九州大学学術情報リポジトリ
Kyushu University Institutional Repository

UCG 模型試験における破砕炭と塊炭の燃焼・ガス化特性の比較

児玉, 淳一
北海道大学大学院工学研究院環境循環システム部門 : 准教授

立川, 多久登
北海道大学大学院工学院環境循環システム専攻 : 修士課程

中, 良介
北海道大学大学院工学院環境循環システム専攻 : 修士課程

濵中, 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 : 助教

他

https://hdl.handle.net/2324/6793769

出版情報 : Journal of MMIJ. 134 (7), pp.91-98, 2018. The Mining and Materials Processing Institute of Japan
バージョン :
権利関係 : Creative Commons Attribution NonCommercial-NoDerivatives 4.0 International

KYUSHU UNIVERSITY

Journal of MMIJ
Vol.134, No.7, 2018
石炭エネルギー技術特集「石炭エネルギーの開発・利用」

論文
Original Paper

UCG 模型試験における破砕炭と塊炭の燃焼・ガス化特性の比較 *

児玉淳一[1]　立川多久登[2]　中　良介[2]　濱中晃弘[3]
板倉賢一[4]　出口剛太[5]　福田大祐[6]　藤井義明[7]

Comparison of Combustion and Gasification between Crushed and Block Coals in UCG Model Tests

by Jun-ichi KODAMA[a*], Takuto TATEKAWA[b], Ryosuke NAKA[b], Akihiro HAMANAKA[c], Ken-ichi ITAKURA[d], Gota DEGUCHI[e], Daisuke FUKUDA[a] and Yoshiaki FUJII[a]

a. Faculty of Engineering, Hokkaido University, N13W8, Kita-ku, Sapporo, 060-8628, Japan (*Corresponding author, E-mail: kodama@eng.hokudai.ac.jp)
b. Graduate School of Engineering, Hokkaido University, N13W8, Kita-ku, Sapporo, 060-8628, Japan
c. Faculty of Engineering, Kyushu University, 744 Motooka, Nishi-ku, Fukuoka, 819-0395, Japan
d. Graduate School of Engineering, Muroran Institute of technology, 27-1Mizumoto-cho, Muroran, 050-8585, Japan
e. Underground resources Innovation Network, N47E17, Higashi-ku, Sapporo, 007-0847, Japan

Small-scale underground coal gasification (UCG) model tests with a linking hole were carried out using two types of specimens made of either block coal or crushed coal to clarify their characteristics of combustion and gasification. Many similar characteristics were found between both specimens in terms of temperature change and its spatial distribution as well as concentration and heating value of each gas product as long as the crushed coal specimen was sufficiently consolidated. The shape and dimension of the cavity formed in the both specimens were also similar. Texture of the both specimens was changed after the combustion and gasification. Initiation of radial cracks from the linking hole was found in the both specimens. Within the zone with the radial cracks initiation, grains in the crushed coal were bonded whereas cleats in the block coal were healed. The grain bonding and the cleavage healing can be explained by melting and expansion of coal due to temperature increase. The radial cracks are likely initiated after the grain bonding or the cleavage healing due to tensile thermal stress induced by temperature gradient in the coal specimens. It can be concluded that the characteristics of combustion and gasification of the crushed coal and the block coal are similar because both types of coals become similar in texture through combustion and gasification. These results indicate that characteristics of combustion and gasification of coal seam can be mostly estimated from a model test with artificial coal seam made of crushed coal.
KEY WORDS: UCG, Crushed Coal, Block Coal, Combustion Cavity, Combustion and Gasification, Radial Cracks

1. はじめに

石炭の地下ガス化 (UCG: Underground Coal Gasification) は，地下に賦存している石炭をその場で燃焼・ガス化し，有用なガスを回収・利用する技術であり，燃焼灰などの有害な物質は地下に封印されるなど，安全性に優れかつ環境負荷の小さな石炭エネルギーの抽出技術といえる。このため，産炭国を中心に UCG が注目され始めており，米国，豪州，ウズベキスタンではすでに大規模なプラントが稼働中である[1)]。一方，指向性ボーリングの技術が進歩した昨今，日本においても UCG への関心が高まりつつある。周知のように，我が国には，深部化や急傾斜などの保安上や経済的な問題のため，従来の採炭技術では開発が困難な未利用の石炭が豊富に賦存している。UCG は，これらの炭層の開発・利用を可能にする方法として期待されている。

UCG の実用化には，生産ガスの高品質化に加え，燃焼・ガス化の制御技術の開発が重要になる。このため，石炭の燃焼・ガス化における化学反応や生産ガスの成分・発熱量の分析[1-5)]，炭層内での注入ガスと生産ガスの流れ[6)]，炭層中の温度分布や熱伝導に関する研究[4, 5, 7)]が行われており，これらを連成させた数値解析手法[8-10)]も開発されている。また，燃焼・ガス化により形成される炭層内の燃焼空洞の観察[11)]や燃焼空洞の周辺岩盤の安定性評価[12)]，燃焼・ガス化により発生する微小破壊の計測[13)]も行われている。このように，多様な観点から UCG に関する研究が進められているが，石炭の燃焼・ガス化特性は，固定炭素や水分，揮発分の量比などの石炭の性状に依存することが指摘されており[14)]，UCG の実用化には開発の対象となる炭層の特性を把握することが肝要と考える。

*2018 年 1 月 13 日受付　2018 年 5 月 28 日受理
1. 正会員 博士 (工学) 北海道大学大学院 工学研究院環境循環システム部門 准教授
2. 学生会員 北海道大学大学院修士課程 工学院環境循環システム専攻
3. 正会員 博士 (工学) 九州大学大学院 工学研究院地球資源システム部門 助教
4. 正会員 工博 室蘭工業大学大学院 しくみ情報系領域 教授
5. 正会員 工博 地下資源イノベーションネットワーク理事
6. 正会員 博士 (工学) 北海道大学大学院 工学研究院環境循環システム部門 助教
7. 正会員 博士 (工学) 北海道大学大学院 工学研究院環境循環システム部門 教授
[著者連絡先] FAX: 011-706-6300
E-mail: kodama@eng.hokudai.ac.jp
キーワード : UCG，破砕炭，塊炭，燃焼空洞，燃焼・ガス化，放射状き裂

DOI http://doi.org/10.2473/journalofmmij.134.91
© 2018 The Mining and Materials Processing Institute of Japan

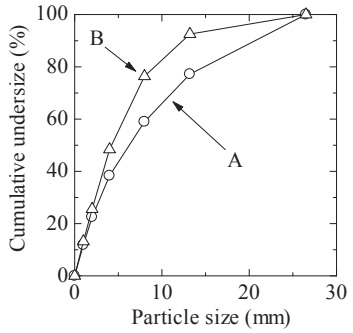


Fig.1　Particle size distribution curve for crushed coals.

Table 1　Quantitative industrial and elemental analyses.

Calorific value (MJ/kg)	Proximate analysis (wt %)				Ultimate analysis (wt %)				
	Fixed Moisture	Ash	Volatiles	Fixed carbon	C	H	N	S	O
32.12	2.1	4.3	43.1	50.5	78.4	5.74	1.44	0.07	9.94

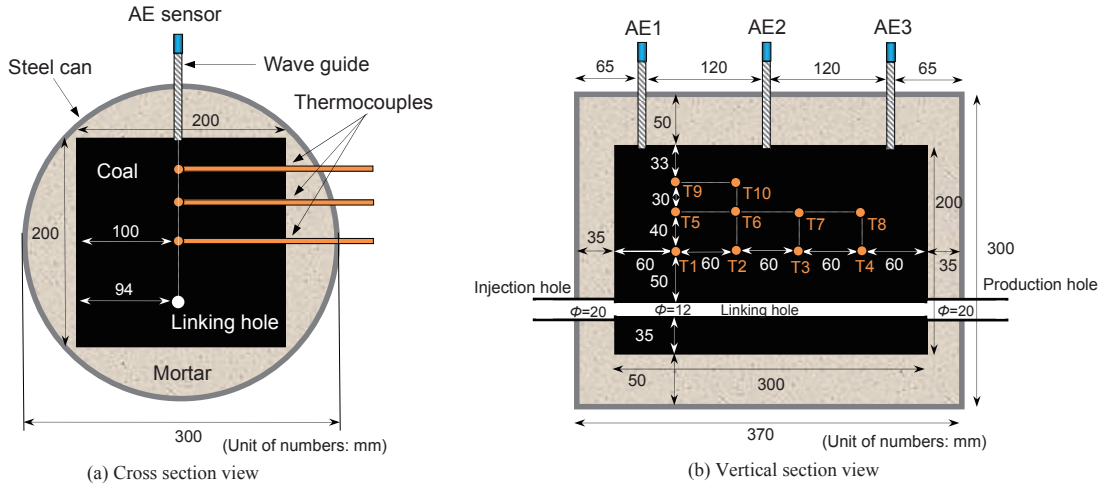


Fig.2　Dimension of specimen and configuration of thermocouples and AE sensors.

以上の背景の下，筆者らは石狩炭田に賦存する炭層を対象としたUCGの実用化に向けて，美唄層を用いた模型実験を行ってきている[15, 16]。そして，AE計測や人工炭層内の温度分布の分析，ガスの生成量や成分の分析等により燃焼・ガス化領域の推定が可能となり，燃焼空洞の形状・体積や反応石炭量が評価できること[15]，注入ガスの流量が大きいほど炭層の温度が高くなり，生産ガスの発熱量やエネルギー効率が高くなること[16]などの知見を得ている。しかし，実施した大型模型実験[15]では，ガス化炉の寸法(長さ約350 cm)に対応した一枚の石炭ブロックを炭層から切り出すのは困難であったため，美唄層から採取した破砕炭を圧密することにより人工的に炭層を作製した。このようにこの大型模型実験で用いた炭層は天然の炭層とは構造が異なるため，実験結果から炭層の燃焼・ガス化特性を評価するには，圧密した破砕炭と塊炭の燃焼・ガス化特性の類似点と相違点を明確にする必要がある。一方，UCGにおけるリンキング孔などの周囲の炭層は，応力集中により圧砕され，細片化することも予想される。したがって，この観点からも塊炭と破砕炭の両者の燃焼・ガス化特性の把握が必要と考える。

本研究では，塊炭と圧密した破砕炭を用いて小規模UCG模型実験を実施し，両者の燃焼・ガス化特性について比較検討するとともに，石炭の燃焼・ガス化に伴う物理現象について考察する。具体的には，美唄層から採取した塊炭と破砕炭を対象に，ペール缶内でリンキング方式のUCG模型実験を行い，石炭試料の温度変化・分布，微小破壊の発生状況の把握や生産ガスの成分と発熱量の分析を実施するとともに燃焼・ガス化後の石炭の構造を観察する。そして，これらの結果に基づいて，燃焼・ガス化に伴う石炭の物理的な変化について考察する。

2. 実　験　方　法

2・1　供試体の作製方法

三美鉱業株式会社の西向沢露天坑(北海道美唄市)の美唄層4番層から，寸法が約40 cm×約40 cm×約40 cmのブロック状の石炭と粒径分布がFig. 1中のAである小割された石炭(破砕炭試料A)の2種類を採取した。美唄層4番層の石炭の工業分析と元素分析の結果はTable 1の通りである。ブロック状の石炭からは，さらに2種類の試料を作製した。一つは約20 cm×約20 cm×約30 cmの直方体状に整形した塊炭試料であり，もう一つは上記の破砕炭試料Aとほぼ同様な粒径分布になるように破砕した破砕炭試料B(Fig. 1中のB)である。これら3種類の石炭試料を用いてペール缶の中でリンキング方式の燃焼・ガス化実験を実施するために，以下の方法でFig. 2に示す供試体を作製した。なお，破砕炭試料A，破砕炭試料Bの最大粒径はともに約27 mmであるが，50%粒径はやや異なり，それぞれ約6 mmと約4 mmであった(Fig. 1)。また，塊炭試料，破砕炭試料A，破砕炭試料Bの含水比は，それぞれ1.4%，2.2%, 2.5%であり，実験室に同じ条件で保管していたにもかかわらず，含水比は破砕炭の方が大きかった。

(1) 塊炭試料を用いる場合：注入孔用と生産孔用のパイプを取り付けた直径30 cmのペール缶内に塊炭試料を設置した。そして塊炭試料とペール缶の隙間に耐火モルタルを注入し，モルタルが固結した後に塊炭試料内に直径約12 mmのリンキング孔を設けた。

© 2018 The Mining and Materials Processing Institute of Japan
http://doi.org/10.2473/journalofmmij.134.91

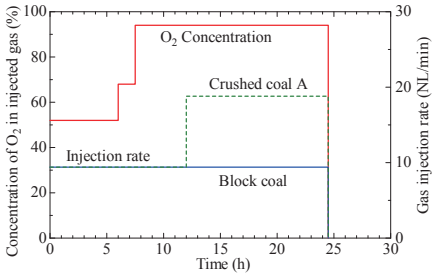


Fig.3　Flow rate and O_2 concentration of injection gas.

(2) 破砕炭試料を用いる場合：耐火モルタルを用いてペール缶内に内寸が約 20 cm ×約 20 cm ×約 30 cm の型枠を作り，リンキング孔の位置にステンレスの網を巻き付けた直径 10mm の鉄棒を設置した。そして，型枠内に破砕炭を敷き詰め，適宜金属板を用いて圧密した。着火前に鉄棒を引き抜き，ステンレス鋼の網で支保されたリンキング孔を設けた。石炭試料 A を用いたときには圧密圧力を約 100 kPa としたが，後述するように試験中にリンキング孔が閉塞した可能性がある。このため，石炭試料 B を用いたときには圧密圧力を約 300 kPa にした。

いずれの供試体でも石炭試料と蓋との隙間を耐火モルタルで充填し，3 日間以上養生した。その後，ペール缶の表面から 10 本の孔を設け，高温対応型の熱電対 ((株) チノ :SUS310S) を埋設した。熱電対の埋設位置は Fig. 2 の通りであり，リンキング孔からの距離により，下段 (T1-T4), 中段 (T5-T8), 上段 (T9, T10) の 3 つのグループに分けられる。また，ペール缶の表面から別に設けた 3 本の孔にウエーブガイドを挿入し，それぞれの先端に AE センサー ((株) TEAC:620HT, 周波数応答 0-10kHz) を取り付けた (Fig. 2) 。以下では，塊炭試料，破砕炭試料 A，破砕炭試料 B を用いて作製した供試体をそれぞれ，塊炭，破砕炭 A，破砕炭 B と呼ぶ。

2・2　実験システムと計測項目

空気と酸素の混合ガスを注入孔 (Fig. 2 (b)) から注入させ，生産孔 (Fig. 2 (b)) から流出するガス (生産ガス) の成分をマイクロガスクロマトグラフィー (INFICTION Micro GC 3000A, カラム :MolSieve 5 および Plot Q) により 1 時間毎に分析するとともに，サーモグラフィカメラを用いてペール缶の表面温度を計測した。なお，冷却装置と脱水装置により生産ガス中のタール分と水分を除去し，成分の計測時以外は生産ガスを大気中に放流した。また，供試体内の温度と AE カウント数を，それぞれ熱電対と AE センサーにより 1 分ごとに計測するとともに，ペール缶を載せた V ブロックの下部にロードセルを設置して，供試体の重量の変化を測定した。なお，AE カウント数は，次のように計測した。① AE センサーで捉えた AE 信号を増幅器 (TEAC SA-611, 周波数応答 0.2Hz-30kHz) で 20dB 増幅する。②ノイズを除去できる適切な閾値 (0-10V で可変) を状況に応じて設定する。③閾値を越える AE 信号を AE 計数装置 (タートル工業 , 不感時間 10ms) で計数する。

2・3　燃焼・ガス化実験の手順と条件

注入孔の孔口付近の石炭部分をガスバーナーで加熱して着火した。注入ガスの流量は原則として 10NL/min とし (Fig. 3), 最初に塊炭を用いた実験を行った。注入ガス中の O_2 濃度は 52% に設定したが，後で示すように短時間で可燃性ガスの生成が不活発になったため，O_2 濃度を段階的に大きくし，実験開始の 7.5 時間後からは今回用いた純酸素発生装置の上限値である 94% に固定した (Fig. 3) 。そして，実験開始から約 24 時間後に燃焼・ガス化実験を終了し，消火のため CO_2 を 10 NL/min の流量で 1 時間注入した後，供試体を密閉状態で放置して冷却した。次に行った破砕炭 A に対する実験では，塊炭の実験と同じ条件で O_2 濃度を変化させたが，O_2 濃度を上限値の 94% にしても燃焼が進まなかった。このため，実験開始から約 12 時間後に注入流量を 20 NL/min に増加させたが (Fig. 3), 燃焼状態の改善は見られなかった。以上の結果を踏まえ，最後に実施した破砕炭 B を用いた実験では，最初から注入ガスの O_2 濃度を 94% に設定して燃焼・ガス化を行い，実験開始から約 16 時間後に塊炭の実験と同じ条件で消火・冷却を行った。

2・4　燃焼・ガス化実験後の供試体の観察

室温まで温度が低下した供試体から熱電対とウエーブガイドを引き抜き，これらが挿入されていた孔をパテで塞いだ後，注入孔あるいは生産孔から石膏を注入した。燃焼・ガス化により供試体内に形成された空間は石膏で充填されるため，石膏の分布状況から燃焼領域やき裂の発生などを把握できる。石膏が固結した後に塊炭と破砕炭 B の供試体を約 5 cm 間隔で輪切りにし，その横断面 (円形断面) の様子をカメラで撮影した後，ペール缶の長さ方向にさらに 2 つに切断し，縦断面の様子を撮影した。破砕炭 A では石膏がほとんど注入できず，また，切断により供試体が崩れやすい状態にあったため，供試体の中央部分の 1 つの横断面のみ観察した。なお，石膏の注入により観察可能なき裂の幅などの詳細については不明であるが，肉眼で判別できる程度のき裂には石膏が浸透していることを確認している。

3.　実験結果および考察

3・1　各供試体の温度とガス成分の変化の特徴

熱電対による供試体内の温度の計測結果を Fig. 4 に示す。ま

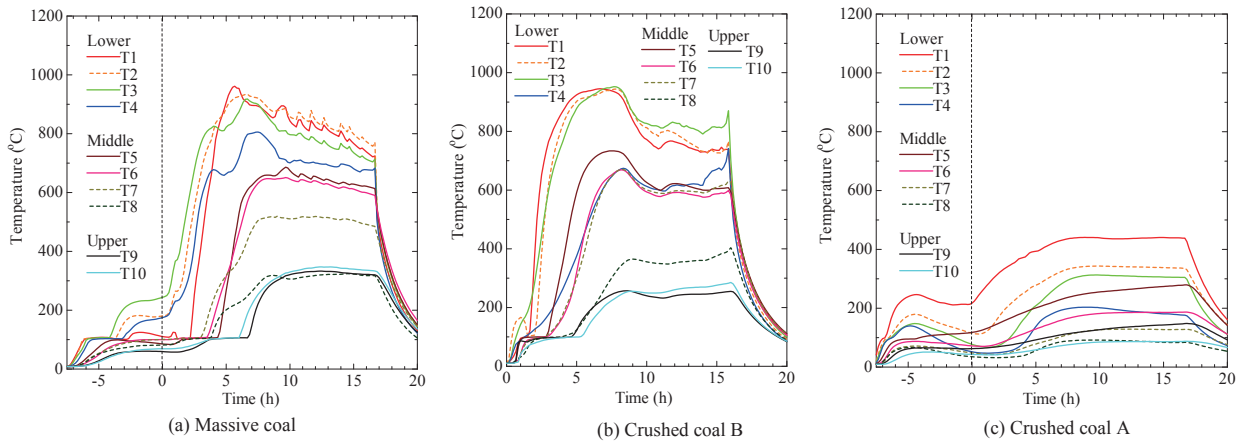


Fig.4　Temperature in coal specimens. O_2 concentration was set at 94% at 0 h.

http://doi.org/10.2473/journalofmmij.134.91
© 2018 The Mining and Materials Processing Institute of Japan

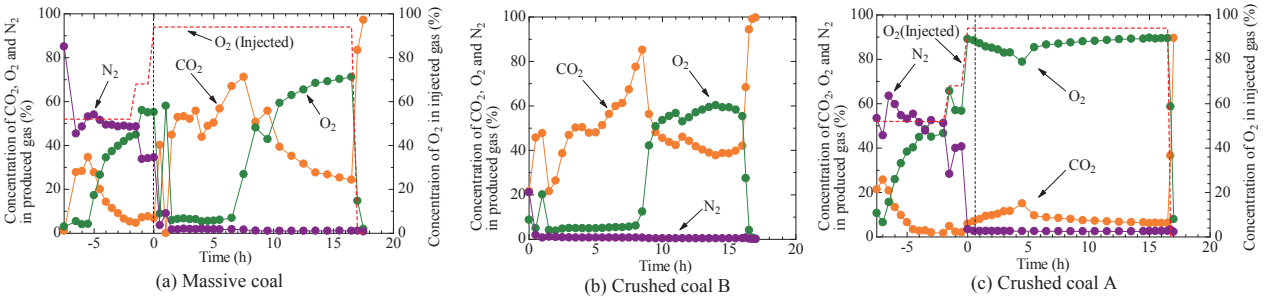


Fig.5　Concentration of CO_2, O_2 and N_2 in product gas.

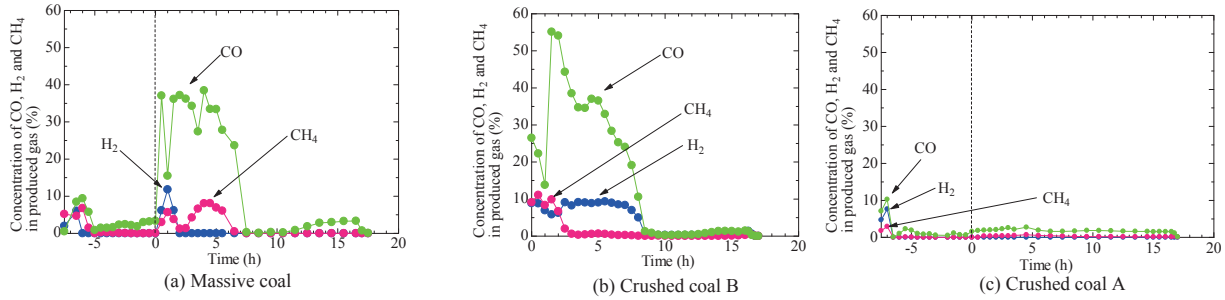


Fig.6　Concentration of CO, H_2 and CH_4 in product gas.

た，生産ガスの成分の分析結果を Fig. 5 と Fig. 6 に示す。破砕炭 B との比較のため，塊炭と破砕炭 A の結果は O_2 濃度を 94% に設定した時刻を 0 h として示している。

塊炭では，O_2 濃度を 94% に設定すると，温度の変化や生産ガスの成分に大きな変化がみられる (Fig. 4 (a), Fig. 5 (a), Fig. 6 (a))。すなわち，リンキング孔に近い T2，T3，T4 の温度が急激に上昇するとともに，CO_2 と CO の濃度はともに 40% 付近まで増加し，O_2 の濃度は 10% 以下に低下する。これらのことから，塊炭では O_2 濃度を 94% に設定した後に燃焼・ガス化が活発になったことがわかる。一方，破砕炭 A では，O_2 濃度を 94% に設定しても，温度と CO_2，CO の濃度の大きな上昇や O_2 の濃度の減少が見られず，また，注入ガスの流量を 20 NL/min に増加させても大きな変化は認めらなかった (Fig. 4 (c), Fig. 5 (c), Fig. 6 (c))。これに対し，O_2 濃度を最初から 94% に設定した破砕炭 B では，着火後 1 ～ 2 時間で温度や CO_2，CO の濃度の急増が見られるとともに，O_2 の濃度は 10% 以下の低い値を示している (Fig. 4 (b), Fig. 5 (b), Fig. 6 (b))。以上のことより，O_2 濃度を 94% に設定した後の塊炭と破砕炭 B の結果から塊炭と破砕炭の燃焼・ガス化特性の比較を行うことにする。なお，破砕炭 A では燃焼・ガス化があまり進まなかった (Fig. 4 (c), Fig. 5 (c), Fig. 6 (c))。この原因として，2・1 で述べたように，圧密圧力が小さかったため石炭粒子の崩落などによりリンキング孔が閉塞し，注入ガスが着火部分とは異なる流路を通っていたことが考えられる。

サーモグラフィカメラによる実験中のペール缶の表面温度の測定例を Fig. 7 と Fig. 8 に示す。それぞれ，塊炭と破砕炭 B の結果であり，ともに注入孔側から撮影した画像である。図中の時間 t は O_2 濃度を 94% に設定してからの時間であり，寒色，暖色，白色の順に温度が高くなっていく。両図より，温度分布は注入孔を中心とした同心円状になること，高温の領域が次第に外側へ拡大していくことがわかる。これらのことより，少なくとも注入孔に近い部分では，塊炭，破砕炭 B ともにリンキング孔の表面から同心円状に燃焼が進行したと推定できる。

3・2　塊炭と破砕炭の温度とガス成分の特徴の比較

3・2・1　供試体の温度の変化　破砕炭 B と O_2 濃度を 94% に設定した後の塊炭の温度の変化には，次のような類似点が認められる (Fig. 4 (a), (b))。①リンキング孔に近い熱電対ほど，温度の上昇が早く，かつ高い温度を示す。②リンキング孔に近い熱電対 (T1，T2，T3) の温度は 5 ～ 6 時間以内に約 950 °C まで上昇した後，低下傾向を示す。③リンキング孔に近いが，注入孔からは遠い熱電対 (T4) の温度は約 600 ～ 800 °C までしか上昇せず，T1 ～ T3 に比べて低い。④リンキング孔から最も離れている熱電対 (T9, T10) で顕著であるが，最初の段階では温度が 100 °C 前後で推移する期間がある。

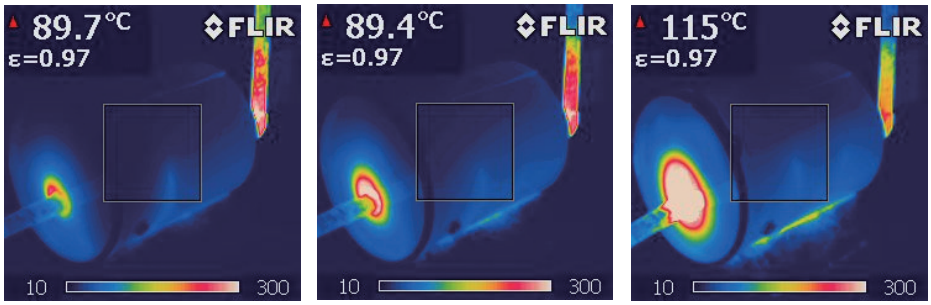
以上のことから，塊炭と破砕炭 B の温度の空間分布とその時間変化は互いに類似しており，注入孔から少なくとも 180 mm の位置までは，リンキング孔から外側に向かってほぼ同時に燃焼が進行し，生産孔に近い 240 mm の位置ではやや遅れて燃焼が進んだと考えられる。また，上記④は，水が気化して水蒸気が生成されるためと考えられるが，このことは，塊炭と破砕炭 B ではともに，水蒸気が継続して生成される期間があることを意味している。

3・2・2　生産ガス中の成分の濃度と生産ガスの発熱量の変化

破砕炭 B と O_2 濃度を 94% に設定した後の塊炭の生産ガスの濃度の変化には次のような類似点が認められる (Fig. 5 (a), (b), Fig. 6 (a), (b))。① CO_2 の濃度は 7 ～ 8 時間まで増加傾向を示し，70 ～ 85% に達した後に 50% 程度まで急激に減少し，その後は緩やかな減少を示す。② CO の濃度は初期段階で急増傾向を示し，1 ～ 2 時間程度で 40 ～ 55% に達するが，その後は次第に減少傾向を示し，CO_2 の濃度とは逆の変化を示す。③ CO_2 の濃度が急減するときには CO の濃度はほぼ 0 になっている。④ CO_2 の濃度が増加あるいはほぼ一定の範囲で推移している 7 ～ 8 時間の間は O_2 の濃度が小さく 10% 以下の値を保つ。しかし，CO_2 の濃度が急減するのと同時に O_2 の濃度は 50% 程度まで急増し，その後は緩やかに増加する。

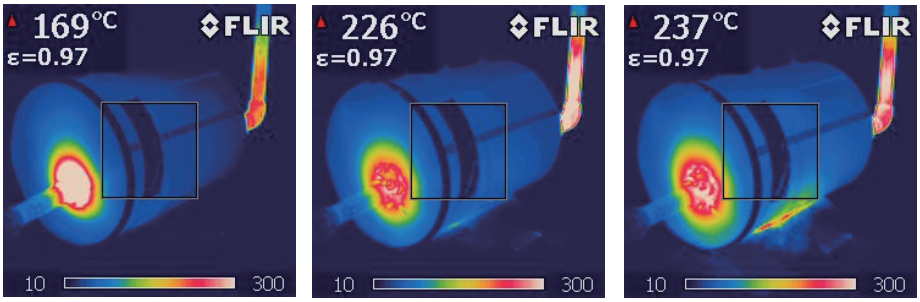
一方，両者には以下のような相違点が認められる。⑤塊炭で

© 2018 The Mining and Materials Processing Institute of Japan
Doi http://doi.org/10.2473/journalofmmij.134.91



(a) t =1h　　(b) t =3h　　(c) t =5h

Fig.7　Surface temperature detected by an infrared camera during combustion and gasification of massive coal specimen.



(a) t =1h　　(b) t =3h　　(c) t =5h

Fig.8　Surface temperature detected by an infrared camera during combustion and gasification of crushed coal specimen B.

は H_2 の発生が 2 時間ほどでほとんど見られなくなるのに対して，破砕炭 B では 7 時間ほど 10% 前後の値を保つ。⑥両者ともに最初の約 2 時間で CH_4 の発生が見られるが，その後，破砕炭 B では CH_4 の発生がほとんど見られなくなるのに対し，塊炭では再び 10% 程度の発生が見られる。

生産ガス中の O_2 の濃度は燃焼現象と直接対応している。したがって，上記④より，塊炭，破砕炭 B ともに 7 ～ 8 時間はほぼ一定の割合で燃焼が進行したと考えられる。また，上記①と②より，CO の濃度は初期の段階を除くと減少傾向にあるのとは対照的に CO_2 の濃度は 7 ～ 8 時間は増加傾向にある。したがって，この間の CO_2 に対する CO の量比 (CO/CO_2) は次第に低下している。微粉炭のチャーの酸化燃焼反応では，温度の低下により CO/CO_2 は減少することが知られている [17]。また，石炭のガス化反応の平衡定数は温度に依存し，温度が低下すると相対的に CO は減少し，CO_2 が増加することが明らかにされている [18]。今回の塊炭と破砕炭 B の実験では，温度の高いリンキング孔付近から温度の低い外側に向かって燃焼・ガス化領域が移動したため，CO_2 の濃度が増加したと考えると上記の CO と CO_2 の増減を説明できる。また上記⑤と⑥のように，塊炭では相対的に CH_4 の生成が多く，破砕炭 B では H_2 の生成が多かった。

(1) 式で表される CH_4 と H_2 の間の可逆反応である水添ガス化反応は温度に依存し，温度が低下すると CH_4 が増加する [18]。

$$C + 2H_2 = CH_4 + 75kJ \quad \cdots\cdots (1)$$

塊炭では，この水添ガス化反応が支配的であると考えると，より低温の外側へガス化領域が移動し，CH_4 の濃度が相対的に大きくなったと解釈できる。一方，破砕炭 B では，2・1 で述べたように塊炭に比べて含水比が高い。このため，CH_4 と H_2O から H_2 が生成されるメタン水蒸気改質反応 ((2) 式) が起こりやすいと考えられる。すなわち，破砕炭 B では水添ガス化反応に加えて，メタン水蒸気改質反応が起き，このため相対的に H_2 の生成が多かったと解釈できる。

$$CH_4 + H_2O = CO + 3H_2 - 206kJ \quad \cdots\cdots (2)$$

このことは，塊炭と破砕炭 B の間で見られた CH_4 と H_2 の濃度の違いは，試料の形状の相違ではなく含水比の違いによることを示唆している。しかし，今回の実験におけるガス化反応の詳細は不明であり，CH_4 と H_2 の濃度の違いについては今後の課題としたい。

Su et al.[5] と同様な手法で CO，H_2，CH_4 の濃度から計算した塊炭と破砕炭 B の生産ガスの発熱量を Fig. 9 に示す。最初の 3 時間程度の間は，塊炭に比べて破砕炭 B の方が発熱量は大きい。これは，この時間帯で破砕炭 B の CO 濃度が 15% ほど高かったことによるが，発熱量が比較的一定になった 3 ～ 5 時間ではともに 6MJ/Nm^3 前後の値を示している。このことより，塊炭と破砕炭では，CH_4 と H_2 の濃度に違いがあるものの，途中から発熱量にはそれほど違いが見られなくなることがわかる。

3・3　供試体の重量の変化と AE の発生状況

ロードセルで計測した供試体の重量の変化を Fig. 10 中に示す。図より，塊炭，破砕炭 B ともに，時刻 0 からほぼ一定の割合で重量が減少することがわかる。塊炭では 6 時間ごろから減少割合が小さくなるが，重量変化が見られなくなる約 10 時間後までの積算重量ロスは両者ともに約 -12 kg であり，最終的な重量の減少はほぼ等しい。このことは，両者の反応石炭量がほぼ同じであることを意味している。なお，重量の減少割合の低下と生産ガス中の O_2 濃度の増加はともに燃焼・ガス化が不活発になり，注入ガスがそのまま排出されることを意味するが，塊炭，破砕炭 B ともに，O_2 濃度の増加開始時刻 (Fig. 5 (a), (b)) と重量の減少割合の低下時刻 (Fig. 10 (a), (b)) は概ね一致しており，両者の結果は矛盾しない。

DOI http://doi.org/10.2473/journalofmmij.134.91
© 2018 The Mining and Materials Processing Institute of Japan

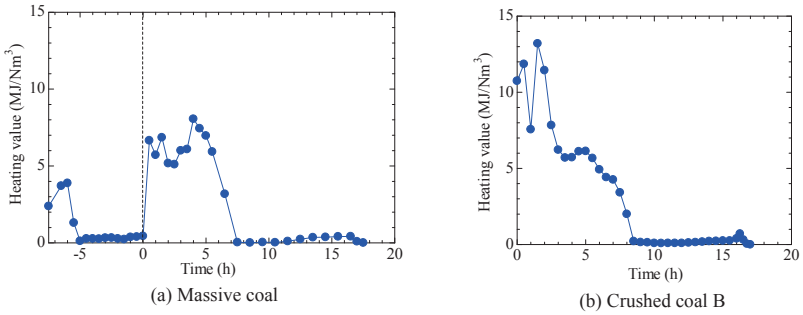


Fig.9　Heating value of product gas.

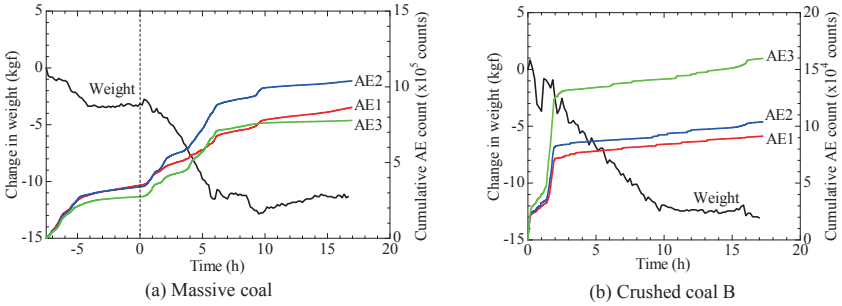


Fig.10　Change in weight and cumulative AE count.

3 つの AE センサー (Fig. 2 (b)) で計測した AE カウント数の累積値を Fig. 10 中に示す。塊炭の AE カウント数の増加は重量の減少傾向と良く対応している。すなわち，着火直後 (t = -7.5 h) にほぼ一定の割合で増加し，重量変化が小さくなる t = -5 h ごろから AE の発生も少なくなっている。その後，酸素濃度を 94% に設定すると再び急増し，t = 6 h までは比較的一定の割合で増加している。一方，破砕炭 B の AE カウント数の増加は重量変化とあまり対応していない。AE は着火とほぼ同時に頻発するが，2 h 後から発生割合はかなり小さくなっている。

以上のことは，AE の発生状況から，塊炭の燃焼・ガス化の進行を推定できるが，破砕炭の燃焼・ガス化の進行は推定できないことを意味する。しかし, 破砕炭を用いた大型模型実験では燃焼・ガス化が継続している約 200 h の間を通して AE の発生が認められたことが報告されている [15]。この大型模型実験で用いた破砕炭の粒径や圧密応力は不明であるが，これらの条件が異なるために破砕炭 B では AE の発生を継続的に捉えることができなかった可能性がある。

3・4　燃焼後の供試体の断面の様子

供試体の縦断面と横断面の様子を，それぞれ Fig. 11 と Fig. 12 に示す。2・4 で述べたように，図中の白色部分は燃焼・ガス化実験終了後に注入した石膏であり，空洞やき裂に対応している。図より塊炭と破砕炭 B には以下のような共通の特徴があることがわかる。①注入孔から生産孔まで半円状のほぼ同じ高さの空洞が形成されている。②縦断面内では，注入孔から生産孔に至るまで空洞の上部の石炭の未燃焼領域にき裂が発達している。横断面内ではこれらのき裂は放射状になっている。また，塊炭と破砕炭 B のき裂が発生している領域 (リンキング孔の表面から 100 mm ～ 120 mm) には，それぞれ次のような特徴が認められる。③塊炭では炭理がほとんど見えなくなっている。④破砕炭 B では粒子同士が癒着しており，粒界が不鮮明になっている。

上記①はペール缶の表面の温度分布が同心円状であったこと (Fig. 7, Fig. 8) と調和的であり，両供試体ともにリンキング孔の表面から外側へ向かって燃焼が進行したことを裏付けている。また，上記②，③，④は，燃焼・ガス化のプロセスにおいて，破砕炭と塊炭の構造が同じような状態に変化したことを意味しており，既に明らかにした塊炭と破砕炭 B の燃焼・ガス化特性の類似性は構造の類似性によるものと解釈できる。なお，破砕炭 A では石炭粒子が癒着しておらず，き裂の発生も認められておらず (Fig. 12 (c)), このことも上述した解釈を裏付けている。

以上のことより，破砕炭 B の燃焼・ガス化特性は塊炭と類似していることがわかった。したがって，少なくとも今回の実験と同様な条件の下では，圧密した破砕炭を用いた実験から炭層の燃焼・ガス化特性をある程度は推定できると考える。

3・5　石炭の構造の変化とき裂の発生のメカニズムに関する考察

3・4 で明らかにしたように，塊炭と破砕炭 B ではともにリンキング孔の表面から放射状のき裂の発生が認められ，また，き裂の発生した領域では，粒間の隙間 (破砕炭) や炭理 (塊炭) が見えなくなっていた。ここでは，これらの石炭の構造の変化とき裂の発生の原因について考察する。

3・5・1 石炭の構造の変化　石炭を乾留してコークスを作製するプロセスでは，以下の物理現象が起きることが知られている [19]。①温度が 400 °C を越えると石炭粒子は軟化溶融するとともに，内部におけるガスの発生により体積膨張が起きる。②この体積膨張により石炭の粒子同士が癒着し，粒子間の空隙が充填される。③温度が 450 °C ～ 500 °C になると，多環芳香族分子の縮重合により再固化が起き，体積収縮が始まる。以上の物理現象が今回用いた破砕炭 B でも起きたと考えると実験結果を説明できる。破砕炭 B では，リンキング孔の表面から 90 mm 以内にある T1-T7 で最高温度が 600 °C を越えている (Fig. 4 (b))。これに対して，破砕炭 A では，リンキング孔に最も近い T1 の温度が 400 °C をやや越えているものの，その他の熱電対の温度は 350 °C 未満である。すなわち, 破砕炭 B では温度が十分に高かったため，体積膨張による粒子の癒着が起きたが，破砕炭 A では，温度の上昇が小さかったため変化しなかったと解釈できる。一方，塊炭

© 2018 The Mining and Materials Processing Institute of Japan
Doi http://doi.org/10.2473/journalofmmij.134.91

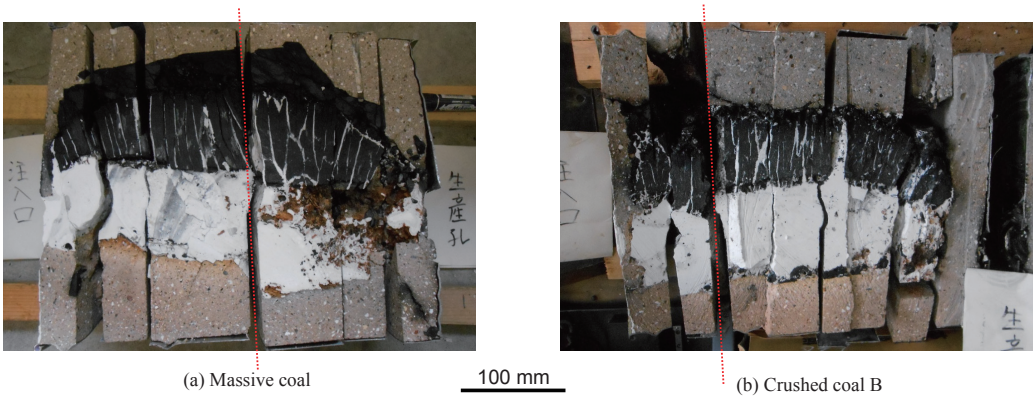


Fig.11　Vertical section view of the coal specimens after combustion and gasification.

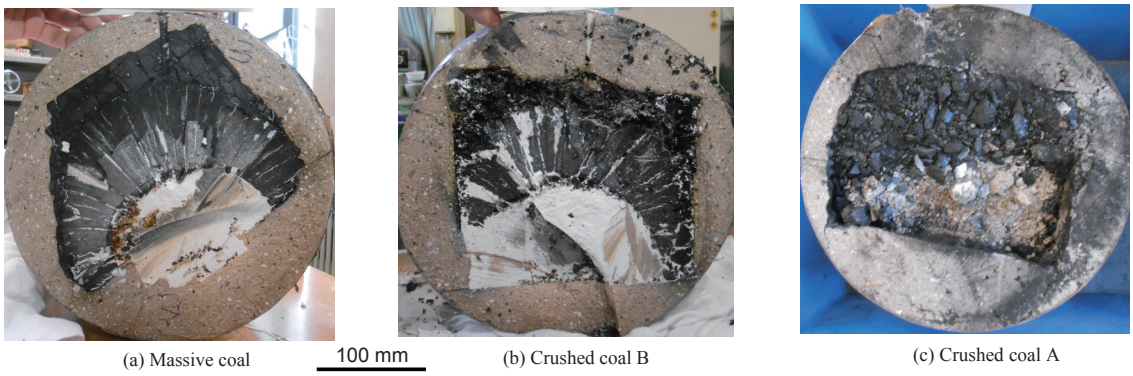


Fig.12　Cross section view of the coal specimens after combustion and gasification.

でも T1-T7 で最高温度が 600 °C を越えている (Fig. 4 (a))。このため，上記②の体積膨張により炭理が癒着したと考えると，破砕炭 B と同様な解釈が可能である。なお，塊炭と粉砕炭 B で構造の変化が見られた領域はリンキング孔の表面からおよそ 100 mm-115 mm の範囲にある。この範囲は T1-T4 (下段) と T5-T7 (中段) の熱電対を含んでおり，上述した観察結果と矛盾しない。なお，3・1 で述べたように，破砕炭 A では，石炭粒子の崩落などによりリンキング孔が閉塞し，燃焼・ガス化があまり進まなかったため，温度の上昇が小さかったものと考えられる。

3・5・2 き裂の発生　石炭の乾留プロセスでは，コークス層にき裂が発生することが明らかにされている [20-22]。Miura et al.[20] は，X 線 CT を用いた観察から，乾留初期において炉壁側のコークス層にき裂が発生すること，昇温速度が大きいほど破壊が激しく，き裂が進展しやすいことを明らかにしている。そして，熱応力解析の結果から，き裂の発生位置は引張の熱応力の位置と対応するとともに，昇温速度が大きいほど温度勾配が大きく，熱応力が大きくなることを報告している。Itagaki et al.[21] は，X 線 CT を用いた観察と熱応力解析を実施し，再固化過程の一次収縮により発生したき裂が二次収縮により進展することを指摘し，温度勾配の増加により発生する熱応力は増大するため，コークスの粒径が細粒化することを明らかにしている。そして，これらの研究成果から，熱収縮する石炭中に温度勾配があると，高温側の部分に引張の熱応力が発生することがわかる。

熱電対による温度の計測結果から，塊炭，破砕炭 B では供試体中に温度勾配があったことは明らかである。したがって，塊炭，破砕炭 B ともに上述した石炭の乾留時と同様なメカニズムによりき裂が発生した可能性がある。今回の実験ではリンキング孔に近いほど温度は高い (Fig. 4 (a), (b))。また，サーモグラフィカメラによる表面温度の計測から，リンキング孔を中心とした同心円状の温度分布になっていることを指摘した (Fig. 7, 8)。すなわち，温度勾配があるためリンキング孔の周囲において接線方向に引張の熱応力が発生し，高温側のリンキング孔の表面から放射状にき裂が発生したと解釈できる。

以上，燃焼・ガス化中にき裂の発生する可能性について考察したが，二酸化炭素を注入後の冷却プロセスでき裂が発生した可能性もある。例えば，軟化・溶融した後に再固化は起きず，冷却開始時点では溶融した状態になっていたとする。この状態でリンキング孔の表面から急速に冷却されることにより，熱収縮の不均一性が生じ，岩盤中の節理の形成と同様なメカニズム [23, 24] でリンキング孔の表面から外側へ向かって放射状のき裂が発生した可能性もある。

4. ま　と　め

美唄層から採取した塊炭と圧密した破砕炭を用いて，ペール缶内でリンキング方式の小規模 UCG 模型実験を実施し，両者の燃焼・ガス化特性について比較検討を行った。その結果，温度の値や分布，生産ガス中の各成分の濃度と生産ガスの発熱量，反応石炭量，燃焼空洞の形状と寸法には両者の間で多くの共通点が認められ，圧密圧力が十分に大きければ，圧密した破砕炭の燃焼・ガス化特性は塊炭の燃焼・ガス化特性と類似していることが明らかになった。また，圧密した破砕炭では粒子が癒着し，塊炭では炭理が見えなくなるとともに，両者においてリンキング孔表面から放射状のき裂の発生が認められた。これらのことより，破砕炭と塊炭ではともに，石炭からコークスを作製するプロセスと同様に，軟化・溶融が起きたと考えることができ，再固化や冷却の過程では石炭内に温度勾配が生じ，この温度勾配により発生する引張り

Doi http://doi.org/10.2473/journalofmmij.134.91
© 2018 The Mining and Materials Processing Institute of Japan

の熱応力が放射状のき裂を発生させたと解釈できる。このようなプロセスを経て，破砕炭は塊炭と類似の構造に変化したため，塊炭と同様な燃焼・ガス化特性を示したものと考えられる。以上のことより，破砕炭の構造が塊炭と同様な構造に変化する条件の下では，圧密した破砕炭から作製した人工炭層を用いた UCG 模型実験により，塊炭の燃焼・ガス化特性を推定できると考える。

References

1) A. W. Bhutto, A. A. Bazmi and G. Zahedi: Progress in Energy and Combustion Science, **39** (2013), 189-214.
2) L. Hongtao, C. F. P. Xia, Y. Kai and L. Shuqin: Mining Science and Technology (China), **21** (2011), 191-196.
3) L. Yang: Fuel Processing Technology, **82** (2003), 11-25.
4) K. Kapusta, M. Wiatowski and K. Stanczyk: Fuel, **179** (2016), 150-155.
5) F. Q. Su, K. Itakura, G. Deguchi, K. Ohga and M. Kaiho: Journal of MMIJ, **131** (2015), 203-218.
6) S. Daggupati, R. N. Mandapati, S. M. Mahajani, A. Ganesh, A. K. Pal, R. K. Sharma and P. Aghalayam: Ind. Eng. Chem. Res. **50** (2011), 277-290.
7) S. Durucan, A. Korre, J. Shi, M Idiens and K. Stanczyk: Energy Procedia, **63** (2014), 5827-5835.
8) L. Yang, Fuel: **83** (2004), 573-584.
9) H. Nourozieh, M. Kariznovi, Z. Chen and J. Abedi: Energy & Fuels, **24** (2010), 3540-3550.
10) G. Perkins and V. Sahajwalla: Energy & Fuels, **19** (2005), 1679-1692.
11) S. Daggupati, R. N. Mandapati, S. M. Mahajani, A. Ganesh, D. K. Mathur, R. K. Sharma and P. Aghalayam: Energy, **35** (2010), 2374-2386.
12) F. Laouafa, R. Farret, S. V. Gilbert and J. B. Kazmierczak: Mitigation and Adaptation Strategies for Global Change, **21** (2016), 547-576.
13) F. Q. Su, T. Nakanowataru, K. Itakura, K. Ohga and G. Deguchi: Energies, **6** (2013), 2386-2406.
14) G. Perkins and V. Sahajwalla: Energy & Fuels, **20** (2006), 596-608.
15) F. Q. Su, A. Hamanaka, K. Itakura, G. Deguchi, K. Sato and J. Kodama: Energy & Fuels, **31** (2016), 154-169.
16) A. Hamanaka, F. Q. Su, K. Itakura, K. Takahashi, J. Kodama and G. Deguchi: Energies, **10** (2017), 238; doi:10.3390/en10020238.
17) The Japan Institute of Energy: *Coal Science and Coal Technology*, (Corona Publishing, Tokyo, 2013), pp.193-194.
18) The Japan Institute of Energy: *Coal Science and Coal Technology*, Corona Publishing, Tokyo, 2013), pp.269-270.
19) The Japan Institute of Energy: *Coal Science and Coal Technology*, Corona Publishing, Tokyo, 2013), pp.229-234.
20) T. Miura, H. Yoshino, S. Saitoh and S. Ohtani: Journal of the Fuel Society of Japan, **68** (1989), 1045-1052
21) S. Itagaki, I. Shimoyama, K. Fukada, S. Hasebe and N. Suzuki: Tetsu-to-Hagane, **82** (1996), 70-74.
22) K. Fukada, T. Yamamoto, I. Shimoyama, T. Anyashiki, H. Fujimoto and H. Sumi: Tetsu-to-Hagane, **93** (2007), 438-444.
23) T. Ito, T. Fujimoto and N. Chiba: The Journal of the Society for Art and Science, **3** (2004), 86-95.
24) L. Goehring, L. Mahadevan and S. W. Morris: PNAS, **104** (2009), 387-392.

© 2018 The Mining and Materials Processing Institute of Japan
Doi http://doi.org/10.2473/journalofmmij.134.91