

論文

UDC 669.162.16 : 662.66

原料炭評価のための石炭組織自動測定法の開発*

小 島 鴻次郎**・桜 井 義 久***

A Development of Automatic Coal Petrographical Analyses for Evaluating Coking Coals

Kojiro KOJIMA and Yoshihisa SAKURAI

Synopsis:

An automatic system for measuring the distribution of reflectances of coal petrographical constituents has been developed. The system is consisted of an apparatus for microphotometric reflectances of coal and analytical programs. The apparatus is composed of a microscope, photo-cell, and mechanical scanning stage which is controlled by a computer, and measure & reflectance at 20 000 to 100 000 points in a sample in 30 minutes to 2 hours.

The out-put data from the photo-cell are sent to the computer and transferred to absolute reflectances which has been previously compared to the standard samples, and then accumulated and stored to a disc-file of the computer. The accumulated data are retrieved at any time as the distribution of reflectances, which can be shown as a figure of numerical values.

The system possesses an ability to detect Vitritinit only, and thus one can obtain the distribution of reflectances of whole other macerals as well as of Vitritinit.

By the analytical program which can eliminate the boundary effect of coal grains and binder and can recognize each macerals, coking properties of various types of coal and blend can be estimated.

Now the system can be used practically in the following applications, producing excellent results:

1. Making a blending plan for coke plants by estimating the coke strength of coal blends.
2. Quality inspection of purchased coal.
3. Determination of coal quality from an outcrop or boring core samples in an undeveloped coalfield.

1. 序 論

原料炭の組織分析が、そのコークス化性を推定するのに有用であることは以前から認められていたが、その分析にはかなり熟練と時間を要することと、測定精度が十分でないために一部の目的に利用されているにすぎなかった。著者ら及び共同研究者らはこのような欠点を除く目的で、コンピューターと結合した微少反射率測定装置により石炭試料の反射率を多数点測定し、その反射率分布からコークス化性を推定しうることを報告した¹⁾。本報においてはこの方法を活用し更に測定精度向上とデータ処理法の改良をおこなったので報告する。

石炭組織分析とは石炭中の微細組織構成成分の含有割合とビトリニットの反射率分布を顕微鏡によつて定量することで、一回の測定で両方の要素を自動的に導き出す方

法はいままで知られていなかった。

2. 自動測定システムの概要

2.1 自動測定の原理

石炭のコークス化性推定の方法として昔から多くの方法が提案されてきたが、近年石炭組織学を応用した推定法が有力な手段であることが認められ、各国、各社で適用されるようになっていく。

石炭組織分析とは顕微鏡下でポイントカウント方式で石炭微細組織構成成分（以下マセラルと称す。）と石炭の主要成分であり、しかも均一な組織を持つているビトリニットの反射率（一般にはある分布を示す。）を測定することであるが、人力で測定するかぎり測定点の数に限界があることと、測定者による個人誤差も大きいので、自動測定法を開発した。

* 昭和 52 年 10 月 19 日受付 (Received Oct. 19, 1977)

** 新日本製鉄(株)基礎研究所 工博 (Fundamental Research Laboratories, Nippon Steel Corp., 1618 Ida Nakahara-ku Kawasaki 211)

*** 新日本製鉄(株)基礎研究所 (Fundamental Research Laboratories, Nippon Steel Corp.)

自動測定においては、人力でおこなっているポイントカウントをコンピューターと顕微鏡とを結合して自動的におこなわせたにすぎないが、非常に微細に混合された石炭組織を識別して定量化することは非常に困難で、諸外国においても成功している例はない。

このため測定視野をなるべく小さく、(2~5 μ m-dia) 絞らなければならないが、そうするとフォトマルに入る光量が少なくなり精度が著しく悪くなるが、この点については電気的方法によつて解決した。また石炭の кокс化に利用しているリアクティブ成分(乾留過程で溶融する成分)はイナート成分(乾留過程で溶融せず原形のまま残留する成分)よりも反射率は低いが、混合炭の場合には同一反射率であつても同一組織であるとは限らないため、反射率の差のみによつて分割することは不可能である。(通常の購入原料炭は一般に混合炭である。)このため各組織成分を反射率以外の特性を利用して統計的手法により解決した。

装置は油浸レンズを取付けた反射顕微鏡に 10 μ m/10 m s のスピードでパルス状に XY 方向に移動するメカニカルステージを取付け、ステップ状に停止している時間中に反射されてくる光量をフォトマルチプライヤーで電気量に変換してコンピューターに送る。あらかじめ標準試料により、この電気量は反射率の絶対値に変換してコンピューターに記憶されるようになっている。

2.2 自動測定法概要

前報では¹⁾ I. B. M. 1800 を中心とした当所の LA system* の一部として設置し、測定された反射率分布を C. R. T. ** により図形化し、この図を見ながら人間の判断により解析して必要な最終データを求めた。すなわちコンピューターと人間の対話方式によりあらかじめ作成しておいた数種のプログラムを選択しながらビットリットの反射率分布とマセラルグループの分割をおこなっていた。しかしこの方式では個人(測定者)の経験による主観が入りすぎることと、解析に時間がかかりすぎるため改良をした。

51年3月から主コンピューターが FACOM 230/38(富士通 K. K.) と、2台の P. F. U 400(パナファコム K. K.) の子コンピューターに入れ替えた機会にプログラムも大幅に改良した。この方式ではオンラインの測定はすべて子コンピューターにより制御され測定データはディスクに一時収納される。このデータを必要に応じ親コンピューターのディスクに移して解析プログラムによ

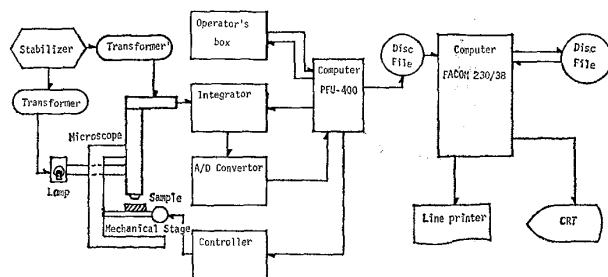
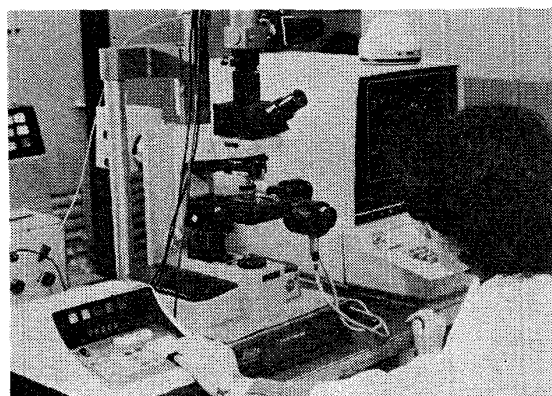


Fig. 1. The schematic diagram of the automated reflectance scanning system.



Center : a microscope with mechanical stage and photo-cell
right : C. R. T. (Cathode Ray Tube)
left : Operator's box
behind : Computer

Photo. 1. Photograph of this apparatus.

り最終データが導き出されるようになっている。

親コンピューターのディスクは数千種類の測定データが記憶できる容量を持っていて、そのままデータバンクとして保存され、必要に応じていつでもデータを取出したり、種々の目的に加工することができる。

このシステムの概念図を Fig. 1 に示し装置の外観を Photo. 1 に示す。

2.3 解析プログラム

測定データの解析はオフラインで実施している。

一回の反射率分布測定のみからビットリットの反射率分布とマセラルグループを同時に導き出すことは理論的には非常に困難である。特に混合炭の場合には不可能に近い。また石炭中のマセラルは非常に微細な組織が含まれているために測定視野をできるだけ絞つても反射率の差異のみで区別することが困難な場合が多い。さらに石炭粒界や割目にかかった部分は一種のノイズとして測定されるので除去しなければならない。

このような解析上の困難を克服して実用に供しうるプログラムを完成した結果、迅速化と一般化(どんな炭種にも、また熟練者でなくても利用可能)が達せられ、石炭組織分析の実用性を拡大することができた。

* 1台の大型コンピューターに多数の測定装置がオンラインで直結され自動測定ができるようにしたシステム

** Cathode Ray Tube (グラフィック、ディスプレイ)

3. ビトリニットの反射率分布

単一な炭層内のビトリニットの反射率は、ほとんど正規分布しているのですがその平均反射率 (R_0) で表現することができるが、多種混合炭では分布幅が広いことと、分布が不規則なためにビトリニットのみの反射率分布を求めねばならない。このためどのような混合炭にも適用できるようにビトリニットのみを自動的に選択してその反射率を測定する方式を開発した。

この原理は、ビトリニットは光学的に均質でほかの微細構成成分より大きな形で存在しているか、石炭の基質組織となつている性質を利用したものである。

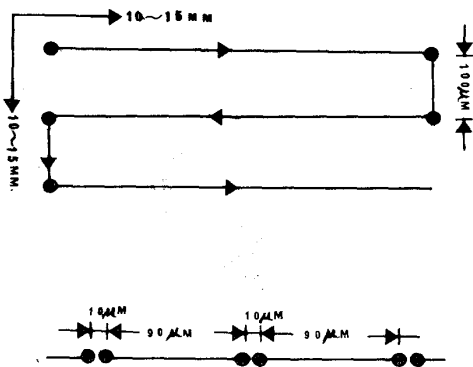
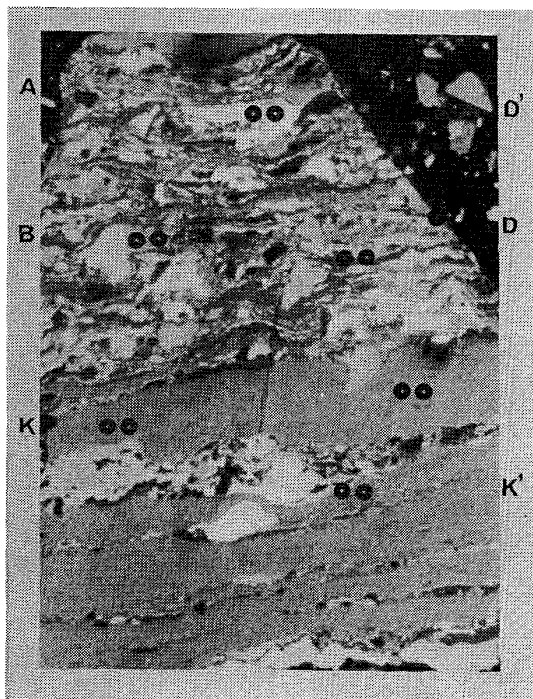


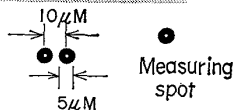
Fig. 2. The scanning system on the measuring.



A, B: Mixture of Inertinit and Exinit

K, K': Vitrinit

D, D': Grain Boundary



Measuring spot

Photo. 2. The principle of measuring the reflectances of vitrinit on a microscopic field.

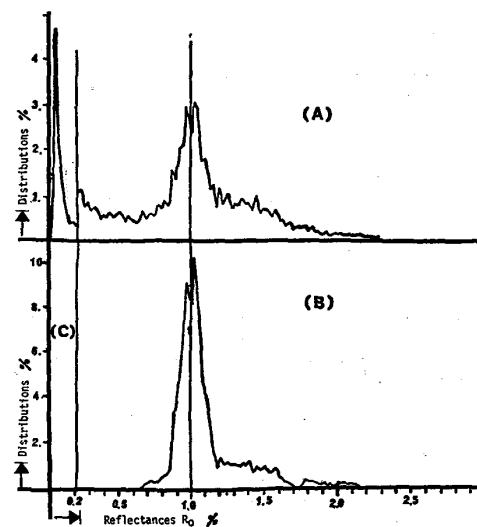
すなわち反射率測定の際、非常に接近した2点間の反射率の差が一定範囲内にある測定点のみをビトリニットとして認識させて別に集計記憶させるようにした。したがって走査法としては Fig. 2 に示すように 10 μ m と 90 μ m の間隔で交互に測定するようになっていいる。(10 μ m 間隔としたのは移動ステージのステップ間隔に合わせたにすぎない。)

この原理を実際の顕微鏡視野内について説明する。

Photo. 2 において B 付近のように反射率の高い組織 (イナータ成分) と低い組織 (エキジニット) が微細に混存している場合には接近した二点間の反射率は同一とならないのに対し K 付近の組織 (ビトリニット) では、ほとんど一定範囲の反射率となる。しかし A のように比較的大きなイナータ成分の場合には同一になることもあるが、その測定確率は非常に小さいことと、ビトリニットより著しく反射率が高いために最終的に分離除去することができる。

しかしながら二点間の反射率が同一でなければビトリニットでないということではない。すなわち二点間の一方が他の組織にかかっている場合や (K'), 粒界や割目にかかっているような場合 (D, D') にはビトリニットとして判断しない。それでも十分多数点を測定すればビトリニットの反射率分布を示すことになる。

このようにして1回の走査により全測定点の反射率分布とビトリニットの反射率分布を同時に測定することができる。この結果を CRT により図形化して示したのが Fig. 3 である。この図の (A) 図は全測定点の反射率分布で、バインダーの部分も粒界の影響を受けた部分も含



(A) Reflectance included all macerals (B) Vitrinit only (C) Binder (reduced scale of 1/5)

Fig. 3. The distribution of reflectances.

んだ全マセラルの反射率分布であるのに対し (B) 図はビトリニットのみの反射率分布である。単味炭のビトリニットの反射率分布は経験的に大体正規分布を示すが、(B) 図においては明るい部分が拡がっている。

それはセミイナー成分のうちビトリニットに近い光学的性質の部分が含まれているためである。この部分を計算により分離することも可能であるが、コークス化性を計算する目的の場合にはセミイナー成分の一部をビトリニットとして計算するので、むしろそのままビトリニットと見なした方が良く考えている。なぜならセミイナー成分とはセミフジニット、シュードビトリニット、セミクリニットなどと称する組織の総称で、いずれもビトリニットとイナーチニットの中間的諸性質を持ち、光学的にもコークス化性も漸移している。そのため顕微鏡的に明確な区別は困難で、人力測定によつても誤差の原因となつている。またコークス化性を計算する上からも研究者によつて経験的にその $1/3$ あるいは $1/2$ をビトリニットに算入しているが、これらの所間誤差を少なくする上からビトリニットに近いセミイナーは自動的にビトリニットに算入されるようになっていた方が便利であるからである。

さらにビトリニットの平均反射率を求める場合、光学的異方性があるためやや小さく出る傾向にあるが、セミイナーもビトリニットとして平均値を求めると相殺されて最大反射率を測定した結果に非常に近くなるからである。

4. 石炭の粒界の影響を除去する方法

研磨面の約半量は石炭粉末試料を固結するために用いたバインダーで、この部分は容易に除外できるが、バインダーと石炭粒子との境界は測定視野をどんなに絞つても両者の中間の反射率を示すことになる。このような部分の測定値は誤った情報を与えるので除去せねばならない。

この粒界の影響を除去するプログラムの原理は次の仮定により作成した。

(1) 石炭とバインダーとの境界にかかる部分の反射率は測定視野 ($2 \sim 5 \mu\text{m}$ -dia) 内における石炭中のマセラルの反射率とバインダーの含有割合に比例する。

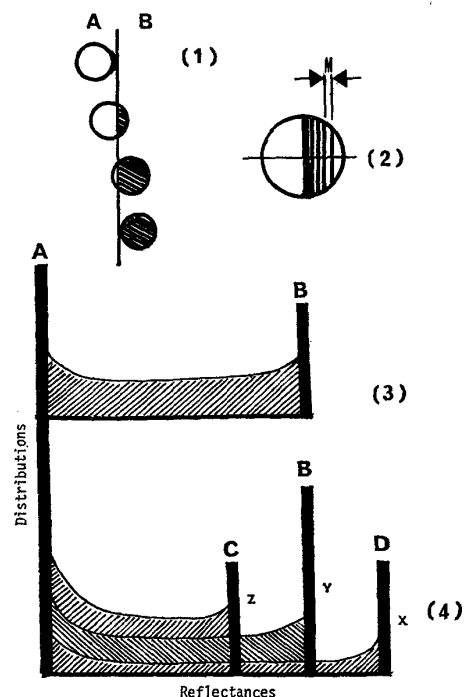
(2) 境界を含む測定点の数は各マセラルの含有割合に比例する。

(3) 境界を含む測定点の数は石炭粒子の粒度と測定視野の面積に比例する。(粒度分布と測定視野を一定にしておけば一定)

以上の仮定から粒界における反射率分布を求める方法

を Fig. 4 について説明する。Fig. 4. (1) において A, B. 異つた反射率の物質が相接して存在する場合、この境界を含む一定視野内の平均反射率は両者の混合割合に比例するので、境界を直線と仮定し測定視野を円形とすれば、境界で区画された扇形面積比に両者の反射率をそれぞれ乗じた反射率となる。

いま測定視野内がすべて石炭粒子である場合からすべてバインダーになるまで移動させたときの反射率分布を求める。Fig. 4. (2) において測定視野を異つた位置で粒界により切断し、視野外周と粒界で囲まれた円台形の面積が等しくなるように分割すると円台形の幅 (M) の比が、その反射率の存在確率を示し、Fig. 4. (3) のような反射率分布を示す。さらに D, B, C. という異つた反射率のマセラルが x, y, z . という割合で混在していると Fig. 4. (4) のようにその量比に比列した境界量を持つため、これらの合計が全マセラルについての境界の影響を受けた反射率分布を示すことになる。このようにして粒界の影響を含んだ反射率分布図から、統計的に得られた粒界の反射率分布にある係数をかけて差引くと粒界の影響を除去した反射率分布図がえられる。(Fig.



- (1) The grade of boundary effects according to the each position of measuring spots between A and B
- (2) Dividing the measuring spot ($2 \sim 5 \mu\text{m}$ dia) into same area
- (3) The distribution of boundary reflectances between A and B
- (4) The distribution of boundary reflectances between A and B, C, D, mixture. x, y, z , indicate the content of each D, B and C, Components respectively

Fig. 4. The elimination logic of boundary effect.

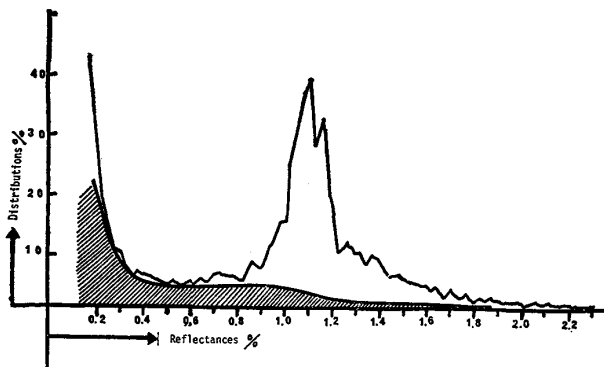


Fig. 5. An example of the elimination of boundary effect. (hatching parts)

5)

このある係数とは石炭の粒度分布と測定視野絞りが一定ならば一定で 30~45% である。

5. マセラルグループの分別定量法

3. で求めたビトリニットの反射率分布と 4. で補正して得られた全マセラルの反射率分布から各マセラルグループの量比を求めるために次の仮定を設ける。

(1) 全マセラルの反射率分布の中でビトリニット以外のマセラル (混合物も含む) を全く含まない反射率の部分が少なくとも一ヶ所以上は存在している。

(2) 同一測定視野内に複数の組織成分を含む部分は、その量比に応じて中間的な反射率を示すが、その反射率の均一物と見なす。

この仮定によりビトリニットの反射率分布に Fig. 5 の全反射率分布に一定の係数を乗じて内接させる。

この内接した面積の全量に対する比がビトリニットの百分率であり残りが他のマセラルの量比となる。(Fig. 6)

この結果ビトリニットの一部は他の成分に、また他の

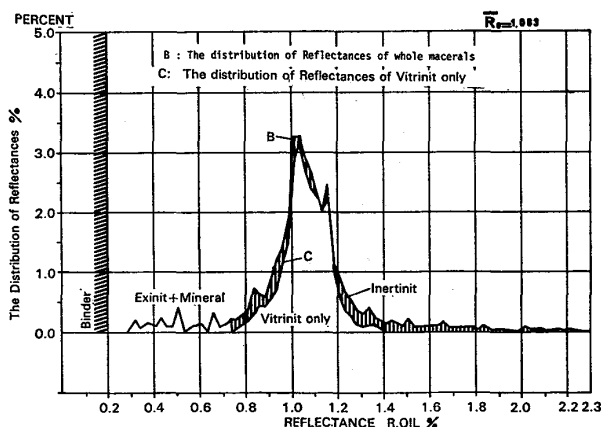


Fig. 6. The converting method of each maceral groups by computer.

成分の一部はビトリニットに計算されることになるが、他の測定法 (人力) による結果と一致すればよい。

次にこの残りのマセラル量からイナートニット (I) とエキジニット (E), 鉱物質 (M. M) を分割する。そのため次の仮定を設ける。

(1) 反射率は $M. M \leq E < I$ である。ただし M. M のうち硫化鉄は反射率が高く I に含まれる。

(2) 反射率 1.2 (R_0) 以上の E は存均しないか、存在しても V と同じコークス化性となる。

(3) 日本炭のデグラディニットと称する組織は V と E の中間的な性質である。(光学のおよび物理化学的性質)

このためビトリニットの反射率分布をコンピューターによりそのピーク位置、拡がりの幅、平均値などから混合炭か単味炭か、高石炭化度炭か低石炭化度炭か、米炭、日本炭、高イナート炭か等を区別してイナートニットとエキジニット+M. M を反射率によつて分割してイナートニットの量比を求める。次に M. M は工業分析の灰分から計算して差引き、エキジニットの量比を求める。

以上の結果をコークス強度計算に必要なパラメーターに換算して Table 1 に示す。

6. 測定結果の信頼性

以上のようにして得られた結果がどの程度信頼性があるかについて検討した。

6.1 主要銘柄炭について従来法との比較 (所内誤差)

Table 2 に主要輸入炭を従来法で測定した結果と自動法によつて求めた結果を比較した。自動測定の方がやや

Table 1. Typical example of a petrographical analyses by this system.

Sample No. S-KA-1561-77.6

Maceral group						
V	(R. V)	E	I	(T. I)		
67.53	67.37	0.0	32.47	32.63		
Ash	T. S	(T. R)				
7.75	0.55	67.37				
Vitrinit Type						
V ₇	V ₈	V ₉	V ₁₀	V ₁₁	V ₁₂	V ₁₃
0.16	0.88	7.79	25.62	17.06	4.28	3.21
V ₁₄	V ₁₅	V ₁₆	V ₁₇	V ₁₈	V ₁₉	V ₂₀
3.12	1.60	1.35	0.96	0.53	0.29	0.35
V ₂₁	V ₂₂	V ₂₃	V ₂₄	V ₂₅	V ₂₆	V ₂₇
0.18	0.04	0.04	0	0.04	0.04	0
Mean Reflectance $\bar{R}_0=1.162$						
CBI=1.475			SI=4.439			

(R. V.) = Reactive Vitrinit
(T. I.) = Total Inert
(T. R.) = Total Reactive

Table 2. Comparison between manual and this automatic analyses of various kinds of coal.

Sample name	V		E		I		$\bar{R}_0$	
	Manu.	Auto.	Manu.	Auto.	Manu.	Auto.	Peak.	Ave.
Itmann.	74.0	69.4	0.1	1.9	25.9	28.8	1.52	1.531
Keystone	79.0	73.8	0	0	21.0	26.2	1.597	1.641
S. P. Pochahontas	86.0	81.3	0.5	3.4	13.5	15.3	1.52	1.492
Peakdown	75.8	73.5	0	0	24.2	26.5	1.40	1.430
Goonyella	69.7	69.5	0	0	30.3	30.5	1.12	1.192
"	64.2	66.7	0	0	35.8	33.3	1.08	1.122
Saraji	70.0	70.9	0	0	30.0	29.1	1.38	1.426
"	79.3	76.2	0	0	20.7	23.8	1.50	1.528
Moura	66.0	68.1	2.0	0	32.0	31.9	0.863	0.904
"	72.5	76.6	2.7	0	24.8	23.4	0.88	0.898
Wollondilly	53.7	51.2	2.1	0	44.2	48.8	0.96	1.123
Lemington	74.4	77.3	4.7	1.3	20.9	21.4	0.68	0.733
Blackwater	62.2	62.0	0.8	0	37.0	38.0	1.08	1.158
S/B water	60.0	60.5	2.0	0	38.0	39.5	1.01	1.075
"	66.3	69.9	2.9	0	30.8	30.1	0.967	1.039
Liddell	73.5	78.6	6.2	1.3	20.3	20.1	0.75	0.756
Southblei	53.7	55.2	2.1	0	44.2	44.8	1.256	1.402
Newdell	79.3	85.5	3.7	1.3	17.0	13.2	0.70	0.715
Coal cliff	51.6	48.8	0.5	0	47.9	51.2	1.335	1.513
Balmer	59.0	57.6	0	0	41.0	42.4	1.23	1.398
Fording River	57.8	60.8	0	0	42.2	39.2	1.331	1.426
Pittstone	76.8	72.6	3.5	6.8	19.7	20.6	1.15	1.205
"	76.0	80.3	6.2	0	17.8	19.7	1.104	1.116
B. S. Blend	74.5	78.9	7.6	2.5	17.9	18.6	1.00	1.045
Stinnes	77.1	75.7	11.5	13.2	11.4	11.2	0.82	0.855
Drummond	81.4	79.1	5.3	8.0	13.3	12.9	1.00	1.012
Bradford	84.2	82.0	0.4	1.7	15.4	16.3	1.125	1.166

イナート量が多く出る傾向にあるようであるがいずれも許容誤差範囲内にある。

平均反射率はピトリニットの反射率が正規分布ならピーク位置と一致するが、セミイナート成分の一部が含まれているため平均値が高目に出ている。

6.2 混合炭についての再現性

Fig. 7 は Beatrice 炭 (LV 米炭) と Kellerman 炭 (HV 米炭) を人為的に 50 : 50 に混合したサンプルの反射率分布を示す。反射率分布は全く混合割合通りに現われていて、本システムの信頼性の高いことを示している。この図は見易いように若干スムージングしてあるが、両炭種ともほとんど完全な正規分布をした反射率分布となつていことがわかる。

6.3 同一サンプル内の誤差

Table 3 は単炭 3 種についてそれぞれ 5 個の研磨試料を作成して自動測定した結果と、コークス炉に装入する配合炭 (20 銘柄の原料炭配合) から 10 個の研磨試料を作成して測定した結果を示してある。したがってサンプル誤差 (試料調整による誤差) と測定誤差の両方が含まれているが、人力による所内誤差より小さいことがわかる。それでも配合炭の場合、コークス強度推定に役立てるためには一個の試料の測定結果では不十分である。

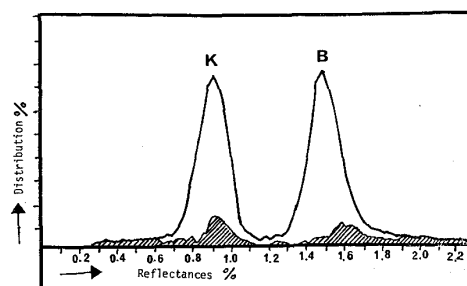


Fig. 7. An example of reflectance distribution curve of blended two kinds of coal.

K. B. : Beatrice : Kellerman = 50 : 50

すなわちコークス強度推定精度を $DI_{150}^{\pm 0.25}$ で管理しようとするれば、組織分析結果から得られるコークス化性パラメーター C. B. I., S. I. は ± 0.15 以内の精度であることが必要であり、そのためには組織分析の精度を約 1.5% (特にイナート量)、平均反射率 0.02 程度としなければならない。このためには 3 個の測定結果の平均値を使用するとだいたい目的が達せられる。

一般に配合炭の場合はサンプリング誤差も測定誤差も大きいので、なるべく多数の研磨試料を測定して平均値を求めるべきであるが、このようなことも自動測定によつてのみ達せられる。

Table 3. The results of maceral analyses and mean reflectances of different specimens from a same sample by this system.

Sample		Specimen No.	Maceral group			$\bar{R}_0$
			V %	E %	I %	
Individual coal	S/Black-water	1	66.8	0.9	32.2	1.067
		2	63.0	1.8	35.2	1.068
		3	61.1	0	38.9	1.088
		4	59.8	0	40.2	1.088
		5	64.5	0	35.5	1.063
	K-10	1	59.2	0	40.8	1.474
		2	58.5	0	41.5	1.513
		3	59.7	0	40.3	1.491
		4	59.5	0	40.5	1.492
		5	54.2	0	45.8	1.472
	Kingswood	1	77.7	5.3	17.0	1.027
		2	78.0	7.3	14.7	1.025
		3	76.6	7.6	15.8	1.026
		4	76.0	8.0	16.0	1.021
		5	77.6	6.2	16.2	1.031
Blended coal for B. F.	Blended coal from 20 sorts of coal	1	64.6	5.1	30.3	1.057
		2	68.2	2.4	29.4	1.056
		3	61.8	7.7	30.5	1.026
		4	63.2	5.5	31.2	1.050
		5	65.1	4.6	30.3	1.040
		6	66.1	4.2	29.7	1.024
		7	63.1	5.3	31.6	1.065
		8	64.8	6.9	28.3	1.048
		9	62.2	6.8	31.1	1.049
		10	66.6	5.5	27.9	1.045
	ave.	64.6	5.4	30.0	1.046	
	σ	1.934	1.439	1.157	0.012	

7. 自動測定法の限界

本測定システムはコークス用原料炭のコークス化性を迅速かつ正確に測定する目的で開発したものであつて、万能装置ではない。したがつて本システムの原理や仮定を理解してその範囲で利用しなければならない。

通常の原料炭についてはほとんど問題はないが以下に述べる種類の石炭については人力に頼るか別な方法を利用した方がよい。

7.1 無煙炭および特殊炭

反射率 $\bar{R}_0 > 2.2$ の無煙炭では光定的異方性の影響が大きく、実際の石炭化度を示す反射率より見掛上低く示される。コークス強度計算のためだけなら $\bar{R}_0 > 2.2$ の部分はイナータ成分として処理するので影響はないが、無煙炭の石炭化度によつて強度以外の特性を推定しようとする場合や、 $\bar{R}_0 = 2.2$ の半無煙炭のコークス化性が問題となる場合には自動測定を使用すべきではない。またビトリニットの著しく少ない石炭 (<15%) についても

人力測定の方が信頼性は大きい。(Cannel coal, Boghead Coal)

7.2 酸化炭

酸化の程度を反射率分布から求めることは無理である。すなわち、著しく酸化した石炭を顕微鏡観察するとビトリニットに微少亀裂が生成したり、酸化被膜の生成(未酸化ビトリニットより明るい被膜も暗い被膜もある。)が認められる。

しかし人工的に種々の条件で酸化させた試料について測定したビトリニットの反射率分布には全く変化がなかった。

この酸化によつて反射率分布に変化のないことは欠点である反面、未開発炭田の調査において露頭炭しか入手できないような場合や、サンプル採取後長時間放置されたような試料についても、未風化(未酸化)炭のコークス化性を推定できる長所でもある。

しかし我々が取扱う石炭は多かれ少なかれ酸化していて、その程度はコークス化性に大きく影響するので、他の方法(たとえば流動性試験など)を補助的に利用するのが適当であると考えている。

7.3 高灰分炭と微粉原料

ボーリングコアサンプルや未選炭のように灰分 30% 以上あるような石炭では粘土鉱物や大粒の石英質鉱物が混入していて研磨が困難になるばかりでなく測定誤差も大きくなる。このようなサンプルでは比重 1.6~1.9 の重液で岩石部分を除去して研磨試料を作る。

また試料調整を工業分析や他の試験試料と同時に作成しようとして 60~100 メッシュ以下に微粉碎した試料では固結が十分におこなえないことと自動測定時に粒界の影響が大きくなり、有効測定点の数が減少して測定誤差が大きくなる。

7.4 本法の留意事項

本システムを数年間使用した結果、たしかに便利な装置であり石炭組織分析を実用に供するために有用であると信じているが、過信すると思わぬ誤測定となることがある。

7.4.1 測定面の代表性

測定点の数は人力による場合より格段に多いが走査面積はむしろ小さい。そのためサンプリング、試料調整、研磨には人力による場合以上に注意が必要である。

通常の場合は 10mm×10mm の範囲を 2 万点測定すれば十分であるが、サンプルによつては 15mm×15mm を 5 万~10 万点測定する必要のある場合がある。

7.4.2 メカニカルステージとピント合せ

メカニカルステージは非常に精密に製作されていて、

Table 4. Differences between $\bar{R}_0$ -max and $\bar{R}_0$ -random according to anisotropic effect of vitrinit.

Sample	$\bar{R}_0$ -max	$\bar{R}_0$ -random	Δ	Remarks
1	1.441	1.412	0.029	I. C. C. P. Report (1972)
2	1.051	1.050	0.001	
3	0.985	0.970	0.015	
4	0.904	0.895	0.009	
5	1.179	1.185	0.006	
6	1.459	1.427	0.032	
7	1.140	1.127	0.013	
8	2.212	2.032	0.180	own measuring
9	0.69	0.66	0.03	
10	0.73	0.70	0.03	
11	0.85	0.85	0	
12	1.07	1.02	0.05	
13	1.06	1.03	0.03	
14	1.08	1.04	0.04	
15	1.34	1.26	0.08	
16	1.68	1.66	0.02	
17	1.67	1.65	0.02	

正常な状態では $20\text{mm} \times 20\text{mm}$ の範囲で $\pm 1\mu\text{m}$ の上下差で移動できるが、研磨試料の設置方法によつては測定中にしばしばピント合せをしなければならないことがある。ピントのわずかなずれによつて反射率はあまり大きな影響は受けないが、それでも誤差となる。またステージは保全のためにクラッチ機構やリミットスイッチがついているので、抵抗が大きいと同一点を空転していることがある。このため設置場所と保守には気をつけねばならない。

7.4.3 異方性の影響

石炭は光学的異方性物質であるためにビトリニットの反射率は最大反射率 R_0 -max を測定することになっているが、本システムでは任意の方向の反射率 R_0 -Random しか測定できない。異方性の程度は石炭化度の上昇とともに増大するので補正することも可能ではあるが、通常の瀝青炭の範囲では Table 4 に示すようにあまり大きくないので、そのまま利用しても良さそうである。ただし厳密な測定を必要とするような場合には（たとえば石炭構造パラメーターにしようとするような場合）人力によらねばならない。また反射率分布はやや低い方にひろがつて測定されることは承知しておかねばならないが、コークス強度計算のためには実用上支障ない。

8. 自動測定法の利用

石炭組織分析は、石炭（および炭質物）を取扱う方面で広く利用され多くの研究が 30 年以上前から報告されている。たとえば

(1) 炭田地質調査（マセラルの分布と石炭化度の変

化）

(2) 最近では石油探査（炭質物の変質程度の調査）

(3) 石炭のガス化、液化、燃焼技術

(4) 石炭科学における研究手法

などに利用されているが工業的效果としてはコークス工業において最も大きい。

測定すべきサンプル数が少ない場合や、時間的制約の少ない場合には人力で測定しても間に合うが、（ただし十分熟練した測定者が注意して測定するならば）コークス工場で日常管理に利用しようとする場合には自動測定が非常に有利である。

8.1 入荷の品質管理

入荷炭の品質が安定している場合には一銘柄について 3~6 ヶ月に 1 回程度の測定ですむが、多くの銘柄炭は数種の石炭の混合炭であるために、混合比がしばしば変化することが多い。特に購入規格が工業分析値程度で決められているので、工業分析値が同一であつても同一のコークス化性であるとは限らないので、ロットごとにコークス化試験を一通りおこなわなければならない。事実ある種の銘柄炭については入船ごとに著しくコークス化性が異なるため、コークス工場管理の障害になつた場合もある。

また日本の製鉄所では使用銘柄炭の種類が多い割合にヤードの面積が十分でないために銘柄別管理がむづかしく、そのため類似炭種を大別して配合管理をすることがあるが、この場合どのように大別しておくかも重要である。その時に入船後数時間で結果のでる自動測定が必要となる。

8.2 新規購入炭の品質判定

使用実績のない新規購入炭を使用する場合には、従来通常の工業分析、元素分析、流動性試験または膨張性試験、缶焼き、または試験炉による配合試験等多くの労力と時間を必要とした後、実窯試験をしてから実用されている。他に使用する原料炭在庫が十分にある時期ならばそれでも間に合うけれども、昭和 49 年から 50 年にかけてのように在庫が底をついて入荷そく使用という時期では、とても従来法では間に合わない。この期間当社 8 製鉄所の全スポット炭を本法により組織分析をして効果を上げることができた。

8.3 コークス炉装入炭管理

どんなに良い配合計画により装入炭を混炭しても、計画通り混合されているかどうかをチェックする手段が現在はない。同一配合割合であつても、毎日の（毎装入時）装入炭ではかなりバラツキいて、それがコークス強度に影響しているように思われる¹²⁾。その原因は石炭ヤ-

ドでの偏析、ボイドメーターの精度（水分補正も含めて）誤配合など種々あると思われるが、装入炭を直接組織分析して計画配合との差異を迅速に判定してアクションに結びつけることができるので、コークス品質の安定に役立つものと思われる⁶⁾。

8.4 コークス性状の迅速推定

石炭組織からコークスの冷間強度を推定する方法については数多くの報告があるが¹⁰⁾¹²⁾¹⁶⁾、実案に適用しようとする場合には組織分析の精度が不十分なことと、操業要因の影響があるため、かならずしも満足すべき結果が得られていなかった。しかし本システムによる測定結果を当社のコークス炉ごとに（各コークス工場ごとの操業条件が含まれている）適用した結果によると、十分実用に供しえる精度（ $\Delta DI_{10}^{10} = 0.25$ ）で推定できることをみいだした⁶⁾。

また最近冷間強度のみではなく、コークスのガス化反応速度や、熱間強度等についても石炭組織と関係のあることが報告されているので^{13)~15)}、この方面の研究はますます進められるものと思われる¹⁶⁾。そのためにも数多くのサンプルを迅速に精度良く測定することが必要になるであろう。

8.5 その他

組織分析した結果は測定と同時にすべてディスクファイルされているので、任意の銘柄の分析結果をいつでも容易に取出せるようになっている。したがって、たとえばある銘柄の長期にわたる品質変動を並べて将来の予測をしたり、異常があつた場合の原因調査に役立つであろう。また最適配合計画の LP 計算においても、他の情報と組合せて役立てることができると思われる。

Fig. 8 は LV（低揮発分）強粘結炭の代表的銘柄とされている Itmann 炭の昭和 50 年 4 月に入船した石炭と 12 月に入船した石炭の反射率分布を比較して示している。両者の間では揮発分で 1% 位の差にすぎず、また単味コークス強度はむしろ 12 月入荷炭の方が高いのに、配合した時に従来の品質では 6% 位の配合で必要コークス強度が得られたのに 50 年の中頃からは 8~10% 配合しなければ同一強度が得られなかつた。

この時の入荷炭は反射率分布から明らかなように反射率 1.2~1.3 の M. V 炭が約 30% 混合されていることが認められた。

9. 結 論

昭和 47 年以来約 3 年間の研究期間により石炭組織分析の自動化に成功し、次の成果が得られた。

9.1 測定精度の向上

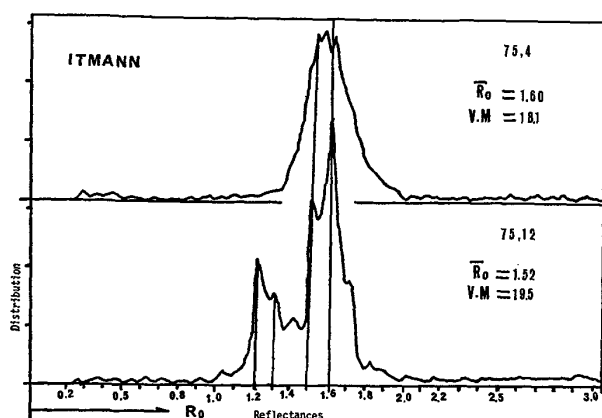


Fig. 8. A difference of the distribution of the reflectances relied on shipping of the same brand coal.

人力による測定では一試料につき組織構成成分（マセラル）の定量は 500 点以上をポイントカウント法により測定し、ビトリニットの反射率は 100 点以上を選んで測定することになっているが、石炭のように不均質な物質の混合物の場合には測定点の数が不足なため十分満足すべき精度が得難い³⁾。Table 5 は同一装置で同一測定者が測定した場合の繰返し許容誤差で、J. I. S 原案になっている⁷⁾⁹⁾。この誤差範囲内の 2~3 個の同一試料の測定結果を平均して利用すれば実用上支障がないと考えられるが、その労力と時間が非常に大きい。これに対し自動測定の場合の繰返し誤差は非常に小さく、経験的にほとんど 1 回の測定で十分である。（サンプル誤差が小さい場合）

9.2 迅速性

組織分析を工業的目的に利用しようとする場合には測定の迅速性が要求される。

ASTM⁹⁾ で決められている通りに測定すると 1 日 1 試

Table 5. Allowance error in petrographical analyses by the same operator using the same equipment (Presentated by JIS).

Maceral groups	Allowance %	
	n=2	n=3
V	5.60	6.70
E	5.40	6.40
I	4.90	5.80
Reflectance $\bar{R}_0$ max	0.042	0.05

n = number of specimens

V : Vitritinit group

E : Exinit group

I : Inertinit group

Table 6. The result of petrographical analyses by the joint exercise of I. C. C. P.

Sample		V %	E %	I %	M. M %	$\bar{R}_0$ max
A	$\bar{X}$	72.6	13.4	11.2	2.8	0.904
	Δ	17.2	14.2	10.0		0.08
	σ	4.8	3.7	2.4		
B	$\bar{X}$	67.6	6.6	22.7	3.1	1.179
	Δ	18.6	7.7	18.6		
	σ	6.1	2.3	5.5		0.10
C	$\bar{X}$	76.9	2.8	17.7	2.6	1.459
	Δ	11.8	7.0	15.7		0.16
	σ	5.0	1.6	3.8		
M	$\bar{X}$	73.3	7.0	16.5	3.2	1.140
	Δ	15.5	11.1	11.5		0.18
	σ	4.4	2.5	3.2		

 $\bar{X}$: average values Δ : Maximum ranges σ : Standard deviations

I. C. C. P. : International Congress of Coal Petrography which participated 32 Lab. in the world

料の測定がやつとである。もしサンプル調整、測定、結果の計算、報告を1人で実施するとすれば1週間(5日)2試料程度である。

それでも使用原料炭銘柄が少なく、安定しているならば間に合うけれども、日本の製鉄所のように多品種多銘柄で、しかも入荷ごとに変動が大きい場合には一台の装置で要求に合う速度で結果を出すことは困難である。

9.3 所間誤差の減少

同一試料を分割して世界 32 ケ所の研究所で測定した結果をまとめたのが Table 6 である⁸⁾。

このように所間誤差の大きいのは、(i)サンプルの縮分誤差、(ii)試料調整と装置の差異もあるが、(iii)測定者の個人誤差の要因が最も大きい。

本法においてもエキジニットとイナーチ成分を分割する所で若干測定者の判断が加わるが、ほとんどその誤差は無いと考えられるので、所間誤差は大幅に減少するものと考えられる。

9.4 労働環境の改善

人間の労働として反ぶく繰返し作業は適当でない。特に外界の刺激の少ない顕微鏡室で一人で毎日単純作業を繰返すことは精神衛生上好ましくないことと、眼に神経を集中させることにより眼の障害が生ずることもあるようである。

石炭組織分析を工業的に応用するためには自動測定法の開発が必要であることは、日本国内の製鉄所でも諸外国でも痛感され開発が試みられてきたが、実用に供し得るシステムにしたのは最初であろう。

Appendix 1

マセラルグループ (Maceral Group)

石炭微細組織構成成分をマセラルと呼ぶが、その中で性質の類似している組織をグループに大別している。

V : ビトリニット (Vitrinit)

E : エキジニット (Exinit)

I : イナーチニット (Inertinit)

M. M : 鉱物質 (Mineral Matter)

Appendix 2

ビトリニットの反射率の表示

ビトリニットには光学的異方性があるため、一定方向の偏光を試料に投射し、反射光量を測定する際試料を180°回転させた時に最大となる時の反射光量を R_0 -max という。これに対し通常光を投射して任意の方向の反射光量を R_0 -Random といっている。

R_0 : 油浸反射率 (Reflectance in oil)

$\bar{R}_0$: 油浸平均反射率 (Mean Reflectance in oil)

$\bar{R}_0$ -max : 油浸平均最大反射率 (Mean Maximum Reflectance in oil)

$\bar{R}_0$ -Random : 油浸平均ランダム反射率 (Mean Random Reflectance in oil)

文 献

- 1) 小島鴻次郎, 桜井義久, 須貝哲也, 茂木正好: 燃料協会誌, 53 (1974) 572, p. 1073
- 2) K. KOJIMA, Y. SAKURAI, T. SUGAI, and M. MOROGI: US Pat, No. 4030837
- 3) 福山辰雄, 宮津 隆, 寺田幸夫: 燃料協会誌, 52 (1973) 557, p. 721
- 4) J. T. McCARTNEY, H. J. O'DONNELL, and S. ERGUN: Fuel, 50 (1971), p. 222
- 5) J. DARTNELL: JISI, (1972) March, p. 145
- 6) 小島鴻次郎: コークスサーキュラー, 25 (1976), p. 301
- 7) ISO/TC 27, No. 1180, August (1976)
- 8) The report of ICCP, (1971), Nov. Not published
- 9) JIS 原案, 未発表
ASTM, D 2796-72
- 10) 奥山泰男, 宮津 隆, 杉村秀彦, 熊谷光照: 燃料協会誌, 49 (1970) 522, p. 736
- 11) 宮津 隆, 奥山泰男, 鈴木喜夫, 福山辰夫, 森高: 日本鋼管技報, No. 67 (1975), p. 1
- 12) 小島鴻次郎: 燃料協会誌, 50 (1971) 536, p. 894
- 13) 角南好彦, 小川真資: 第 62 回コークス特別会 昭和 52 年 4 月 7 日
- 14) 石原武彦, 吉野良雄, 土橋幸二: 第 62 回コークス特別会 昭和 52 年 4 月 7 日
- 15) 宮川亜夫, 嵯峨三男, 谷原秀太郎: 燃料協会誌, 56 (1977) 601, p. 337
- 16) R. R. THOMPSON and L. G. BENEDICT: Proc. Am. Inst. Min. Metall. Pet. Eng., 34 (1975), p. 112