石炭の粉碎性の要因*

— とくに石炭化度・微細組織成分・硬度・脆性の相関関係 —

大木 達也¹ 田中 淳一² 原田 種臣³

Cause of Coal Grindability

— Correlation of coal rank, maceral composition, hardness, and brittleness —

by Tatsuya OKI¹, Junichi TANAKA² and Taneomi HARADA³

1. National Institute for Resources and Environment, Tsukuba 305

2. School of Science and Engineering, Waseda University, Shinjuku-ku, Tokyo 169

The authors used 10 coal samples, which were vitrinite rich and of different coal rank (carbon content were from 70.0 % to 87.4 %), and the relation between maceral compositions in vitrinite group and grindability indicated by the Hardgrove grinding index (HGI) was elucidated.

Brittleness of the coal structure rather than its hardness dominates coal grindability. The brittleness of collinite and the collinite content have a specific relation with HGI and coal rank. Higher rank coal includes a higher collinite content, and the collinite becomes increasingly brittle with increasing coal rank and collinite content; in the results, the HGI of the coal samples becomes higher. After grinding coal samples by a Hardgrove grinding tester, the collinite content in the fraction of $-75 \mu\text{m}$ increases with higher HGI. These results show selective grinding of collinite and indicate that only collinite in vitrinite group has a strong influence on coal grindability.

KEY WORDS : Coal, Grindability, Maceral, Brittleness, Coal Rank

1. ま え が き

石炭は種々の利用目的で粉碎される。例えば電力用の高濃度スラリー (CWM) 製造の際、石炭は $75 \mu\text{m}$ 以下程度に粉碎される。この場合、粉碎に要する経費は決して軽視できない。一方、石炭化度や組織成分の差異により、石炭の粉碎性は大きく変動する。したがって、石炭利用の際に微粉碎工程が必要なときは、事前に石炭の粉碎性が十分に吟味される。

では石炭の粉碎性は何に依拠しているのだろうか。この問いに答える目的でなされた研究は、すでにかなり多く存在する。すなわち、石炭化度に係わる性質との関連では、炭素含有率が約 90 % までは、それが増大するにつれ粉碎されやすくなること¹⁾、発熱量が高く揮発分の少ない石炭の粉碎性は良好であること²⁾³⁾などが指摘されている。一方、石炭の組織は、微細組織成分 (マセラル) を最小ユニットとし、マセラルを輝度や根源物質からビトリナイト、エクジナイト、イナーチナイトの 3 グループに分ける微細組織成分群 (マセラルグループ) と、マセラルグループの組み合わせからなる組織成分 (マイクロリソタイプ) に分類される。このうち、組織成分との関連では、ビトライト (ビトリナイトを 95 % 以上含む組織成分) が他の組織成分より軟らかく粉

されやすいこと⁴⁾⁻⁶⁾が知られ、また、マセラルグループについては、宮川ら⁷⁾が、ビトリナイトを粉碎すると、反射率の高いものが細粒側に集まるとの重要な報告を行っている。さらに、石炭の微粉碎機構については、丸山⁸⁾が基礎的なデータを提供しており、材料力学的諸性質と破碎性については、八嶋ら⁹⁾が綿密かつ貴重な研究成果を報告している。しかしながら、最小ユニットであるマセラルの破碎性と、その硬度および脆性との相関関係について詳述した例はほとんどなく、石炭の破碎性の根源は、依然明確でない。

本研究では、石炭の基質を成すビトリナイトのマセラル組成と、破碎性との関係を明らかにする目的で、個々のマセラルについてその硬度、脆性を調べるとともに、石炭化度とマセラル組成、石炭の破碎性の指標であるハードグロブ指数 HGI との関係について検討した。また、上記の結果をもとに、HGI に及ぼす影響が最も大きなマセラルを明らかにし、その選択的破碎性についても若干の検討を加えた。

2. 実 験 試 料

本研究ではビトリナイトの各マセラル (テリナイト, コリナイト, デグラディナイト) に着目し、その破碎性の要因を明らかにするため、ビトリナイト含有率の高い国内炭より、石炭化度の異なる 10 種の石炭を選び試料とした。これらの石炭は、鉄製乳鉢によって過粉碎しないように注意しながら粉碎し、 $600 \mu\text{m} \sim 1.18 \text{mm}$ に粒度調整したのち、比重 1.4 の塩化亜鉛水溶液を用いて重選し、その浮揚物を後述する各試験の試料として用いた。以下これを重選試料と呼ぶ。10 種の重選試料の炭素含有率、工

* 1995 年 8 月 28 日受付 11 月 8 日受理 資源・素材学会平成 7 年度春季大会にて一部発表

1. 正会員 工博 資源環境技術総合研究所 素材資源部研究官

2. 学生会員 早稲田大学大学院 理工学研究科修士課程

3. 正会員 工博 早稲田大学教授 理工学部資源工学科

〔著者連絡先〕 FAX 0298-58-8458 (資源研・素材)

キーワード: 石炭, 粉碎性, マセラル, 脆性, 石炭化度

Table 1 Carbon content, proximate analysis, maceral analysis and gross calorific value of 10 samples.

Sample	Carbon content %(dmf)	Proximate analysis				Maceral analysis				Gross calorific value kJ/g(dmf)
		Ash content %(db)	Volatile matter %(db)	Fixed carbon %(db)	Fuel ratio	Telinite content %	Collinite content %	Degradinite content %	Total vitrinite content %	
		%(db)	%(db)	%(db)		%(db)	%(db)	%(db)	%(db)	
Yubari-shin	87.4	4.2	35.6	60.2	1.69	2.0	73.2	13.1	88.3	36.7
Minami-Ohyubari	82.9	2.9	42.3	54.8	1.29	17.5	44.5	26.7	88.7	36.4
Ashibetsu	82.9	5.8	38.9	55.3	1.42	8.3	58.5	14.8	81.6	34.9
Miike-1	81.3	11.3	42.3	46.4	1.10	17.6	43.1	27.1	87.8	35.8
Miike-2	80.7	7.7	41.0	51.3	1.25	14.8	40.5	33.3	88.6	34.3
Ikeshima-1	80.5	6.8	42.2	51.0	1.21	22.3	35.6	33.1	91.0	34.2
Ikeshima-2	76.6	4.3	40.0	55.7	1.39	29.2	30.5	35.2	94.9	32.8
Akabira	76.4	4.6	39.4	56.0	1.42	19.2	56.5	13.2	88.9	33.9
Taiheiyo-1	72.6	7.5	48.3	44.1	0.91	19.2	17.8	41.5	78.5	32.8
Taiheiyo-2	70.0	12.2	43.5	44.6	1.03	16.3	23.4	34.3	74.0	30.9

db: dry base dmf: dry and mineral free base

業分析値、マセラル分析値および発熱量の測定結果を Table 1 に、典型的なマセラルの反射顕微鏡像を Fig. 1 に示す。

3. 実験方法

3・1 ハードグローブ粉砕性試験

重選試料を 600 μm ~ 840 μm , 840 μm ~ 1.18 mm の 2 粒群に分け、これを 1 : 1 に混合したもの 50 g を、JIS M8801, 4 に基づいてハードグローブ粉砕試験機（小川サンプリング製 OSK141 型）を用いて粉砕し、75 μm である分けを行い、その網下重量から、(1)式を用いて各重選試料の HGI を算出した。

$$\text{HGI} = 13 + 6.93 W \quad (1)$$

W: 75 μm 網下重量 [g]

なお、4・3において、コリナイトの粉砕性を評価するため、配分率 P 、濃縮比 R 、分離効率 η を指標としたが、それは以下の式で定義される。

$$P (\%) = \frac{C_{-75} \cdot Y_{-75}}{C_f} \quad (2)$$

$$R = \frac{C_{-75}}{C_f} \quad (3)$$

$$\eta (\%) = P - \frac{(100 - C_{-75}) \cdot Y_{-75}}{100 - C_f} \quad (4)$$

C_f : フィードのコリナイト含有率 [%]

C_{-75} : 75 μm 網下のコリナイト含有率 [%]

Y_{-75} : 75 μm 網下重量割合 [%]

3・2 石炭の分析

重選試料ならびにハードグローブ試験の粉砕産物を、JIS M8801 に基づいて試料調製したのち、JIS M8812, M8813, M8814, M8816 のそれぞれに準じて工業分析、元素分析、発熱量の測定、マセラル分析を行った。

3・3 ビッカース硬度試験

重選試料の研磨面に対し、各マセラルごとに JIS Z2251 に準じて微小ビッカース硬度試験機（明石製作所製 MKV-E 型）を用いてビッカース硬度試験を行った。荷重 1.96 N、荷重保持時間 20 s の条件で各マセラルの研磨面上にピラミッド型の圧痕を生じさせ、その対角線方向の長さの平均を(5)式に代入してビッカース硬度 H_V を求めた。

Fig. 1 Reflected light image of macerals.

$$H_V = 0.18909 \cdot \frac{F}{d^2} \quad (5)$$

F: 荷重 (N)

d: 対角線の長さの平均 (mm)

このような試験を各試料の各マセラルごとに 20 回行い、その平均値を各試料のマセラルのビッカース硬度 H_{VT} , H_{VC} , H_{VD} とした。また、各マセラルのビッカース硬度にその成分割合を掛け合わせたものの和 ((6)式) を、ビトリナイトの平均ビッカース硬度 H_{VV} として算出した。

Fig. 2 Measurement of brittleness index (Cl).

$$H_{VV} = \frac{H_{VT} \cdot C_T + H_{VC} \cdot C_C + H_{VD} \cdot C_D}{C_V} \quad \dots\dots\dots (6)$$

H_{VT} , H_{VC} , H_{VD} : テリナイト, コリナイト, デグラディナイトのピッカース硬度

C_T , C_C , C_D : テリナイト, コリナイト, デグラディナイトの含有率

C_V : ビトリナイトの含有率

一方、この試験において、ピラミッド型圧痕の周辺部にできたすべての亀裂に対し、Fig. 2のようにそれぞれX軸方向とY軸方向の長さを測定し、その2乗和の平方根を亀裂長として求め、圧痕周辺の亀裂長の総和（(7)式）を脆性特性値 Cl とした。

$$Cl = \sum \sqrt{(X^2 + Y^2)} \quad \dots\dots\dots (7)$$

X, Y: X軸方向, Y軸方向の亀裂の長さ (μm)

脆性特性値についても、ピッカース硬度と同様に、各マセラルごとに20回測定し、その平均値を各試料のマセラルの脆性特性値 Cl_T , Cl_C , Cl_D とし、さらに各マセラルの脆性特性値に成分割合を掛け合わせたものの和（(8)式）を、ビトリナイトの平均脆性特性値 Cl_V とした。

$$Cl_V = \frac{Cl_T \cdot C_T + Cl_C \cdot C_C + Cl_D \cdot C_D}{C_V} \quad \dots\dots\dots (8)$$

Cl_T , Cl_C , Cl_D : テリナイト, コリナイト, デグラディナイトの脆性特性値

C_T , C_C , C_D : テリナイト, コリナイト, デグラディナイトの含有率

C_V : ビトリナイトの含有率

4. 実験結果および考察

4・1 石炭化度、マセラル組成と粉砕性との関係

(1) 石炭化度と粉砕性との関係 石炭化度を示す指標である炭素含有率、燃料比、発熱量とHGIとの関係をFig. 3に示す。実験の結果、上記3指標とHGIとの関係はそれぞれ正の相関を有し、石炭化度が高くなるに従って、HGIは増大する、つまり砕けやすくなる傾向を示す。中でも燃料比とHGIは最も高い相関性（相関係数 $r = 0.89$ ）を持ち、揮発分、固定炭素と粉砕性との関係を指摘した従来の報告²⁾³⁾とよく一致する結果が得られた。

(2) マセラル組成と粉砕性との関係 各重選試料のHGIとテリナイト, コリナイト, デグラディナイトの含有率の関係をFig. 4に示す。ビトリナイトグループを構成するマセラルのうち、コリナイトの含有率だけがHGIと正の相関を有し、他は負の相関を示した。個々のマセラルの含有率とHGIとの間にそれぞれ固有の関係を有するというこの結果は、従来のようなマセラルグループごとの評価では不十分であることを示している。また、Fig. 5は炭素含有率と各マセラルの含有率との関係を示すものであるが、本研究で用いた10種の亜瀝青炭～瀝青炭では、石炭

Fig. 3 Relation between degree of coalification (carbon content, fuel ratio and gross calorific value) and HGI.

Fig. 4 Relation between maceral composition and HGI.

Fig. 5 Relation between carbon content and maceral composition.

化度が高くなるに従ってコリナイトの含有率のみが増大している。すなわち、コリナイトの含有率の増大とともに炭素含有率、燃料比、発熱量が大となり、結果として粉碎性が増大するものと解釈される。

4・2 マセラルの硬さ・脆性と粉碎性との関係

(1) 粉碎性に関与するマセラルの強度因子 Fig. 6 にビトリナイトの平均ビッカース硬度 H_{VV} と HGI との関係を示す。硬度と粉碎性との関係は、全体として負の相関、すなわち硬いマセラルから成る石炭ほど粉碎され難い傾向を示しているが、その相関性はよいとはいえない（相関係数 $r = -0.53$ ）。一方、Fig. 7 は、ビトリナイトの平均脆性特性値 Cl_V と HGI との関係を示したものである。こちらは全体として程度の高い正の相関（相関係数 $r = 0.87$ ）を示し、脆いマセラルから成る石炭ほど粉碎されやすいことが理解できる。Fig. 6, Fig. 7 の結果から、石炭の

粉碎性が、マセラルの硬度よりも脆性に強く依存するのは確かなことといえる。

(2) マセラルの脆性と石炭化度・粉碎性との関係 Fig. 8 に炭素含有率とビトリナイトの平均脆性特性値 Cl_V の関係を示す。石炭化度が高くなるにつれ、ビトリナイトは全体として脆い性質を示すようになる。これを各マセラルの脆性特性値との関係として表すと（Fig. 9）、いずれのマセラルも炭素含有率の増大に伴い脆性特性値が高くなっているが、特にコリナイトの脆性特性値が常に大きな値を示していることがわかる。このことは、石炭化度に伴うビトリナイトグループの平均脆性特性値の増大は、主としてコリナイトの脆性特性値の増大によってもたらされることを意味する。

Fig. 10 は、各重選試料のコリナイト含有率とそのコリナイトの脆性特性値 Cl_C の関係を示したものである。石炭化度とコリ

Fig. 6 Relation between Vickers hardness number of vitrinite (H_{VV}) and HGI. Fig. 7 Relation between brittleness index of vitrinite (Cl_V) and HGI. Fig. 8 Relation between carbon content and brittleness index of vitrinite (Cl_V). Fig. 9 Relation between carbon content and brittleness index (Cl) of macerals. Fig. 10 Relation between collinite content and brittleness index of collinite (Cl_C).

ナイト含有率との相関性については先にも述べたが (Fig. 5 参照), コリナイト含有率に対するコリナイトの脆性特性値の関係も正の相関を有していることが理解できる。

以上の結果から、ビトリナイトを主成分とする亜瀝青炭～瀝青炭領域の石炭については、石炭化度が高くなるのに伴い、他のマセラルに比べて脆いコリナイトの含有率が增大すると同時に、そのコリナイトの脆性特性値自体も大きくなり、このことが石炭の粉碎性を左右しているものと考えられる。Fig. 8 においてビトリナイトの平均脆性特性値が、石炭化度が高くなるにつれ著しい増大を示したのも、これによって説明される。

一方、テリナイト、デグラディナイトの含有率も HGI と負の相関を有する (Fig. 4 参照) という点において、HGI との間に一定の関係を導くことが可能である。しかしながら、Fig. 9 で示したように、両マセラルの平均脆性特性値と炭素含有率との間には、やはり正の相関が認められ、HGI の増大に伴ってその含有率は低下するものの、マセラル自体はコリナイトと同様に脆くなってくる。すなわち、コリナイトに比べて HGI に及ぼす既述のような影響は小さいものの、両マセラルの存在を「粉碎され難さ」の指標として評価するのは妥当でない。また、その含有率の高さから考えても、石炭全体の粉碎性に及ぼす影響はコリナイトの方が遙かに大きいと判断される。

以上の結果に基づいて考えれば、従来より報告されているビトリナイトグループと HGI との関係⁴⁾についても、このグループ

に粉碎されやすいコリナイトが存在することにより説明され、石炭化度との関係¹⁾²⁾についても、先に記したコリナイトの脆性特性値の増大傾向によってもたらされると解釈することができる。

4・3 HGI に及ぼすコリナイト含有率の影響と選択粉碎性

コリナイトの粉碎性によって、HGI が増大する要因としては、コリナイト自身が $75\ \mu\text{m}$ 以下に粉碎され、網下重量を増大させるという一次的なものと、石炭の基質を成すコリナイトが粉碎されることにより、これと接する他のマセラルが $75\ \mu\text{m}$ 以下に配分されやすくなるという二次的なものが考えられる。ここでは、一次的な要因によって HGI の増大に及ぼすコリナイトの影響を把握するため、ハードグロブ試験によって産した $-75\ \mu\text{m}$ の粒群に、フィード中のコリナイトの何 % が配分されるかを配分率 P として測定した。試料には、三池 -2, 池島 -2, 太平洋 -1 を除く 7 種の重選試料を用いた。結果を Fig. 11 に示す。重選試料の HGI が増大するに従って、 $-75\ \mu\text{m}$ の粒群に配分されるコリナイトの割合は直線的に増大し、コリナイトの粉碎性と HGI との間に高い相関性 (相関係数 $r = 0.95$) が認められた。このことは HGI の大きな石炭に含まれるコリナイトほど脆く、粉碎されやすいという、前項の結果をよく反映しているといえる。

Fig. 12 は、 $-75\ \mu\text{m}$ の粒群のコリナイト含有率、ならびにフィードのコリナイト含有率とそれとの比を濃縮比 R として示したものである。ハードグロブ試験機による粉碎によって、 $-75\ \mu\text{m}$ の粒群のコリナイト含有率は $38.2 \sim 90.9\%$ の値となり、フィードのコリナイト含有率に比べ、それぞれ $1.13 \sim 1.69$ 倍に濃縮された。

本研究では、粉碎機としてハードグロブ試験機を用い、その測定粒群である $-75\ \mu\text{m}$ のみに着目したが、この結果から、コリナイトが細粒側に濃縮されることは明白であり、粉碎法や分離粒群を選定することにより、コリナイトを粉碎によってある程度濃縮することも可能と考えられる。このとき、各試料においてコリナイトと他のマセラルとの分離効率 η が最大となる粉碎条件を、これまでの結果を踏まえて考えてみる。まず、コリナイト含有率の高い石炭では、上記の実験 (Fig. 11) で高い配分率を得たように、多くのコリナイトが細粒側へ移行し、かつ他のマセラルが粗粒側に残留している粉碎の初期段階で、分離効率の最大値が得られるものと予想される。一方、コリナイト含有率が低い石炭の場合には、コリナイトの粉碎性が他のマセラルと接近しているため、コリナイトの配分率が十分に高くなるまで粉碎した時点で、その分離効率が最大になると推測できる。

5. 結 言

本研究では、石炭の基質を成すビトリナイトグループの各マセラルについて、HGI で示される粉碎性との関係を検討した結果、石炭の粉碎性はコリナイトの脆性に強く依存し、コリナイト含有率と程度の高い相関を有することが明らかになった。石炭の粉碎性は、石炭の各種因子が複雑に組み合わさった結果として現れる性質ではあるが、本研究の結果から、コリナイト含有率が、石炭の粉碎性を左右する要因となることが確認された。以下に研究成果の要点を記す。

(1) 本研究で用いた 10 種の亜瀝青炭～瀝青炭試料では、高石炭化度になるにつれ、すなわち炭素含有率、燃料比、発熱量の増大に伴って HGI が増大する、つまり砕けやすくなる。このとき、コリナイト含有率のみが HGI と正の相関を有し、テリナイト、デグラディナイトの含有率は HGI と負の相関を示す。この結果は、石炭の粉碎性とマセラルの関係を評価する場合、ビトリナイト、エクジナイト、イナートナイトといったマセラルグループご

Fig. 11 Relation between HGI and partition rate of collinite in $-75\ \mu\text{m}$ fraction.

Fig. 12 Results of collinite content in $-75\ \mu\text{m}$ fraction and ratio of collinite concentration (R) from Hardgrove grinding tests.

との評価だけでは不十分であることを意味する。

(2) ビトリナイトの平均ピッカース硬度および平均脆性特性値と HGI の関係から、石炭の粉碎性は、硬さよりも脆性に強く依存することが認められる。また、石炭化度が高くなるにつれ、ビトリナイトは平均脆性特性値が大きくなるが、これはコリナイトの脆性特性値が顕著に増大することに由来する。コリナイトは、石炭化度が高くなるに従ってその含有率が高くなる一方、そこに含まれるコリナイト自身の脆性特性値も増大するようになる。その結果、石炭の HGI が増大する。

(3) HGI 測定後の $-75\ \mu\text{m}$ 粒群のコリナイト含有率を測定し、フィードのコリナイトの何 % が同粒群に配分されたかを調べた結果、HGI の増大に伴い、その配分率は増大する傾向が認められた。これは、HGI の大きな石炭に含まれるコリナイトの方が、より粉碎されやすいことを裏付けると同時に、粉碎・分粒の組み合わせにより、コリナイトがある程度濃縮できることを示唆するものである。

謝辞 実験試料を提供下さった各炭鉱会社に深く謝意を表す。また、本研究を進めるに際しては、元学部学生（現 ジャパンエナジー(株)）中杉厚史氏および元大学院生（現 出光興産(株)）山下 亨氏の研究成果が種々参考になった。併せて謝意を表したい。

引用文献

- 1) 吉村慶英：鉄道技術研究報告，Vol. 160，p. 6-27，(1960)
- 2) 齊藤 武：機械の研究，Vol. 6，p. 343-347，(1954)
- 3) 橋本 等・Sikong, L.・八嶋三郎：日本鉱業会誌，Vol. 104，p. 737-740，(1988)
- 4) 真田雄三・木村英雄・本田英晶：燃料協会誌，Vol. 40，p. 187-190，(1961)
- 5) 丹野晴彦：石炭組織学よりみた本邦炭の特性，石炭総合研究所，(1958)
- 6) 丸山敏彦：燃料協会誌，Vol. 44，p. 783-791，(1965)
- 7) 宮川亜夫・榎木義夫・嵯峨三男・栗山哲郎・磯崎秀夫：コークス・サーキュラー，Vol. 24，p. 118-133，(1975)
- 8) 丸山敏彦：燃料協会誌，Vol. 47，p. 848-855，(1968)
- 9) 八嶋三郎・橋本 等：鉄と鋼，Vol. 75，p. 17-31，(1989)