密閉内の自然発火の現象について*

—— 石炭の堆積層の蓄熱性について (第2報) ——

正 会 員 江 村 富 男**

正 会 員 鍋 谷 弘**

On the Phenomena of Spontaneous Combustion inside the Sealed Area

—Accumulation of Oxidation Heat in a Pile of Coal (2nd Report)—

Tomio EMURA and Hiroshi NABEYA

This investigation was undertaken to observe the Phenomena of Spontaneous combustion inside the sealed area after sealing and to study the conditions of fire-reappearance when opening the sealed area (using special furnace).

The main results obtained are as follows;

- 1) Considering the mechanism of spontaneous combustion, it is natural that the phenomena inside the sealed area should develop toward inlet.
- 2) From the studies of the phenomena inside the sealed area which permits air to get into freely, we may suggest a possible type for the heat accumulation in the large coal-pile.
- 3) It is provable that some portion of coal-pile becomes very reactive toward oxygen during sealing period so that the fire starts again at this portion easily when opening the area.

1. 緒 言

われわれは特殊な実験炉によって石炭の自然発火の諸現象を観察し、石炭の自然の機構を解明することにより、従来までの現場における自然発火防止対策に対して根本的な検討を加え、これに基礎的、理論的裏付けを行うとともに、さらに進んで有効適切な自然発火対策を樹立する目的をもつて研究を進めて来た。前回に報告したようにわれわれは適当な送風温度および送風量の空気によって実験炉内で石炭堆積層内の任意の位置に石炭の自然を発生させることができるようになったので、これを密閉して消火する場合に堆積層内の自然現象は如何に推移するか、自然石炭の消火の機構は如何なるものであるか、また密閉取明け後の再発火はどうして起り易いか等の問題について検討を加える実験を行つたのでその結果の一部を報告する。

2. 実験装置および方法

この研究に使用した実験炉は第1報に報告したものである。これを密閉する場合、入・排気口に鉄板の蓋をし、砂の充填壁とモルタルを厚く塗つて密閉した。ところがこの実験炉の規模では石炭試料を約 $\frac{1}{2}$ t 程しか堆積出来ないからこのような密閉状態では必ず消火する。しかし

この密閉の期間中に観察される石炭堆積層内の現象の推移は(1)石炭の自然を生じている箇所(発火源)の大小、(2)堆積層内でのその位置、および(3)密閉の度合の良否によつて異なつてあらわれる。そこで初めにこれらの事項について簡単に検討を加える。

3. 実験の結果

発火源の大小による密閉内の現象の相異について観察を繰返して小さい発火源の実験結果から大きいものの場合も推察出来ることが解つたので発火源の大きさをつぎのように臨時に決めて実験を進めた。すなわち前述のように適当な温度及び速度の空気を石炭の堆積層に送入すれば、層内の任意の位置の石炭の温度が急上昇を起してその温度がある一定の温度(350~400°C)まで昇つて平衡を保ち温度上昇の現象が入気側に進展し始めるようになるから、この時に自然が発生したと考へて密閉する。これは堆積層内に発生した石炭の自然開始箇所が局部的であり、一種の早期密閉に相当する。

3-1 自然開始位置が異なる場合

自然発火の発生箇所が堆積層の(1)入気側の近傍の時、(2)中央部の時、並びに(3)排気側近傍である時におのおのを密閉した場合の炉内の堆積層の中軸部の温度分布の推移は第1図に示すようである。そしてこの図の示す意味は「石炭堆積層の入気側近傍より深部の位置から自然発火が発生したら密閉後の現象の推移は必ず入気

* 昭和34年5月25日受理 昭和34年4月 日本鉱業会春季大会で講演
** 資源技術試験所北海道支所

第1図 密閉後の石炭堆積層中軸部の温度分布の推移(10時間ごとのもの) 自然開始位置(0時の曲線)が異なる場合

側に向って行われる。」と云うことである。これは同図にも示すように密閉直前の石炭の自燃発生時の堆積層内の酸素濃度の分布が発火点の排気側ではすでに零になっている、酸素を求めて起ると考えられる密閉内の現象の推移は排気側へは起り難いからである。すなわち、これは自然発火の発生機構から必然的に生起する事項である。

3.2 密閉の良否による現象の相異

前述のような密閉方法によつても、この実験炉は自然発火の発生機構を研究するように試作したものであるから酸素の漏洩は避けられなかった。密閉後の石炭堆積層内の温度及び酸素、炭酸ガス濃度分布の推移の1例を第2図に示す。第1,2図から見てわかる事は、

(1) 漏洩が有る場合は現象が入気側に進行するにしたがつて、漏洩酸素の影響を次第に強く受けて石炭温度が高くなる。そして密閉度合が悪く漏洩酸素が多くなるほど、この入気近傍の石炭温度は高くなる。

第2図 密閉後の堆積層中軸部の温度およびガス濃度分布の推移

①～⑥は温度計挿入箇所

(2) 酸素濃度は堆積層内の発火源の近傍では密閉直後急減し、短時間の間に零になる。(後出)

(3) 入気の酸素濃度は密閉後次第に減じ、現象が入気側まで移行して来て、入気側近傍の石炭温度が一番高くなる時に最低の値を示す。しかしこの入気側の石炭が酸化して酸化被膜を被ぶり酸化作用が減じて、入気の冷却を受けて、その温度が低下し始めるようになると入気の酸素は漸増するようになる。この時堆積層内の温度分布で最高温度を示す箇所は中央部に移行してゆく。

(4) 入気の炭酸ガス濃度の測定からでは上述の石炭堆積層内の熱移動の傾向を知るのは容易でない。

さて、密閉による消火と云う事にとらわれずに現象だけを観察すれば、前述の密閉後の石炭堆積層内の現象の推移は、次に述べる2つの極限の中間に属する現象である。

(i) 自然発火を起している実験炉内の酸素を急速に窒素等の不燃性ガスで置き換えて直ちに炉を完全に密閉した場合、この時は石炭堆積層内の現象が全くの熱の伝導と冷却によつてのみ推移することになる。

(ii) 自然発火が発生したら送風は止めるが、炉の入排気は開放したままにして、酸素の漏洩を自由にして現象を推移させる場合

以上の(i)の場合は普通の熱伝導の問題であつて、ある程度は計算も可能であり理想的な消火方法になるわけであつて、これについて検討する事は止めて(ii)の場合について報告し考察を進める。

まず実験炉内の堆積層の一番排気側近傍の石炭から自然発火を発生させた時の現象推移の1例を第3図[A]に挙げる。この例で見ると、⑥に生じた発火源は送風停止直後は急にその温度の低下を来し、堆積層の温度分布で最大値を示す箇所は次第に入気側に向って移行する。そしてその絶対値は初期には小さくても④、③、②と順次入気側に近づくにつれて大きくなって行き、石炭の熱分解の温度まで上昇し、入気への熱の冷却とバランスする。これは前述の密閉の時の現象にも同様な傾向があらわれていたがつぎの様に推察される。

送風停止の直後は堆積層の通気抵抗のため⑥では自然通気のみによる酸素の供給量では直ちに欠乏を来して酸化発熱は激減する。さらに周囲への熱の伝達とこのため

↑第5図 現場における可燃物と密閉範囲の模型な関係図

左第3図 送風停止後の堆積層中軸部の温度分布の推移(10時間ごとのもの) 石炭堆積層の通気抵抗が異なる場合 (①～⑥は温度計挿入箇所)

右第4図 送風停止後の堆積中軸部の温度分布の推移：発火源の位置が異なる場合

[A] 排気の冷却を強く受けた場合(10時間ごと)
[B] 中央部で冷却を受け難い場合(5時間ごとのもの)

徐々に温度上昇を始めた入気側の石炭による酸素の消費とによつて石炭温度の低下が著しい。ところが現象が堆積層中を入気側に向つて進むにつれて、その点より入気側にある石炭による酸素の消費が次第に少なくなるから、石炭の温度上昇も徐々に激しくなり、入気側近傍では熱分解温度までも上昇する可能性がある。もし熱分解温度に到達した場合は長時間放置すれば分解作用のため石炭は次第に灰となり温度低下を示す。

ここでこの(ii)の現象を支配する事項として考えられるものは(イ)石炭の堆積層内における発火源の大きさおよびその位置、(ロ)堆積層の通気抵抗、(ハ)石炭の酸化性である。

まず(イ)の事項についてはこの発火源が大きくて冷却が少ないほど現象の推移は激しく、たとえば、第4図(B)のように自然発火源が堆積層の中央部に出来た場合は熱源の絶対値が少し大きければ、石炭温度の低下は少なく、自然通気のみでも熱分解温度を保ちながら堆積層内を進行する。しかし第4図(A)のように絶対値の大きい熱源を作つても、余りに排気側に発火源の発生した場合は排気への冷却が大きく効いてその温度低下が著しいため現象の推移は少ない。

(ロ)の堆積層の通気抵抗も影響が大きく通気抵抗が大きくなれば自然通気量が減じ第3図[B]のように若干熱源が大きくてその温度低下が少ないのにもかかわらず現象が堆積層の入気側に進んでからの石炭温度の上昇は制限され、熱分解温度に到達せずに冷却して行く。

(ハ)の石炭の酸化性については後で総合的に自然発火現象を考察する時に論ずるが、この現象の主要事項である。

要するに通気抵抗の大きくない石炭の堆積層の中で冷

却を受け難い位置に割合に大きい自然発火源が出来ればこの炉の大きさの堆積層においても自然通気のみで、現象が入気側に進行して来て熱分解温度まで上昇して入気にあらわれる。

さて、さらに良く観察するとこの(ii)の現象は石炭の巨大な堆積層の自然発火の発生の機構を暗示している。すなわちこの(ii)の現象においては自然発火源を作つてから送風停止して自然通気のみにして放置したがその後、例えば10時間後の堆積層内の石炭温度分布を考えてこの時から現象が始まつたと仮定するならば、初期にこの温度分布であつたものが自然通気のみで次第に発達して堆積層の自然が発生して行つた事になる。この場合初めに任意に作つた発火源は要するに熱伝達による冷却のために著しく温度低下をしない安定な蓄熱地帯を構成することに役立つたこと、および堆積層内でこの蓄熱地帯の位置を設定するのに必要であつたことになる。

そこで実際の巨大な石炭堆積層内で酸化熱の蓄積のため、温度分布ができて次第に発達して行く模様は、この(ii)の現象の型になることが推察されるわけである。

以上、われわれの実験炉での密閉内の現象は酸素の漏洩を考えるならば2つの極限の現象の中間に属することを述べたが、ここで現場の密閉について言及すれば現場における密閉もその密閉範囲の大小、自然発火源の大きさ及びその発生位置の多様性、密閉度合の良否、坑内ガスの湧出等を考えるとき、結局は前述の2つの極限の場合によつて代表される現象が複雑に交錯して発生したと考えられる。まず現場を第5図のように模型的に単純化して考察すると、第5図[A]のように発火源の大きさに対して密閉範囲が現場の特殊条件のため余りにも大きい場合は少なくとも密閉の初期においては(ii)の現象に

近いものが生起すると考えられる。逆に密閉範囲が発火源に対して狭く、しかも坑内ガスの湧出の多い場合は、

(i) の現象に近い推移があると思う。以上は概念的ではあるが密閉内の可燃物中で起るだろうと考えられる現象の基本的な型を表わすものと信ずる³⁾。

3.3 再発火過程の検討

つぎに実験炉を密閉して石炭堆積層の温度を下げてからこれを取り明けて再び送風する時、如何なる条件の場合に石炭の自然が再発するかを検討する。第6図〔A〕の例は送風直前の堆積層の温度分布の最大値が130°C以下の時であつたが送風によって温度の最大値を示す位置は次第に排気側に押しやられ、しかもその絶対値も小さくなってゆき入気温度に近づく。故に入気温度さえ低ければいくらかでも冷却出来るからこの時は消火可能である。

第6図〔B〕の例は送風直前の温度分布の最大値が180°Cであつたが、室温の空気を強く送って冷却できるかどうかを検討したものであるが、この時は図のような複雑な様相で再発火しているが、これは2つの現象の合成されたものと観察される。それは

(A) ③の近傍から自然が突発したもので送風の初期には石炭温度の最大値を示す位置は若干排気側に押しやられているが、消火の場合と異なりその絶対値は急速に増加して突燃している現象。

(B) 密閉前に自然を起していた⑤の箇所が③よりも低い温度から局部的に温度の急上昇を示し、もう一つ別の自然の突発した事をあらわしている現象。

しかし、この2現象が同時に発生すると③の箇所の現象による酸素の消耗が激しいため⑤の温度上昇は制限さ

れて図のような温度上昇を示した。そしてこの図の示す意味は⑤の付近の或る箇所が密閉した事により特別に酸化性が激しくなつたと云うことであろう。

そこで密閉して石炭の温度を下げて一度自然を起した箇所の一部が酸化性が激しくなることを示す実験例を次にあげて考察を加えたい。第7図がその例である。

この図の〔A〕は最初堆積層の⑤の付近の石炭より自然発火させた状態をあらわす。これを密閉して消火し、〔A〕の時と同一温度の空気を同一風圧で堆積層に送入して再発火させる(〔B〕図)と、前の自然開始の位置よりやや入気側に絶対値の大きい発火源が〔A〕の時より遙かに短時間で生成する。そこで送風を続けて現象を④の近傍まで進行させてから、この密閉消火を行い再び送風して発火させる(〔C〕図)。第7図から観察される事項をまとめると、

(1) 密閉消火後送風して再発火させる事を繰返しているがいずれの場合も密閉直前において堆積層中を自然が進行して来た先端の箇所が次の自然進展の時に急激な温度上昇を示し最大値になる。この理由はこの箇所が密閉直前に熱分解作用のため石炭粒子に多くの亀裂を生じ、新しい面が露出し始めた許りの時に密閉によつて酸素の供給が急激に絶たれそのまま強く酸化を受けずに温度低下したので酸化性の激しい状態になつたと考えられる。

(2) それ故、送風時の石炭自然の進展中にどれ位の高さの温度で熱分解されたかによつて亀裂の発生の方が異なるため、ある限界までは高温で裂砕作用を受けた方が、次の再発火の時に激しい酸化性を示す事になる。

4. 考 察

最後に石炭の酸化機構から以上の現象を総合的に考察する。まず石炭の酸化速度を支配する事項は(1)石炭と接触する酸素の濃度、(2)温度

第6図 密閉取明け後、送風による温度分布の推移

第7図 再発火過程、温度分布の推移 (30分ごとのもの)

第8図 緩慢燃焼の速度、および石炭温度の上昇速度と温度の関係

(3) 石炭の表面積、および(4) 石炭が以前どの程度酸化されていたかということである。そこでこれらの項目ごとに分けながら検討する。⁴⁾

(1) 項の酸素の濃度の影響については少量の石炭資料に対するものは、すでに多く報告されているが石炭の堆積層中では前述の諸例にあるように自然現象の進行中も密閉中においても堆積層であるための影響が別に加わり、これがため一見現象を複雑にしているが、結局は解析出来るものであると考える。

(2) 項の温度については石炭の酸化性が温度の上昇とともに4段階に分れて進行する⁵⁾。第1段階は0°C付近までの化学吸着、第2段階は150°C位までで前段階中に吸着したものが分解してCO、CO₂を発生し内部水分も発散する。第3段階は熱分解を開始するまでの間でこの温度範囲中に安定な炭素と酸素の複合体が出来る。第4段階では分解、燃焼が起るのである。各段階の現象は互いに境界を越えて発生するが、それぞれの活性化エネルギーが異なっていて段階が進むにつれて酸化性が激しくなる。それで、多くの報告に自然発火現象は或いは80°Cから、或いは130°C位から激しくなると述べてあるがこれらの温度は2及び3段階の始まる境界値に相当しているようである。前述の実験例でもこの炉内では堆積層中の石炭の温度分布の最高値が140°C位より以上になると、石炭温度の上昇が急激になるし密閉による消火の場合も少なくともこの温度以下にならなければ送風によって再発火の可能性が多くなり、この炉の堆積量では酸化現象が第2段階から第3段階の安定な炭素酸素の複合体の生成段階になると酸素の供給量が適当な時は石炭の自然発火現象が非常に安定な強固なものになることを示す。そして第2節の例のように通気抵抗が大きくない時は自然通気のみによる酸素の供給によっても熱分解温度までは上昇する可能性がある。要するにこの位の石炭の堆積層の場合は少なくとも第2段階以下まで密閉して温度を下げなければ再発火の心配がある。

つぎの熱分解の起るまでの第3段階は緩慢燃焼と称し分解燃焼と区別されるがこの場合の酸化速度は第8図の点線で示すように300°C位で最低値を示すことが本田より報告されているが⁶⁾、この実験炉の燃焼においても堆積層の自然発火開始箇所の温度の上昇速度(酸素濃度が充分であれば一応酸化速度に比例する)は同図に示すようにこの傾向を示す。

分解燃焼が盛んで入気側へ燃焼の移動する過程では酸化反応が2~3cm位の反応帯と考えられる帯内で起きて、この反応帯が入気側に進展して行く形になる。この場合の反応は反応帯の入気側から供給される酸素の濃度、反

応を駆動すると考えられる帯の直ぐ排気側の既燃焼部分の温度並びにその上昇速度、石炭の酸化性に大きく影響される。この事は第7図の例から良く観察される。この現象の詳細及び酸素の供給量が少なく例えば第3図の場合の酸化機構については研究中である。

(3) 項の石炭の表面積についてであるが3・3の例のように自然を起して熱分解をしている石炭を急激に密閉すると、亀裂の発生による表面積の増加のため* 酸化性の激しい部分が生成し、これが密閉取明け後の再発火に大きい影響を与えるが、このように石炭の酸化性の激化するのとは地圧によつて石炭が破碎される時、風化によつて若年炭が粉碎される時にも同様と推察される。

(4) 項の石炭の酸化の程度についての影響であるがどの段階まで酸化されたかによつて異なると思われるが、酸化を受けた温度が低ければ酸化性の低下の影響の顕著にあらわれるのは反応する温度の低い間であつて温度の高い第3段階以上では余り大きく影響しない⁷⁾。それ故実験結果の再現性を求めるためには自然発火現象も高い温度の現象から推察する方がよく、われわれの研究もこの方針にもとづいて進めている。

5. 結 言

(1) 自然発火を密閉した場合、密閉内の現象はその発生の機構から必然的に入気側に向つて進展する。

(2) 密閉内の自然現象は2つの極限の中間の現象と考えられ、その一つの極限である酸素の漏洩が自由な場合の現象の推移を観察して巨大な石炭堆積層内に起る自然発火の発生の状況が推察されること。並びに現場の密閉内の可燃物中で推移する現象の一つの基本的な型が概念的ではあるが考察される。

(3) 密閉取明け後再発火し易くなる理由の一つに密閉によつて堆積層の一部の石炭が酸化性の激しくなる可能性のある事が考えられる。

(4) 最後に石炭の酸化機構から総合的に石炭の自然発火の発生及び密閉消火の事項を考察した。

なお本研究の実施に当つて当支所長古谷敏夫氏と松本敬信技官より理解ある御指導を受けたことと、多くの石炭試料を提供された各鉱業所に対して深く謝意を表する次第である。

参 考 文 献

- 1) 江村・鍋谷：石炭の堆積層の蓄熱性について(第1報)、鉱業会誌、Vol. 74, No. 842, pp. 9~13.
- 2) J. I. Graham: The Spontaneous Firing of Coal with Special Reference to warwickshire seams. T.I.M.E., Vol. 83, 1932, pp. 89~101.
- 3) G. S. Scott: Anthracite Mine Fires, Their Behavior and Control, 1944, pp. 169~178.
- 4) 3) ibid. pp. 17~75.
- 5) D. W. Van Krevelen: Coal Science, (1957). pp. 313~335.
- 6) 馬場有政編：石炭科学の進歩 第1集、(1956) pp. 285~288.

* 実験終了後、堆積層のこの部分の石炭を取り出して見て確認出来る。