996, p. 149-166.