



大規模炭層火災および自然発火の消火による CO₂ 大気放出量削減に関わる研究アプローチについて*

佐々木久郎¹ 張河猛² サルマワティ³ 王永軍⁴ チェサムニアン⁵
ンゲレロナルド⁶ 菅井裕一⁷ 張曉明⁸

A Research Approach for Reducing Natural CO₂ Emissions by Extinguishing A Large Scale of Coal Fires and Spontaneous Combustions

by Kyuro SASAKI^{a*}, Hemeng ZHANG^b, SALMAWATI^c, Yongjun WANG^d, Chea SAMNEANG^e, Ronald NGUELE^a, Yuichi SUGAI^a and Xiaoming ZHANG^f

- a. Department of Earth Resources Engineering, Faculty of Engineering, Kyushu University, 744 Motoooka, Nishiku, Fukuoka 819-0395 (*Corresponding author, E-mail: krsasaki@mine.kyushu-u.ac.jp)
- b. Department of Earth Resources Engineering, Graduate school of Engineering, Kyushu University, 744 Motoooka, Nishiku, Fukuoka 819-0395
- c. PT Tura Consulting Indonesia, East Jakarta, Indonesia 13830, Indonesia
- d. College of Mining Engineering, Liaoning Technical University, Fuxin 123000, China
- e. Institute of Technology of Cambodia, P.O. Box 86, Russian Federation Boulevard, Phnom Penh, Cambodia
- f. Institute of Engineering and Environment, Liaoning Technical University, Huludao 125000, China

There is a critical situation that a huge amount of greenhouse gases is emitted into the atmosphere from natural coal fires in underground coal seams and spontaneous combustions in coal piles in the world. To reduce the emissions of combustion gases, such as CO₂, CH₄, etc., some technical challenges and researches are required related to CO₂ flux measurements, developing an effective chemical water-solution extinguishes coal fires and inhibits spontaneous combustion, constructing a numerical simulation model to treat the aging effect in coal heating rate.

In this article, firstly, the previous studies were reviewed to explain measurement results of CO₂ emission from coal fire/spontaneous combustion fields and the aging model used to simulate coal heating rate. Secondary, a trial development of some chemical solutions has been introduced to inhibit microscopic and macroscopic coal oxidations by forming a gel. Especially, sodium meta silicate solution showed a relatively good performance shifting the critical self-ignition temperature (CSIT) of a low rank coal to be 4 to 5°C higher than that of water by forming gel with CO₂ gases in the air and combustion gases emitted from coals. The brooking effect in macro scale by forming gel is also expected to extinguish coal seam fires by reducing aperture width in fractures connecting to the atmosphere. A numerical simulation using ANSYS FLUENT has showed an extinguishing fire process of an underground coal seam including a horizontal fracture that is connected inlet and outlet fractures being air paths for air and combustion gas, respectively.

Finally, the the research challenges required for technical developments have been proposed to carry a project extinguishing the coal seam fires and spontaneous combustions of coal piles with reducing CO₂ emissions.

KEY WORDS: Coal Fire, Spontaneous Combustion, CO₂ Emission, Inhibitor, Numerical Model, EOE-time

1. 緒言

自然発火的に発火している地下炭層火災あるいは自然発火している石炭パイルからの二酸化炭素 (CO₂) ガスなどの温暖化ガスの放出は、温暖化ガス放出源の1つとして認識されてきている

(Gielisch & Kropp, 2017)¹⁾。炭層火災や自然発火から大気中に放出されるガスは、CO₂ および CH₄ だけではなく、有害な成分である NO_x および CO などが含まれることから、米国では周辺の住民コミュニティ全体が強制移転した例もある (USGS, 2009)²⁾。ただし、居住コミュニティから離れた地域の炭層火災や自然発火は大部分が無視され、何世紀にも渡って燃焼し続けている事例も報告されている (Stracher & Taylor, 2004)³⁾。また、Heffern & Coates (2004)⁴⁾ は、過去 2 千年間に自然火災で焼失した石炭量は、20 世紀に採掘された石炭量よりも 1 桁または 2 桁大きいと推測している。O'Keefe ら (2010)⁵⁾ は、世界で焼失している石炭量は、大まかな算定として年間石炭採掘量の 0.5% から 10% に及ぶ可能性があるとして指摘している。中国では年間 1,000 万 t から 27 億 t の石炭が自然発火によって毎年焼失していると推定されている (Kolker ら, 2009)⁶⁾。一方、米国で炭層火災や自然発火が確認されている地域の約 90% はペンシルベニア州およびウェストバージニア州の産炭地にあり、15 州の産炭地における石炭焼失

*2020年4月4日受付 2020年7月27日受理 2018年9月10日資源・素材(福岡)企画講演「低炭素社会構築のための CCS (1)」, 2018年9月12日資源・素材(福岡)企画講演「最近の石炭等エネルギーの開発・利用の動向(1)」および2019年9月24日、令和元年資源・素材(京都)企画講演「低炭素社会構築のための CCS」において一部講演
1. 正会員 九州大学大学院工学研究院地球資源システム工学部門 教授
2. 九州大学大学院工学部地球資源システム工学専攻 博士後期課程学生
3. PT Tura Consulting Indonesia, 鉱山環境部 研究員
4. 遼寧工程技術大学採掘学部 講師
5. カンボジア工科大学 講師
6. 正会員 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
7. 正会員 九州大学大学院工学研究院地球資源システム工学部門 准教授
8. 正会員 遼寧工程技術大学環境工程技術研究所 教授
【著者連絡先】E-mail: krsasaki@mine.kyushu-u.ac.jp
キーワード: 石炭火災, 自然発火, 二酸化炭素排出, 抑制薬剤液, 数値モデル, 等価酸化時間

量は中国の3倍に及び、被害総額も年間10億ドル以上と算定されている。さらに、地下炭層の自然発火の消火費用は、露天採掘鉱山や港湾における石炭パイルなどの場合よりも大きく、露天掘り炭鉱よりも地下採掘炭鉱が多い州での火災対策費用や修復費用が重荷になっていると指摘されている⁶⁾。自然発生的な炭層火災の消火には多大な費用が必要とされるため、そのまま放置されている事例も多い。

著者ら(佐々木ら, 2015)⁷⁾は、産炭地域において炭層メタンガス(Coal bed methane, CBM)の利用とCO₂ガスの炭層への圧入の地域内循環による炭鉱地域でのCO₂大気放出量の削減に関する提案を行っているが、これらの地域での自然発火の抑制や消火プロジェクトはより温暖化ガス削減に寄与できる可能性があるものと推測している。また、南(2019)⁸⁾によれば、インドネシアのスマトラ島やボルネオ島の広大な泥炭層地域では火災や自然発火が多発しており、深刻な被害と多量のCO₂大気放出が問題となっている。それらの発生条件と進展プロセスは石炭層の場合と類似しているものと推定される。ただし、泥炭層はほぼ地表に接しており、かつ孔隙率も大きいことから酸化発熱速度が大きくなり、短時間に火災が拡大する条件が揃っていると推測される。

いま、焼失した石炭1トン当たりのCO₂排出量を2.4トン⁹⁾と仮定すると、世界の炭層火災や自然発火に伴う年間CO₂発生量は、オーダーとしては10億t/年、すなわち大気中のCO₂濃度上昇率を0にする削減目標のおよそ1/10に迫る可能性があるものと推定される。したがって、これらの炭層火災や自然発火の消火あるいは抑制は、CO₂大気放出量の削減に寄与できる規模を有すると判断される。

気候変動を抑制するための地球温暖化ガス放出量の削減が不可欠となっている現状から、世界の大規模炭層火災や自然発火を消火あるいは抑制できれば、地球温暖化ガスの削減量としては大きなポテンシャルをもつことから、排出量取引制度(キャップ&トレード)などに組み込むことでそれに要する費用を賄い、経済的課題を解決できる可能性を有する。

以上のことから、炭層火災を消火に導く技術的アプローチの有効性を実証できれば、多くのCO₂削減あるいは有効利用プロジェクトと同様に、必要な費用を温暖化防止の観点からカバーすることは経済的合理性を有するものと判断できる。例えば、自然発火を抑制する化学薬剤(インヒビター)液を開発し、その物理化学的効果を再現する数値シミュレーションモデルを確立できれば、炭鉱地域の自然発火などに適用し、消火プロセスを事前にある程度予測し、プロジェクトを遂行することが可能となる。このような事例を積み重ねることにより、炭層火災に関わる温暖化ガス大気放出量の削減に関わるロードマップが見えてくることになる。ただし、温暖化ガスの大気放出削減量を科学的にかつ明確に数量化するためには、炭層火災が生じている当該地域での消火前後でのCO₂大気放出量の差異を現場測定によって科学的に算出した上で、炭素価格(Carbon Price)に基づいた検証が必要と考えられる。

本総説では、まず、石炭パイルなどの堆積層における自然発火や自然発生的な炭層火災などの発生メカニズムを説明し、炭層火災が発生している地域における地表からのCO₂ガス放出密度(ガスフラックス)分布を測定した先行研究例を紹介する。次に、著者らが研究を進めてきた石炭の酸化発熱の時間減衰と石炭温度の低下過程を合理的に表現する発熱モデルのエイジング効果および石炭の自然発火を抑制する酸化防止薬剤を含めた実験的な研究成果を説明する。最後に、フィールドスケールでの炭層火災の消火や自然発火抑制に関わる数値シミュレーション予測の試みを紹介し、本総説のまとめとして実際に炭層火災の消火プロジェクトに必要とされる技術要素と研究アプローチを提案する。

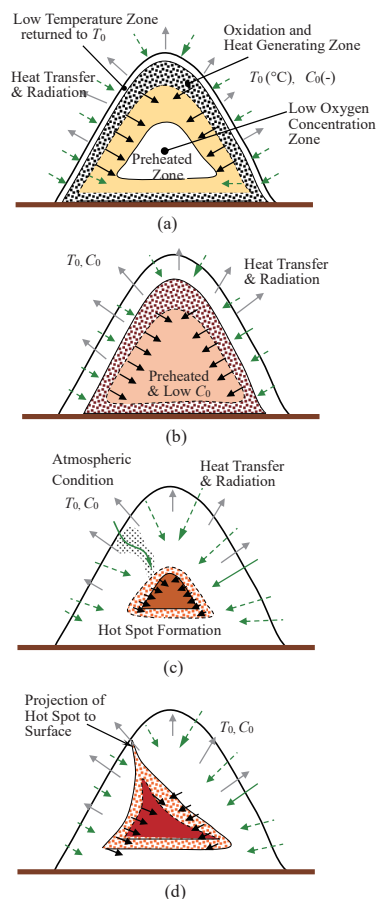


Fig.1 Schematic process showing spontaneous combustion of large amount of coal stock, (a), (b) and (c): Hot spot forming process with accumulating heat and shrinking zone of oxidation and preheating zone, (d): Projection growth of hot spot toward to stock surface through high permeable path (Sasaki and Sugai, 2011)¹⁰⁾ (T_0 (°C): Atmospheric temperature, C_0 (-): Oxygen concentration in air). In the figure, the outward arrow represents heat dissipation, and the inward arrow represents diffusion of oxygen into the center. The colors show temperature ranges.

2. 石炭パイルの自然発火と炭層火災の発生メカニズム

2・1 石炭パイルの自然発火発生メカニズム

著者ら(Sasaki & Sugai, 2011)¹⁰⁾はある程度以上の堆積量を持つ石炭パイルの自然発火メカニズムについて、Fig. 1に示す概念図を用いて説明している。また、Solos(2013)¹¹⁾もFig. 1をそのまま引用し、著者らが提示した自然発火に至るプロセスを紹介し、解説している。以下に、石炭パイル(堆積層)の自然発火の発生メカニズムを説明する。まず、Fig. 1(a)のパイルが堆積された初期の状態では、酸素が十分に供給されるパイル表層部分で酸化発熱が生じるが、表層近くは外部への熱損失量が大きく、温度上昇量は限定的で周辺温度へ戻る。このとき、酸化熱は外部へ放出されるだけでなく、中心方向にも伝達されて石炭層内部への蓄熱と温度上昇に寄与する。ただし、石炭堆積層内部は、表層近傍に比較して酸素濃度が低くなる傾向を有するため、酸化発熱が抑制された条件下に置かれる。Fig. 1(b)では、初期の発熱領域の温度は低下し、酸化反応が少なくなることで内部への酸素供給が増加するため、内部への熱伝達領域が次第に縮小しながら中心領域の温度は時間を掛けて高まる。このとき、中心領域は外表面から距離があることで酸素濃度はより低下し、低酸素状態で中心領域の石炭が予熱されることになる(発熱領域縮小・高温化プロセス, Fig. 1(c))。その後、酸素が供給され易い隙間などを辿って、高温領域が部分的にパイル表層へ突出し、自然発火が外部

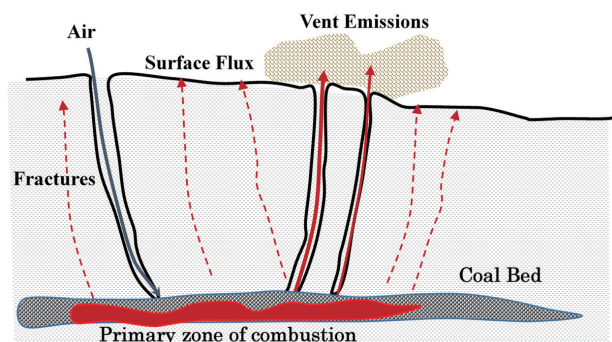


Fig.2 A mechanism of coal seam fires revised from Engle et al. (2012) ¹²⁾.

からも目視で観察できるステージとなる（突出成長プロセス，Fig. 1 (d)）。したがって，表層に突出した高温部分が見つかった時には，堆積層内部にはより広範な石炭の焼領域が形成されていることが多く，酸素供給が伴う石炭パイルの取り崩しによる放熱や焼領域の排除などの対処は慎重に行う必要がある。インドネシアの泥炭層の自然発火においても，表層の高温領域は小さい場合であっても，深部にはより広域の高温領域が形成されている状況⁸⁾は，石炭パイルの場合と同様なプロセスを経て，より短期間に火災に到るものと推測される。

前述したように，ある程度以上の堆積量がある場合では，中心部の石炭領域は酸素が十分に供給されない低酸素条件下で，表層側の発熱領域からの熱で予熱される過程に自然発火の発生メカニズムがあると考えられる。一方，石炭の堆積量が少なく，酸化発熱し易い石炭種であっても石炭パイルの比表面積 [= 表面積 / 体積] が大きく，放熱量が発熱量を上回るため，内部蓄熱による予熱プロセスが成立しないことから石炭温度が常温に戻り，酸化発熱速度も 0 になる。すなわち，ある一定以上の堆積量での予熱あるいは断熱される条件などの物理的条件と石炭自身の酸化発熱特性の両方の条件が満足されるときに自然発火に到ることになる。

2・2 炭層火災の発生メカニズムと構造

Engle ら (2012) ¹²⁾ は，米国・ワイオミング州の Welch Ranch 炭層火災に関わり，その概念モデルを提示している (Fig. 2)。すなわち，炭層火災の自然発火が継続する理由として，地下炭層へ空気（酸素）が供給される亀裂や破砕帯などの経路が存在し，燃焼あるいは薫焼ガスも地層内の亀裂などの経路を上方に移流・拡散し，最終的に大気へ排出されていると説明している。炭層が自然発火に至るためには，周辺岩盤への熱放出がある程度抑制されていることと，地上大気との連絡経路が複数存在し，入・排気の温度差による煙突効果によって酸素供給と CO₂ ガスなどの燃焼ガスの放出が強められる。この条件は，地下炭層ガス化 (Underground coal gasification, UCG) における二本の垂直坑井を水平リンキング坑によって接続し，空気圧入・ガス生産を継続させる状況と似ている¹³⁾。ただし，表層において，排気経路とその領域を見つけることは入気経路よりも容易であることから，排気経路を見つけ出し，何らかのその閉塞処理を施すことができれば，消火を図る主要な処置として有効であると考えられる。

3. 自然発火している炭層起源の CO₂ 大気放出量の測定

本研究では，炭層火災あるいは石炭堆積層の自然発火を起源とする大気中の CO₂ ガス放出量に関わり，科学的に有意な CO₂ ガス削減量を算定するためには，地表面における単位面積・単位時間での CO₂ ガス放出量すなわち表層ガスフラックス (Surface gas flux) の測定が不可欠である¹⁴⁾。ここでは，地下炭層の地表や炭層の廃石パイル表層などから大気中に放出されている

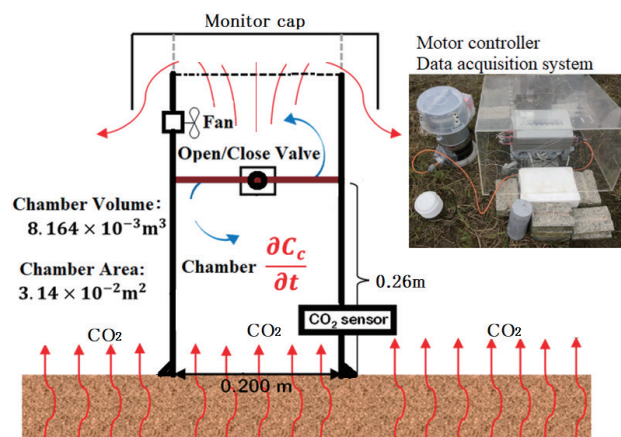


Fig.3 Schematic figure of CO₂ gas flux monitor (Closed chamber method to measure the CO₂ gas emitted from surface soil) (Salmawati et al., 2019) ¹⁵⁾.

CO₂ ガスフラックス量の測定装置と測定結果の例を紹介する。

3・1 自然土壌からの CO₂ ガス放出量の測定手法と測定例

著者ら (Salmawati ら, 2019) ¹⁵⁾ は，陸域の CO₂ 回収・地中貯留 (略称 CCS) プロジェクトを想定した土壌表層からの自然 CO₂ ガス放出フラックスの自然ベースラインの確立を目的としたモニター装置 (Fig. 3) の開発を行っている。長期測定に供するモニターとして，低消費電力で稼働する測定装置の設計を行った。モニターは，密閉性の高いチャンバ内に赤外線式 CO₂ ガス濃度センサー（分解能：1 ppm，湿度の分解能：1%）を挿入し，チャンバ換気用のファンの運転と高気密バタフライ弁の開閉を一定間隔で操作する閉鎖チャンバ法を採用した。このとき，バタフライ弁が閉じている時間帯は土壌から放出される CO₂ ガスがチャンバ内に留まり，ガス濃度が ppm 単位で上昇する。そのガス濃度 (C (mol/m³)) の時間勾配 ($\partial C/\partial t$) をモニター内部のプログラムで最小二乗法を用いて算定し，

$$\text{CO}_2 \text{ ガスフラックス} = \text{濃度時間勾配} \times \text{チャンバ体積} / \text{接地面積}$$

が測定される。これらのチャンバ内の CO₂ 濃度と時間勾配データは，不揮発性メモリーに記録されるシステムとなっている。モニター上部には，雨や虫避けのキャップと金網などを設けた。モニター装置全体は太陽光電池とバッテリーによって駆動し，遠隔フィールドにおいても電源の制約を受けないように工夫した。

このモニターを用いて九州大学・伊都キャンパス野外フィールド (1m ほどの土壌層の下部は花崗岩層) において自然 CO₂ ガス放出フラックス (mol/m²/h) を夏季 (8 月 30 日) に測定した例を Fig. 4 に示す。チャンバ内の CO₂ ガス濃度の上昇を 1s のインターバルで 10 min 測定し，その後直線的な上昇区間の濃度勾配を求め，1 サイクル 15 min で 1 回 CO₂ ガスフラックスを測定し，1 年間に渡って連続してデータを取得した¹⁵⁾。伊都キャンパス緑地からの夏季における CO₂ ガス放出レベルは 0.015 mol/m²/h (= 16t-CO₂/km²/day) 程度で，一般的な森林などにおける CO₂ ガスフラックスと比較すると半分程度である。地表近傍の CO₂ ガスフラックス ((0.011 ~ 0.015 mol/m²/h)) は土壌温度の影響を強く受けて日中は高く，夜は低下する。また，四季を通じて見た場合，夏季は高く，冬季は極めて低調な値 (0.001 ~ 0.002 mol/m²/h) を示した¹⁵⁾。また，降雨があった後では CO₂ ガスフラックスは急減し，土壌水分飽和度の影響を受けることが明らかにされた¹⁴⁾。これらの年間を通じたデータを分析した結果，土壌温度と水分を主要パラメータとした自然 CO₂ ガス放出フラックス F (mol/m²/h) を土壌水分飽和度 S_w (-) および表面から -5 cm の土

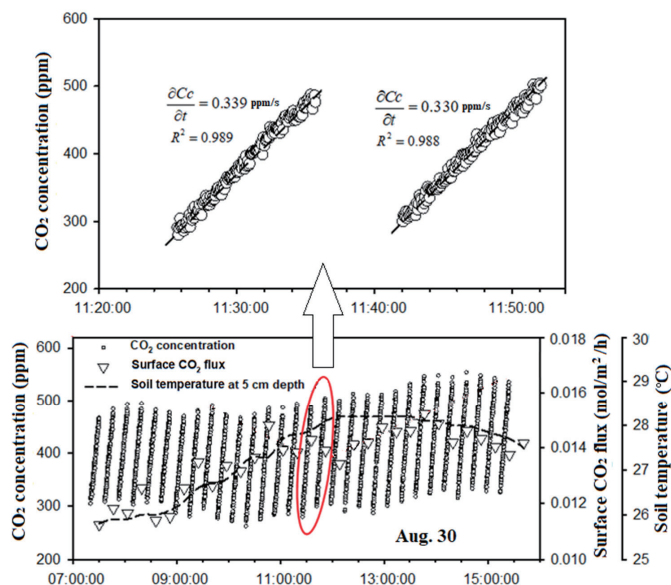


Fig.4 Example of the surface CO₂ flux calculation based on the increasing CO₂ concentration inside the chamber set in the Kyushu University Ito Campus (Salmawati et al., 2019)¹⁵⁾.



Fig.5 Measurement locations in the coal mining area (Fuxin City, Liaoning Province, China) and the CO₂ flux monitor (point#0: normal area, points #1, 2 and 3: coal mine area)¹⁶⁾.

壤温度 T_5 (°C) から推定する式：

$$F = [0.00341 \cdot (1 - S_w)^{1.53}] \cdot \exp(0.0625T_5) \dots\dots\dots (1)$$

を提示している¹⁵⁾。このモニターは陸域 CCS 実施地域の自然 CO₂ ベースライン特性を取得するために開発したものであるが、炭層火災が発生している地域における地表からの CO₂ ガス放出量の算定にも適用可能である¹⁵⁾。

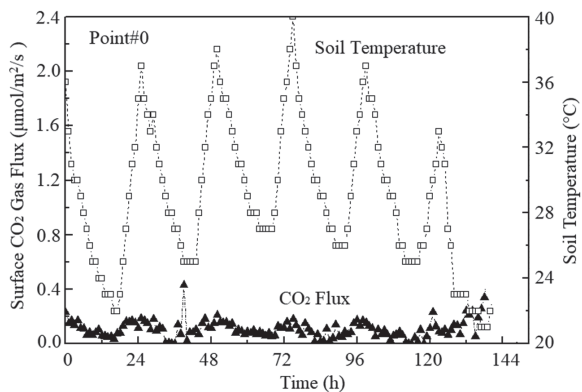
3・2 中国・遼寧省阜新市における炭鉱跡地での測定例

Wang ら (2019a)¹⁶⁾ は、中国・遼寧省阜新市の炭鉱跡地において、地下 600 m の炭層切羽払い跡からの自然発火の検出とそれを起源とする地表面からの CO₂ 放出量を、前節で記述した CO₂ フラックスモニターのプロトタイプ¹⁵⁾ を改良して開発されたモニター (Fuxin Gongda Hualian Technology 社製、HL-10) を用いて測定し、地表から払い跡の残炭への空気供給と地表への排気構造を調べている。その測定フィールドの概要を Fig. 5 に示す。切羽払い跡から水平に約 3km 離れた炭層の自然発火の影響を受けていない測定点 (point #0) と払い跡の直上に位置する測定点 (point #3) での CO₂ ガスフラックスの測定例を Fig. 6 に比較して示す。

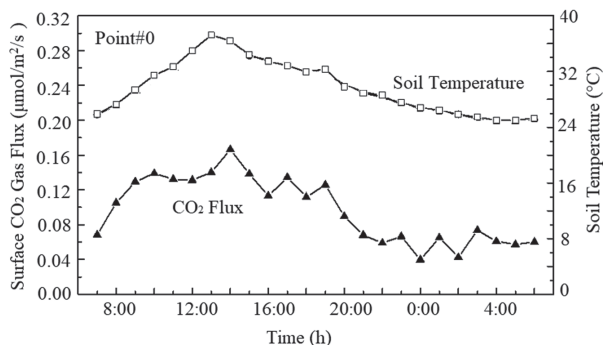
point #0 の測定結果 Fig. 6 (a) および (b) は土壤温度の日変動 (約 24 ~ 38 °C) に連動した CO₂ ガスフラックスの変動 (0.04 ~ 0.16 μmol/m²/s) を示しているに対し、point #3 の測定結果 (Fig. 6 (c)) は 12 μmol/m²/s (=45 g-CO₂/m²/day=16,400t-CO₂/km²/day) であり、point#0 の概ね 100 倍のレベルを示し、土壤温度の変化と無関係に変動していることがわかる。すなわち、point #1 ~ #3 では土壤温度に無関係に CO₂ が放出され、かつ極めて高い CO₂ 放出レベルであることから、切羽払い跡の残炭などが自然発火し、それを起源とする CO₂ ガスが上盤の崩落などで生じた亀裂などを伝って地表面まで上昇している構造が明らかになった。

3・3 豪州における炭鉱廃石パイルにおける自然発火由来の CO₂ ガス放出量の測定例

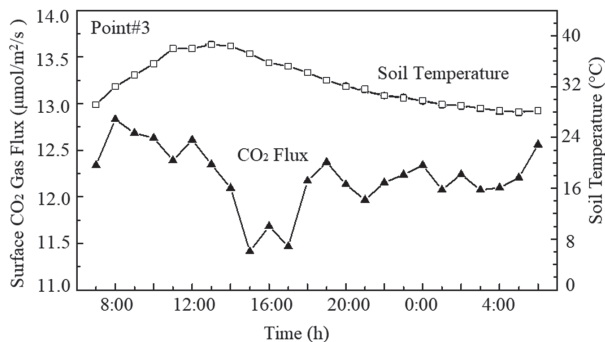
Carras ら (2009)¹⁷⁾ は、豪州 Hunter Valley および Bowen Basina 地域の 11 の露天採掘炭鉱の廃石 (ボタ) パイルの表層から大気中へ放出されている CO₂ や CH₄ などのガスフラックス (Surface gas flux) を閉鎖チャンバ法によって測定している。その結果、大気へ放出されている他の温暖化ガスを含めた等価な CO₂ ガスフラックスが 12 ~ 8,200 kg-CO₂/m²/year (=0.012 ~ 8.2 Mt-CO₂/km²/



a) 5days measurement of Surface CO₂ flux at normal area (point #0 in Fig. 5)



b) 1day measurement of Surface CO₂ flux at normal area (point #0)



c) 1day measurement of surface CO₂ flux at combustion area (point #3)

Fig.6 Measurement examples of surface CO₂ emission rate and soil temperature (Wang et al., 2019a)¹⁶⁾.

year)の範囲であり、極めて高い放出レベルを示していることから、地下に埋設された石炭分を含む廃石が自然発火していることを示唆し、空気の流入と発熱に関する模式図を提示している。彼らの観測データに単純に面積 1 km²を掛けて年間放出量を算定すると、その最大値は 100 万 t/year のオーダーとなることから、大規模 CCS プロジェクトにおける年間の CO₂ 貯留量のオーダーに相当する。すなわち、このような炭層火災や自然発火の消火に成功すれば、1000 億円規模のコストを必要とする大規模 CCS プロジェクトと同等の効果が得られることを意味し、F/S および経済性評価を実施すべきと考える。

4. 石炭の自然発火に関わる数値解析モデル

石炭の酸化発熱に関わるモデルを紹介し、温度低下や発熱速度が 0 に漸近する消火プロセスを再現するための発熱モデルについて説明する。

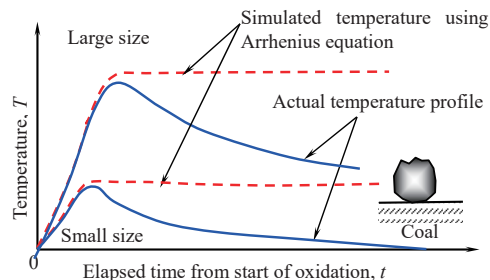


Fig.7 Difference of temperature change between a numerical simulation result by Arrhenius equation and actual process for small and large amounts of coal stock (based on Sasaki and Sugai (2011)¹⁰⁾).

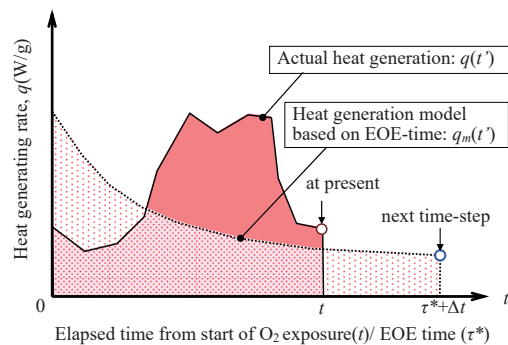


Fig.8 Schematic definition of the equivalent oxidation exposure time (EOE-time) of coal to estimate heat generating rate by matching cumulative heat generations from start of oxygen exposure¹⁰⁾.

4・1 低温領域での石炭の酸化発熱に対する等価酸化時間の概念

比較的大きな堆積量を有する貯炭パイルなどにおいては、様々な時間変化を伴う蓄熱条件下で内部温度が高まり、70 ~ 100 °C 以上の温度領域において酸化発熱速度が指数関数的に高まることで、発熱量が放熱量を連続的に上回り発火に至る現象が自然発火(あるいは火災)である^{17, 18)}。常温域からの温度上昇過程に関し、石炭自体の化学的要因(ミクロ的要因)と貯炭状態での酸素供給と熱放出に関わる物理的要因(マクロ的要因)に分けて議論する必要がある¹⁸⁾。石炭堆積量を変化させ、酸素供給や放熱などの外的要因を含めた自然発火性の試験の実施は一般的に困難である。そのため、石炭を粉砕した少量の試料を用いて発熱速度や発火に至る時間などについての物理化学的特性を測定し、石炭種の自然発火性を評価する分析がなされてきた¹¹⁾。数値シミュレーションにアレニウスの反応速度式を適用する場合、石炭の発熱速度は石炭温度のみの関数として与え、累計発熱量に上限を設けない、すなわち石炭は無限に発熱を続けられる条件で解析されてきた¹⁰⁾。このような数値シミュレーションは、加速度的な温度上昇プロセスを表現できるが、温度低下を伴う消火プロセスには対応できない。例えば、Fig. 7 に示すように、小さな石炭塊が酸化発熱して温度上昇したとしても外部へ熱が放散され、石炭は必ず常温に戻って酸素に対しても無反応となる。その後は外部から加熱しない限り再び発熱することはない¹⁰⁾。しかしながら、発熱速度式にアレニウスの式を適用した場合、石炭の発熱量と外部への熱放出量がバランスした以降は、そのまま温度が保持される結果となることが多い(佐々木ら¹⁸⁾, 1987; Sasaki & Sugai¹⁰⁾, 2012; Zhang ら¹⁹⁾, 2019)。このような実際の物理化学現象と矛盾するアレニウスの式を用いた数値解析の不具合を改善するため、佐々木ら¹⁸⁾は「等価酸化時間(Equivalent oxidation exposure time, EOE-time)」の概念(Fig. 8)を提示し、通気坑道に挟まれた石炭切羽の残炭層の酸素濃度分布と温度上昇に関する数値シミュレー

ションを実施している。等価酸化時間の概念は、石炭温度に対し累計酸化量の上限を設定することで発熱速度を決定するものである。例えば、外部から熱を吸収すると等価酸化時間は減少し、自身で酸化発熱すると等価酸化時間が大きくなる。このとき、累計発熱量が上限値に等しくなると等価酸化時間は ∞ になり、発熱速度は0になる(式(3)を参照)。ただし、熱を外部から受取って温度が高まると累計発熱量の上限値がそれに対応して上昇することで等価酸化時間が低下し、酸化発熱が再開されることになる。

いま、ある石炭が空気(あるいは酸素)に暴露され始めてからの経過時間を t (s)、発熱速度を q (W/kg) とするとき、その間の累計発熱量 Q_m (J/kg) は次式で表わされる^{10, 18-20}。

$$Q_m = \int_0^t q(T, C, w, t) dt \dots\dots\dots (2)$$

ここで、 T (°C) は t における石炭温度、 w (kg/kg) は水分量、 C (-) はその位置での O_2 濃度である。また、記号 ' は酸化(酸素供給)開始から時刻 t までの間に時々刻々変化する物理量を表わす。著者ら(Zhang ら, 2019)¹⁹ は、Kaji ら(1987)²¹ の測定結果に基づいた発熱速度に対し、酸素濃度およびエイジング効果を考慮した発熱モデル q_m (W/kg) を次式で定義している。

$$q_m(t) = C \cdot A_0 \cdot \exp\left(-\frac{E}{R(T+273)}\right) \cdot \exp(-\gamma t) \dots\dots\dots (3)$$

ここで、

- A_0 : 発熱定数 (約 10^{11} W/kg)
- C : O_2 濃度 (-) (最大 0.21)
- E : 活性化エネルギー (約 10^5 J/mol)
- R : ガス定数 (8.314 J/mol/K)
- T : 石炭温度 (°C)
- γ : 時間減衰指数 (= $10^{-4} \sim 10^{-6} s^{-1}$)¹⁹

このとき、経過時間 t (s) での環境条件 (T, w, C) が仮想時間 $t' = 0 \sim \tau^*$ において一定であると仮定し、式(3)を用いて算定される累計発熱量

$$Q_m(T, C, w, \tau^*) = \int_0^{\tau^*} q_m(T, C, w, t) dt \dots\dots\dots (4)$$

が実際の石炭の累計発熱量 Q_m に等しくなる τ^* を等価酸化時間(EOE-time)と定義する(詳細は文献^{10, 19}を参照)。この等価酸化時間の導入により、 $t + \Delta t$ での発熱速度 $q(T, C, w, t + \Delta t)$ を、等価酸化時間とその時点の環境条件を考慮した発熱量 $q_m(T, C, w, \tau^* + \Delta t)$ によって求められる。この環境条件での石炭の累計発熱量の最大値は T と C の関数として表わされる。

エイジング効果と等価酸化時間理論を導入した数値シミュレーション結果は、実際の現象と矛盾がない結果^{10, 18}を示したものの、実験結果や実際の石炭パイルの温度測定値との厳密な比較による妥当性は議論されていなかった。そのため、Zhang ら¹⁹ はエイジング効果と等価酸化時間理論を熱流体解析ソフトウェア(ANSYS FLUENT)に組み込み、5・1節で説明するワイヤー・メッシュバスケット(Wire-mesh basket, WMB)を用いた試験結果を数値シミュレーションによって解析し、その妥当性を議論している。とくに、発火に到る超臨界過程、周辺温度に戻って発熱速度が0になる亜臨界過程およびそれらの境界となる限界自己発火温度を、それぞれ数値シミュレーションによって再現することに成功している。このことは、エイジング効果と等価酸化時間理論の組合せが妥当であることを裏付けている¹⁹。なお、石炭水分に関する数値モデルについては、Zhang ら(2019)¹⁹ および佐々木ら²⁰(1992)において、実験結果に基づいてその影響を評価しているが、低品位炭の乾燥後の粉化や孔隙内表面積の増加などのモデルに関する改良の余地がある。

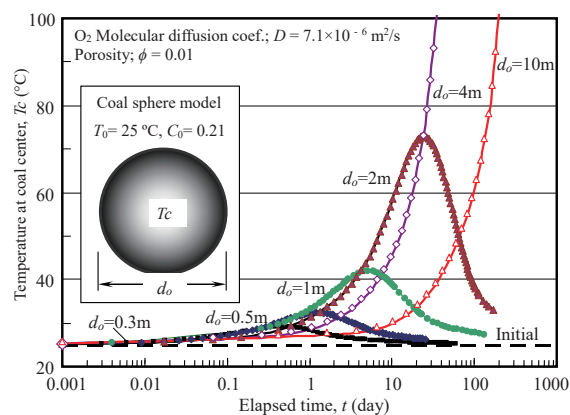


Fig.9 Numerical simulation results of center temperature vs. elapsed time in sphere coal piles for different diameter (Sasaki & Sugai, 2011)¹¹ .

なお、藤墳(2014)²² は低品位炭の低温酸化機構を詳細に検討することで自然発火のメカニズムを議論している。低温酸化の反応速度解析をアレニウスの式によって行い、1次元数値シミュレーションによって温度上昇-時間曲線のマッチングに成功しているが、温度低下を伴う消火プロセスへの適用は原理的には困難であると推測される。

4・2 等価酸化時間を適用した数値計算結果の例

4・2・1 球状石炭塊の温度予測例 Sasaki & Sugai (2011)¹⁰

では、球形の石炭塊の直径の相違による中心温度の時間推移に間して等価酸化時間を適用した簡潔な数値シミュレーションを実施している。外部境界温度(一定)を $T_0=25^\circ C$ 、酸素濃度 $C_0=21\%$ 、石炭層の孔隙率 $\phi=1\%$ 、有効拡散係数 $D=7.1 \times 10^{-6} m^2/s$ として、球形石炭塊を半径方向に100分割した1次元数値シミュレーション結果を Fig. 9 に示す。直径4m以上では自然発火に到る温度上昇が示され、直径2m程度以下の石炭塊では中心温度 T_c が最大値に達した後に常温まで戻る温度-時間曲線を示した。この結果は概ね実際の現象と矛盾しておらず、等価酸化時間理論の妥当性を示すものと考えられる。

4・2・2 地表面に設置された石炭パイルの温度予測例

石炭の消火予測に必要とする基本的なエイジング効果を考慮した石炭の酸化発熱モデルを利用し、石炭パイルの外領域には地上風(風速 $=0 \sim 7 m/s$)を設定した2次元モデルを設定し、ANSI FLUENT ($k-\epsilon$ モデル)を用いて数値シミュレーションを実施した²³。Fig. 10 は、大気領域(ブロック数:36490)、台形型の石炭パイル(幅 $L=10 m$ 、高さ $H=4 m$ 、ブロック数:12805)および土壌領域(深さ $2 m$ 、ブロック数:7958)に関する数値シミュレーションモデルを示す。石炭パイルの下部に土壌層を設定したことで石炭からの発熱が境界層を形成する気流だけではなく、土壌層にも伝達されるモデルとしている。石炭パイルおよび大気に関する計算パラメータ(主要パラメータ:外部境界温度を $T_0=25^\circ C$ 、酸素濃度 $C_0=20\%$ 、石炭パイルの孔隙率 $\phi=33\%$ および浸透率 $k=1.3 \times 10^4 \text{ darcy} = 1.3 \times 10^{-8} m^2$ など)は数多くあり、その設定によっても予測結果が変化する。本総説では紙面の関係でその説明を省略するが、石炭の発熱特性は Zhang ら(2019)¹⁹ と同一のものを採用した。Fig. 10 に示したように、地上風は石炭パイルを乗り越えて流れるときにパイル背面には剥離渦が形成され、石炭パイル前後に圧力差(2~10 mmH₂O)が発生する。この圧力差によってパイル内部(多孔質層)へ空気が入り、酸素の供給と酸化熱の外部への排出がなされる。この酸化発熱量と排熱量のバランスによって自然発火に到るかどうかが決まる。

石炭パイル中の最大温度の時間推移に関する数値シミュレー

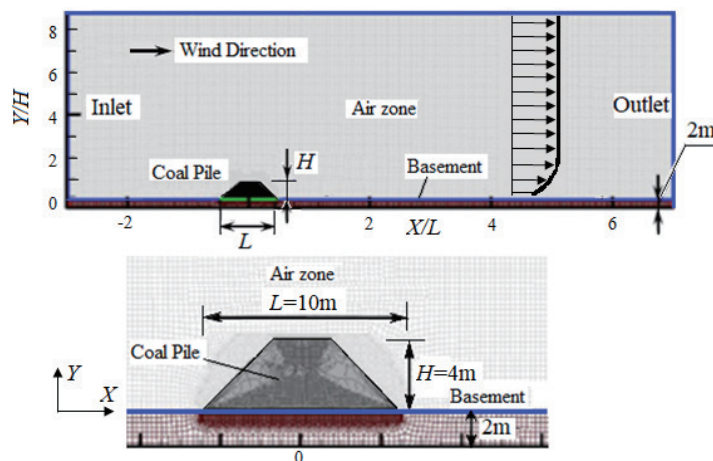


Fig.10 Numerical Model of a field coal pile (coal pile permeability and porosity are 100darcy and 33%).

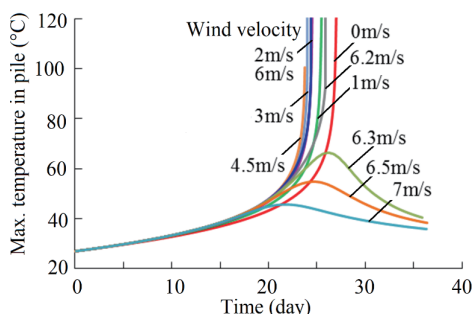


Fig.11 Numerical simulation results on coal temperatures in a coal pile considering wind velocity (Zhang *ら*, 2019).

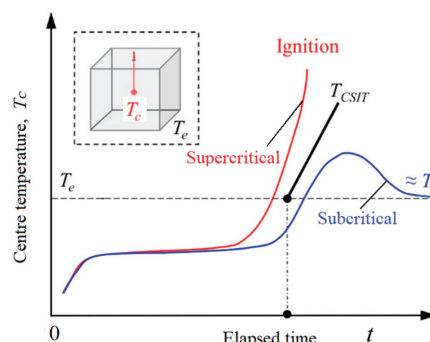


Fig.12 Definition of critical self-ignition temperature (T_{CSI}) and wire-mesh basket test (WMB test) (T_c : Centre temperature in a coal pile) ²⁴⁾.

シミュレーション結果例を Fig. 11 に示す。野外の風速が 6.3m/s 以上では発熱が気流によって冷却され自然発火に到らないが、それ以下の風速では気流が石炭パイル内に十分な酸素を供給する役割を持つため、無風 (0 m/s) の場合よりも自然発火に到る時間が短くなる傾向を示している。このように外部の気流速度の大小によって、火災に発展するものと消火に到る境界が存在しているが、発火に到る流速に関する順番が必ずしも風速の大小の順になっていないことは興味深い。また、石炭パイル中の最大温度となるのはパイル中央領域であることは共通しているが、風速が高まるほど風下側で、かつ下部の地表面に近い位置に寄る傾向が示された。これは、風速によって放熱分布と蓄熱分布が石炭パイル内部の自然対流の強弱に影響されたためである。

5. 限界自己発火温度およびゾル・ゲル生成薬剤液の開発

5・1 限界自己発火温度

Fig. 12 は、限界自己発火温度 (Critical self ignition temperature, CSIT) T_{CSI} (°C) の定義を模式的に示したものである。 T_{CSI} (°C) は WMB 試験によって測定することができる (Wang *ら*, 2017) ²⁴⁾。この試験は、外部環境温度 T_e (°C) を 5 点程度設定し、バスケット中心温度 - 時間 (T_c-t) 曲線をそれぞれ測定し、発火に到る臨界条件 (Supercritical condition) か外部環境温度に戻る亜臨界条件 (Subcritical condition) かに分類し、その境界の温度として T_{CSI} (°C) を算定している。このとき、臨界条件か亜臨界条件の差温度は 1 ~ 2°C 程度であるため、 T_{CSI} の予測の度合いによって T_e の設定が左右される。

なお、日本で開発された自然発火性試験装置 (島津製作所製

SIT-2, 販売期間: 2010 ~ 2017) を用いて自然発火性を調べた結果なども現在まで継続して公表されている (内田 *ら*, 2019) ²⁵⁾。この SIT-2 による測定は、2 ml 程度の試料をある起点温度 (例えば 110°C など) から 200°C 程度まで断熱条件で升温させ、それに要する時間の長短に基づいて石炭の自然発火性を評価するものである。ただし、温度条件を設定し発熱量や吸熱量が得られる TG-DTA などの熱分析法に比較すると得られる熱特性の情報が少ないことや、石炭試料温度の断熱変化を保証する熱制御方式の適否によって結果に影響を受けるため、自然発火性を評価する標準試験方法としては普及していない。また、大塚 *ら* (1984) ²⁶⁾ は、石炭 100g を一定温度 (90 ~ 140 °C) 下に制御した反応管に置いて、石炭の O₂ 消費量と CO₂ や CO ガス発生量を測定し、燃焼反応挙動から石炭の自然発火性を評価しているが、これらの測定データが実際の石炭パイルの具体的な現場操作を考えるためのデータを提示しているとは云えない。

本研究で使用した WMB 試験方法は、例えば TG-DTA や SIT-2 などの少量の石炭試料を用いる自然発火性試験に比較して 1 回の試験時間が長くなり、かつ外部環境温度 T_e を 3 ~ 5 回程度変化させて超臨界と亜臨界過程をそれぞれ再現し、その中間温度として T_{CSI} を推定することから、概ね 1 回の測定で完了する TG-DTA や SIT-2 に比較して必然的にトータルな試験時間が長くなる。しかしながら、堆積量の影響を物理的に評価し、石炭堆積量と中心領域の限界温度との関係を調べる唯一の方法と判断され、実際の石炭パイルなどの操作に役立つ情報が得られる利点がある。

Wang *ら* (2017) ²⁴⁾ は、中国・内モンゴル産の低品位炭に関して、堆積量 V (m³) と限界自己発火温度、 T_{CSI} (°C) との関係

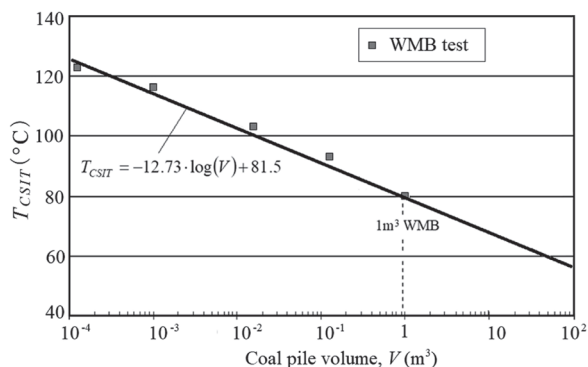


Fig.13 Results of WMB test on critical self-ignition temperature T_{CST} (°C) vs. coal pile volume V ($=1.25 \times 10^{-4}$ to 1.0 m^3) for low rank coal (lignite) excavated in Inner Mongolia, China (Wang et al., 2017) ²⁴⁾.

を、バスケットサイズ $L=2.5, 5, 10 \text{ cm}$ には平均粒径 0.48 mm , $L=25, 50, 100 \text{ cm}$ に対しては平均粒径 46 mm の石炭試料を用いて、バスケット容量すなわち石炭パイル堆積量 ($V=1.25 \times 10^{-4} \sim 1.0 \text{ m}^3$) を用いた WMB 試験を実施し、

$$T_{CST} = -a \cdot \log(V) + b \quad (a, b: \text{定数}) \dots\dots\dots (5)$$

の関係を満足する結果を報告している (Fig. 13)。とくに、 1.0 m^3 のバスケットを用いた試験 (Fig. 14 の写真) からわかるように、これまでに実施されていなかった 1 m^3 までの WMB の温度上昇過程を観察し、実験室 (概ね 0.1 m^3 以下) と実フィールド (概ね 10 m^3 以上) の石炭堆積層の T_{CST} を接続させる測定データは価値があると判断している。ここで、 T_{CST} が高くなるほど、安全性が高まり、自然発火が生じない限界堆積量を大きくできることを意味する。また、Wang ら (2019b) ²⁷⁾ は、パイルを構成する石炭試料の粒径を $0.5 \sim 10 \text{ mm}$ まで変化させて、 T_{CST} や活性化エネルギーなどを測定し、式 (5) の T_{CST} vs. V の関係式に粒径の効果を修正したものを提示している。

5・2 自然発火を抑制するゾル・ゲル生成薬剤液の開発

5・2・1 化学薬剤液に求められる特性と評価方法

従来から、自然発火を抑制する化学薬剤液 (インヒビター薬剤液) は数多く研究開発されてきており、自然発火防止に関わる特許なども数多く出願されている ²⁸⁾。石炭の表面より散水する散水法、炭層内部に界面活性剤液などを圧入する方法 (例えば、大塚ら, 2014) ²⁶⁾、石炭表面に樹脂液、樹脂エマルジョン、ポリマー、重質油などの被覆剤を散布し石炭への外気や水分の侵入を防止する方法 (例えば、原田ら, 2010) ²⁸⁾、尿素水溶液やラジカル捕捉剤及び酸素捕捉剤などの酸化防止剤を散布する方法など (例えば、足立ら, 1999) ²⁹⁾ など国内外問わず枚挙にいとまがない。また、貯炭過程において石炭の間にドライアイス、窒素ガス、酸素含有量の少ない廃ガスなどの不活性ガスを吹き込む方法なども提案されている。

ただし、インヒビター薬剤液の散布は貯炭パイルなどで一般的に使用されているとは言えない。この理由として、少量の粉砕試料を用いた断熱昇温試験によって自然発火の抑制効果を時間の長短として相対的に評価できたとしても、実フィールドでの作業条件を決定するための直接的な安全評価データとはならないためと推測され、現場での石炭温度の監視に基づいて熱放出や散水などの物理的な対処方法が主として用いられている。また、環境性や経済性なども考慮すると使用する理由に乏しいと考えられる。

一方、低品位炭に関わる火災事故なども生じているため、2019年においても低品位炭の自然発火性の評価方法と防止対策に関する報告 ²⁵⁾ がなされており、有効な薬剤液が模索されている状況

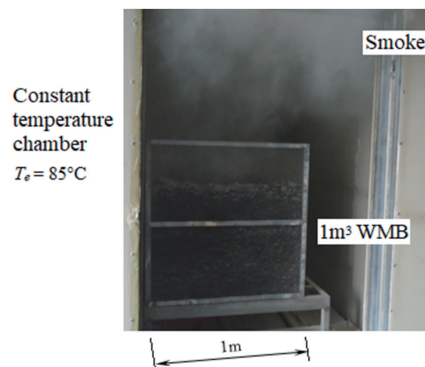
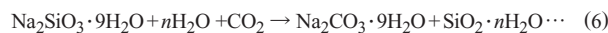


Fig.14 A photo showing smoking at supercritical stage (Center temperature= 107°C) in the WMB test using $1\text{ m} \times 1\text{ m} \times 1\text{ m}$ basket (Low rank coal excavated in Inner Mongolia, $T_e = 85^\circ\text{C}$, $t = 300 \text{ h}$) (Wang et al., 2017) ²⁴⁾.

にある。ただし、石炭におけるラジカルの捕捉や酸素の捕捉などに有効な薬剤液であるとしても、堆積量の大きな石炭パイルにおける物理的な酸素あるいは燃焼ガスのマクロ的遮断機能も同時に持たなければ炭層火災の消火には不十分と考えられる。そのため、模倣的なサイロ (直径 5 m , 高さ 18.5 m , 貯蔵量約 120 t) を用いた試験によって貯炭サイロの昇温挙動が調べられている (崔ら, 2016) ³⁰⁾。

以上のことから、塊炭試料や破砕した石炭粒子の表面を覆うことで酸化を防止し、かつフィールドスケールの炭層火災などに対しては燃焼排気ガスなどの亀裂流路の閉塞にも効果を有する化学薬剤液の開発が必要と考えられる。

5・2・2 著者らのグループが開発している化学薬剤液 著者ら (Chea et al., 2019) ³¹⁾ は、貯留層にメタケイ酸ナトリウム ($\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, SMS) 水溶液と CO_2 ガスを圧入し、



の化学反応式 (n : ゲルに含まれる水分量) であらわされる炭酸ナトリウムとシリカの混合ゲル (本総説では流動性があるゾルも含む) を生成し、浸透率の高い流路や亀裂を原位置で閉塞させる手法について実験的に評価している。なお、メタケイ酸ナトリウムは、安価な不燃性原料であり、環境性においても優れている。

現在のところ、生成ゲルが CO_2 ガスの溶液中への溶解度によって、シリカゲルと炭酸ナトリウムを含むゲルの比率やゲル特性 (粘度やゲル強さ) が異なる結果が得られており、高分子ゲル構造を正確に特定できていない。このゲル生成を利用する利点は、溶液と CO_2 ガスを接触させるとき、 CO_2 ガスの溶解によって生成する炭酸イオンとの化学反応によってその場でゲルを生成することである。炭酸ナトリウム ($\text{Na}_2\text{CO}_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$) はシリカゲル ($\text{SiO}_2 \cdot n\text{H}_2\text{O}$) の凝固を促進する役割をもつと推測している。

例えば、炭層火災や自然発火 (石炭の燃焼あるいは燻焼) から発生した CO_2 ガスが、亀裂などの排気流路を表層へ上昇すると想定し、この流路に $7 \sim 10\%$ 程度のメタケイ酸ナトリウム水溶液を圧入することができれば、生成したゲルで排気流路が閉塞されるものと予測している。また、石炭表面がゲルで被覆されることで石炭マトリックス内部の微細孔隙への O_2 分子の拡散を抑制するミクロ的遮断効果が実証できれば、排気ガス流路のマクロ的遮断効果を併せ持つ複合インヒビター薬剤液となり得る。

本研究では、上述したメタケイ酸ナトリウム (Sodium Metasilicate: $\text{Na}_2\text{SiO}_3 \cdot 9\text{H}_2\text{O}$, 略称 SMS) とフィルムやのりの原料として広く用いられているポリビニールアルコール (Polyvinyl Alcohol, 略称 PVA) の単体およびそれらを混合した化学薬剤液 3 種について

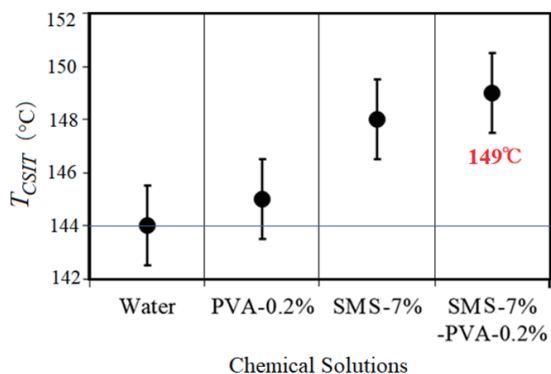


Fig.15 Comparisons of CSIT by different chemical solutions to inhibit coal oxidation (SMS: Sodium metasilicate, Na₂SiO₃ · 9H₂O, PVA: Polyvinyl Alcohol).

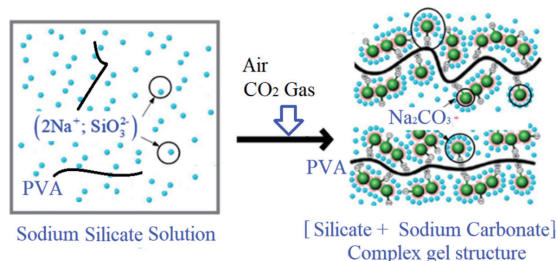


Fig.16 Expected structure of silicate and sodium carbonate complex gel.

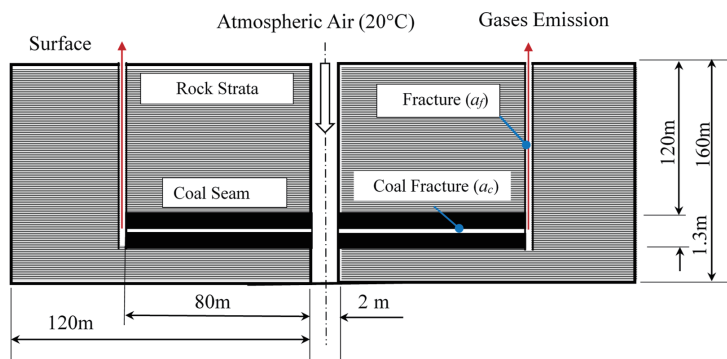


Fig.17 2D coal seam model (4806 blocks in the coal seam and 15305 blocks in the rock, total 20111 blocks used for ANSYS FLUENT).

て、中国産褐炭を破碎した粒子（平均粒径 3 mm）に塗布し、辺の長さが 5 cm のバスケットを用いた WMB 試験によって T_{CSIT} を測定した。Fig. 15 に示すように、水の場合に比較して [SMS7%] 溶液および混合溶液 [SMS7%+PVA0.2%] の T_{CSIT} は、それぞれ約 4 および 5°C 高い値を示した。著者らは、大気中と加熱した石炭粒子から放出されたの CO₂ ガスとの反応で生じたゲルによって石炭マトリックス内部への O₂ 分子の拡散と孔隙内の水分の乾燥が抑制され、 T_{CSIT} の温度上昇に寄与したためと推定している。また、Fig. 13 に示した T_{CSIT} vs. V と同様の関係 ($T_{CSIT} \propto -12.73 \cdot \log(V)$) が概ね成立するとすれば、自然発火を生じない堆積量を 2.5 倍程度に拡大できる効果があると算定される。なお、薬剤液と空気中の CO₂ ガスによって生成されたゲル構造を予測した模式図を Fig. 16 に示す。このとき、PVA はゲル構造を形成する段階において、石炭表面への付着性を高めたり、ゲル分子の骨格となる役割を持つと推測している。また、前述したように、この薬剤液を炭層火災の燃焼ガスの排気経路となっている亀裂などに注入することによって、薬剤液と CO₂ ガスの反応によってゲルを生じさせ、マクロ的な排気流路の閉塞剤としても働くことを期待している。

6. 地下炭層火災の消火プロセスの数値シミュレーションの試み

炭層火災などを物理化学的に再現する適格な数値シミュレーションモデルを確立できれば、フィールドでの炭層火災や自然発火の消火プロセスを事前予測でき、消火プロジェクトの計画策定に役立つ²³⁾。

Fig. 2 に示した低品位炭の炭層火災が自然状態で生じている状況を想定し、数値シミュレーションモデルを構築したものが

Fig. 17 である。中央に大気から空気が抵抗なく供給される縦坑があり、その左右に炭層厚 1.3 m、長さ 80 m の 2 次元炭層モデルを配置している。また、炭層中には開口幅 a_c の水平亀裂が中央に存在し、両端で開口幅 a_f の縦の亀裂に連結し、燃焼ガスが亀裂内を層流で地上へ流出する設定とした。この条件は、石炭地下ガス化 (Underground Coal Gasification, UCG) の空気圧入井、ガス生産井および両井を結びリング坑を接続した場合と同様の条件が与えられたことになる。数値シミュレーションには、ANSYS FLUENT を使い、炭層を 4806 ブロック、岩石層を 15305 ブロックで構成した。中央の縦坑からの空気の流入における圧力損失がないと仮定し、左半分の炭層領域を解析対象とした。ただし、岩盤の境界は断熱条件を設定した。炭層の熱物性などの条件は、Fig. 10 の石炭パイルと同一とした。なお、石炭質量が急激に低下する 300°C 以上の温度領域を扱うことから、等価酸化時間の計算に用いた累計発熱量に比例した石炭質量の減少とそれに対応した体積を孔隙率に加える処理を追加した高温用の修正発熱モデルを適用した。このとき、累計発熱量が石炭の燃焼発熱量 (= 約 1.7×10^5 kJ/kg) に等しくなった時に、その石炭は全て焼失し、質量 0 および孔隙率 100% となるモデルを適用した。

Fig. 18 は、炭層と排気亀裂の開口幅をそれぞれ $a_f=36.3$ mm および $a_c=36.3$ mm と同一に設定した場合の経過時間 0.5 ~ 15 年の炭層温度分布の数値シミュレーション結果を示し、燃焼領域の時間的な移動と広がりを見たものである。炭層はゆっくりと入気 (右) 側から温度上昇し、排気側に向かって高温領域が拡大して行くことがわかる。亀裂幅を 36.3 mm としたことで酸素の供給がある程度制限された状態であるため、炭層内の最大温度は約 400°C に留まっている。

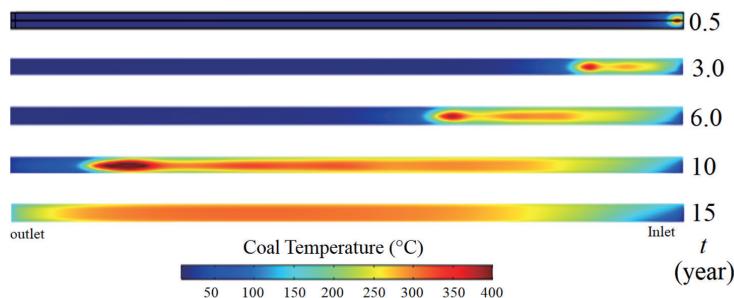


Fig.18 Numerical simulation results of temperature distributions in left side of a coal seam (1.3 m in height, 80 m in length, $a_f=a_c=36.3$ mm) at $t=0.5$ year to 15 years.

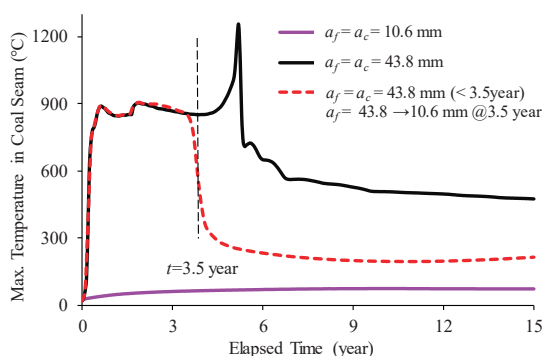


Fig.19 Numerical simulation results of maximum temperature in the coal seam for different aperture widths of fractures in coal seam and rock overburden (a_c and a_f).

次に、炭層の最大温度に対する亀裂の開口幅の影響を調べた結果を Fig. 19 に示す。 $a_f=a_c=10.6$ mm とした場合では、温度上昇は 70°C 程度に抑制され、燻焼にも到っていない温度レベルであるが、 $a_f=a_c=43.8$ mm とした場合では最高温度も 1200°C を超え、完全な炭層火災の状態を示している。最後に、縦亀裂の開口幅 $a_f=43.8$ mm で炭層火災となった条件で、 $t=3.5$ year の時点でゲル生成によって約 1/4 の $a_f=10.6$ mm に減少させることができたと仮定し、炭層内の最大温度の推移を数値シミュレーションで予測したところ、その後 250°C まで急速に温度低下し、次第に消火に到る結果が得られた。このことは、地表面で見つけ易い排気経路の出口側から、CO₂ ガスとの接触でゲル生成が期待できる薬剤液 (5・2・2 節参照) を注入できれば、抑制効果が期待できる可能性があることを示している。ただし、現実の排気経路はより複数であることも想定され、実際のフィールドへの薬剤液の注入などのフィールドでの実証試験の積み重ねが必要である。なお、本数値シミュレーションで設定した亀裂の開口幅はモデルとしての値であり、実際の炭層火災ではより狭い透過性の亀裂群の集合と考えられ、実際の現場データとのマッチング解析などを行う研究が不可欠である。

7. 結 言

大規模炭層火災や自然発火などからの CO₂ 放出量は極めて大きく、地球温暖化や気候変動に寄与しているのではないかと指摘がなされている。また、気候変動が地上の森林や浅層の泥炭層の大規模火災を引き起こす原因となっていることも懸念され、地球規模での対策が模索されている状況にある。

本総説では、これまでの自然発生的な炭層火災や石炭層の自然発火が生じているエリアからの CO₂ 放出量の推定に関わる先行研究、および著者らが開発を進めている石炭のエイジング効果と

等価酸化時間概念を考慮した石炭の発熱モデルに関する研究成果を紹介した。さらに、著者らが現在進めている炭層の火災や自然発火をマイクロ (化学) 的かつマクロ (物理) 的に抑制するゲルを原位置で生成する薬剤液についての開発状況について説明し、フィールドスケールでの炭層火災の消火プロセスの数値シミュレーション研究についての紹介を行った。

炭層火災あるいは自然発火の抑制による大気中に放出される CO₂ ガス量削減が必要とされる技術要素は以下の 3 項目である。

- 1) 地下炭層火災や自然発火が観測されている地域において、その表層から大気へ放出される CO₂ ガスフラックス量を精度よく測定するガスフラックスモニターと測定法を確立し、消火前後における地域内の CO₂ 放出量の差を確定するモニタリング技術。
 - 2) 炭層火災と自然発火の状況や酸素供給の現象や石炭のエイジング効果を考慮した消火プロセスを再現するための数値シミュレーションモデルを確立し、実際の炭鉱跡地などへ適用し、適格に消火予測ができる技術。
 - 3) 石炭表面に酸素供給を断つ被膜を形成させるか、石炭の燃焼ガスに含まれる CO₂ ガスを吸収し、ゲル状物質を生成することで、排気経路を塞ぐ経済的で環境にやさしい化学薬剤液を開発し、現場で地下注入あるいは地上から散布する技術。
- 気候変動の抑制が人類全体の課題となりつつある中で、自然発生的な炭層や泥炭層の火災や自然発火を消火させ、温暖化ガスとして大気へ放出されている 100 万 t/year 規模の CO₂ ガス放出量の削減も期待できることから、現在の大規模 CCS プロジェクトと同様に組織的に挑戦する課題となり得る。

謝辞 本研究は、日本学術振興会科学研究費助成事業・基盤研究 (B) (課題番号: 20H02684) の補助を受けたことを付記する。

References

- 1) H. Gielisch, C. Kropp: Coal fires A Major Source of Greenhouse Gases- A Forgotten Problem, *Environ Risk Assess Remediat*, 2-1 (2017), 5-8. DOI: <https://doi.org/10.4066/2529-8046.100030>
- 2) USGS (U.S. Geological Survey): Washington, DC, USA (2009), <https://pubs.usgs.gov/fs/2009/3084/pdf/fs2009-3084.pdf>
- 3) G. B. Stracher, T. P. Taylor: Coal fires Burning Out of Control Around The World: Thermodynamic Recipe for Environmental Disaster. *International Journal of Coal Geology*, 59 (2004), 7-17. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2003.03.002>
- 4) E. L. Heffern, D. A. Coates: Geologic History of Natural Coal-bed Fires, Powder River Basin, USA. *International Journal of Coal Geology*, 59 (2004), 25-47. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2003.07.002>
- 5) J. M. O'Keefe et al.: CO₂, CO and Hg Emissions from The Truman Shepherd and Ruth Mullins Coal Fires, Eastern Kentucky, USA. *Science of the Total Environment*, 408 (2010), 1628-1633. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.scitotenv.2009.12.005>
- 6) A. Kolker et al.: Emissions from Coal Fires and Their Impact on The Environment. USGS Fact Sheet 2009-3084 (2009), 1-4.
- 7) K. Sasaki, V. Susanto, F. Anggara, A. Yousefi-Sahzabi, Y. Sugai, T. Kawamura, T. Kodama, K. Matsushima: Few Considerations on Problems of CO₂ Geological Storage with Carbon Circulation and Proposal of An Integrated Regional Energy System considering Low Carbon Society, *Journal of MMIJ*, 131 (2015), 503-508. DOI: <https://doi.org/10.2473/journalofmmij.131.503>

- 8) 南明紀子: パーム油の燃料としての持続可能性. https://www.wwf.or.jp/activities/data/20190821_forest05.pdf, WWF ジャパン (2019), 1-14.
- 9) 環境省: 燃料別の二酸化炭素排出量の例, ホームページ <https://www.env.go.jp/council/16pol-ear/y164-04/mat04.pdf> (2020), 1.
- 10) K. Sasaki, Y. Sugai: Equivalent Oxidation Exposure-Time for Low Temperature Spontaneous Combustion of Coal, Heat Analysis and Thermodynamic Effects (Eds. A. Ahsan), InTechOpen (London) (2011), 235-254. DOI: <https://doi.org/10.5772/20308>
- 11) L. Sloss: Assessing and managing spontaneous combustion of coal, IEA Clean Coal Centre Report CCC/224 (2013), 1-55. https://usea.org/sites/default/files/media/Assessing%20and%20managing%20spontaneous%20combustion%20of%20coal%20-%20ccc259_new.pdf
- 12) M. A. Engle, R. A. Olea, J. C. Hower, G. B. Stracher, A. Kolker: Methods to Quantify Diffuse CO₂ Emissions from Coal Fires using Unevenly Distributed Flux Data. In: G. B. Stracher et al. (Eds.): Coal and Peat Fires: a Global Perspective, Volume 2, Elsevier (Amsterdam) (2012), 1-24. DOI: <https://doi.org/10.1080/17583004.2016.1249216>
- 13) T. Larry: Coal Geology, (A John Wiley & Sons, West Sussex, 2002), 273.
- 14) K. Sasaki, Salmawati, T. Kuriyama, Y. Sugai: Increasing Rate of CO₂ Emission from Land Surface to Atmosphere. Proc. MMJ Annual Spring Meeting (2018), 5-2, [1501-04-03].
- 15) Salmawati, K. Sasaki, Y. Sugai, A. Yousefi-Sahzabi: Estimating A Baseline of Soil CO₂ Flux at CO₂ Geological Storage Sites, Environmental Monitoring and Assessment, **191**:563 (2019), 1-12. DOI: <https://doi.org/10.1007/s10661-019-7724-5>
- 16) Y. Wang, X. Zhang, H. Zhang, K. Sasaki: Field Study on Correlation between CO₂ Concentration and Surface Soil CO₂ Flux in Closed Coal Mine Goaf, ACS Omega **2019** (2019a), 12136 - 12145. DOI: <https://doi.org/10.1021/acsomega.9b00927>
- 17) J. N. Carras, S. J. Day, A. Saghafi, D. J. Williams: Greenhouse gas Emissions from Low Temperature Oxidation and Spontaneous Combustion at Open-cut Mines in Australia. International Journal of Coal Geology, **78** (2009), 161-168. DOI: <https://doi.org/10.1016/j.coal.2008.12.001>
- 18) K. Sasaki, H. Miyakoshi, K. Otsuka: Spontaneous Combustion of Coal in The Low Temperature Range Application of exposure equivalent-time to numerical analysis, Journal of the Mining and Metallurgical Institute of Japan, **103** (1987), 771-775. <https://doi.org/10.2473/shigentosozai1953.103.1197>
- 19) H. Zhang, K. Sasaki, X. Zhang, Y. Sugai, Y. Wang: Numerical Simulations on The Self-heating Behaviors of Coal Piles Considering Aging Effect, Combustion Theory and Modelling, **23** (2019), 1169-1190. DOI: <https://doi.org/10.1080/13647830.2019.1644378>
- 20) K. Sasaki, H. Miyakoshi, A. Saitoh, T. Chiba: Water Vapor Adsorption of Coal and Numerical Simulation Related to Its Effect on Spontaneous Combustion in a Low Temperature Range, Shigen-to-Sozai, **108** (1992), 479-486. DOI: <https://doi.org/10.2473/shigentosozai.108.479>
- 21) R. Kaji, Y. Hishinuma, Y. Nakamura: Low Temperature Oxidation of Coals-A, Calorimetric Study, Fuel, **66** (1987), 154-157. DOI: [https://doi.org/10.1016/0016-2361\(87\)90233-X](https://doi.org/10.1016/0016-2361(87)90233-X)
- 22) 藤墳大裕: 低品位炭の自然発火機構の解明および自然発火抑制法の検討, 京都大学博士論文 (2014). DOI: <https://doi.org/10.14989/doctor.k18309> [H. Fujitsuka: Teihinitan no Shizenhakkakikou no Kaimei oyobi Shizenhakkayokuseihou no Kentou, Kyoto University doctoral theses (2014). DOI: <https://doi.org/10.14989/doctor.k18309>]
- 23) H. Zhang, K. Sasaki, Y. Sugai, X. Zhang: The Decay Modeling of Coal Oxidized Heat Generation to Predict Calming Process of Spontaneous Combustion of Coal Seam, Proc. MMJ Annual Fall Meeting (2019), 6-2 [1K0701-09-06].
- 24) Y. Wang, X. Zhang, Y. Sugai, K. Sasaki: Determination of Critical Self-ignition Temperature of Low-rank Coal using A 1 m Wire-mesh Basket and Extrapolation to Industrial Coal Piles, Energy & Fuels, **31** (2017), 6700-6710. DOI: <https://doi.org/10.1021/acs.energyfuels.7b00409>
- 25) 内田宗宏, 堤武司, 上坊和弥, 野村誠治, 齋藤公児: 石炭の酸化発熱特性評価法の開発, 日本製鉄技報, **413** (2019), 151-156. [M. Uchida, T. Tutumi, K. Uebo, S. Nomura, K. Saito: Development of Method to Evaluate the Characteristics of Coal Oxidation and Heat Generation, Nippon Steel Technical Report, **413** (2019), 151-156.]
- 26) K. Otsuka, H. Miyakoshi, H. Sato, I. Sato, T. Sasaki, N. Oda, Y. Kondo: Influence of Surface Covering Agents on Coal Oxidation Study on Inhibitor of Spontaneous Combustion of Coals (2nd Report), Journal of the Mining and Metallurgical Institute of Japan, **100** (1984), 23-28, DOI: https://doi.org/10.2473/shigentosozai1953.100.1151_23
- 27) Y. Wang, X. Zhang, H. Zhang, K. Sasaki: Effects of Temperature Gradient and Particle Size on Self-ignition Temperature of Low-rank Coal Excavated from Inner Mongolia, China, Royal Society Open Science, 6-9 (2019b), 190374:1-14. DOI: <https://doi.org/10.1098/rsos.190374>
- 28) 原田智行, 永利隆剛, 安藤晶子, 内田唯史, 城内智行: 貯炭場の石炭パイルの自然発火・発塵の防止方法及び石炭混合燃料, 日本国特許 JP2011251782A (2010). [T. Harada, T. Nagatoshi, S. Ando, T. Uchida, T. Shirouchi: Japan Patent JP2011251782A (2010)]
- 29) 足立幸弘, 菅原均, 小川仁: 炭素質粉体の昇温・自然発火抑制剤, 日本国特許 JP2001164254A (1999). [Y. Adachi, H. Sugawara, H. Ogawa: Japan Patent JP2001164254A (1999)]
- 30) 崔原榮, 大森大助, 伊藤隆政, 高橋克巳, 田中昭洋: 低品位炭(亜瀝青炭)の貯蔵および運搬技術, IHI 技報, **56-4** (2016), 38-45. [W. Choi, D. Omori, T. Ito, K. Takahashi, A. Tanaka: Storage and Handling of Low-Rank Coal, Journal of IHI Technologies **56** (2016), 38-45.]
- 31) S. Chea, K. Sasaki, R. Nguete, Y. Sugai: Evaluation of In-situ Reservoir Blocking by Sodium Carbonate Gel formed from Sodium Metasilicate Solution and Injected CO₂ for CO₂ Sequestration, Journal of the Japan Petroleum Institute, **62** (2019), 309-318. DOI: <https://doi.org/10.1627/jpi.62.309>