

Origine, structure, propriétés et valorisation de la houille (1)

Dr. D. W. van KREVELEN,

Professeur à l'Université Polytechnique de Delft,
Directeur des Recherches aux « Staatsmijnen in Limburg ».

I. — L'ORIGINE DE LA HOUILLE ET LE PROCESSUS DE LA HOUILLIFICATION

Malgré les progrès impressionnants réalisés par la chimie des matières naturelles pendant les cinquante dernières années, la structure d'un des produits naturels les plus importants — la houille — est toujours pleine d'énigmes. Ceci montre déjà les difficultés particulières que cette matière présente aux recherches.

De nos jours, c'est un fait connu que la houille doit son origine à une décomposition incomplète — la houillification — de matières végétales. La houille se rapporte pourtant à la plante vivante comme une ruine, ou plutôt, comme un tas de décombres à un bel édifice. Comme un édifice est bâti d'éléments de construction (pierres, ciment, poutres et planches, stuc, tuiles, etc.) dont chacun a une composition plus ou moins caractéristique, chaque plante se compose également de tissus (xylème, phloème, parenchyme, épiderme, etc.) d'une composition chimique plus ou moins définie. La ruine ou le tas de décombres ne révèle rien ou presque rien de la construction harmonique; les éléments reconnaissables s'y trouvent pêle-mêle; nombre d'entre eux ont été entièrement consumés par les injures du temps; la construction originale ne se comprend et ne se reconstruit qu'à partir de morceaux détachés, de restes de fondements et similaires. C'est pourquoi tous ceux qui s'occupent de l'étude de la houille sont obligés de faire appel aux restes des composants originaux des plantes (le plus souvent de dimensions microscopiques) pour se faire une idée de la nature des différents éléments de construction dont la composition a encore fortement évolué au cours des siècles.

En ce qui concerne la recherche chimique, les plus grandes difficultés résultent du fait que la houille est un conglomerat macromoléculaire qui empêche la séparation et l'épuration selon les procédés normaux appliqués dans les laboratoires (dissolution, cristallisation, distillation, chromatographie).

Les produits naturels tels que cellulose, amidon, caoutchouc, sont également macromoléculaires; ils ont pourtant l'avantage évident d'une construction uniforme d'éléments très simples. Une décomposition chimique prudente (hydrolyse, ozonolyse, etc.) permet de se faire une idée de la structure des morceaux. Sitôt que le squelette des pierres de construction devient plus compliqué et que la composition est d'une uniformité moins sévère, les matières de la nature vivante présentent aussi de grandes difficultés quant à la recherche de la structure; la lignine et, sous un certain rapport, les protéines en sont des exemples typiques.

Il est d'autant plus compréhensible que la structure de la houille, comme celle de la classe entière des acides humiques alliés à la houille, est en majeure partie enveloppée d'un brouillard et est toujours peu connue par le chimiste. Cependant, des contours commencent à se montrer dans ce brouillard et indiquent le chemin vers une notion plus définie de la structure.

Méthodes d'examen.

Le schéma 1 représente les différentes méthodes d'examen de la houille dans leur rapport mutuel.

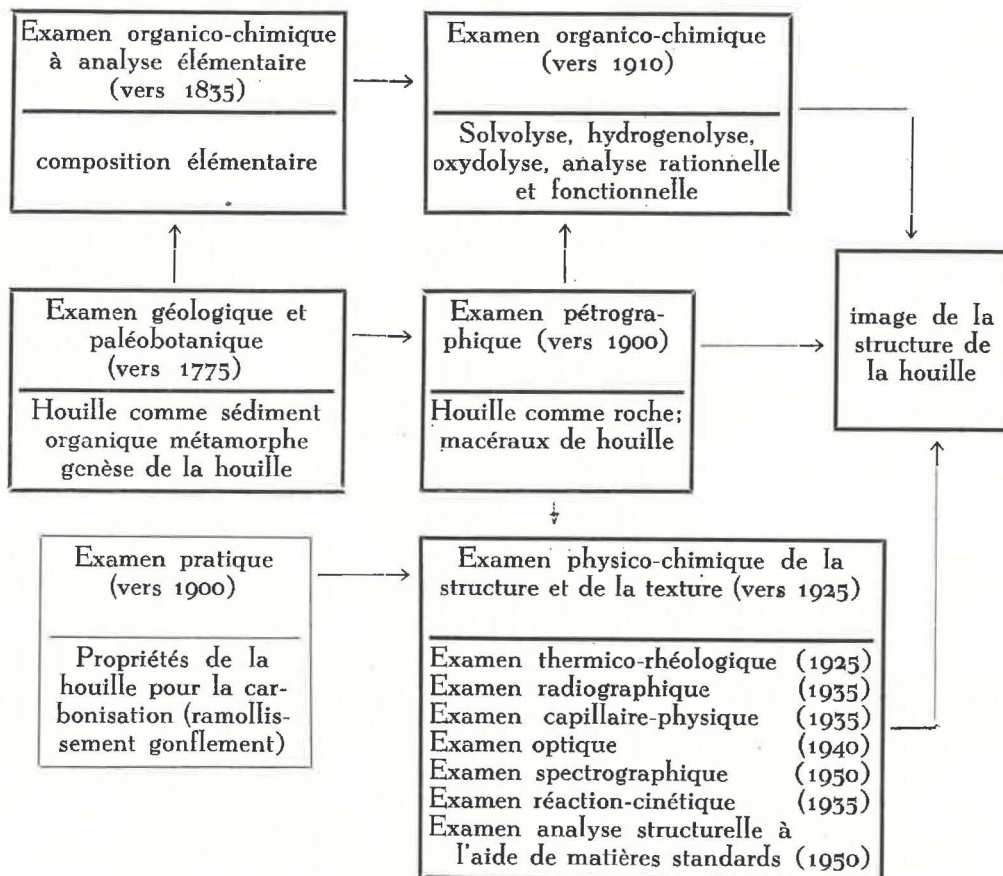
L'examen géologique s'est développé en premier lieu. Le début de l'examen géologique systématique coïncide à peu près avec celui de la révolution industrielle, période au cours de laquelle la houille commençait à acquérir une importance technique. Peu après suivaient les premiers examens organico-chimiques de caractère principalement analytique.

Il y a 125 ans, le français Regnault (1) établit le premier système de classification des houilles basé sur la composition chimique; c'est pourquoi on peut considérer 1837 plus ou moins comme l'année de naissance de la chimie de la houille. Dès ce moment nombre d'examineurs se sont occupés de deux problèmes: la constitution de la houille et son utilisation. Vers 1900 a lieu la grande expansion des méthodes de recherches: La pétrographie systématique de la houille se développe à partir de l'examen géologique; dans le domaine organico-chimique, les

(1) Cycle de conférences à l'Université de Liège, dans le cadre des accords culturels Hollando-Belges.

Schéma 1.
METHODES D'EXAMEN DE LA HOUILLE.

(Les dates indiquent le début de l'examen suivant la méthode susnommée).



différentes méthodes d'analyse « rationnelle » prennent de l'essor, alors que les besoins pratiques (fabrication de coke) de caractère provisoirement empirique donnent naissance à l'examen rhéologique. L'examen physico-chimique est appliqué après 1930.

L'origine de la houille.

Actuellement, on admet généralement que la houille s'est formée à partir de matières végétales. En majeure partie, ce sont les plantes supérieures qui ont fourni les matières de base bien que les organismes inférieurs tels que moisissures, algues et bactéries, aient également participé à la formation.

La houillification entière se divise en deux phases, savoir : la houillification biochimique et la houillification géochimique ou métamorphose.

La houillification biochimique.

Quand la matière végétale meurt, son avenir dépend des conditions locales. Elle peut se décomposer entièrement (minéralisation), pourrir (méta-humification) ou se transformer en tourbe (humification).

Les facteurs qui jouent un rôle dans la houillification biochimique sont : le climat (température et humidité), la position du niveau d'eau, l'acidité de l'eau, la présence ou l'absence d'oxygène (potentiel rédox) et la présence ou non d'ions métalliques à action catalytique. Ce sont ces facteurs qui déterminent la nature de la microflore.

Il est plus ou moins évident que des bactéries ont participé à la première phase de la houillification. Presque toutes les espèces de matières organiques sont attaquées par des bactéries. Dans un milieu anaérobie, l'action des bactéries sur les matières organiques tend à la formation de produits finals qui sont relativement riches en carbone. La tolérance des bactéries vivantes pour une acidité déterminée varie fortement, savoir d'un pH de 4 à 10. Une partie des matières organiques décomposées peut avoir été convertie en substance cellulaire des bactéries. Comme les bactéries se caractérisent par un très grand nombre d'enzymes, leur présence exerce une influence catalytique sur presque toutes les réactions organiques connues. Il y a des bactéries qui enlèvent de l'hydrogène à des carbohydrates et à des composés analogues. D'autres accélèrent de façon catalytique l'oxydation de cet hydrogène moléculaire, tandis que quelques bactéries réduisent l'acide carbonique en méthane ou hydrogèment

des composés non-saturés. La chimie de la première phase de houillification est rendue extrêmement compliquée par la diversité des bactéries. 2).

Outre les facteurs oecologiques, c'est la nature des matières végétales qui est vraiment importante : le comportement des plantes (des parties de plantes) ligneuses diffère de celui des plantes (des parties de plantes) herbacées.

Nous nous occuperons d'abord de la houillification biologique proprement dite, savoir l'humification (à laquelle correspond plus ou moins le processus analogue pour les protéines et les graisses, savoir la saporification).

Seules, les parties de plantes les plus résistantes survivent au processus de la houillification : les parties les plus herbacées, par contre, presque toutes les protéines et tous les carbohydrates se trouvant dans les plantes, excepté la cellulose, se consomment entièrement. Les tissus de bois et d'écorce, épidermes de feuilles, membranes de spores, résines et cires, sclérotium de moisissures et membranes des cellules des algues sont plus ou moins résistants.

Si, pendant cette humification, le niveau des eaux est tellement bas qu'il affleure la surface de la terre, les matières mortes qui s'enfoncent dans le sol mou arrivent dans un milieu où le courant, et par conséquent l'aération de l'eau, sont très faibles. Dans un tel milieu, l'oxygène de l'eau est rapidement consommé alors que les matières se momifient presque totalement. Dans les eaux plus ouvertes où l'alimentation d'oxygène est meilleure, beaucoup d'éléments de plantes seront entièrement rompus, entre autres, une grande partie de la cellulose du bois. Au fur et à mesure que les conditions favorisent la décomposition, il ne restera que les parties les plus résistantes, telles qu'épidermes de feuilles, membranes de spores, résines, cires et similaires. Par conséquent, les conditions de la houillification se déduisent plus ou moins de la nature de la houille. Moins on rencontre de structure ligneuse, plus les conditions dans le marais forestier ont été humides.

Pendant l'humification, les conditions soit de la végétation soit de l'humification elle-même peuvent se modifier. Quand, par exemple, une lagune ou un petit lac se transforme en tourbière, les conditions entraînent une humification « humide » qui se transforme en humification « sèche » quand l'eau se retire. Dans le lac qui s'est un peu desséché par suite de la régression de l'eau, une végétation forestière peut se produire et donner lieu à la formation de tourbe ligneuse. Dans ce cas, la végétation présente la succession suivante : végétation dans les eaux ouvertes (plantes aquatiques, plankton), végétation de rivage (plantes jonchères), végétation forestière (bois marécageux); les sédiments sont : boue humide, tourbe jonchère, tourbe forestière.

Cependant, la plupart des gisements de houille ne se sont pas formés dans des lagunes, mais prennent naissance par l'affaissement du sol. Le plus souvent, la formation de tourbe a commencé dans des conditions assez sèches alors que — après un certain temps — le sol a été inondé par immersion,

ce qui a arrêté la formation de tourbe et permis le dépôt de sédiments. Parfois pourtant la formation de tourbe a débuté dans des conditions dites humides par le dépôt tout d'abord d'une couche de sapropèle sur laquelle s'est développée une végétation. La transformation en tourbe s'est terminée le plus souvent par l'inondation du sol.

Après la formation de sédiments pendant la période suivante, une nouvelle végétation a pu se former, suivie d'une nouvelle transformation en tourbe et enfin d'une nouvelle couche de houille. Si la vitesse de l'affaissement géosynclinal est faible, la formation de tourbe peut suivre l'affaissement tandis qu'une grande vitesse entraîne l'inondation complète. Ensuite il se produit une lutte de vitesse analogue entre l'affaissement et la sédimentation. Outre l'affaissement géosynclinal, c'est le « tassement » des sédiments qui joue un rôle. Le tassement des couches inférieures de tourbe est fort et accélère l'affaissement local. 3).

Nous devons donc nous attendre à ce que les conditions dans le marais changent généralement pendant la transformation en tourbe. C'est pourquoi la structure de la houille, vue sur l'épaisseur de la couche, représente des variations caractéristiques. Il s'ensuit que le profil de la composition est assez caractéristique.

La houillification géochimique.

Tous les produits qui se forment dans la phase de la houillification biochimique sont instables du point de vue thermodynamique par rapport au carbone, l'eau, l'acide carbonique et le méthane. Aussi est-il clair qu'une lente transformation en ces produits finals stables devrait se produire au cours des siècles.

Le temps seul est pourtant un facteur insuffisant bien qu'il s'agisse de millions d'années. Le grand bassin de Moscou qui prend naissance avant le Carbonifère prouve qu'avec le seul facteur temps, la houillification ne peut dépasser le stade de la formation de lignite. Le seul recouvrement de la couche de tourbe par un sédiment finit par aboutir à la formation de lignite et ne va pas au delà.

La houillification avancée est généralement due à d'autres facteurs.

Ce sont surtout les influences géothermiques qui sont primordiales. On sait que la température dans l'écorce terrestre augmente de 3°C en moyenne par 100 m. En considérant que les gisements de houille dans nos régions ont été recouverts d'une roche de plus de 5.000 m d'épaisseur, on peut facilement calculer que des températures de 150 à 200°C ont été normales et ont provoqué une houillification avancée.

De plus, on a trouvé des symptômes évidents de l'existence de plutones qui, durant des années, peuvent avoir augmenté le gradient géothermique. Ceci peut expliquer les différences remarquables du degré de houillification sur des distances assez grandes dans le même gisement.

Les pressions tectoniques donnant lieu à la formation de très grandes montagnes, ainsi que la température élevée résultant des forts affaissements

et refoulements, ont même entraîné la formation de charbons qui se composent presque totalement de carbone, savoir les anthracites graphitiques, par exemple dans les Alpes.

Les intrusions volcaniques n'ont eu qu'une faible influence locale aux environs immédiats de l'intrusion. Ceci peut provoquer le soi-disant métamorphisme de contact qui aboutit à la formation de houille, dont la houillification est avancée, ou

même de coke naturel. Le métamorphisme de contact n'a pas joué un rôle dans la formation des gisements de houille normaux à grande étendue.

Microscopie de la houille. 4)

Parlons maintenant de la nature de la houille résultant des conditions de la houillification. Ce sont les résultats de la pétrographie de la houille qui le permettent. Le microscope nous permet de

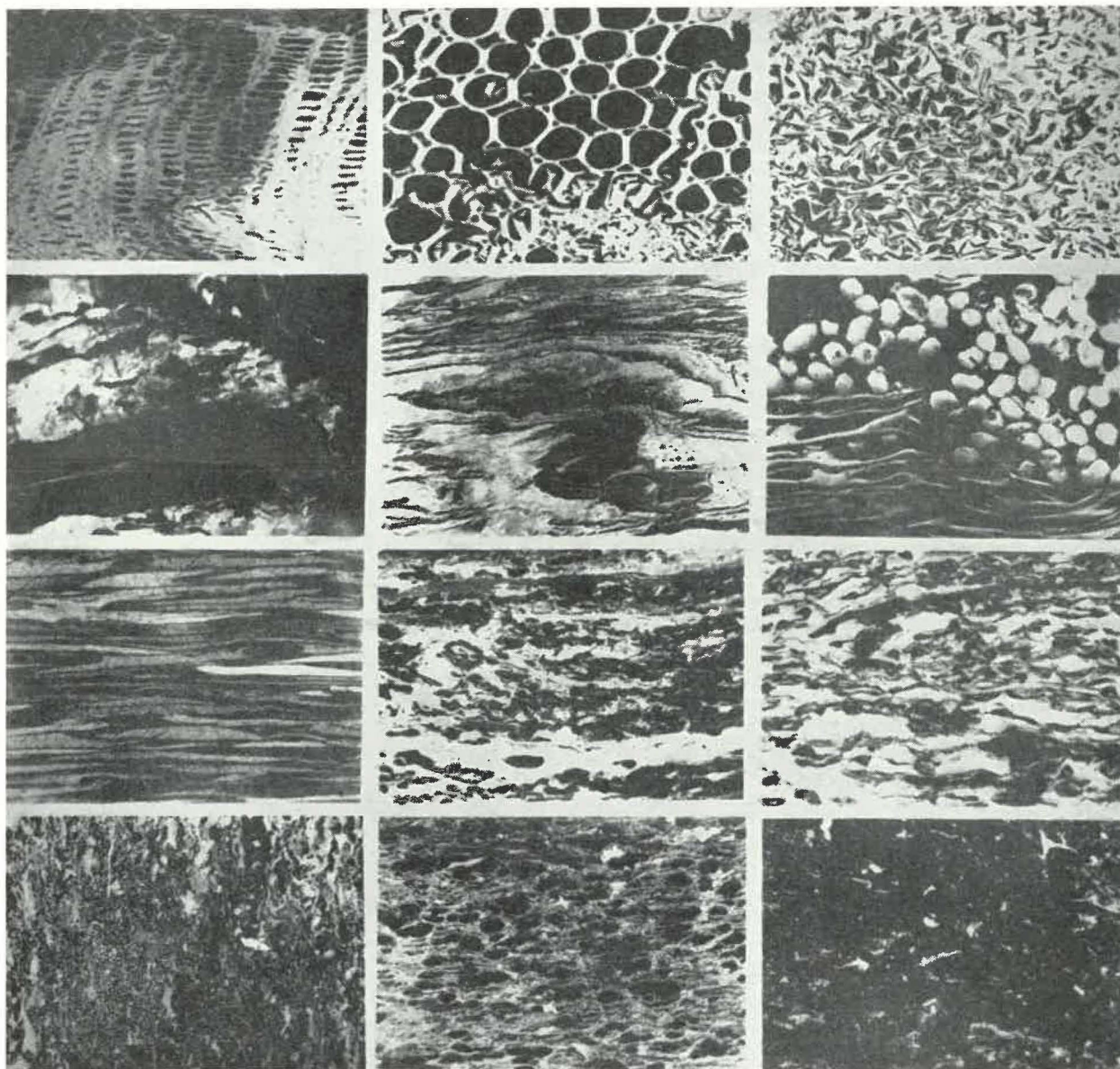


Fig. 1. — Microphotos d'échantillons de houille à surface polie à la lumière incidente.

(Photos extraites, avec l'accord de l'éditeur, de l'«Atlas für angewandte Steinkohlenpetrographie», Verlag Glückauf, Essen 1951).

A gauche : (de haut en bas) : vitrain (houille luisante) à structure de bois; durain (houille mate) à macrospore noire et à quantités brillantes de micrinite; petites couches de micrinite à granulation fine dans la masse fondamentale de vitrinite; houille-cannel (traces noires et micrinite brillant).

Au centre : (de haut en bas) : fusain (houille de bois fossile); clarain; durain avec beaucoup de micrinite; houille boghead.

A droite : (de haut en bas) : fusain de décomposition; sclérotés fossiles de moisissures; durain; houille boghead se composant presque totalement d'alginite.

tirer des conclusions d'une grande portée. Par analogie avec les minéraux, les composants que l'on peut distinguer dans l'image microscopique sont nommés macéraux. La houille peut être considérée comme une roche constituée de macéraux 5).

Une grande partie de la houille est formée de tissu de bois et de tissu d'écorce. La structure du bois est nettement reconnaissable dans le macéral fusinite (fig. 1) (*); une houille contenant beaucoup de fusinite s'appelle houille de bois fossile ou fusain. Etant donné que le fusain, pauvre en hydrogène, se présente déjà dans la tourbe et le lignite, on suppose que ce processus de houillification s'est accompli très rapidement d'une façon plus ou moins comparable avec la carbonisation de bois dans la préparation de charbon de bois. Il est probable qu'un processus biologique fortement exothermique, comparable à la fermentation du foin, a joué un rôle dans ce cas. Dans le fusinite, toutes les cavités cellulaires sont remplies d'air ou de matières minérales.

Lors du procédé normal de la houillification de tissu de bois et de tissu d'écorce, processus lent, il se forme dans le marais boisé une solution colloïdale d'acide humique qui imprègne toute la matière végétale. Il est probable qu'alors une partie de la cellulose du bois s'est désintégrée tandis que la lignine, matière de bois plus résistante, s'est accumulée au début et s'est convertie elle-même plus tard. Cette houillification et cette humification très graduelles et anaérobies ont abouti à la formation du macéral vitrinite qui est le composant principal de toutes les houilles luisantes. La forme extrême de ce vitrinite est la collinite qui ne montre aucune structure. Quand le vitrinite présente des structures cellulaires, le bois est entièrement imprégné de collinite : on parle alors de télinite (fig. 1).

Comme nous venons de le dire, les épidermes de feuilles, les membranes de spores, pollens et similaires sont encore plus résistants que le bois et l'écorce. Tout ce qui s'en retrouve dans la houille est nommé exinite (fig. 2), macéral constituant un des éléments principaux de ce qu'on appelle la houille mate ou durain.

Outre l'exinite, la houille mate contient encore un autre macéral en grande quantité, savoir le micrinite, masse parfaitement opaque qui donne lieu à une forte réflexion en lumière incidente. Il se présente sous deux formes : comme micrinite à granulation fine et comme micrinite massif. On n'a pas encore d'idée claire quant à la façon dont ce macéral s'est formé. C'est probablement un produit de houillification du bois qui a perdu sa structure en premier lieu.

Quelques macéraux spéciaux sont le résinite, résidu de cires et de résines de plantes, le sclérotinite, résidu des sclérotés des moisissures et l'alginate, résidu des algues. L'alginate est un composant principal d'une houille particulière, la houille Boghead, qui s'est formée de résidus d'algues d'eau douce (fig. 1).

(*) La figure 1 est empruntée avec l'accord de l'éditeur, à « L'Atlas für angewandte Steinkohlen-Petrographie ». (Verlag Glückauf, Essen 1951).

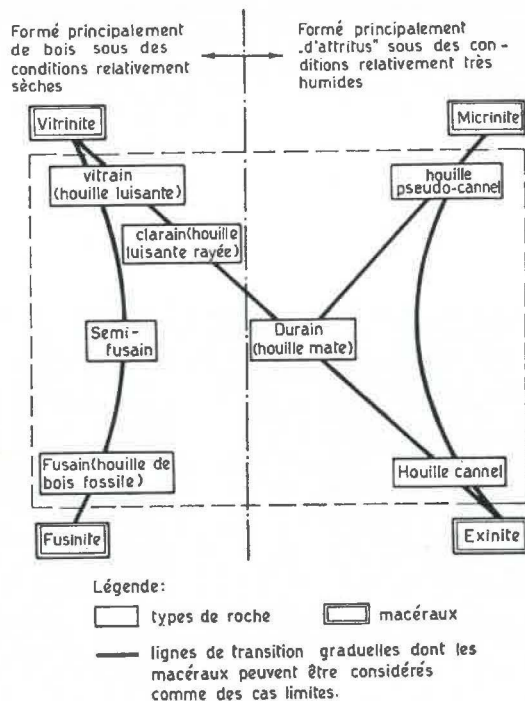


Fig. 2. — Rapport entre les types de roches et les macéraux de la houille.

La figure 2 donne les rapports entre les macéraux et les types de roche et montre leurs transitions graduelles.

La chimie du processus de la houillification.

Un moyen simple donne rapidement une vue générale de la marche des processus s'accomplissant

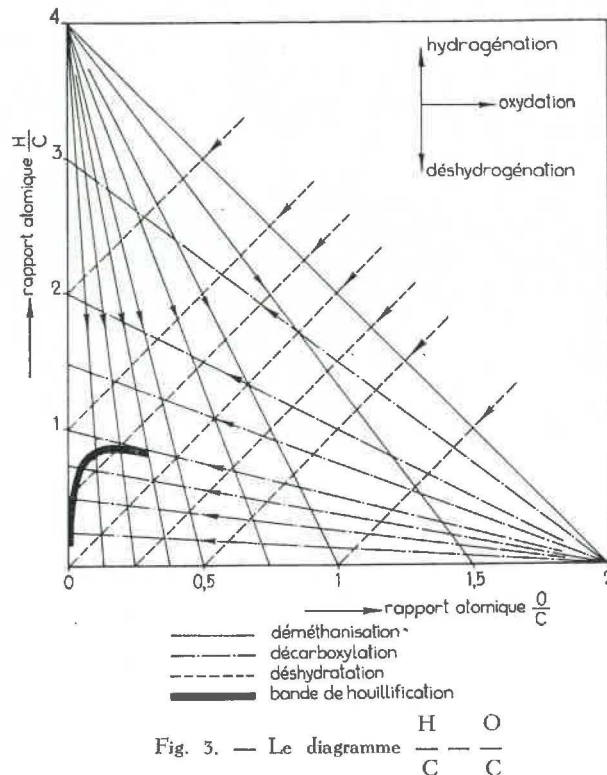


Fig. 3. — Le diagramme $\frac{H}{C} - \frac{O}{C}$

lors de la houillification : le diagramme des rapports atomaires H/C — O/C. 6) La houille se compose presque totalement des éléments : carbone, hydrogène et oxygène. La composition élémentaire peut être portée sur ledit diagramme sous forme de rapports atomaires. Tous les simples processus de réaction y sont reproduits par des lignes droites. La figure 3 montre les lignes indiquant l'élimination d'eau, de méthane et d'acide carbonique.

On peut donc représenter sur ce diagramme les compositions des parties résistantes des plantes : bois (cellulose et lignine), cires, résines, exines d'épidermes de feuilles et spores. Toutes ces matières sont déjà instables elles-mêmes, du point de vue thermodynamique, au carbone, à l'eau, à l'acide carbonique et au méthane. Elles seront donc soumises à des modifications qui reviennent toutes à

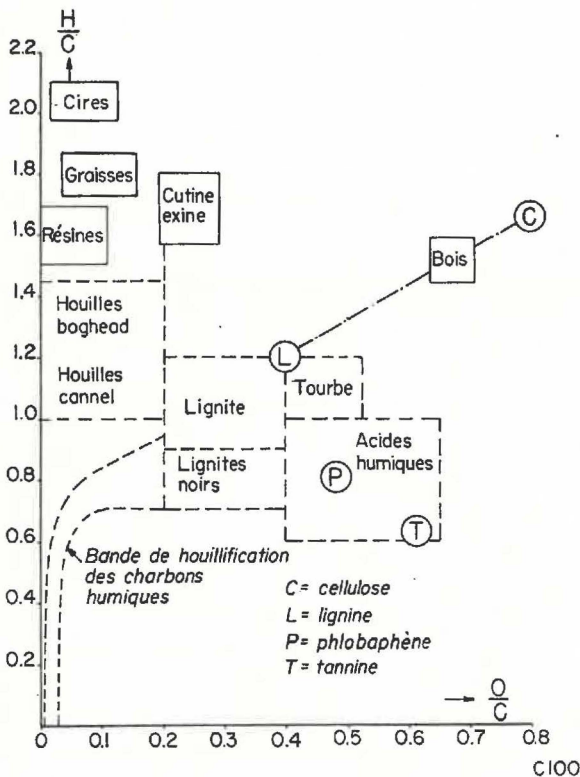


Fig. 4. — Produits de départ et produits finals de la houillification.

l'augmentation de la teneur en carbone avec élimination de méthane, d'eau et d'acide carbonique. Etudions successivement la formation des différentes matières sur ce diagramme. La figure 4 indique la position des compositions des produits de départ.

La formation de vitrinite.

Le tissu de bois et le tissu d'écorce se composent principalement de cellulose et de lignine. Comme nous venons de le remarquer, la cellulose est généralement moins résistante à la décomposition biochimique que la lignine. Il apparaît que, lors de la houillification biochimique de tissu ligneux, la transformation peut s'effectuer de deux façons extrêmes

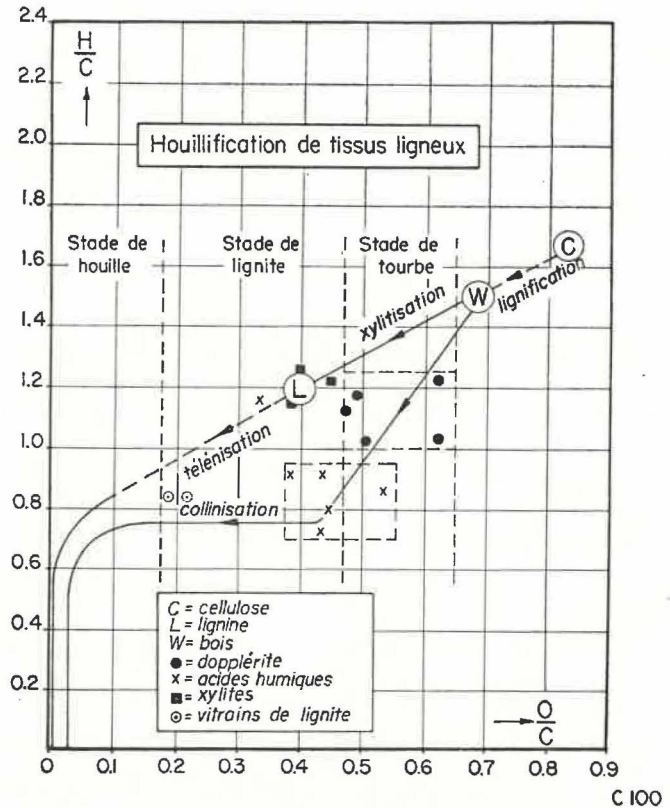


Fig. 5.

entre lesquelles il peut y avoir toutes sortes de formes intermédiaires (fig. 5).

Un processus consiste en la décomposition hydrolytique complète et la transformation en une solution colloïdale. Ce processus forme des acides humiques qui peuvent passer enfin à l'état de gel. Une forme geuleuse connue des acides humiques dans le stade de la tourbe est la dopplérite qui a la composition moyenne de la tourbe. Il faut admettre que le collinite macéral s'est formé par cette dispersion colloïdale de l'eau.

Une tout autre manière de houillification consiste dans la fossilisation de bois qui forme le xylite connu, nommé également lignite ligneux, dont la composition moyenne correspond à celle de la lignine. Il faut donc admettre que, lors de la formation de xylite, la majeure partie de la cellulose a été enlevée par séparation hydrolytique. Il est probable qu'une houillification avancée de ce xylite aboutira enfin à la formation d'un vitrinite à structure ligneuse (télénite).

En général, ces deux processus ont été combinés, ce qui se manifeste du fait que la structure ligneuse de la houille dans le télénite est entièrement imprégnée de matières colloïdales.

La marche des trajets de houillification dans le diagramme nous fait constater que le chimisme de la houillification de tissu ligneux revient généralement à ce qui suit. La réaction primaire est une décomposition hydrolytique pendant laquelle une partie de la cellulose non-aromatique disparaît, tandis que la lignine aromatique perd ses groupes méthoxylés. Ce processus primaire forme des acides humiques. La séparation avancée

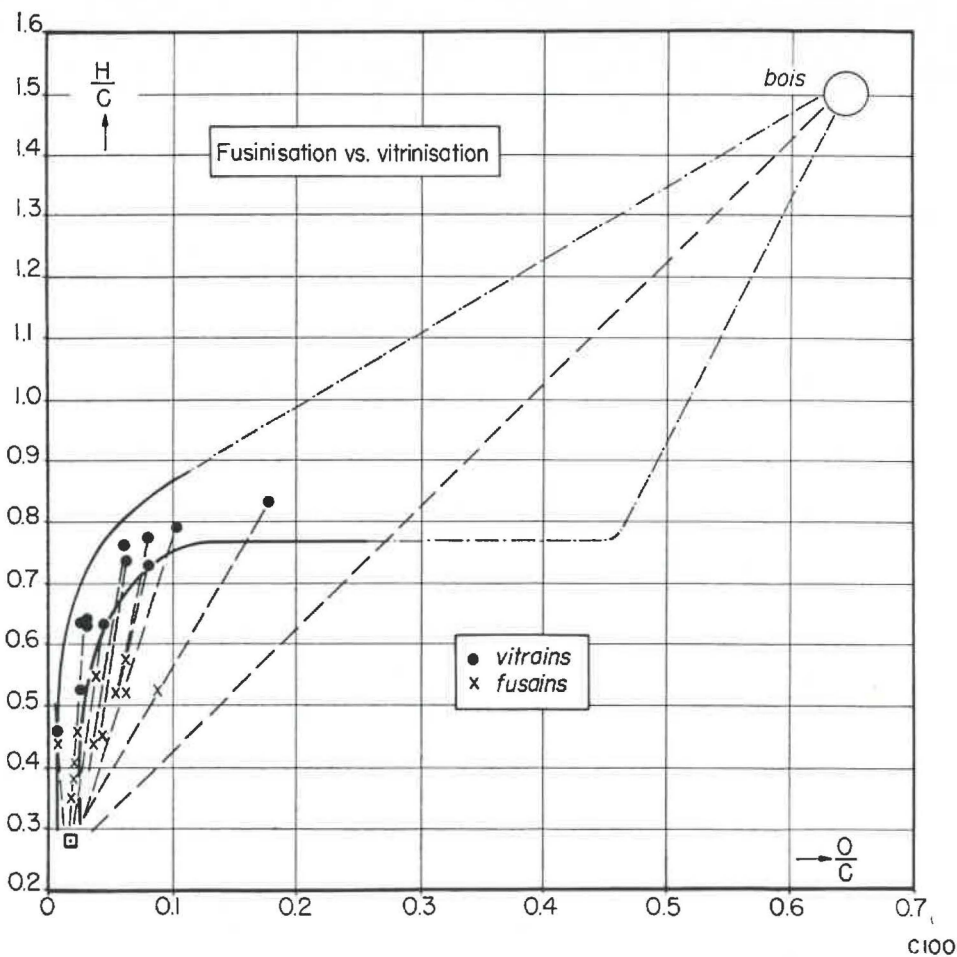


Fig. 6.

d'oxygène, en majeure partie par formation d'acide carbonique et d'eau, est dominée par le potentiel rédox.

Lors des stades ultérieurs, la réaction de houillification de tissu ligneux est reproduite sur le diagramme par une bande assez étroite, nommée bande de houillification. Le dégagement de méthane est plus net que celui d'acide carbonique. Pendant les derniers stades de la houillification, l'importance de l'élimination de méthane augmente constamment, alors que cette réaction est probablement accompagnée d'une condensation d'anneaux de carbone en structures graphytiques.

La formation de fusinite.

En 1936, Seyler⁵⁾ a supposé déjà que le fusain serait un stade intermédiaire entre le vitrinite et le fusinite macéral proprement dit, qui aurait une composition moyenne de 95,9 % de carbone, 2,23 % d'hydrogène et 1,9 % d'oxygène, donc un rapport H/C de 0,28. La figure 6 montre la composition de fusains et de vitrains provenant de mêmes couches de houille. En reliant les points, indiquant la composition de fusain, à ceux des vitrains correspondants, on obtient un faisceau de lignes convergentes qui se rencontrent, en effet, au rapport H/C de 0,28. Ceci confirme la supposition de

Seyler. La même composition s'obtient quand des quantités équimoléculaires d'eau, de méthane et d'acide carbonique sont séparées de bois. Il sera clair que l'origine du fusain est vraiment due à une décomposition rapide au cours de laquelle une partie du produit se transforme directement au rapport H/C de 0,28, tandis que le reste est soumis à un processus de houillification assez normal, ce qui explique la présence de toutes sortes de formes intermédiaires entre le vitrinite et le fusinite.

La formation d'exinite.

La figure 7 représente le trajet indiquant la formation d'exinites. On voit que la composition chimique de cuticules, de membranes de spores et de tissu de liège se trouve entre celles des cires de plantes et de la lignine. Il est possible que ces matières soient des combinaisons d'alcools de cires et d'unités de lignine de la même façon que le bois se compose de complexes de lignine et de carbohydrates.

Cette opinion est soutenue par un examen récent de l'investigateur espagnol Ribas-Marguès⁷⁾ sur la composition chimique de liège, matière très alliée aux épidermes de feuilles. Ribas-Marguès a démontré que le liège est une matière macromoléculaire qui, après décomposition hydrolytique, pro-

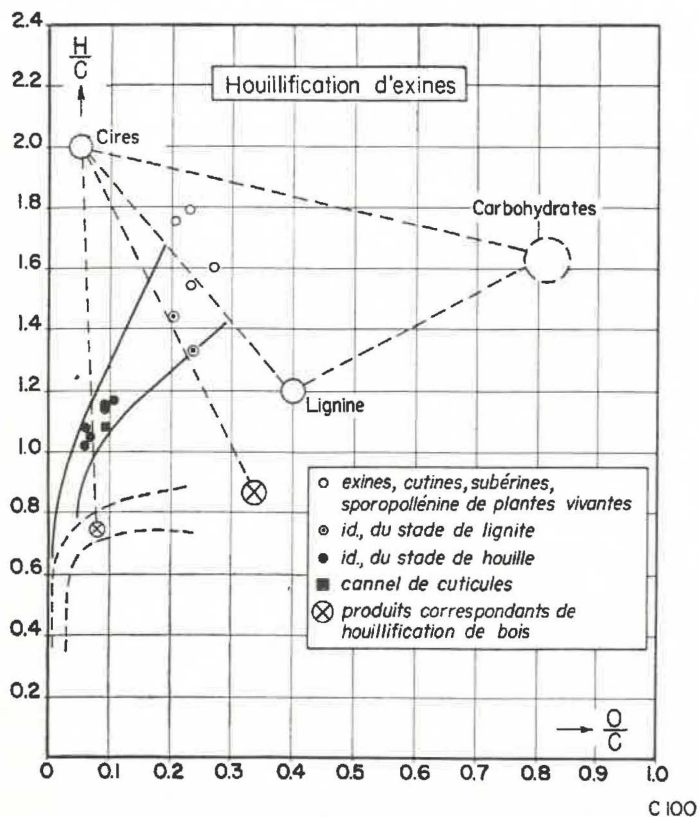


Fig. 7.

duit environ 25 % de lignine, 50 % de céroïdes et d'acides gras, 5 % de carbohydrates et 20 % de tannine.

La houillification se réalise d'une autre manière que celle du tissu ligneux mais, à la fin du stade de houille grasse, la différence de composition chimique entre le vitrinite d'une part et l'exinite d'autre part ne cesse pas de diminuer, phénomène que Schopf nommait « incorporation ». Dès ce stade, la difficulté de distinguer les deux composants par voie pétrographique va en augmentant.

La formation d'alginite.

Depuis les recherches de Bertrand et Renault 8), Thissen 9) et Stadnikoff 10), on suppose que la houille boghead et quelques espèces de la houille cannel se sont formées d'algues et de plankton contenant de la graisse. La matière originale se composait de protéine, carbohydrates, graisses et phytostérine. Lors du premier stade de la houillification, les protéines et les carbohydrates ont été décomposés entièrement. La figure 8 prouve que des alginites récents, tels que coörongite et balchasite, ont une composition chimique correspondant environ à celle de graisses. Une élimination de méthane, accompagnée à la rigueur d'une séparation d'eau et même d'hydrogène, permet aux alginites d'arriver enfin au stade d'anthracite.

L'origine de la résinite.

Comme les cires pures des plantes, les résines sont très résistantes. Il paraît même qu'au stade bitu-

mineux de la houille, la composition élémentaire est presque la même que celle de la matière végétale originale. Il est possible que les résines présentent des réactions de polymérisation et d'aromatisation de sorte que la composition chimique de ces matières finira également par s'approcher de celle du vitrinite.

Conclusions sur l'origine de la houille.

En résumé nous pouvons tirer les conclusions suivantes. La houille s'est formée à partir de matières végétales. Le processus de la houillification se divise en deux phases principales : la biochimique et la géochimique. Dans la phase biochimique, ce sont les facteurs oecologiques et la nature des matières végétales qui jouent un rôle. Chaque élément caractéristique des plantes produit finalement un macéral typique dans la houille; au début, les macéraux ont une composition chimique très différente. Chaque macéral à sa houillification propre. Dans la phase géochimique, les transformations sont dues en particulier à des facteurs géothermiques. Lors de cette phase géochimique, les compositions des macéraux parcourent chacune un trajet très caractéristique jusqu'à l'obtention d'un rapport H/C de 0,6. Du point de vue chimique, tous les macéraux deviennent ensuite à peu près identiques l'un à l'autre, du moins en ce qui concerne leur composition élémentaire. Dès ce moment, ils sont plus difficiles à distinguer par voie microscopique (incorporation) (fig. 9). Par suite de très grandes forces tectoniques qui ont formé de grandes montagnes de plissement, la houillification peut s'accomplir jusqu'au stade de méta-anthracite et même de graphite.

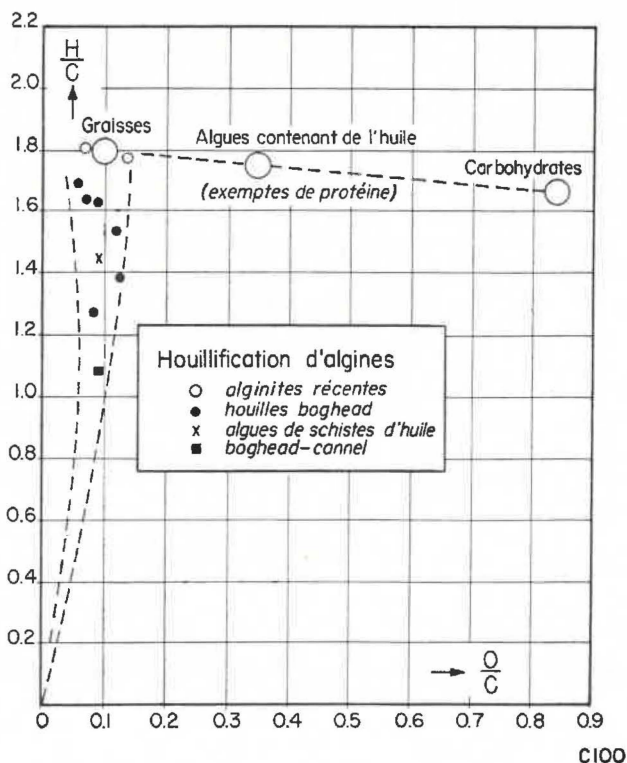


Fig. 8.

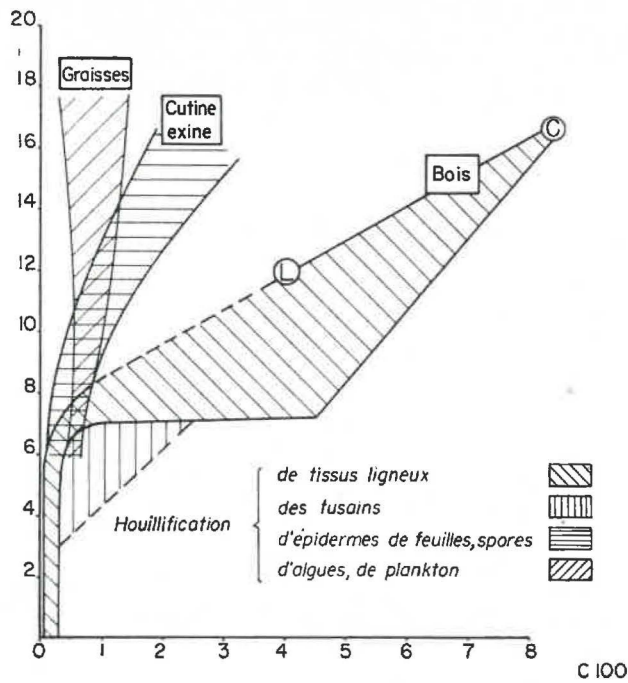


Fig. 9. — Vue schématique des différents types de houillification.

Après avoir étudié la genèse et le développement de la houille, la question se pose : que peut dire le chimiste de la structure chimique et physique de cette matière.

Ce sujet sera discuté dans la deuxième partie de cet article.

(à suivre)

BIBLIOGRAPHIE.

- 1) Regnault, V., Ann. de Chim. et Phys., 66, p. 337, Ann. Mines (5), 12, 161 (1837).
- 2) Zo Bell, C.E., Marine Microbiology, Waltham, Mass, 1946.
- 3) van der Heide, S., Steenkool, Bruinkool en Petroleum, Zutphen 1949.
- 4) Legraye, M., Les constituants des charbons, Thone, Liège 1932.
- 5) Seyler, C.A., Proc. S. Wales Inst. Engrs, 53, 254 (1958), 63, 215 (1948).
- 6) van Krevelen, D. W., Fuel, 29, 269 (1950).
- 7) Ribas-Marguès, I., Chimie Ind., 68, 333 (1952).
- 8) Renault, B., et Bertrand, C.E., Bull. Soc. de l'Ind. Minérale, 7, (5) 499 (1895).
- 9) Thiessen, R., U.S. Geol. Surv. Paper, 152, 121 Washington 1925.
- 10) Stadnikoff, G., Die Entstehung von Kohlen und Erdöl, Enke, Stuttgart 1930.