

■ 研究論文 ■

石炭の着火特性に関する研究

— 乾留度合を変えた試料による検討 —

Study on Ignition Characteristics of Coal

(Measurement of Ignition Condition of Partially Devolatilized Coal)

谷口 博*・工藤 一彦**・上出 光志***

Hiroshi Taniguchi Kazuhiko Kudo Mitsushi Kamide

岡 喜秋***・佐山 惣吾****

Yoshiaki Oka Sogo Sayama

(1993年5月31日 原稿受理)

Abstract

Ignition temperatures are measured of partially devolatilized coal to establish a model of the solid-fuel ignition mechanism. The partially devolatilized coal is prepared by heating Taiheiyo coal in a nitrogen atmosphere at a temperature of 720 K to obtain solid fuels with different volatile matter contents.

Ignition temperature is measured by using air-flow typethermobalance, which realizes the uniform gas flow through the partially devolatilized coal specimen during heat-up operation. The results obtained are as follows;

- 1) The ignition phenomena of partially devolatilized coals are taken place when a mixture of volatile matter and oxygen with a certain mixture ratio and its igniter, hot spot are prepared.
- 2) The ignition condition of solid fuels can be estimated by specifying the excess oxygen ratio and oxygen concentration within the fuel layer.

1. はじめに

固体燃料の着火は揮発分の含有率によって大きく影響されることは良く知られている^{1~2)}。工業分野において固体燃料の良好な燃焼状態を得るには、固体燃料の着火の諸条件について検討するのが基本であるが、その機構について調べた例は少ない。

著者らはこれまでの研究で活性炭、サリチル酸及びベントナイトを固体燃料の主要3成分である固定炭素、揮発分及び灰分にみだてて混合した模擬燃料を対象として、揮発分含有率、雰囲気酸素濃度などをパラメータにとり、固体燃料の着火に及ぼすこれらの影響を実験的に調べ、その総合的な影響を着火点マップとして整理した^{3~5)}。さらに、これらの実験により固体燃料

の着火には2種類のメカニズムが存在することを明らかにした。その一つは、加熱によって固体燃料から放出された揮発分と雰囲気中の酸素との混合気が燃料表面に生じたホットスポットによって着火され、その熱で固体燃料自身が安定的な燃焼温度まで加熱されるものである。他の一つは揮発分量が少ない燃料の場合であり、固体燃料自身がその安定燃焼温度まで加熱されて着火する場合である。これらの固体燃料の着火モデルが実際の固体燃料にも適用できることを明らかにするため、本報では乾留の度合いを変えることによって揮発分含有率を5~50%の範囲で変化させた石炭を試料として同様の実験を行い、着火に及ぼす上記パラメータについての検討を行なった。なお実験には強制通気式熱天秤を用いた。

* 北海道大学工学部機械工学科教授

** 北海道大学工学部機械工学科助教授

〒060 札幌市北区北12条西8丁目

*** 北海道立工業試験場 資源エネルギー部

〒060 札幌市北区北19条西11丁目

**** 北海道工業技術研究所 極限環境材料部

〒061-01 札幌市豊平区月寒東2条17丁目

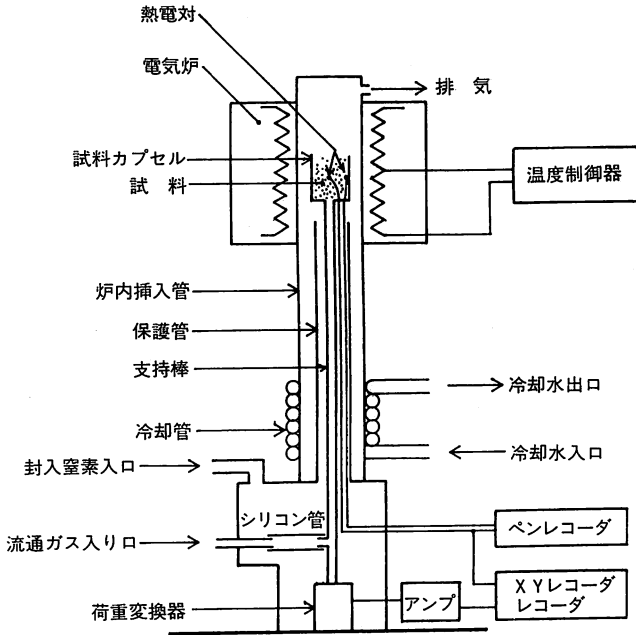


図-1 強制通気式熱天秤の概略図

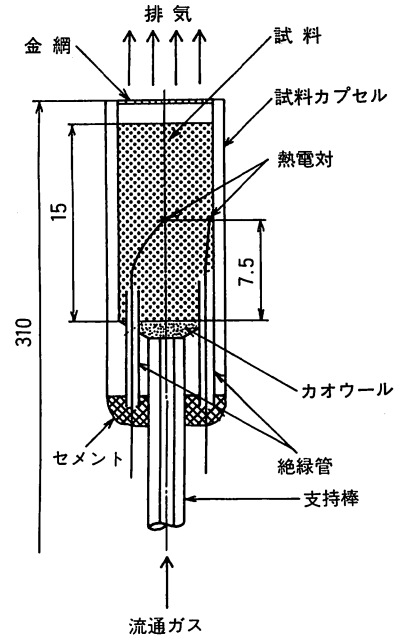


図-2 試料カプセル詳細

2. 実験装置及び実験方法

前述したように、放出された揮発分と酸素の混合気の濃度及び混合比は固体燃料の着火に大きな影響を及ぼす。しかしながら、従来の非流通式熱天秤による着火測定では、雰囲気としての空気は試料の周りを流れるのみで、試料層内部への空気の供給は燃料層表面からの拡散のみに頼っていた。そのため、従来の着火温度測定用熱天秤では酸素の供給は燃料層表面からのみなされ、その拡散速度は試料の表面積と体積に影響される。この場合、試料層内の可燃ガス（揮発分）と酸素の混合比は一樣でなく、揮発分と酸素濃度が着火に及ぼす影響を定量的に検討するのは困難である。このような理由から、試料層形状の影響をなくすため、試料層内部に一定の速度（ $300\text{cm}^3/\text{min}$ ）で雰囲気ガスを流通させることとし、強制通気式熱天秤を用いた。

本研究で用いた実験装置の概略を図-1に示し、試料カプセルの詳細を図-2に示す。試料の入ったカプセルは内径8mm、最大試料厚さ15mmで支持棒によって支えられ、周囲の電気炉で加熱され、この昇温過程での重量変化が測定できるように荷重変換器に乗せてある。任意の酸素濃度に調製された流通ガスは支持棒を介してカプセル内へ供給される。流通ガスは支持棒を通過する際、電気炉により加熱される。電気炉はPIDコントローラで昇温速度を制御している。着火温度はカ

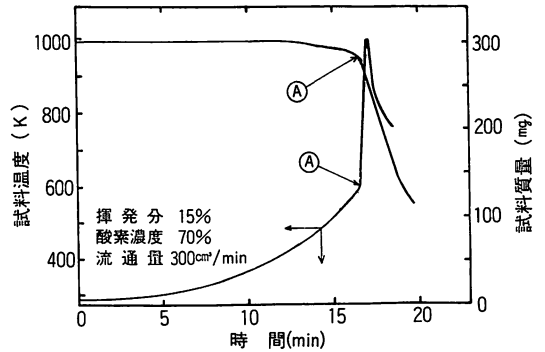
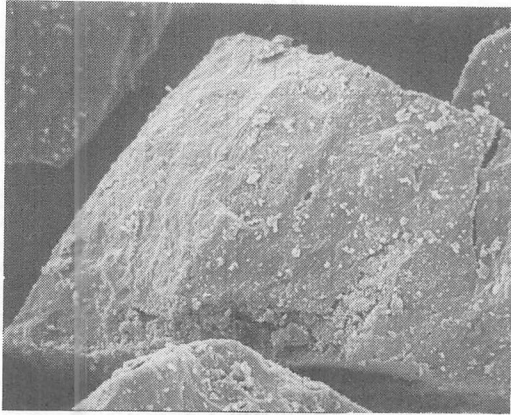


図-3 試料昇温過程における温度変化および質量変化

プセル内に装着した2本のK熱電対（中心部及び外縁部）の変化及び荷重の変化を微分し、これらの値が急変する点として求めた。図-3に示すように、試料の加熱とともに揮発分の放出が始り試料重量は減少する。更に加熱すると試料重量は急激に減少する。この点（A）は試料温度が急上昇する点と一致し、この温度を以後着火点と定義した。なお、着火温度測定時に使用する試料は0.3gで、昇温速度は $30\text{K}/\text{min}$ 、ガス供給量は $300\text{cm}^3/\text{min}$ とした。

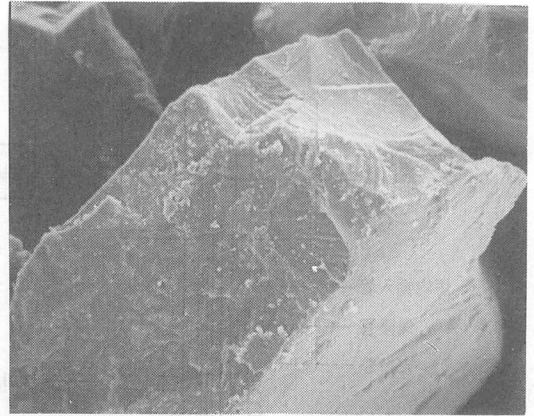
3. 実験用試料

本報における着火温度測定に用いた試料は、乾留の度合いを変えることによって生の石炭の揮発分含有率



10 μm

写1 乾留前の粒子表面の電子顕微鏡写真



10 μm

写2 乾留後の粒子表面の電子顕微鏡写真

表1 石炭試料の工業分析値(無水ベース)

No.	揮発分	固定炭素	灰分	乾留時間	備考
①揮発分調製試料	5.4%	74.5%	20.1%	12時間	
②揮発分調製試料	10.9	72.9	16.2	6時間	
③揮発分調製試料	15.8	66.2	18.0	4時間	
④揮発分調製試料	20.3	61.3	18.4	2時間	
⑤揮発分調製試料	39.2	47.2	13.6	10分	
⑥大太平洋炭	52.6	35.7	11.7	未乾留	
⑦マウントクラバン炭	9.0	83.8	7.2	未乾留	カナダ
⑧大同炭	30.3	61.4	8.3	未乾留	中国
⑨コールバレー炭	37.0	51.1	11.9	未乾留	カナダ
⑩プラトー炭	42.2	48.8	9.0	未乾留	アメリカ

表2 揮発分調製試料の揮発分中の可燃成分(wt%)

試料No.	①	②	③	④	⑤	⑥
炭素	65.1	47.3	47.6	48.1	56.7	81.5
水素	11.8	10.9	14.2	15.6	17.1	13.8

を変えた揮発分調製試料と各種の生の石炭の2種類である。揮発分調製試料としては太平洋炭を用い、後述の図-4に示した太平洋炭の揮発分放出特性から揮発分放出速度が最高となる温度720Kを試料の乾留温度と決定した。試料はあらかじめ粉碎し、未乾留のものと、720Kの窒素雰囲気中で10分、2時間、4時間、6時間、12時間乾留したものの6種類(①~⑥)を用意した。これらの揮発分含有率は5~50%の範囲であった。また、生の石炭としては、これらの乾留炭と揮発分含有率が近い石炭4種(⑦マウントクラバン、⑧大同、⑨コールバレー、⑩プラトー)を用いた、試料はすべて

0.25~0.42mmの粒度範囲にふるいで選別し使用した。

写真1, 2は太平洋炭の乾留前、乾留後の粒子表面の電子顕微鏡写真を示す。これらの写真を比較すると試料表面の性状は乾留してもほとんど変化がないのが分る。表1にこれら試料の工業分析値を示す。

表2に試料①~⑥の揮発分の分析結果を表す。この分析方法は、まず試料の元素分析を行い、次に試料を乾留し残渣の元素分析を行い、試料の分析値と乾留残渣の分析値の差が、揮発分として放出された可燃成分の分析値とした。表から分るように、乾留度を上げていくと揮発分中の炭素はいったん減少してから再び増加する。この炭素分の最初の減少は、乾留前の試料には乾留の前期段階で多量に放出される高分子のタール分が多く含まれているためと考える。なお、簡単化のため①~⑥の試料については以下揮発分含有率を5%、10%、15%、20%、40%、50%と表記する。

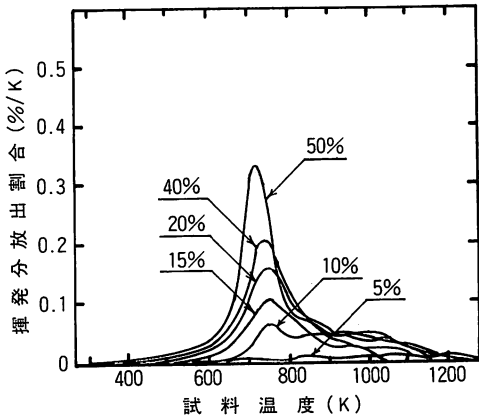


図-4 揮発分調整試料の揮発分放出特性

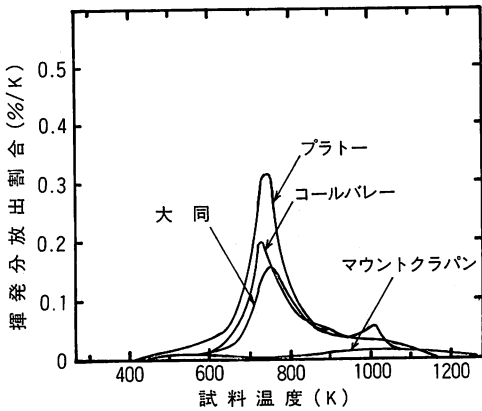


図-5 実際の石炭の揮発分放出特性

4. 実験結果と考察

図-1の熱天秤で測定した試料の窒素雰囲気中の加熱昇温過程での揮発分放出特性を図-4にまとめて示す。縦軸に試料重量に対する単位温度上昇当りの揮発分放出量の割合、横軸に試料温度を示した。この図より、この試料は乾留時間が増すにしたがって揮発分放出の極大点は若干ではあるが高温側にずれるが、どの試料もほぼ720Kで揮発分放出の極大点が現れている。また、これら極大点の高さは揮発分含有率が多くなるほど高くなる事が分る。

図-5にマウントクラパン炭、大同炭、コールバレー炭、プラトー炭の揮発分放出特性をまとめて示す。揮発分含有率の少ないマウントクラパン炭の場合は明確なピークは現れていないが、他の石炭はいずれも揮発分放出のピークが明らかに現れ、その時の試料温度は720~740Kであった。したがって、これら燃料の揮発

表3 実験条件

試料 No	酸素濃度 %				試料 No	酸素濃度 %			
	21	50	70	100		21	50	70	100
①	○	○	○	○	⑦	-	-	-	○
②	○	○	○	○	⑧	-	-	-	○
③	○	○	○	○	⑨	-	-	-	○
④	○	○	○	○	⑩	-	-	-	○
⑤	○	○	○	○	X				
⑥	○	○	○	○					

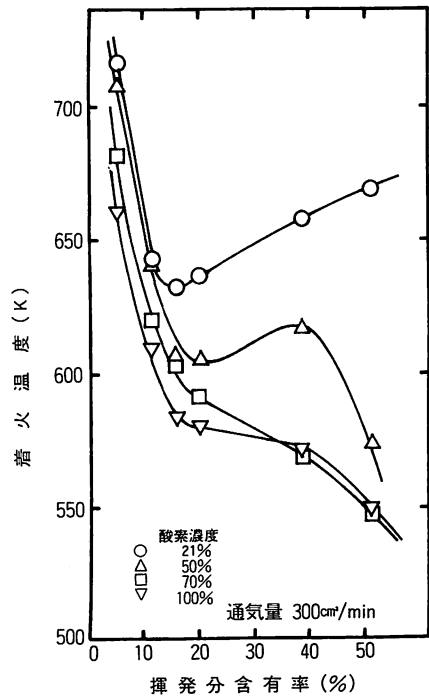


図-6 揮発分が着火に及ぼす影響

分放出速度の絶対値は揮発分含有率に関係し、極大値を示す温度はほぼ一定となっていることが分る。

本研究では、実験パラメータとして、燃料に関する因子としては前述のように燃料の揮発分含有率、外的因子としては雰囲気酸素濃度をとり上げた。実験条件を表3に示す。これらの実験は、揮発分調整試料(①~⑥)については、流通ガス量を300cm³/min、酸素濃度を21~100%とし、生の石炭4種(⑦~⑩)の実験では流通ガス量300cm³/min、酸素濃度を100%で行った。またいずれの実験も試料重量は0.3gとした。

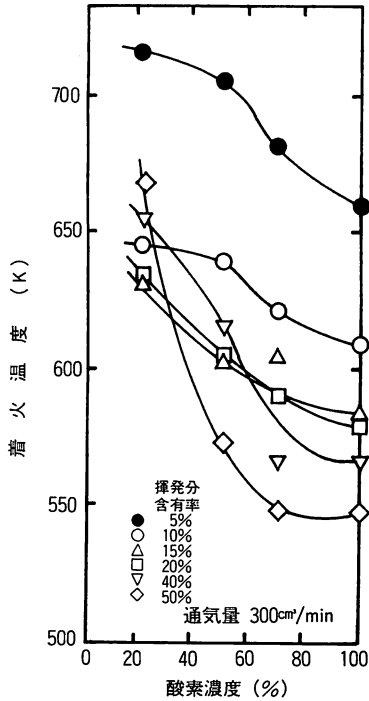


図-7 酸素濃度が着火に及ぼす影響

図-6は試料(①~⑥)を用いて求めた揮発分含有率が着火温度に及ぼす影響を示したもので、流通ガス中の酸素濃度が21%及び50%の場合、着火温度の極小値が存在する。これは揮発分含有率が10~20%を境に低揮発分試料では混合気が燃料希薄状態、その反対に高揮発分試料では混合気が燃料過濃状態となって着火しにくくなるため起こると考える。また酸素濃度が低いほど着火温度は全般的に上昇することが分る。流通ガス中の酸素濃度が70%以上と高い場合、試料中の揮発分含有率が20%付近で変曲点を持つが、揮発分含有率が多くなるにしたがい着火温度は単調に低下している。なお、酸素濃度50%の場合、揮発分含有率が50%の試料の着火温度が低下しているが、これはこの試料として揮発分の非常に多い太平洋炭を乾留しないで用いているため、揮発分含有率が40%以下の乾留炭に比べて比較的着火温度の低い揮発性ガスが発生したことが原因と推察される。

図-7は試料(①~⑥)を用いて求めた流通ガス中の酸素濃度の影響を示す。いずれの試料も流通ガス中の酸素濃度が高くなると着火温度は低く、揮発分含有率が多い試料ほどその傾向は顕著に現れる。また、酸素濃度が21%の場合、揮発分の少ない試料(5~20%)では揮発分含有率が多いほど着火温度は単純に低下す

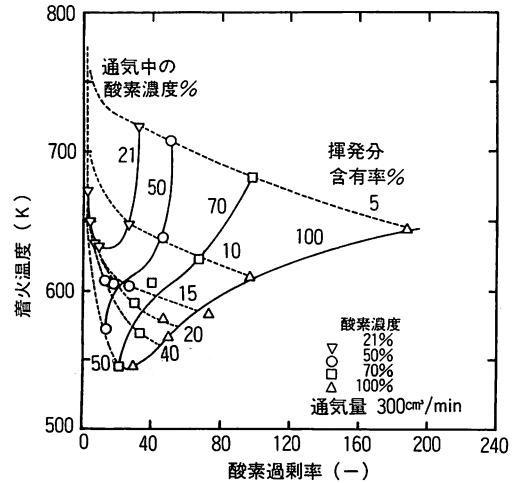


図-8 揮発分調整試料の着火領域マップ

る。それに対して揮発分含有率が多い試料(40~50%)では逆に揮発分含有率が多いほど着火温度は高くなる。これに対して、雰囲気酸素濃度が高い条件(50%以上)では、試料中の揮発分含有率が高い燃料ほど着火温度が低くなっている。これは酸素濃度の低い領域では揮発分の多い燃料では酸素に対する揮発分の比が高くなって(燃料過多)着火温度が上がるが、酸素濃度が高い条件では、このような揮発分の多い燃料でも充分酸素が供給されるため、着火に最適な混合比となって着火温度が低下したと考える。揮発分含有率が5%の試料では、図-4から分るように、他の試料と比べて揮発分放出の極大点がなくその放出速度も緩慢なため、この試料の着火は試料周辺の混合気中で燃料希薄状態で起こり、揮発分と酸素の混合気による着火が起っていないと推察されるので、このように着火温度は高くなったと推測される。

図-4, 6, 7を燃料層での平均酸素過剰率(当量比の逆数:供給酸素量と図-4より求まる揮発分放出速度より算出した揮発分全量との比)と着火温度でまとめたのが図-8である。このとき揮発分は、今回の実験では前述のように、ほとんどの試料で720Kで乾留した石炭を使用しているので放出された揮発分中には重質油ガスは少ないと考えられ、その成分はメタンガスが主成分であるとして酸素過剰率の計算を行なった。図より各酸素濃度における着火点は、図中三角形領域内に左下から右上方向に帯状に存在しており、酸素濃度が高いほど着火温度は低く、また着火可能な酸素過剰率範囲も広いことが分る。また、酸素濃度が21%の場合、揮発分が多い試料(15%以上)での着火可能な

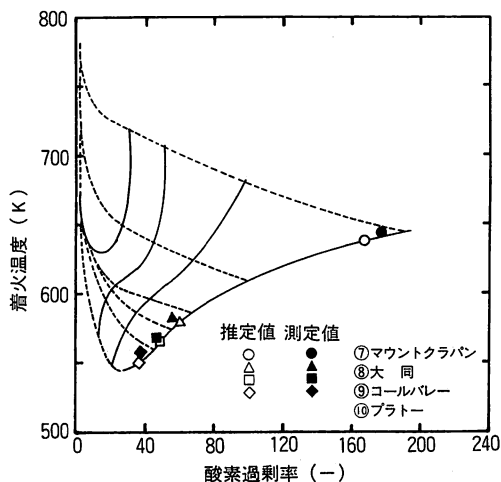


図-9 実際の石炭の着火領域マップ

酸素過剰率の範囲が狭くなっているのが分る。この三角形の着火領域の右上の限界は揮発分の希薄限界を示し、左の限界は揮発分の過濃限界を示す。また酸素濃度21%では、酸素過剰率10~20程度で、着火温度が極小値をとっている。このように着火温度が酸素過剰率と揮発分含有率で整理でき、また着火温度が極小となる酸素過剰率が存在するという事は、固体燃料の着火に放出された揮発分と供給酸素の混合気の着火が大きな影響を及ぼしていることを推察させる。すなわち、固体燃料の着火がこれら混合気への着火によって支配されていると考え、上記の適当な酸素過剰率の混合気の場合に着火温度が極小となり、これより揮発分が希薄あるいは過濃になると着火温度が上昇する現象を説明することができる。図中の右上の破線は、揮発分含有試料の着火限界を示す。ここで考えている揮発分の主成分であるメタンの着火温度は、この三角形着火温度領域よりも遥かに高いので、上記の混合気の着火原因が揮発分の自発着火であるとは考えにくい。したがって、固体燃料の着火は着火源としての何らかのホットスポットによる混合気の着火によって行われていることが推察される。

以上の結果より、揮発分を含む固体燃料の着火条件は酸素過剰率と酸素濃度によって整理でき、横軸を酸素過剰率、縦軸を着火温度で表したグラフ上で三角形の着火領域を示すことが分った。

生の石炭試料(⑦~⑩)について酸素濃度100%の条件で着火温度を測定した結果を図-8の着火領域マッ

プに加えたのが図-9である。また、昇温過程での酸素過剰率変化曲線(酸素供給速度と図-5の揮発分放出曲線より求めた)と図-8の対応する等酸素濃度線(今回は100%)との交点として求めた各石炭の着火温度の推定値を、同じく白抜きの印で図中に記入したが、ほぼ測定値とあっていることが分る。これより図-8の形式の着火マップが各種石炭の着火点の推定に有用であることが分る。

5. むすび

乾留度合いを変えて揮発分含有率を変化させた石炭(揮発分調製試料)と生の石炭を用い、供給空気酸素濃度を変化させて通気式熱天秤による着火温度測定を行い以下の結果を得た。

(1) 揮発分と酸素を含む可燃混合気の着火が揮発分を含む固体燃料の着火温度決定に重要な役割を果たし、また酸素濃度が低い場合には着火温度を最低にする酸素と揮発分の混合比が存在する。

(2) 揮発分調製試料の着火条件は、燃料層内の酸素過剰率と酸素濃度によって整理でき、酸素濃度をパラメータとし、横軸に酸素過剰率、縦軸に着火温度をとったグラフ上で右に凸の三角形の領域に着火点が分布する。

(3) これらの結果は実際の石炭にも適用でき、昇温時の燃料層内の酸素過剰率と供給空気酸素濃度により、その着火温度の推定が可能である。

参考文献

- 1) P. K. Mitra et. al., "A thermo-analytical method to determine the ignition temperature of coal", Mines Metals Fuels, Vol. 30, No. 8, 416 (1983).
- 2) C. O. Gomez et. al., "Ignition and combustion of coal particles", Prepr. Am. Chem. Soc. Div. Pet. Chem., Vol. 28, No. 5, 1145 (1983).
- 3) X. Wang et. al., "Measurement of Ignition Temperature of Simulated Solid Fuels by Air-Flow Type Thermobalance", 1st INT. SYMP. ON COAL COMBUSTION, 345 (1987).
- 4) M. Kamide et. al., "Measurement of Ignition Temperature of Solid Fuels by Air-Flow Type Thermobalance", Trans. JSME, Vol.55, No.512, 1217 (1989).
- 5) H. Taniguchi et. al., "Study on Ignition Characteristics of Solid Fuels Using Partilly Devolatilized Coal", 2nd INT. SYMP. ON COAL COMBUSTION, 269 (1991).