

## 原料炭の組織学的研究

## A Study on the Petrographic Investigation of Coking Coals

嵯 峨 三 男\*

Mitsuo Saga

宮 川 亜 夫\*\*

Tsugio Miyagawa

## Synopsis:

In order to investigate the differences of coking properties between Australian, American, Canadian, Japanese and the other bituminous coals, the petrographic method has been carried out using 54 coking coals connected with customary coking indices.

The characteristics of coals which could not been explained by usual method have been made clear that Australian coals include much inerts compared with American or Japanese coals as explained by the differences between predicted values and observed values of coke strength. The reason for these differences is that the precision of coke strength prediction depends on evaluation of coal macerals, especially inert maceral, for coking properties.

## 1. 緒 言

石炭の組織学がコークス原料としての石炭研究の手段としてとりあげられたのは比較的最近のことである。とくに、ソ連の Ammosov<sup>1)</sup>らが組織上での活性質と不活性質の割合がコークス強度に大きく影響することを実炉コークスとの比較から求め、U. S. Steel 社の Schapiro<sup>2),3)</sup>らがコークス化性の重要な要因である軟化熔融時に熔融する成分(活性質)と熔融しない成分(不活性質)を組織分析によって区分し、さらに、熔融成分の主体をなすピトリニットの反射率を組合せることで、ごく少量の試料からそのコークス強度の推定が可能であることを報告して以来、この組織学的手法は原料炭の新規ソースの開発や輸入炭の性状

検知および適正強度をもつコークスを製造するための配合対策などから、その応用が重要視されてきた。わが国でも、木村、杉村<sup>4),5),6)</sup>らによるものを初めとして数多くの研究がなされ、とくに、最近ではその応用を主にした積極的な研究が進められている。

本報は、この手法を用いて、石炭の産炭地による性状差を明らかにするために、組織成分とそのコークス化性との関連について調べたものである。

## 2. 実 験

## 2.1 試 料 炭

試料は、当社で入荷した原料炭ないしは見本炭 54銘柄を使用した。その内訳は、豪州炭18種、米

\* 技術研究所化学研究室

\*\* 技術研究所化学研究室主任研究員

国炭17種、カナダ炭6種、ソ連炭4種、南アフリカ炭およびインド炭各2種、国内炭5種である。

## 2.2 試料の調製

### 2.2.1 サンプルング

試料のサンプルングは、従来の分析法と同様であるが、粉碎は極力微粉の発生を抑制しながらくり返した。これは、各微細組織成分の粉碎性の相違によって、粒度別によるマセラルの偏析、測定ポイント数の変動、同一倍率での検出力の低下など、測定値に対する誤差を小さくするためである。また、粉碎時の摩擦等によって熱が加えられ、局部的に酸化することを考慮し手動での粉碎をくり返した。試料粒度は30~200meshの範囲にし、とくに、200mesh under は最高10%以下に押えるようにした。

### 2.2.2 成 型

一般に採用されている成型法には、冷間法と熱間法がある。ここでは、石炭部分と樹脂部分を区別した熱間成型法を採用した。すなわち、試料と熱可塑性樹脂粉末（アクリル樹脂を常用）を1対1の割合で混合して成型機に装入し、加熱しながら圧縮成型した。ついで、直ちに樹脂のみを所要量添加し、再び圧縮成型した。また、石炭と樹脂との混合時には、石炭粒子が全研磨面の約60%以上を確保するように調整した。

### 2.2.3 研 磨

成型試料は、シリコンカーバイド研磨紙（#240~600）を用いる自動研磨法で研磨した。キズの発生や石炭粒子の脱落など手動研磨法に比べてやや多いが、省力化と一定した研磨面が得られる点ですぐれていた。

## 2.3 マセラル分析および反射率の測定

方法の概略は次のとおりである。操作の基本はASTM, D2797~2799—69T<sup>6)</sup>に準拠した。

### 2.3.1 マセラルの分析法

装置：Leitz 社製、Ortholux-Pol 型反射偏光

顕微鏡

光源：XBO、クセノンランプ（150W）

倍率：×250（対物レンズ×25、対眼レンズ×10、対眼レンズ中に20ポイントのテンプレート挿入、油浸）

測定回数：メカニカルステージをX、Y軸にそれぞれ1.0~0.5mm 間隔で移動させ、300~500ポイント測定した。

結果の表示：各マセラルごとの vol. % を 0.1 まで計算したものを表示した。

マセラルの分類：この試験では Table 1 に示すコークス化性を考慮した分類法を用いた。

Table 1 Classification on maceral analysis<sup>3),7)</sup> (1970)

1. Reactives
  - Vitrinite
  - Pseudo-vitrinite
  - Degradinite
  - Exinite
    - Sporinite
    - Cutinite
    - Alginite
    - Resinite
2. Semi-inert
  - Semi-fusinite
3. Inerts
  - Fusinite
  - Micrinite
  - Sclerotinite
  - Fine-grained Mc
  - Massive Mc
4. Mineral matter
  - 1) Generally, reflectance is next tendency in same coal, Inert>Semi-inert>Reactive.
  - 2) Semi-fusinite and pseudo-vitrinite show optical anisotropy but pseudo-vitrinite has not cellular structure.
  - 3) Estimated all of pseudo-vitrinite and a third of semi-fusinite as reactive when predicted of coke strength.
  - 4) Mineral matter is calculated by Parr's method and estimated as inert.

(Ash Sp. Gr. 2.5 ASTM)

### 2.3.2 反射率の測定法

上記顕微鏡に光電管 Microscope Photometer (MPV)をセットし、光電管前に干渉フィルター ( $\lambda=525\mu$ ) を挿入したものをを用い、単色光下で、

ビトリニット成分について測定を行った。

倍率：×250（対物レンズ×25，対眼レンズ×

光源：6V，30W，タングステンランプ（電源安定装置付属）

10，油浸，ASTM では×600 を使用）

測定視野：20μφ（ASTM では 5μφ を使用）

Table 2 Proximate, elementary analysis and the determined coke strength

| Sample coal     |                 | VM           | Ash   | C     | H     | C/H   | DI <sup>30</sup> <sub>15</sub> |      | TI <sup>1400</sup> <sub>25</sub> |       | C. B. I | S. I  |
|-----------------|-----------------|--------------|-------|-------|-------|-------|--------------------------------|------|----------------------------------|-------|---------|-------|
|                 |                 | %<br>(d.a.f) |       | %     | %     | %     | Dat.                           | Cal. | Dat.                             | Cal.  |         |       |
| American Coal   | Alabama Coal    | 32.4         | 10.6  | 85.35 | 5.38  | 0.755 | 93.4                           | 92.4 | 52.9                             | 64.0  | 0.417   | 4.201 |
|                 | Moss Creek      | 27.1         | 11.7  | 87.76 | 5.20  | 0.711 | 90.9                           | >94  | 43.9                             | >65   | 0.796   | 5.725 |
|                 | Kenpton         | 27.0         | 11.0  | 87.54 | 5.13  | 0.703 | 94.2                           | 93.5 | 59.9                             | 59.3  | 1.131   | 4.860 |
|                 | New Piedmond    | 24.1         | 9.4   | 88.22 | 5.10  | 0.694 | 84.9                           | >94  | 29.9                             | >65   | 0.988   | 5.572 |
|                 | Sprague Blend   | 33.6         | 12.4  | 85.58 | 5.69  | 0.799 | 88.6                           | 90.0 | 39.6                             | 52.1  | 0.440   | 3.424 |
|                 | West Galf       | 22.7         | 7.8   | 88.93 | 4.94  | 0.667 | 92.6                           | >94  | 49.6                             | >65   | 0.769   | 6.502 |
|                 | Davis Blend     | 29.7         | 7.4   | 89.07 | 4.94  | 0.666 | 94.2                           | 93.3 | 55.9                             | >65   | 0.513   | 4.696 |
|                 | Itmann          | 19.9         | 7.2   | 90.28 | 4.69  | 0.623 | 94.6                           | >94  | 56.9                             | 60.0  | 1.607   | 7.202 |
|                 | Rowland         | 29.6         | 6.7   | 87.28 | 5.30  | 0.729 | 92.6                           | 93.1 | 48.4                             | 65.0  | 0.515   | 4.522 |
|                 | Beatrice        | 20.3         | 4.1   | 90.93 | 4.15  | 0.548 | 94.1                           | >94  | 53.3                             | >65   | 1.143   | 7.425 |
|                 | Linco Type      | 36.8         | 7.6   | 85.75 | 5.29  | 0.774 | 91.2                           | 90.5 | 44.9                             | 53.7  | 0.417   | 3.526 |
|                 | Kyston          | 18.8         | 5.5   | 90.71 | 4.20  | 0.595 | 91.2                           | 93.7 | 56.7                             | 58.0  | 2.031   | 7.349 |
|                 | Pittston Blend  | 30.4         | 8.3   | 87.55 | 4.64  | 0.699 | 93.2                           | 92.6 | 51.0                             | 61.8  | 0.478   | 4.192 |
|                 | Harman          | 32.7         | 5.6   | 86.99 | 4.77  | 0.853 | 92.2                           | 93.3 | 45.4                             | 63.0  | 0.601   | 4.575 |
|                 | Wanovec Blend   | 23.0         | 11.4  | 87.93 | 4.79  | 0.654 | 87.2                           | >94  | 43.0                             | >65   | 0.728   | 5.926 |
| Raven Type      | 30.9            | 7.3          | 86.89 | 4.86  | 0.725 | 91.2  | 93.1                           | 45.5 | >65                              | 0.466 | 4.613   |       |
| Royal           | 20.2            | 7.0          | 89.11 | 4.60  | 0.619 | 93.8  | 93.6                           | 51.4 | 57.9                             | 2.126 | 7.234   |       |
| Australian Coal | Liech Hard      | 26.8         | 11.7  | 87.09 | 5.30  | 0.730 | 92.8                           | 93.5 | 55.7                             | 58.8  | 1.341   | 5.099 |
|                 | Limington       | 38.4         | 7.6   | 81.10 | 5.68  | 0.840 | 85.4                           | 85.1 | 29.1                             | 12.0  | 0.910   | 2.783 |
|                 | Nebo Coal       | 31.2         | 11.1  | 86.19 | 5.54  | 0.771 | 94.2                           | 92.4 | 51.8                             | 60.7  | 0.345   | 4.310 |
|                 | Harro Creek (S) | 22.2         | 8.9   | 88.51 | 4.87  | 0.660 | 95.0                           | >94  | 64.4                             | 61.3  | 1.454   | 6.788 |
|                 | " " (N)         | 22.9         | 9.0   | 87.80 | 5.08  | 0.694 | 93.8                           | 93.8 | 67.9                             | 59.2  | 1.699   | 6.464 |
|                 | Newdell (1)     | 38.3         | 9.2   | 82.77 | 5.72  | 0.829 | 79.4                           | 85.0 | 29.7                             | 18.1  | 0.601   | 2.769 |
|                 | South Bulli     | 24.9         | 11.0  | 88.78 | 5.08  | 0.687 | 91.5                           | 93.0 | 48.7                             | 55.0  | 1.588   | 4.754 |
|                 | Coal Cliff      | 21.7         | 10.3  | 89.45 | 4.74  | 0.636 | 91.4                           | 93.2 | 40.4                             | 56.9  | 1.840   | 5.470 |
|                 | Liddell         | 42.1         | 8.3   | 80.28 | 5.41  | 0.809 | 75.0                           | 85.5 | 15.0                             | 15.7  | 0.566   | 2.946 |
|                 | Moura           | 30.7         | 9.5   | 87.25 | 5.32  | 0.721 | 91.9                           | 92.5 | 41.4                             | 45.0  | 0.837   | 3.866 |
|                 | S. Black Water  | 30.1         | 6.4   | 85.64 | 4.61  | 0.692 | 86.0                           | 92.4 | 44.8                             | 37.7  | 1.180   | 3.743 |
|                 | Black Water     | 28.1         | 8.1   | 86.94 | 4.67  | 0.704 | 85.9                           | 92.9 | 44.5                             | 50.0  | 0.982   | 3.876 |
|                 | Wollondilly     | 29.9         | 10.9  | 86.26 | 4.54  | 0.693 | 88.8                           | 92.1 | 40.8                             | 33.3  | 1.033   | 4.244 |
|                 | Huntrey         | 31.6         | 11.9  | 87.31 | 4.66  | 0.722 | 93.5                           | 92.4 | 51.5                             | 58.1  | 0.419   | 4.206 |
|                 | Goonyella       | 28.0         | 7.0   | 87.73 | 4.80  | 0.709 | 92.5                           | 93.4 | 43.5                             | 56.8  | 0.831   | 4.602 |
|                 | Newdell (2)     | 40.7         | 9.2   | 82.55 | 5.21  | 0.827 | 81.8                           | 81.6 | 34.0                             | 25.8  | 0.473   | 2.750 |
|                 | Abersea         | 41.3         | 9.0   | 81.74 | 5.10  | 0.654 | 66.8                           | 85.9 | 12.8                             | 16.6  | 0.709   | 2.868 |
| Daiyon          | 38.3            | 9.3          | 82.42 | 4.74  | 0.763 | 77.1  | 88.9                           | 41.4 | 22.5                             | 0.732 | 3.066   |       |
| Canad. C.       | Line Creek      | 21.9         | 10.8  | 88.32 | 4.92  | 0.668 | 78.1                           | 93.8 | 34.5                             | 59.2  | 1.685   | 6.270 |
|                 | Elk River       | 21.8         | 9.2   | 90.31 | 4.83  | 0.642 | 92.6                           | 93.4 | 59.0                             | 57.5  | 2.154   | 6.779 |
|                 | Vicary          | 24.5         | 9.9   | 87.88 | 4.60  | 0.628 | 89.4                           | 94.0 | 42.6                             | 65.0  | 1.017   | 5.323 |
|                 | Balmer          | 21.0         | 11.5  | 88.86 | 4.15  | 0.633 | 89.2                           | 93.5 | 44.3                             | 58.2  | 1.832   | 6.123 |
|                 | Lusscar         | 23.1         | 9.1   | 90.00 | 4.28  | 0.625 | 91.8                           | 92.9 | 47.4                             | 55.8  | 2.372   | 5.833 |
| Smoky River     | 20.0            | 6.2          | 90.50 | 4.53  | 0.601 | 91.2  | 93.5                           | 55.5 | 57.3                             | 2.237 | 7.146   |       |
| Jap. C.         | Utoku           | 42.6         | 7.2   | 82.58 | 5.26  | 0.764 | 82.3                           | <40  | 25.2                             | —     | 0.166   | 2.796 |
|                 | Ashitoku        | 44.0         | 7.2   | 82.45 | 6.05  | 0.881 | 61.8                           | <40  | 11.5                             | —     | 0.134   | 2.365 |
|                 | Oubari          | 41.2         | 6.7   | 86.20 | 5.42  | 0.806 | 81.3                           | <40  | 27.0                             | —     | 0.114   | 2.666 |
|                 | Kogane          | 40.2         | 8.9   | 86.15 | 5.29  | 0.809 | 79.2                           | 45.7 | 23.5                             | 6.0   | 0.215   | 2.822 |
|                 | Miike           | 46.0         | 8.1   | 83.43 | 5.74  | 0.826 | 50.7                           | <40  | 8.4                              | —     | 0.162   | 2.579 |
| USSR. C         | South Yakut (1) | 37.8         | 10.8  | 88.44 | 5.89  | 0.799 | 88.5                           | 88.9 | 40.1                             | 49.0  | 0.444   | 3.303 |
|                 | " " (2)         | 29.0         | 7.9   | 89.91 | 5.53  | 0.738 | 92.4                           | 90.8 | 51.9                             | 36.6  | 0.183   | 4.328 |
|                 | Kuznets OS      | 15.9         | 8.8   | 91.31 | 4.21  | 0.553 | —                              | —    | —                                | —     | —       | —     |
|                 | " K-10          | 23.6         | 7.3   | 88.74 | 4.82  | 0.651 | 82.9                           | 92.6 | 34.4                             | 54.5  | 2.455   | 5.515 |
| Af.             | Swaziland       | 17.2         | 6.6   | 90.94 | 4.65  | 0.614 | 47.3                           | 92.0 | 12.9                             | 48.5  | 4.189   | 6.948 |
|                 | Flobane         | 25.5         | 13.8  | 87.74 | 4.65  | 0.636 | 81.5                           | 92.3 | 31.4                             | 49.0  | 2.193   | 4.640 |
| Ind. C          | Sawang          | 34.5         | 15.0  | 83.38 | 5.47  | 0.787 | 85.9                           | 92.1 | 62.6                             | 36.0  | 0.815   | 3.692 |
|                 | Kathara         | 38.4         | 11.8  | 83.05 | 5.47  | 0.790 | 48.1                           | 91.8 | 17.7                             | 35.0  | 0.802   | 3.637 |

反射率スタ

ンダード：約9%（乾式）の高屈折率特殊ガラスを使用した。

反射率の

算出  $R_o(\%) = R_s \times V_A / V_s$  $R_o$ ：ビトリニットの最大反射率（%，油

Table 3 Maceral analysis

| Sample coal     | Maceral<br>Vt-type | Vitrinite |      |      |      |      |      |      |      |      |      |      |
|-----------------|--------------------|-----------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|------|
|                 |                    | 5         | 6    | 7    | 8    | 9    | 10   | 11   | 12   | 13   | 14   | 15   |
| American Coal   | Alabama Coal       |           |      |      |      | 0.3  | 22.7 | 68.3 | 8.7  |      |      |      |
|                 | Moss Creek         |           |      |      |      |      |      | 1.5  | 17.5 | 73.5 | 7.5  |      |
|                 | Kenpton            |           |      |      |      |      | 0.5  | 8.5  | 65.5 | 22.5 | 2.5  | 0.5  |
|                 | New Piedmond       |           |      |      | 1.0  | 11.0 | 23.0 | 15.7 | 0.7  | 0.3  | 1.6  | 13.8 |
|                 | Sprague Blend      |           | 0.5  | 6.5  | 12.5 | 32.0 | 43.8 | 4.5  | 0.2  |      |      |      |
|                 | West Galf          |           |      |      |      | 1.0  | 6.5  | 4.3  | 7.3  | 11.8 | 25.3 | 19.8 |
|                 | Davis Blend        |           |      |      | 1.5  | 7.5  | 38.6 | 26.0 | 2.0  | 1.5  | 2.5  | 4.7  |
|                 | Itmann             |           |      |      |      |      |      |      | 3.0  | 2.5  | 8.6  | 23.3 |
|                 | Rowland            |           |      |      |      | 0.3  | 6.0  | 40.5 | 49.7 | 3.3  | 0.2  |      |
|                 | Beatrice           |           |      |      |      |      |      |      |      |      | 1.3  | 22.0 |
|                 | Linco Type         |           |      | 0.5  | 7.0  | 38.5 | 40.5 | 12.5 | 1.0  |      |      |      |
|                 | Kyston             |           |      |      |      |      |      |      |      |      | 3.0  | 11.0 |
|                 | Pittston Blend     |           |      |      | 2.3  | 8.5  | 31.9 | 46.5 | 4.5  | 2.0  | 2.8  | 1.5  |
|                 | Harman             |           |      |      | 0.5  | 6.5  | 31.5 | 39.2 | 6.5  | 1.0  | 3.5  | 9.3  |
|                 | Wanovec Blend      |           |      |      | 0.5  | 1.5  | 8.5  | 15.5 | 12.0 | 10.0 | 24.0 | 16.0 |
|                 | Raven Type         |           |      |      | 0.2  | 4.3  | 30.3 | 41.9 | 6.0  | 1.0  | 1.7  | 3.7  |
|                 | Royal              |           |      |      |      |      |      |      |      | 1.0  | 6.0  | 39.3 |
| Australian Coal | Liech Hard         |           |      |      |      |      |      | 9.0  | 60.5 | 30.0 | 0.5  |      |
|                 | Limington          |           | 8.0  | 59.4 | 31.8 | 0.8  |      |      |      |      |      |      |
|                 | Nebo Coal          |           |      |      | 0.3  | 0.7  | 5.3  | 62.4 | 31.3 |      |      |      |
|                 | Harro Creek S.     |           |      |      |      |      |      | 0.3  | 0.7  | 21.0 | 68.0 | 8.7  |
|                 | " " N.             |           |      |      |      |      |      | 0.2  | 1.7  | 44.7 | 50.9 | 2.3  |
|                 | Newdell (1)        | 10.2      | 30.6 | 36.7 | 15.3 | 6.1  | 1.1  |      |      |      |      |      |
|                 | South Bulli        |           |      |      |      |      | 2.1  | 38.4 | 50.3 | 8.2  | 1.0  |      |
|                 | Coal Cliff         |           |      |      |      |      |      | 6.1  | 21.4 | 42.0 | 24.0 | 3.8  |
|                 | Liddell            |           | 2.0  | 31.0 | 49.0 | 16.0 | 2.0  |      |      |      |      |      |
|                 | Moura              |           |      |      | 4.7  | 31.3 | 47.3 | 15.0 | 1.7  |      |      |      |
|                 | S. Black Water     |           |      |      | 9.0  | 43.1 | 43.8 | 3.8  | 0.3  |      |      |      |
|                 | Black Water        |           |      |      | 1.0  | 27.0 | 62.0 | 10.0 |      |      |      |      |
|                 | Wollondilly        |           |      |      |      | 2.6  | 41.6 | 52.7 | 3.1  |      |      |      |
|                 | Huntley            |           |      |      | 0.2  | 1.0  | 21.0 | 61.8 | 16.0 |      |      |      |
|                 | Goonyella          |           |      |      |      | 0.3  | 1.0  | 68.4 | 30.0 | 0.3  |      |      |
|                 | Newdell (2)        | 18.3      | 57.9 | 21.3 | 2.5  |      |      |      |      |      |      |      |
|                 | Abersea            | 10.5      | 55.7 | 27.5 | 6.3  |      |      |      |      |      |      |      |
|                 | Daiyon             | 5.0       | 31.5 | 42.5 | 14.5 | 3.0  | 3.0  | 0.5  |      |      |      |      |
| Canad. C.       | Line Creek         |           |      |      |      |      |      | 1.5  | 11.5 | 43.2 | 36.5 | 4.5  |
|                 | Elk River          |           |      |      |      |      |      | 0.3  | 1.5  | 23.5 | 26.5 | 35.7 |
|                 | Vicary             |           |      |      |      | 1.3  | 2.0  | 9.5  | 48.2 | 29.5 | 8.5  | 1.0  |
|                 | Balmer             |           |      |      |      |      |      | 2.0  | 24.0 | 29.0 | 27.0 | 12.0 |
|                 | Lusscar            |           |      |      |      |      | 2.5  | 4.0  | 13.3 | 50.7 | 27.0 | 2.0  |
|                 | Smoky River        |           |      |      |      |      |      |      |      | 0.4  | 13.5 | 60.6 |
| Jap. C.         | Utoku              |           | 0.7  | 13.7 | 46.0 | 31.0 | 8.3  | 0.3  |      |      |      |      |
|                 | Ashitoku           |           | 3.0  | 36.6 | 49.6 | 10.8 |      |      |      |      |      |      |
|                 | Oubari             |           | 0.3  | 15.7 | 52.7 | 30.3 | 1.0  |      |      |      |      |      |
|                 | Kogane             |           |      | 0.5  | 65.0 | 33.5 | 1.0  |      |      |      |      |      |
|                 | Miike              |           | 14.4 | 36.5 | 38.9 | 9.7  | 0.5  |      |      |      |      |      |
| USSR. C.        | South Yakut 1.     |           |      | 0.2  | 2.5  | 31.8 | 59.8 | 5.7  |      |      |      |      |
|                 | " " 2.             |           |      |      |      | 1.6  | 2.0  | 12.2 | 79.2 | 5.0  |      |      |
|                 | Kuznets OS.        |           |      |      | 1.0  | 4.3  | 10.5 | 10.8 | 15.8 | 22.0 | 1.2  | 1.2  |
|                 | " K-10.            |           |      |      |      |      |      |      |      |      | 20.5 | 10.3 |
| Af.             | Swaziland          |           |      | 0.5  | 1.2  | 1.0  | 1.2  | 0.8  | 0.2  |      | 1.3  | 11.0 |
|                 | Flobane            |           |      |      | 0.8  | 1.9  | 18.3 | 44.4 | 23.2 | 4.0  | 4.1  | 2.0  |
| Ind.            | Sawang             |           |      | 1.0  | 6.0  | 47.6 | 43.7 | 1.7  |      |      |      |      |
|                 | Kathara            |           |      |      | 14.0 | 51.8 | 32.5 | 1.7  |      |      |      |      |

浸)

$V_A$ : ビトリニットの反射光の記録計での  
読み (mV)

 $R_S$ : スタンドの反射率 (%、油浸)

$V_S$ : スタンドの反射光の記録計での  
読み (mV)

of sample coals

| 16          | 17         | 18   | 19   | 20   | 21   | To.<br>Vt. | Exinite | Semi F. | Fusinite | Micri-<br>nite | M. M | Total<br>Inerts | $\bar{R}$ max |
|-------------|------------|------|------|------|------|------------|---------|---------|----------|----------------|------|-----------------|---------------|
| 27.2        | 5.7        | 1.0  |      |      |      | 84.5       | 2.1     | 2.0     | 4.1      | 2.5            | 4.8  | 13.4            | 1.13          |
|             |            |      |      |      |      | 84.0       | —       | 1.8     | 2.4      | 6.5            | 5.3  | 16.0            | 1.33          |
|             |            |      |      |      |      | 87.6       | —       | 1.5     | 2.4      | 3.3            | 5.2  | 12.4            | 1.27          |
|             |            |      |      |      |      | 76.2       | 3.0     | 4.4     | 6.0      | 6.3            | 4.1  | 20.8            | 1.33          |
|             |            |      |      |      |      | 75.0       | 8.5     | 3.7     | 2.2      | 5.1            | 5.5  | 16.5            | 0.97          |
|             |            |      |      |      |      | 86.4       | 0.9     | 0.8     | 4.0      | 4.4            | 3.5  | 12.7            | 1.46          |
|             |            |      |      |      |      | 77.4       | 7.9     | 1.8     | 4.3      | 5.3            | 3.3  | 14.7            | 1.22          |
|             |            |      |      |      |      | 83.8       | —       | 3.1     | 4.4      | 5.7            | 3.0  | 16.2            | 1.62          |
|             |            |      |      |      |      | 82.2       | 3.2     | 2.2     | 4.1      | 5.3            | 3.0  | 14.6            | 1.19          |
|             |            |      |      |      |      | 89.0       | 0.4     | 3.4     | 2.8      | 2.5            | 1.9  | 10.6            | 1.66          |
| 42.4        | 29.3       | 5.0  |      |      |      | 75.8       | 9.6     | 2.2     | 2.2      | 6.7            | 3.5  | 14.6            | 1.01          |
|             |            |      |      |      |      | 83.3       | 0.2     | 2.3     | 4.7      | 7.0            | 2.5  | 16.5            | 1.66          |
|             |            |      |      |      |      | 79.3       | 5.7     | 1.9     | 3.5      | 5.8            | 3.8  | 15.0            | 1.12          |
|             |            |      |      |      |      | 77.9       | 4.8     | 2.6     | 4.1      | 6.8            | 3.8  | 17.3            | 1.16          |
|             |            |      |      |      |      | 83.0       | 2.7     | 1.2     | 4.3      | 3.9            | 4.9  | 14.3            | 1.36          |
|             |            |      |      |      |      | 80.0       | 6.5     | 1.7     | 3.1      | 5.3            | 3.4  | 13.5            | 1.20          |
|             |            |      |      |      |      | 80.6       | —       | 1.8     | 6.6      | 6.9            | 4.1  | 19.4            | 1.60          |
|             |            |      |      |      |      |            |         |         |          |                |      |                 |               |
|             |            |      |      |      |      |            |         |         |          |                |      |                 |               |
|             |            |      |      |      |      |            |         |         |          |                |      |                 |               |
| 0.3<br>0.2  | 1.0        |      |      |      |      | 71.9       | —       | 4.8     | 9.2      | 9.0            | 5.1  | 28.1            | 1.26          |
|             |            |      |      |      |      | 72.9       | 2.8     | 2.3     | 6.0      | 12.6           | 3.4  | 24.3            | 0.77          |
|             |            |      |      |      |      | 88.7       | 0.9     | 0.6     | 2.8      | 1.8            | 5.2  | 10.4            | 1.17          |
|             |            |      |      |      |      | 78.4       | —       | 4.4     | 5.9      | 7.5            | 3.8  | 21.6            | 1.43          |
|             |            |      |      |      |      | 73.3       | —       | 6.0     | 7.0      | 9.7            | 4.0  | 26.7            | 1.40          |
|             |            |      |      |      |      | 80.3       | 2.8     | 1.6     | 4.3      | 6.5            | 4.5  | 16.9            | 0.73          |
|             |            |      |      |      |      | 64.8       | 0.1     | 9.0     | 5.1      | 16.2           | 4.8  | 35.1            | 1.21          |
|             |            |      |      |      |      | 68.2       | 0.1     | 9.7     | 4.1      | 13.3           | 4.6  | 31.7            | 1.35          |
|             |            |      |      |      |      | 78.0       | 4.8     | 1.2     | 2.3      | 9.0            | 4.7  | 17.2            | 0.83          |
|             |            |      |      |      |      | 71.4       | 2.8     | 4.3     | 3.5      | 13.9           | 4.1  | 25.8            | 1.02          |
| 2.7         |            |      |      |      |      | 63.7       | 1.9     | 9.2     | 10.0     | 10.4           | 4.8  | 34.4            | 0.99          |
|             |            |      |      |      |      | 67.2       | 3.1     | 5.9     | 7.9      | 12.9           | 3.0  | 29.7            | 1.03          |
|             |            |      |      |      |      | 69.5       | 2.2     | 4.5     | 9.0      | 11.7           | 3.1  | 28.3            | 1.11          |
|             |            |      |      |      |      | 86.5       | 0.5     | 0.9     | 2.1      | 4.7            | 5.3  | 13.0            | 1.14          |
|             |            |      |      |      |      | 78.0       | 0.3     | 3.6     | 6.1      | 8.7            | 3.3  | 21.7            | 1.17          |
|             |            |      |      |      |      | 81.0       | 4.1     | 3.5     | 3.8      | 3.7            | 3.9  | 14.9            | 0.75          |
|             |            |      |      |      |      | 71.6       | 7.5     | 4.1     | 4.4      | 8.3            | 4.1  | 20.9            | 0.78          |
|             |            |      |      |      |      | 72.6       | 5.5     | 4.2     | 6.8      | 6.7            | 4.2  | 21.9            | 0.83          |
|             |            |      |      |      |      |            |         |         |          |                |      |                 |               |
|             |            |      |      |      |      |            |         |         |          |                |      |                 |               |
| 2.0<br>10.5 | 0.3<br>2.0 | 0.5  |      |      |      | 72.3       | 0.1     | 7.9     | 9.2      | 5.8            | 4.7  | 27.6            | 1.39          |
|             |            |      |      |      |      | 72.1       | —       | 9.1     | 7.3      | 7.3            | 4.2  | 27.9            | 1.48          |
|             |            |      |      |      |      | 76.6       | —       | 7.6     | 4.9      | 6.6            | 4.3  | 23.4            | 1.29          |
|             |            |      |      |      |      | 70.0       | 0.3     | 8.7     | 7.8      | 8.5            | 4.7  | 29.7            | 1.38          |
|             |            |      |      |      |      | 63.1       | —       | 9.0     | 12.1     | 12.0           | 3.8  | 36.9            | 1.35          |
|             |            |      |      |      |      | 77.6       | 0.1     | 2.7     | 8.4      | 8.3            | 2.9  | 22.3            | 1.56          |
|             |            |      |      |      |      | 90.4       | 3.8     | —       | —        | 3.2            | 2.6  | 5.8             | 0.87          |
|             |            |      |      |      |      | 92.5       | 3.0     | —       | 0.1      | 1.2            | 3.2  | 4.5             | 0.81          |
|             |            |      |      |      |      | 93.2       | 2.8     | —       | —        | 1.2            | 2.8  | 4.0             | 0.86          |
|             |            |      |      |      |      | 90.4       | 2.1     | 0.2     | 0.1      | 3.2            | 4.0  | 7.5             | 0.88          |
|             |            |      |      |      |      | 87.5       | 7.0     | 0.5     | 0.2      | 0.8            | 4.0  | 5.5             | 0.79          |
| 7.3<br>3.0  | 6.1<br>1.8 | 18.3 | 25.6 | 22.0 | 18.3 | 93.4       | 0.1     | —       | 0.9      | 0.9            | 4.7  | 6.5             | 1.01          |
|             |            |      |      |      |      | 94.8       | —       | 0.3     | 0.3      | 1.1            | 3.5  | 5.2             | 1.23          |
|             |            |      |      |      |      | 60.5       | —       | 11.9    | 9.5      | 14.3           | 3.8  | 39.5            | 2.02          |
|             |            |      |      |      |      | 59.6       | —       | 11.4    | 12.5     | 13.4           | 3.1  | 40.4            | 1.31          |
| 35.5<br>1.3 | 34.3       | 10.5 | 2.0  | 0.5  |      | 67.5       | —       | 11.0    | 8.4      | 10.2           | 2.9  | 32.5            | 1.66          |
|             |            |      |      |      |      | 54.7       | 0.2     | 18.0    | 8.3      | 12.7           | 6.1  | 45.1            | 1.18          |
|             |            |      |      |      |      | 69.6       | 6.2     | 5.7     | 6.4      | 7.4            | 4.7  | 24.2            | 0.99          |
|             |            |      |      |      |      | 67.3       | 7.1     | 5.1     | 6.0      | 9.3            | 5.2  | 25.6            | 0.96          |

### 3. 結果と考察

Table 2, Table 3 に試料炭のマセラル組成, 反射率, 強度推定値などを一覧表にして示した。

#### 3.1 マセラル組成とコークス化性

Fig. 1 に試料炭のマセラル組成を三角図表で示した。

Fig. 1(a)は出炭国別に, Fig. 1(b)は実測ドラム強度90以上とそれ以下に類別してプロットしたものである。Fig. 1(a)からはビトリニットの含有量は国内炭>米国炭>その他の石炭, イナーチニットの含有量はその他の石炭>米国炭>国内炭の順で大きいこと, エクジニット含有量は地域差が少

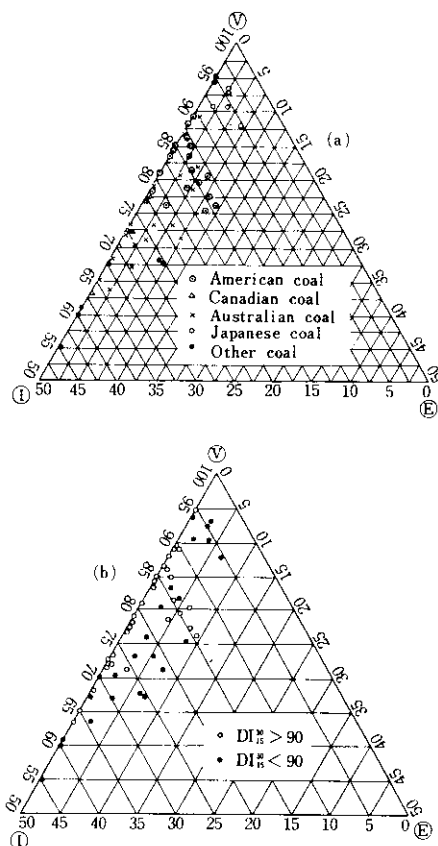


Fig. 1 Petrographic composition of the coking coals

イナーチニット含有量が10~25%の石炭でドラム強度の高いものが多いことがわかる。以下に, このマセラル組成とコークス化性との関係について, 写真を参考にしながら述べるが, マセラルの生因や分類等については, 木村, 杉村<sup>5), 7), 8)</sup>らが詳細に解説しているので, ここでは省略する。Table 4 に代表的なマセラル成分とそのコークス化性についてまとめた。

ビトリニット・グループは軟化溶解性を示し(原料炭として使用されている瀝青炭の領域に属

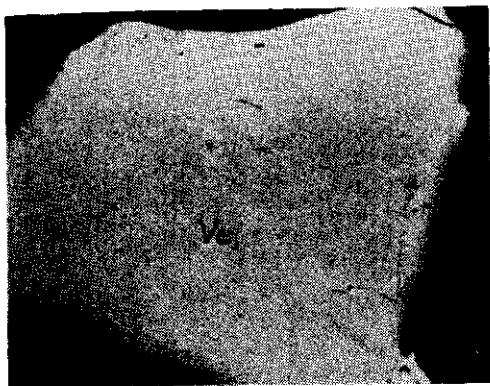
Table 4 Coking properties of coal macerals

| Maceral        | Carbonization behavior                                                                                                                                                                          |
|----------------|-------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------------|
| Vitrinite      | Woody tissues depending on rank, shows woody structure clearly, or is structureless. Principal constituent of most coals, fuses during carbonization providing primary coke bonding agent.      |
| Exinite        | Fossilized remains of spores and cuticles. Resins and remnants of algal bodies also are found in this group. Minor constituent of coal, very fluid during carbonization, provides some bonding. |
| Micrinite      | Opaque, structureless entity, occurs as dispersed, finely divided particles, or in relatively large masses. Inert, non-fusing during carbonization.                                             |
| Semi-fusinite  | Viewed as the transition stage between fusinite and vitrinite. Fusinite like cell structure often not present. Partly fusing, Partly inert, during carbonization.                               |
| Fusinite       | Appears as well defined woody, cellular body with opaque cell walls. Cells may or may not be filled with mineral matter. Inert, nonfusing during carbonization.                                 |
| Mineral matter | Calculated from ash and sulfur from Parr's formula. Inert during carbonization.                                                                                                                 |

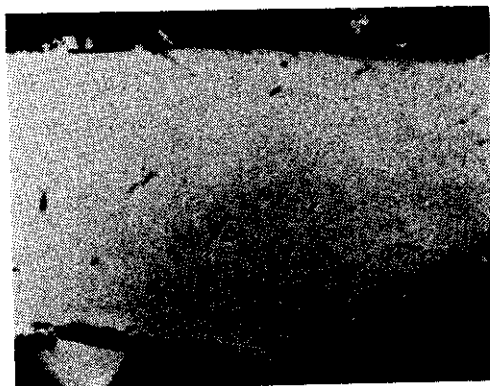
するもの), コークス化過程の性状は, この成分によって規定されることが多い。また, 詳細は 3・2 で説明するが, この成分の反射率を測定することで, 石炭化度の推定およびコークス強度への効果を予測することができる。Photo. 1 にビト

リニット・グループの一例を, Photo. 2 に代表的なエクジニット・グループを示す。

エクジニット・グループのほとんどは, 基質であるビトリニット中に介在している場合が多く, その形状は石炭化の過程における分解に対する抵



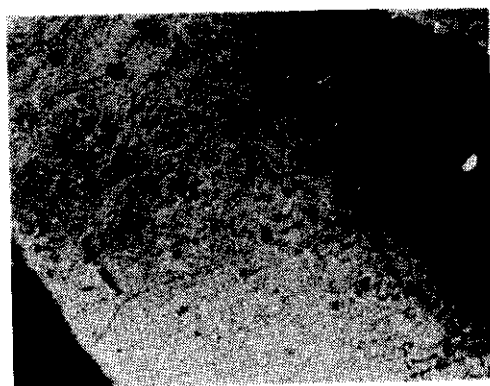
Collinite : Itmann



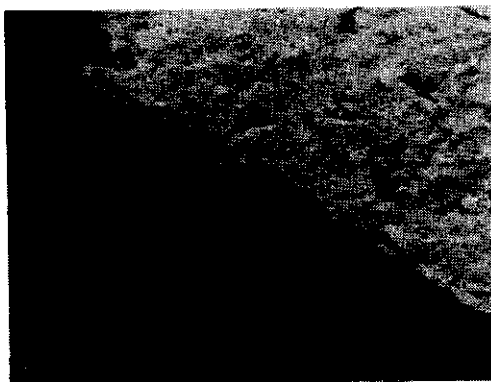
Collinite : South Bulli



Telinite : Newdell



Telinite : Oyubari

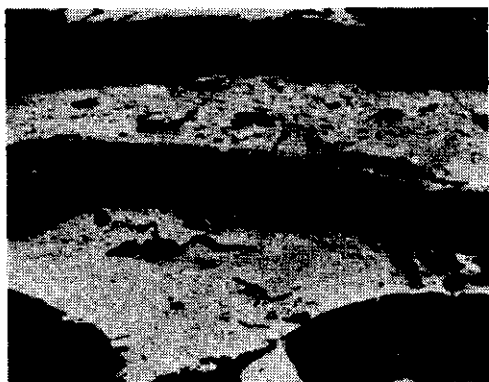


Pseudo-vitrinite : Kuznets K-10

Photo. 1 Photomicrographs of main macerals (Vitrinite group)

抗の難易によって異なる。**Fig. 2** にビトリニットの反射率とエクジニット含有量との関係を示す。石炭化度が高くなるにつれて含有量が急激に減少する傾向は産炭地の差はない。しかし、豪州炭では反射率  $R_{\text{mean}}=1.2$ 、米国炭では  $R_{\text{mean}}$

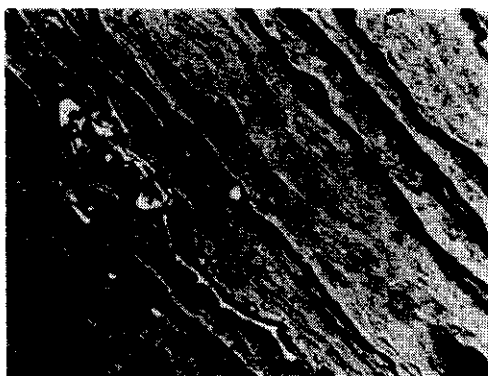
$=1.6(\%)$  までエクジニットは認められるなど、地域差は明らかである。また、外国炭ではあまりみられないレジニット成分が国内炭に比較的多く存在するのも特徴的である。このような地域差は、根源植物や石炭の生成履歴に帰因するのであろう



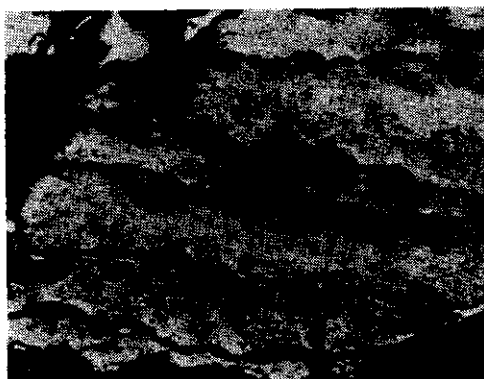
Sporinite : Davis Blend



Sporinite : Linco



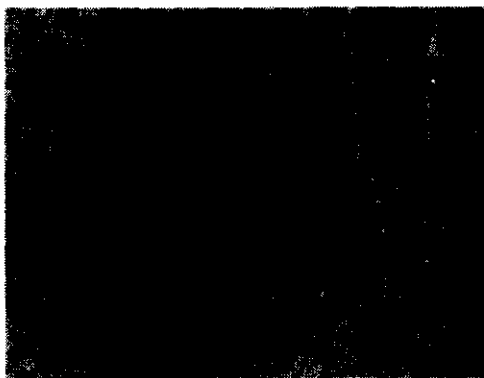
Cutinite : Abersea



Cutinite : Liddell



Resinite : Ashibetu



Resinite : Liddell

**Photo. 2** Photomicrographs of main macerals (Exinite group)

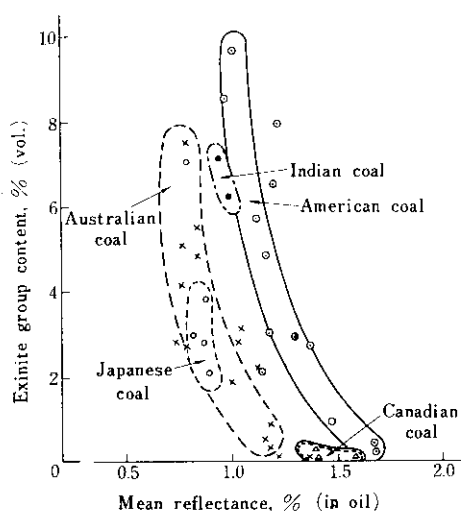


Fig. 2 Influence of reflectance on the exinite group content

が、エクジニットの含有量が5%以上の石炭では、そのいずれもが揮発分約30%以上の中ないしは高揮発分炭で占められている。これはおそらく、エクジニットが石炭化が進むにつれて、ビトリニットに同化するか、あるいは、イナート化していくためであると考えられる。このグループはビトリニット・グループと同じように、軟化溶解性を示し、著しく膨張するものもある。たとえば、国内炭の夕特などがその代表的なものである。

半不活性成分のセミフジニット、偽似ビトリニットはビトリニット・グループと後述のイナートニット・グループの中間に位置し、高揮発分炭を除くほとんどの原料炭に含まれる。これは石炭化の過程をビトリニット→偽似ビトリニット→セミフジニット→フジニットと考えれば、ビトリニットとイナート質であるフジニットの中間的な性状をもつマセラルが存在するはずである。この両マセラルは単独で存在していることは少なく、両者が共存している場合が普通である。Fig. 3に反射率と両マセラルの含有量の関係を示した。Fig. 3(a)は、両マセラルのいずれかを3%以上含有する石炭についての分布を、Fig. 3(b)は、それらを産炭地別にプロットしたものである。各点は $R_{\text{mean}}=1.1\sim 1.5\%$ の広範囲に分布しているが、とくに、 $R_{\text{mean}}=1.3\sim 1.4\%$ の低揮発分領域付近に集中している。地域別にみると、豪州炭、ソ連炭、カナダ炭および南アフリカ炭で両マセラルの含有量が多く、米国炭では低揮発分炭で4%弱と少なく、国内炭ではほとんど存在しない。このような違いは、根源植物や石炭化過程など石炭の生成履歴に帰因するものと考えられる。また、Schapiroらのコークス強度推定法ではこの両マセラルの比較的少ない米国炭が対象になっていることに十分注意する必要がある。その理由については後述するが、この推定法を豪州炭等に適用すると、このマセラルの活性質としての評価いかん

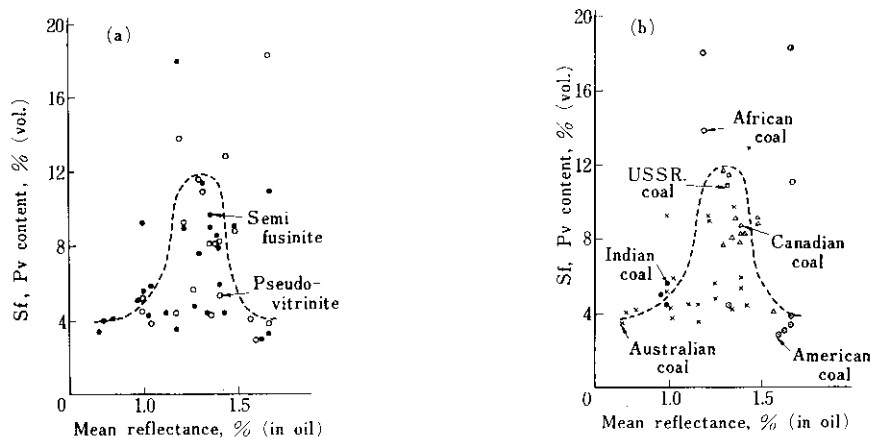
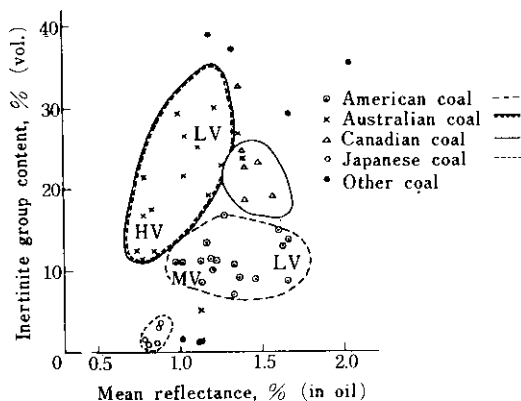


Fig. 3 Influence of reflectance on the semi-fusinite and pseudo-vitrinite content

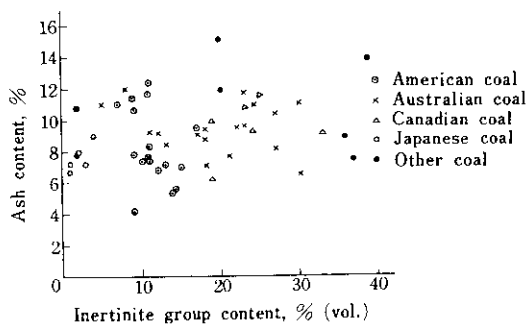
によっては推定精度が大きく左右されるからである。

イナーチニット・グループは化学的に不活性で軟化溶解性を示さない。**Fig. 4** にビトリニットの反射率とイナーチニット含有量の関係を**Photo. 3** にその代表的なマセラルを示した。出炭国別に見ると、米国炭では石炭化度が高くなってもその含有量はほとんど変わらないのに対して、豪州炭では石炭化度が高くなるにつれて増える傾向にある。また、顕微鏡下でのイナーチニットを比較すると、豪州炭ではビトリニット基質に分散された状態で存在し、米国炭では比較的偏析された状態で存在している傾向がみられる。これらは、前述の半不活性成分である偽似ビトリニットやセミフジニット成分量の産炭地による差も考慮に入れると、豪州炭のイナーチニットはビトリニットの石

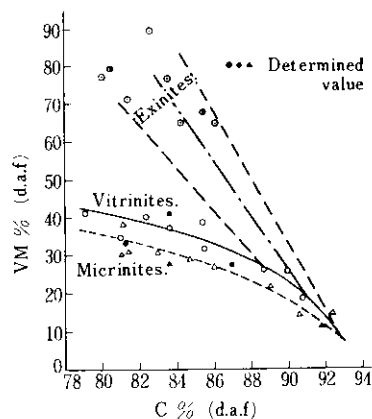
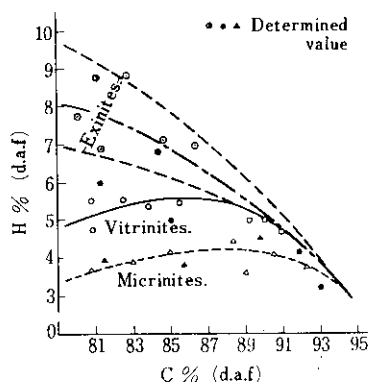
炭化過程で生成したものが多く、のに対して、米国炭では石炭化の初期段階ですでにイナーチニットになることが根源植物によって、ある程度規定されていることが多いと推察される。さらに、豪州炭では、イナーチニットの中でも、とくにミクリニット成分が多い。このミクリニットの由来については、定説はないが、前述の生因説<sup>9)</sup>をとれば豪州炭と米国炭の違いは、根源植物以外に石炭化の過程でも大きな差があったと考えざるを得ない。このように、イナーチニットについても産炭地によって差があることは、コークス強度の推定における不活性質の評価ですべてのイナーチニットを同一視することには危険性のあることを示唆している。**Fig. 5** にイナーチニット含有量と灰分量との関係を示したが、米国炭、国内炭は灰分量に関係なく、イナーチニット量がほぼ一定しているの



**Fig. 4** Distribution of inertinite group.



**Fig. 5** Relation between inertinite group and ash content

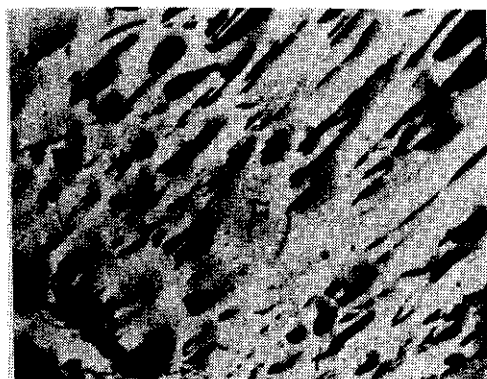


**Fig. 6** Hydrogen, carbon and volatile matter content of maceral

に対して、豪州炭、カナダ炭ではイナーチニットが広く分布しているのが読みとれるだけで相互関係は認められない。また、顕微鏡下で鉱物質をみると、パイライトなどのように、明らかに確認されるもの以外に、マセラル中に細かく分散もしくは抱合された状態で存在しているものも多く、こ

れらはビトリニット→フジニットの石炭化過程で触媒的な作用を果しているのではないかと考えられる。

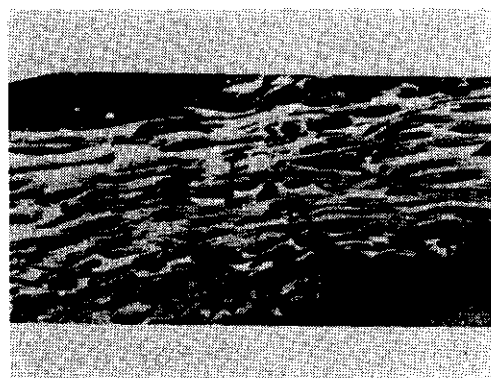
**Fig. 6** はマセラル成分のC量とHおよび VM 量 (d. a. f) の関係を示したものである。実線は Krevelen<sup>9)</sup> らの示したものであり、プロ



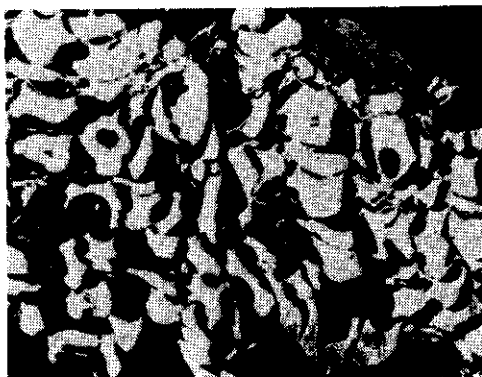
Fusinite : Kuznets K-10



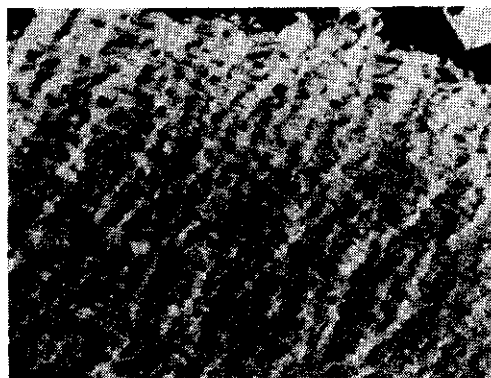
Fusinite : South Bulli



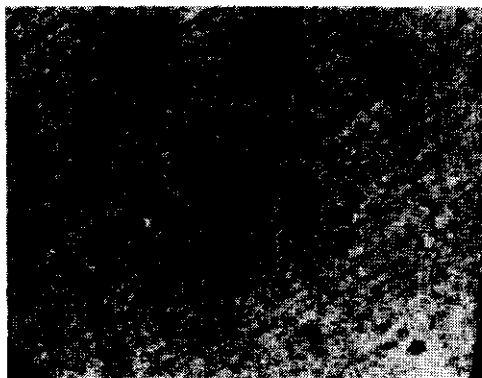
Fusinite : Coal Cliff



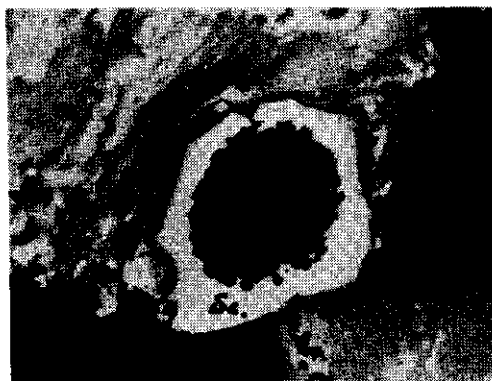
Fusinite : Swaziland



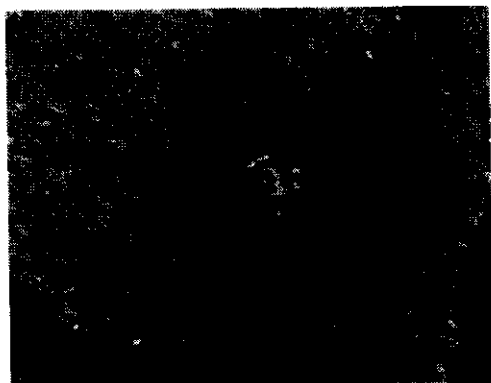
Semi-fusinite : Balmer



Semi-fusinite : Beatrice

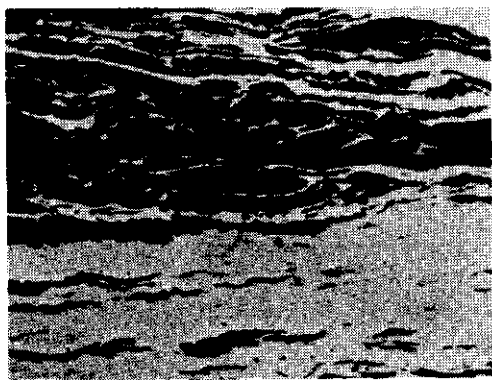


Sclerotinite : South Bulli

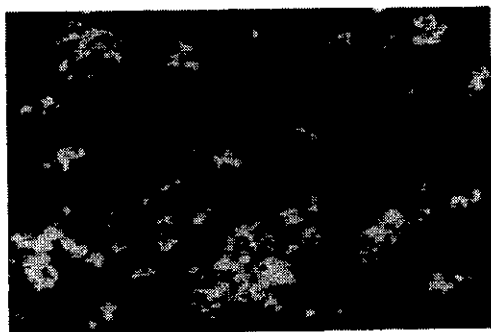


Sclerotinite : Yutoku

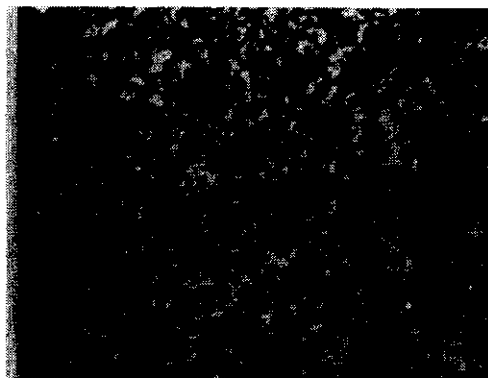
Mineral matter



Itmann



Yutoku



South Bulli

Photo. 3 Photomicrographs of main macerals (Inertinite group)

ットした点は次のような計算で求めたものである。すなわち、ある炭種について、 $x_i$ を工業分析または元素分析で求めたH, CまたはVM(%),  $x_E, x_V, x_I$ をエクジニット, ビトリニット, イ

ナーチニットそれぞれのH, CまたはVM(%)の値,  $a_i, b_i, c_i$ を各マセラルの含有量(%)とすると次のような式が成立する。

$$x_i = \frac{a_i}{100} x_E + \frac{b_i}{100} x_V + \frac{c_i}{100} x_I \dots \dots \dots (1)$$

$$i=1 \sim 3$$

石炭化度（反射率で代表した）の近い3種の石炭を選び(1)式から一次方程式を解くことによって各成分のH(%)などが求められる。Fig. 6から、H, VM含有量はエクジニット>ビトリニット>イナーチニットの順で大きく、石炭化度によって異なることがわかる。Tchamler<sup>10)</sup>らは、元素分析値から計算によってマセラル成分の構造を調べ、芳香族性  $f_a$  や脂肪族成分について、エクジニット  $f_a=0.62$ ; 6CH<sub>3</sub>. 6CH. 26CH<sub>2</sub>, ビトリニット  $f_a=0.77$ ; 6~7CH<sub>3</sub>. 6~5CH. 11CH<sub>2</sub>, ミクリニット  $f_a=0.89$ ; 4CH<sub>3</sub>. 3CH. 4CH<sub>2</sub> (各脂肪族成分は100個の炭素に対しての数), 芳香族単位核の大きさは、ミクリニット>ビトリニット>エクジニットの順で大きいことを示している。また、Austen<sup>11)</sup>らはESRを用いて不対電子濃度を英国炭と米国炭のマセラルについて調べ、フジニット>ビトリニット>エクジニットの順で高いこと、ビトリニットは石炭化度が高くなるにつれて不対電子数は多くなり、C90% (d. a. f)以上で急激に増加すること、加熱によってエクジニット、ビトリニットの活性質は350~450°Cの軟化溶融域でその不対電子数が急激に増加するが、フジニットはほとんど変化がないことなどを示している。石炭に異方性のあることはKrevelen<sup>9)</sup>らによって認められていたが、木村、杉村<sup>12, 13)</sup>らは、マセラル成分の特徴は450°C付近の軟化溶融域でみられる異方性構造にあることを見出し、ビトリニットやエクジニットのような活性成分では光学的異方性構造が出現し、炭種によって特徴があること、イナーチニット・グループでは加熱による異方性は認められないことなどを述べている。このようなマセラル成分の特徴は、石炭のコクス化過程を考える上で重要な示唆を与えてくれる。

### 3.2 ビトリニットの反射率とコクス化性

Fig. 7にCとVM(%, d. a. f), Fig. 8にビトリニットの反射率とC, Fig. 9にビトリニットの反射率とVMの関係をそれぞれ示した。

石炭はきわめて種類が多く、その分類について

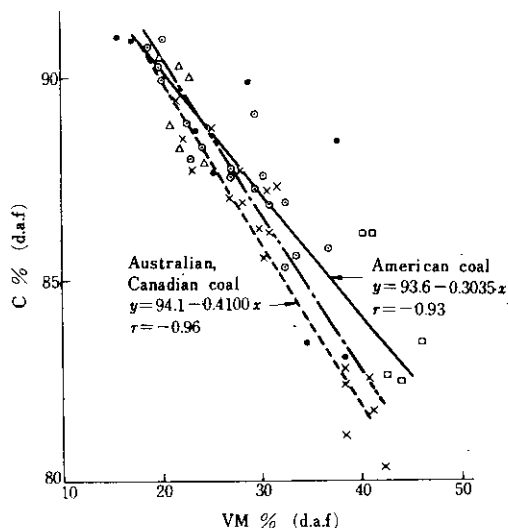


Fig. 7 Correlation between volatile matter and carbon content

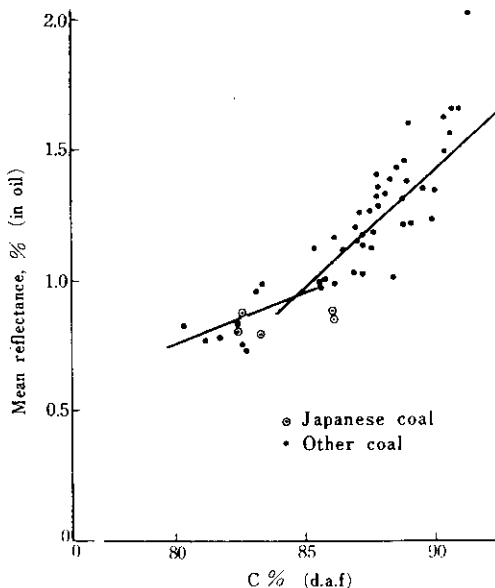


Fig. 8 Relation between carbon content and reflectance

は生因、成分、性状、用途などをもとにした種々の方法がとられている。しかし、一般には炭素含有量(C%, d. a. f), 揮発分(VM%, d. a. f) または発熱量で分類されることが多い。とくに、原料炭として使用される石炭は瀝青炭(米国では Bituminous Coal, 英国では Caking~Coking

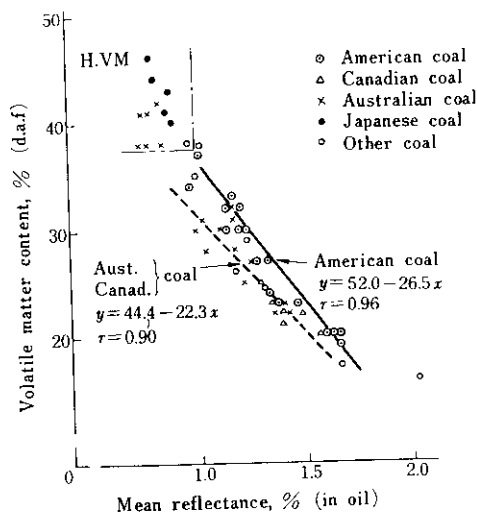


Fig. 9 Correlation between reflectance and volatile matter content

Coal, ドイツでは Gaskohle~Fettkohle) がほとんどであり、工業分析での灰分と揮発分で経験的には炭質が予想できる。Fig. 7 の C と VM との関係では高度の相関が認められる。このことは石炭化度の検出力はこの二つのいずれの数値を用いても、同程度であることを意味している。また、Fig. 8 の C と反射率の関係を見ると、石炭化度が高くなるにつれて反射率が上昇し、その変化率からみると C 85% の付近に変移点があるようにも見受けられる。国内炭は C 86% 付近までは石炭化度の上昇にともなう反射率の増加が漸進的である。また、同一反射率での C (%) を豪州炭と米国炭で比較すると、明瞭ではないが豪州炭がやや高い傾向を示している。このような結果から、反射率は石炭化度判度の一指標になることは明らかである。

米国炭 17 種と豪州、カナダ炭 24 種を層別してみると (Fig. 7, 9), いずれの関係においても産炭地によって回帰直線が異なることがわかる。Fig. 7 にみられる回帰直線の差異は、従来の試験では説明できなかったが、マセラル分析値を考慮するとこの理由は説明できる。すなわち、3.1 で豪州、カナダ炭はイナーチニットの含有量が多いこと、Fig. 6 でイナーチニット成分は同一石炭化度での他のマセラルよりも揮発分が低いこと

は述べたが、石炭の基質をなすビトリニットのみをとりあげれば、その揮発分は工業分析で得られる値よりも相対的に高いはずである。とくに、イナーチニット含有量の多い豪州炭などでは、その傾向が強いといえる。したがって、石炭化度を石炭の基質をなすビトリニットの揮発分で表わすのであれば (石炭化度の厳密な定義でないことはすでに述べた) 工業分析で得られる揮発分は、正確な石炭化度をあらわさないことになる。いいかえると、工業分析で得られる揮発分が同一であれば、イナーチニットの少ない石炭 (米国炭、国内炭など) の方がその多い石炭 (豪州、カナダ、ソ連炭など) よりも石炭化が進んでいることになる。このように、揮発分で石炭化度を判定し、その値から経験的に性状を判定するときは、イナートの含有量を考慮しないと誤った判断をくだす危険のあることが理解できよう。

ビトリニットの反射率が石炭の粘結性に密接な関係があることは多数の研究者によって報告されている。たとえば、ボタン指数との関係では、Benedict<sup>12)</sup> らはビトリニットの反射率  $R_{\text{mean}} = 1.2 \sim 1.3(\%)$  付近に極大があること、最高流動度との関係では、Schapiro<sup>2), 3)</sup> は  $R_{\text{mean}} = 1.0 \sim 1.2(\%)$ 、奥山<sup>13)</sup> らは、 $R_{\text{mean}} = 0.8 \sim 1.0(\%)$  付近に極大があることを報告している。しかし、いずれの結果も石炭化度ほどの検出力はない。これはおそらく、ボタン指数、流動度、膨張率などいずれの指標においても、ビトリニットとの相関を求めるにはイナーチニット成分の影響 (炭種によって揮発分などの特性値が異なってくるために、かなり困難である) をどう数値化して補正するかによって、精度が左右されるためと考えられる。最高流動度温度と反射率との関係を Fig. 10 に示す。データ数は少ないが比較的よい相関が認められる。この関係は別の見方をすれば、最高流動度を呈する温度はビトリニットの石炭化度によって規定されていることを意味しており、石炭化度の尺度にビトリニットの反射率を用いることは、コークス化性を考慮する上で有用であることを裏付けている。いずれにしても、ビトリニットの反射率は、石炭化度や粘結性で代表される石炭の諸特性と密接な関係にあることがわかる。

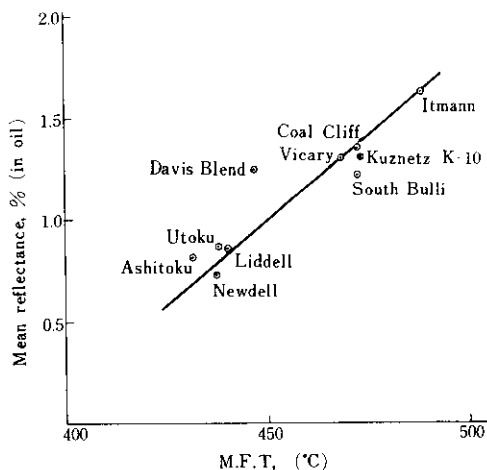


Fig. 10 Relation between reflectance and maximum fluidity temperature

### 3.3 石炭組織とコークス強度

#### 3.3.1 ビトリニットの反射率とイナート含有量のコークス強度におよぼす影響

Fig. 11 は 250kg 試験炉による実測ドラム強度 ( $DI_{30}^{30}$ ; 30回転, 15mm 指数) と灰分からの換算イナートを含む総イナート量の関係をビトリニットのタイプ別 (反射率を 0.1% の範囲で区分した

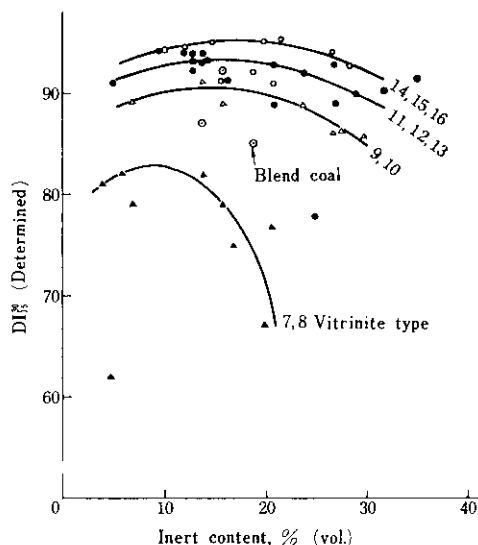


Fig. 11 Correlation between determined drum strength, inert content and vitrinite type

もの) に示したものである。いずれの石炭化度のビトリニットでも、イナート量がある一定含有量のときにコークス強度は極大を示し、それ以上多くても少なくともコークス強度は低下することがわかる。このように石炭化度によって、強度が極大を示すイナート含有量の最適値は異なるわけであるが、Ammosov<sup>1)</sup>や Schapiro<sup>2), 3)</sup> らはこの現象に着目し、これをコークス強度の推定に利用すべく発展させたのである。すなわち、ビトリニットの反射率によってそれに対応したイナートの最適配合量を数値化し、これを各ビトリニット・タイプで振り分け平均化して強度を推定する方法である。Fig. 12 に各銘柄炭についての反射率と活性質/不活性質量の関係を示した。点線は Ammosov<sup>1)</sup> らが実炉で製造したコークスの強度と対応させながら経験的に求めたビトリニットの反射率と最適な活性質/不活性質(R/I)値 (Optimum Inert Ratio) を示す曲線である。たとえば、 $R_{mean}$  1.3%のビトリニットでは、活性質量4に対して不活性質量1の量的割合が強度の高いコー

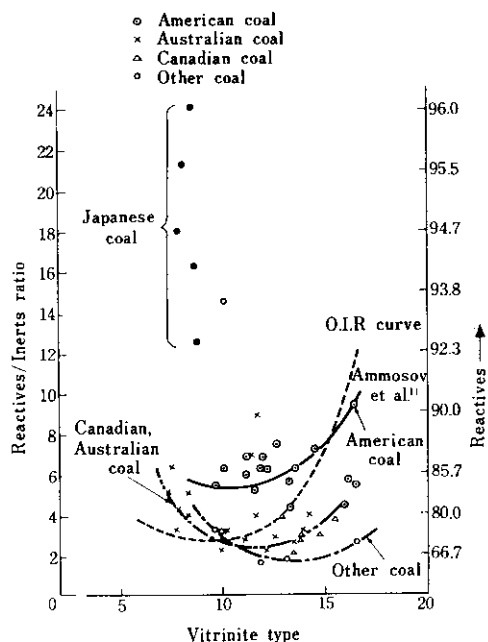


Fig. 12 Comparison between optimum inert ratio and R/I ratio of various coals

クスを得るために最適であることを示している。出炭国別に点線の曲線と比較すると、米国炭では R/I 値が高い位置にあるものの（活性質が比較的多い）、それに近似した曲線を示しているが、豪州、カナダ炭はイナータ量が過剰で最適 R/I 値から大きくずれていることがわかる。とくに、 $R_{mean}=1.3\%$  以上の高炭化領域では、高いコークス強度を得るために高い R/I 値が要求されるにもかかわらずかなり低い値であり、コークス化性に要求される活性質と不活性質のバランスが保たれていないことがいえる。また、国内炭はイナータ質の不足が顕著である。Fig. 13 にドラム強度とタンブラー強度の実測値と R/I 値の関係を示した。この図から不活性質の過剰は、コークス強度の低下に急激に影響していないことがわかる。また、石炭の揮発分との関係は類別していないが、Fig. 11 の低石炭化度の高揮発分炭に注目すると、イナータ量10%を極大にしてそれ以上増加するとコークス強度が極度に低下することがわかる。これらの結果から、良質のコークスを得るためには石炭化度および活性質と不活性質のバランスが非常に重要であることを理解することができる。

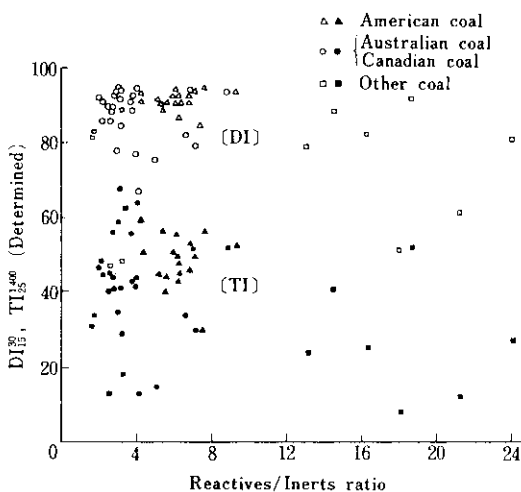


Fig. 13 Correlation between determined drum, tumbler strength and reactives/inerts ratio

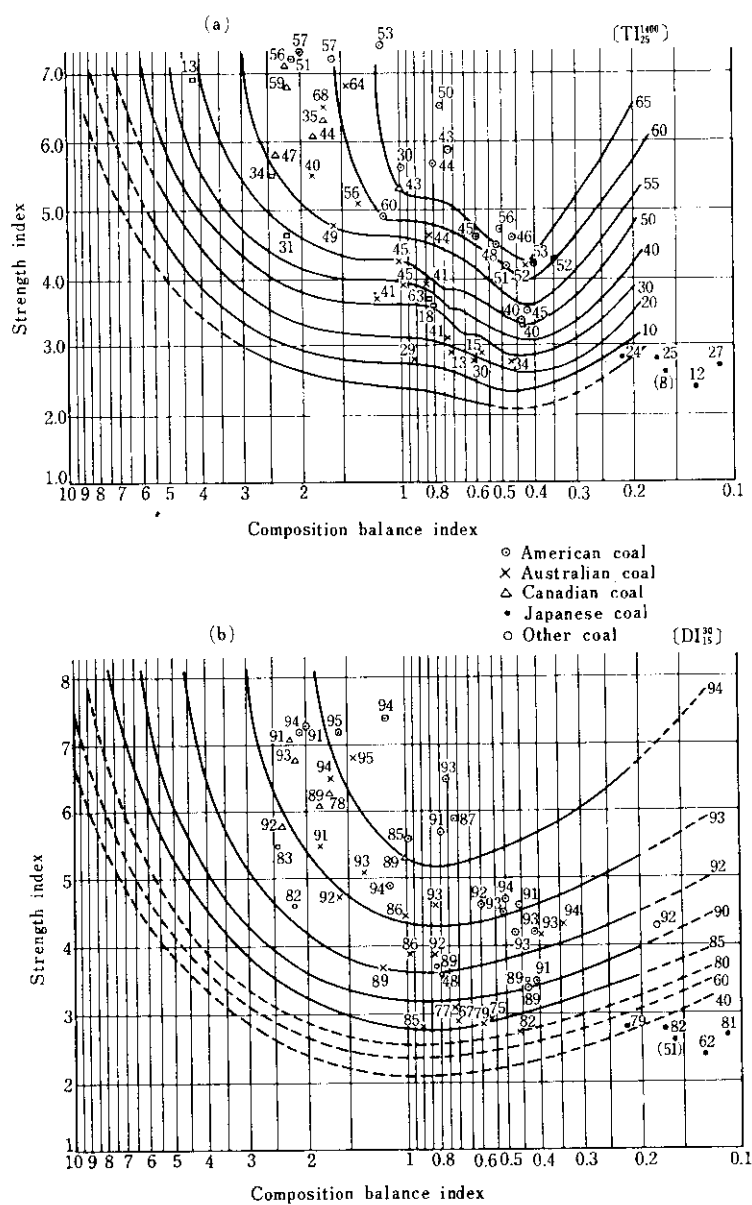
### 3.3.2 単味コークス強度の推定

反射率とマセラル分析をもとに、Consolidation Coal Corp. の数値表<sup>14)</sup>を用いて、強度指数と組織成分平衡指数を算出し、この両指数と実測強度との対応から求められた推定図によって、コークス強度を推定するわけである。今回の試験ではデータ不足のために、等高線を独自に引けるまでに至っていないので、Fig. 14 に示す Schapiro 図<sup>7,8)</sup>を用いて強度を推定した。Fig. 14(a), 14(b) は強度指数(S. I; Strength Index)を縦軸に、組織成分平衡指数(C. B. I; Composition Balance Index)を横軸にとり、実測タンブラー指数( $TI_{25}^{400}$ )、実測ドラム指数( $DI_{15}^{30}$ )それぞれの等高線を引いた図である。Fig. 14(a)の実線は、Schapiro らが米国炭を用いた Tumbler Test (ASTM) の実測値から引いた等高線であり、JIS の  $TI_{25}^{400}$  にはほぼ匹敵する。Fig. 14(b)の実線は、木村、杉村らが城<sup>15)</sup>らによって得られた  $DI_{15}^{30}$  と  $TI_{25}^{400}$  の関係を用いて、 $TI_{25}^{400}$  を  $DI_{15}^{30}$  に換算し、Fig. 14(a)の等高線を修正したものである。図上にプロットしたコークス強度実測値と等高線を対比させると、低揮発分炭や中揮発分炭ではこの等高線に比較的近似していることがわかる。

ここで使用された S. I 値や C. B. I 値を数値表を用いて計算する手順は、Schapiro や奥山<sup>13)</sup>らの報告で詳細に述べられているので、ここではその概略を述べる。S. I, C. B. I の両指数は各試料炭ごとに実測した反射率およびマセラル分析値を次のように処理して求めた。

S. I 値; 100 点の反射率測定値を0.5~2.1%の間を0.1%間隔で各ビトリニット・タイプに分類し、それぞれの量  $x_i$  を求める。ついで、Consolidation Coal Corp. の数値表から各ビトリニット・タイプごとの全イナータ量に対応する係数 ( $a_5, a_6, \dots, a_{21}$ ) を求め、次式によって算出した。

$$S. I = \frac{a_5 x_5 + a_6 x_6 + \dots + a_{21} x_{21}}{\sum_{i=5}^{21} x_i} \quad (2)$$



**Fig. 14** Determined value plotted on curves using relationship between strength index and composition balance index (Based on ASTM stability factor related to petrographic composition)

$a_i$ : 各ビトリニット・タイプの Rank Index

$x_i$ : 各ビトリニット・タイプ  $i$  の含有率 (%)

Fig. 15 にビトリニット・タイプごとの Rank Index とイナート量の関係を示す。Fig. 12 でビトリニット・タイプによって最適 R/I 値(O. I. R) が異なることはすでに説明したが、Fig. 15 では Rank Index は O. I. R に相当するイナート量で極大になり、それ以上多くても少なくとも指数が小さくなることを表わしている。すなわちビトリニットの反射率  $R_{\text{mean}}=0.5\sim1.9\%$  の範囲では、反射率が高くなるにつれてコークス強度に与える影響が大きくなることを意味しており、この関係を経験的にあみ出し、数値化したものが Rank Index である。したがって、S. I はこのイナート量に相当する各ビトリニット・タイプの Rank Index を算出し、平均化した指数である。

C. B. I 値; ビトリニット・タイプごとに、その含有量  $x_i$  と対応する O. I. R 値から次式によって算出した。

$$\text{C. B. I} = \frac{100 - \sum x_i}{x_5/b_5 + x_6/b_6 + \dots + x_i/b_i} \dots (3)$$

$b_i$ : 各ビトリニット・タイプの O. I. R 値

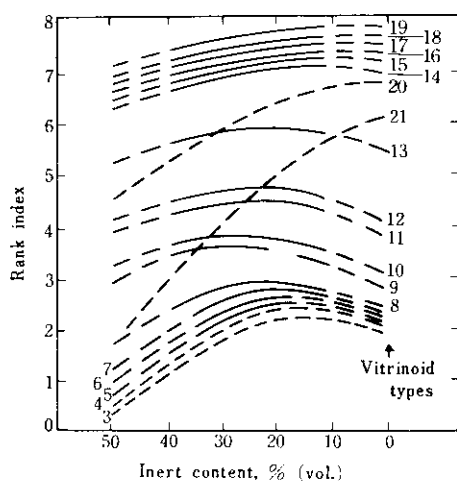


Fig. 15 Correlation between rank index, inert content and vitrinite type (N. Schapiro's)<sup>3)</sup>

この指数は経験的に得られている O. I. R 値を用いて、各ビトリニット・タイプの含有量に相当する最適イナート量を算出し、実測イナート量との割合を示したものである。したがって、試料炭のイナート量が不足または過剰のときは、C. B. I は 1.0 以下または 1.0 以上になる。このように、両指数は経験的に求めた Rank Index や O. I. R 値が基礎になっているために、ビトリニットの反射率が同一でも、コークス強度への寄与に差があるとか、イナート量の質によって O. I. R 値が異なるなどの現象が認められれば、この方法は適用できなくなる。両指数の計算値およびこの指数値と Fig. 14(a), (b) を用いて得られた  $TI_{25}^{1400}$ ,  $DI_{25}^{90}$  の推定強度は Table 2 にそれぞれ示した。

### 3.3.3 コークス強度推定の問題点

Fig. 16 に  $DI_{25}^{90}$  の推定値と実測値との関係を示す。米国炭では一部を除いて推定精度がよい。Schapiro らが発展させたこの推定法は、米国炭を対象にしていることからすれば当然の結果である。しかし、豪州、カナダ等の強粘結炭では、実測値よりも計算値が高いこと、高揮発分領域で、

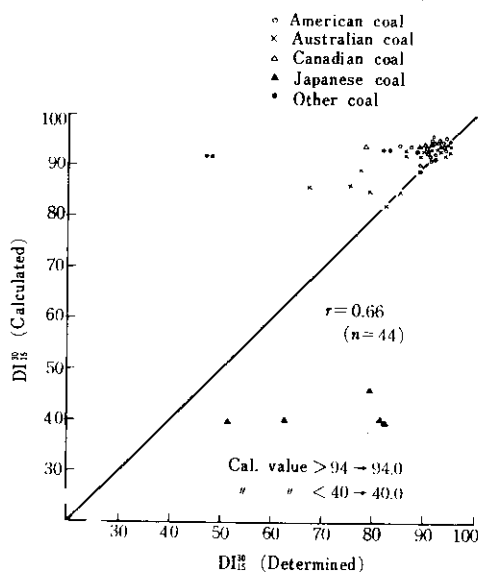


Fig. 16 Relation between determined and calculated drum, tumbler strength

とくに推定精度がわるく、中でも豪弱炭では計算値が高く、国内炭ではそれと全く逆の傾向にあることなどがわかる。これらはおそらく、次のような理由によるものと推察される。

豪州、カナダ、ソ連などの低揮発分炭と米国低揮発分炭のマセラル分析値を比較すると、前者では偽似ビトリニットやセミフジニット成分が多い。この両マセラルのコークス化過程における挙動はまだ明らかではないが、Table 1 に示すように、Schapiro らによると偽似ビトリニットは全量を、セミフジニットはその半量をそれぞれ活性質として評価している。いま、この両マセラルが実際のコークス化過程における働きよりも活性質としての評価が高すぎると仮定した場合、米国炭ではこの両マセラルの含有量が少ないために推定強度への影響は比較的少ないであろう。しかし、豪州炭などではその含有量が多いためにこの影響が大きく、推定強度が高くなるわけである。このように、産炭地の違いによる両マセラル含有量の多少という量的な面と性状に差がある米国炭、豪州炭などの両マセラルを活性質あるいは不活性質として同一評価できるのか、という質的な面の両方に帰因しているものと考えられる。この質的な評価については Mackowsky<sup>16)</sup> も、ドイツ炭にこの推定法を適用すると精度がわるく、セミフジニット成分などの評価については十分検討する必要があることを報告している。

また、高揮発分炭でとくに、精度がよくない理由は、次に述べるエクジニット、イナーチニット成分の質的な要因が大きいと考えられる。エクジニット成分は一般に、高揮発分炭に多いが、Fig. 2 から判断すれば石炭種によってその揮発分や水素含有率などの性状差は、ビトリニット成分よりも大きいはずである。さらに、この成分は前述したように、根源植物によってその性状が規定される要因の大きいマセラルであるために、産炭地による性状差も比較的大きく、当然コークス化性への影響が考えられる。ところが、ここでとり上げている強度推定法では、このマセラルを単に活性質としてビトリニットのタイプ別に比例配分している。このエクジニット成分は、コークス化性の重要な要因である流動性や膨張性など、粘着成分と

しての働きに大きな影響をもつものであり、これを同一視することも推定精度がわるくなる一因と考えられるが、その含有率は量的にみれば少ないから、次にのべるイナーチニットほどには質的な影響はおよぼさないであろう。

この推定法では、エクジニット成分と同じように、イナーチニット成分についてもその性状を同一評価しているが、Fig. 6 から、揮発分含有率などの性状差があることは明らかである。たとえば、豪弱炭の Newdell と国内炭の夕特を例にとって(1)式から計算すると、揮発分(d. a. f)は活性質で44.3%、不活性質で32.0%の値が得られる。一方、低揮発分である豪強炭の Coal Cliff とカナダ炭の Vicary について算出した揮発分はそれぞれ27.0%、15.0%である。このように、揮発分のみをみても同一評価ができないことがわかる。また、軟化溶融しない不活性質から生ずる揮発分は、亀裂の発生などによってコークス強度に悪影響をおよぼすことは十分予想できる。軟化溶融特性などを他の測定法で調べると、豪州炭のイナーチニットから生ずる揮発分は低分子で軟化溶融物質のクラッキングや重縮合等によって生じた揮発分とは異なり、軟化溶融性への寄与の小さいもの(溶融成分としての働きの小さい)であることが明らかとなっている。<sup>17)</sup> いいかえれば、低石炭化度炭のイナーチニットは、高石炭化度炭のそれより質的に劣るから、豪弱炭等の高揮発分炭にこの推定法を適用するには、イナーチニットの評価を何んらかの形で数値化して補正する必要がある。豪州、カナダの強粘結炭と米国の低揮発分炭の比較でも同じように考えられるが、この程度の石炭化度の差はイナート質を同一視しても、推定精度に大きな影響を与えないであろう。

その他、活性質/不活性質の量的割合が同一でも、その分散状態(均一か、偏在か)の違いによっても、実測コークス強度に影響をおよぼすことなどが考えられる。Mackowsky はこれを外的要因と表現しているが、250kg 試験炉では、試料炭を比較的細かくして(3mm 以下80~90%)装入するので、この影響は比較的少ないであろうが、要因の一つとして考慮する必要がある。

いずれにしても、わが国のように多種多様の原

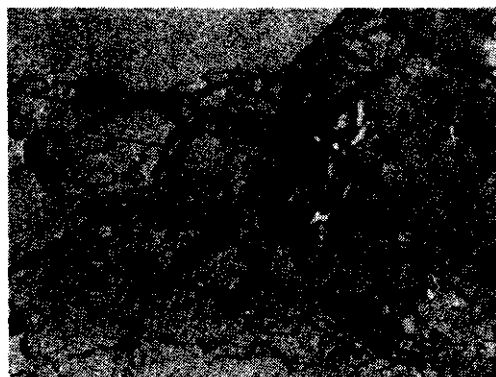
料炭を輸入している場合、この推定法で単味コークス強度を調べるときは、各マセラル成分の性状を十分に把握し、総合的に判断しなければならないことは当然であるが、少なくとも単味コークスを高炉に使用することはないから、この程度の予測でも有効であると考えられる。

#### 4. 風化炭の検出および混合炭の性状チェック

##### 4.1 風化炭および酸化炭

石炭は同一鉱床でもその性状に差のあることはよく知られている。とくに、豪州炭やソ連炭にみられるように、地表近くにあつて露天堀で採炭できるような鉱床では、一般に風化が起っている。

風化とは、通常、自然現象を伴いながら長期間に亘って徐々に酸化される状態をさしていると考えられるが、この現象によって石炭が酸化されると、コークス化性に悪影響をおよぼすことは種々報告されている。<sup>7), 8), 18)</sup> たとえば、当社に入荷したネリユングラ炭はソ連の南ヤクート地区の石炭であるが、表層の炭はほとんどコークス化されない。ところが、表層以外の炭はコークス化性がよい。しかし、入手した石炭を従来の工業分析や粘結性試験等で調べても、コークス化性の低下が風化によるものかどうかは判断できない。このように、石炭の本質的な性状が劣るのか、表層の風化の影響によるものか、これを検出できないために開発の大きな障害となるのである。**Photo. 4** に風化炭の一例を示す。元素分析値の酸素量ではほとんど風化の状況を知ることはできないが、顕微鏡



Neliungla

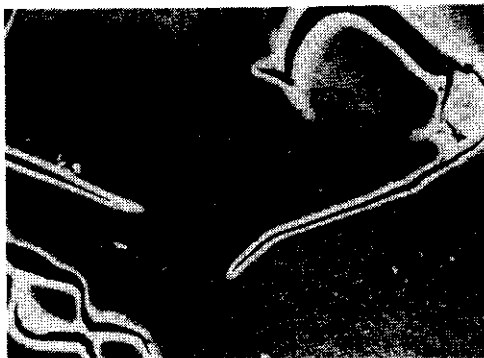


Neliungla

Photo. 4 Photomicrographs of weathering coal



Newdell



Liddell : (350°C, 60 min)

Photo. 5 Photomicrographs of oxidized coal

下ではビトリニット成分について、亀裂の発生という特徴的な現象によって検知できる。**Photo. 5**には Newdell 炭, Liddell 炭を空气中で350°C, 1時間加熱したときの顕微鏡図を示しているが、酸化による亀裂の発生、酸化皮膜の生成などその特徴がよくわかる。また、亀裂の発生状況以外に、反射率の増加によっても風化の現象はある程度把握できるという報告もある。

## 4.2 混合炭

石炭の商取引には、工業分析が一般に用いられており、そのコークス化性については工業分析による揮発分 (VM) 20%前後のL米炭で代表される石炭が良く、価格も高い。また、単味の銘柄ではVM値でその性状がほぼ推定できることから、これが逆用され、高揮発分炭と風化炭や高炭

化度炭を混合してVM値を調節したり、あるいは、混合炭として購入されていても、混合比の変動、風化炭やボタ等の混入によって、品質のトラブルが生ずるのである。このような性状の変動は、従来の工業分析値等では判断できないが、組織分析や反射率の測定によって比較的容易に検知することができる。例として、**Fig. 17**に米国 Blend 炭の反射率によるビトリニット・タイプのヒストグラムを示した。単味の石炭では正規分布の形を示すが、混合炭ではその分布の特徴から、混合銘柄数あるいは、その銘柄名まで予測することが可能である。このように一例ではあるが、従来の試験法では検知できないような性状のチェックにも応用できる。

## 5. ま と め

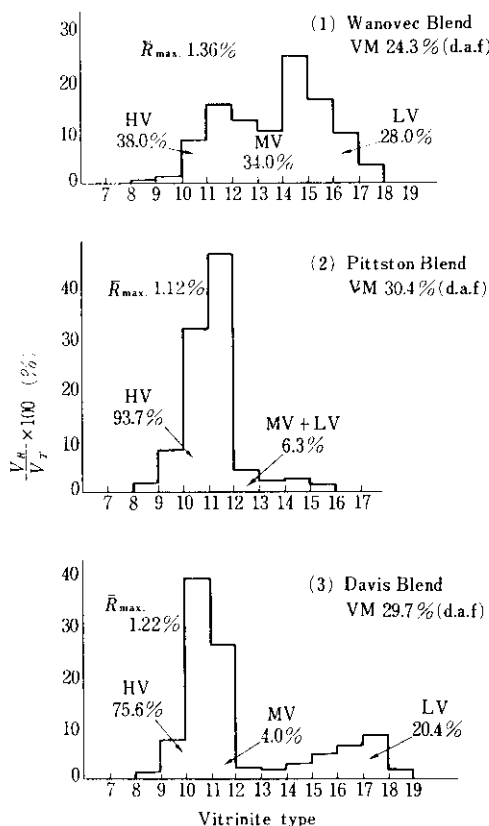
当研究室で入手した54銘柄の単味炭（一部混合炭含む）を対象に、顕微鏡観察や各種写真を参考にしながら、石炭組織学の概要を述べ、同時に、マセラル分析、反射率測定結果と工業分析、元素分析、実測コークス強度 (250kg 試験炉による) および推定強度等の対応から、石炭の組織成分とコークス化性の関連について考察した。さらに、原料炭のソース開発、商取引上における性状の検知、とくに、他の試験法では判定できない風化炭や混合炭についても簡単に触れた。

その結果、

(1) 石炭のコークス化性を左右する要因としてとりあげた産炭地による性状差は、石炭化度のみならず、マセラル組成やその特性値の違いに基因していることがわかった。とくに、米国炭と豪州、カナダ炭等ではその差異が明らかである。

(2) マセラル分析と反射率との関係から、Schaapiro らの推定法を用いたコークス強度の推定結果では、偽似ビトリニット、セミフジニット、イナーチニットおよびエクジニットなど、マセラル成分個々のコークス化性に対する評価で種々問題はあがあるが、推算過程におけるこれらマセラル成分の基本的な考え方は、今後の応用面で非常に有益であると判断される。

(3) 風化炭や酸化炭の混入、さらに混合炭の混



**Fig. 17** Frequency distribution of vitrinite type

$V_T$ : Total vitrinite content  
 $V_R$ : Each vitrinite type content

合割合の変動など、入荷炭の品質上のトラブルは、反射率や組織成分の顕微鏡観察などによって、比較的容易に検知することができる。

これらは従来のコークス化性試験法では得られなかった新しい知見として、今後の石炭評価に有

効に利用できるものと考えられる。

最後に、本研究の遂行にあたり、当初より種々ご教示賜わった公害資源研究所、資源第一部木村英雄博士に厚くお礼申し上げます。

#### 参 考 文 献

- 1) I. L. Ammosov et al.,: Koks i Khimiya, **12** (1957), 9
- 2) N. Schapiro et al.,: J. Inst. Fuel, **37** (1964), 234
- 3) N. Schapiro et al.,: Blast Furn., Coke Oven and Raw Materials Conference Coal, **20** (1970), 89
- 4) 杉村, 柴波, : 燃料協会誌, **46** (1967), 911
- 5) 杉村, 熊谷, 木村, : ibid, **49** (1970), 744
- 6) ASTM Designation: D 2797~99-69T (1969)
- 7) 木村, : コークスサーキュラー, **20** (1971), 1, 33
- 8) 木村, 宮津, : 鉄と鋼, **58** (1972) 1, 158
- 9) D. W. van Krevelen, : Coal Science, Elsevier Publishing Co., **236** (1957)
- 10) H. Tchamler et al.,: Coal Science, Advances in Chemistry Series, **55** (1966), 332
- 11) D. E. G. Austen et al.,: ibid, **55** (1966), 345
- 12) L. G. Benedict et al.,: ibid, **37** (1966), 577
- 13) 奥山, 宮津, 他: 燃料協会誌, **49** (1970), 736
- 14) G. R. Friedrich: (Consolidation Coal Corp.), 私信
- 15) 城, 他: コークスサーキュラー, **9** (1960), 2, 72
- 16) M. Th. Mackowsky: 燃料会議, 講演予講集, (1972), 132
- 17) 宮川, : 未発表資料
- 18) B. S. Ignisiak et al.,: Fuel, **51** (1972), 76
- 19) 木村, 杉村, 他: 燃料協会誌, **49** (1970), 752