

Méthode d'étude des pâtes à coke et nouveaux résultats de recherches sur les problèmes de la cokéfaction

Prof. M.-Th. MACKOWSKY,

Bergbauforschung GmbH,
Institut de Recherches du Steinkohlenbergbauverein, Essen.

SAMENVATTING

De steenkolenpetrografie heeft belangrijk bijgedragen tot de oplossing van het probleem van de beoordeling der cokeskolen en tot de studie van hetgeen zich in de cokesoven afspeelt. Het betreft meer bepaald de analyse van de verschillende klassen der steenkolen door de meting van hun weerkaatsingsvermogen, methode die in het kort wordt uitgelegd.

Verder kan een studie gemaakt worden van het verband dat er bestaat tussen het ontstaan van de poriën in de cokes, de belangrijkheid van de druk, de korrelgrootte en de rangorde, waarbij gebruik gemaakt wordt van de kleine cokesoven voorgesteld door Ritter en Juránek, en waarbij fijnkorrelige cokes wordt verkregen. De resultaten hebben uitgezeten dat, behalve waar het werkelijk vette kolen betreft, de granulometrie van zeer grote invloed is bij de vorming van de cokes.

Door vergelijking van de resultaten bekomen bij de bereiding van korrelige cokes met de resultaten van de dilatometrische proeven en de waarnemingen verricht met de microscoop op cokes verkregen op hoge temperatuur uit kolen vermengd met half-vette, komt men tot het besluit dat meerdere verschijnselen die tot nu toe moeilijk te verklaren waren, thans kunnen uitgelegd worden dank zij de samenvoeging van al de resultaten.

Hier blijkt dus een toepassingsgebied te bestaan voor de steenkolenpetrografie en meer bepaald de steenkolenmicroscopie, die waarschijnlijk van groot nut kan zijn in de praktijk, naast de welgekende analyse van de microlithotypen, de macerale bestanddelen en de klasse der kolen.

ZUSAMMENFASSUNG

Zur Beurteilung der Einheitlichkeit von Koks-kohlen wie auch zur Aufklärung der Vorgänge, die sich im Koksofen abspielen, ist es der Kohlenpetro-

RESUME

La pétrographie des charbons a réussi à apporter une contribution importante au problème de l'appréciation des charbons à coke et à l'étude des processus qui se déroulent dans le four à coke. Il s'agit de l'analyse des diverses classes de charbons par la mesure du pouvoir réflecteur, qui est brièvement évoquée.

Par ailleurs, la relation entre la formation des pores dans le coke, l'importance de la poussée, la granulométrie et le rang peut être étudiée en utilisant le petit four à coke proposé par Ritter et Juránek, et en pratiquant une cokéfaction granulaire.

Les résultats ont montré que, sauf dans les vrais charbons gras, la granulométrie a une influence importante sur la formation du coke.

La comparaison des résultats de la cokéfaction granulaire avec les résultats des essais dilatométriques et des observations microscopiques effectuées sur des cokes de haute température obtenus à partir de charbons auxquels on a adjoint du charbon demi-gras, a montré que beaucoup de phénomènes difficilement compréhensibles jusqu'à présent, deviennent explicables par la combinaison de tous les résultats.

Ceci met en évidence un domaine d'utilisation de la pétrographie des charbons, particulièrement de la microscopie des charbons, qui peut vraisemblablement apporter une aide appréciable à la pratique, à côté des analyses bien connues des microlithotypes, des macéraux et des classes de charbons.

SUMMARY

Coal petrography has succeeded in making an important contribution to the problem of assessing coking coals and to the study of the processes which

graphie gelungen, einige Beiträge zu liefern. Dies ist einmal die Analyse nach Kohlenarten mit Hilfe der Reflexionsmessung, über die kurz berichtet wird.

Zum andern konnten mit dem von Ritter und Juranek vorgeschlagenen Kleinverkokungsöfen und mit einer Granularverkokung Fragen der Porenbildung im Koks und des Treibdruckes in Abhängigkeit von der Körnung und dem Inkohlungsgrad untersucht werden, die zeigten, dass abgesehen von der echten Fettkohle die Körnung einen grossen Einfluss auf die Koksbildung hat.

Der Vergleich der Ergebnisse der Granularverkokung mit den Ergebnissen von Dilatometeruntersuchungen und mikroskopischen Beobachtungen an Hochtemperaturkoksen aus Kohlen mit Esskohlenzusatz zeigte, dass manche, bisher schwer verständliche Erscheinungen durch die Kombination aller Ergebnisse erklärbar werden.

Damit wird auf ein Anwendungsgebiet der Kohlenpetrographie, speziell der Kohlenmikroskopie hingewiesen, das wahrscheinlich neben den allgemein bekannten Analysen der Kohlen nach Streifenarten, Maceralen und Kohlenarten der Praxis manchen Nutzen bringen kann.

Le problème qui se pose aujourd'hui aux cokeries est la production d'un coke sidérurgique uniforme, c'est-à-dire un coke qui se distingue par une teneur en cendres, une teneur en soufre, une résistance et peut-être même par une composition granulométrique et une réactivité à l'égard du CO₂ aussi stables que possible.

Pour résoudre ce problème, on doit, en premier lieu, veiller à une uniformité aussi grande que possible de la pâte à coke — tâche difficile à remplir, avec une précision suffisante, à l'aide des essais technologiques classiques, quand on utilise une gamme étendue de charbons cokéfiants. D'autre part, nous devons étudier à fond les phénomènes de la cokéfaction pour être en mesure de prédire, avec la précision désirable, quelles sont les méthodes de préparation à appliquer et les conditions de cokéfaction appropriées, qui permettent de produire un bon coke, à partir d'un charbon donné.

Au cours de ces dernières années, on a mis au point, dans ces deux domaines, de nouvelles méthodes d'études et obtenu des résultats qui semblent susceptibles de jeter un peu plus de lumière sur les problèmes complexes de la transformation du charbon en coke, ou qui nous permettent de mieux comprendre les phénomènes constatés jusqu'à présent par voie empirique de sorte que nous puissions les mettre à profit systématiquement.

take place in the coke-oven. It involves the analysis of the various classes of coals by measuring the reflecting power; it is this which is briefly described.

Furthermore, the relation between the formation of pores in the coke, the extent of the thrust, the size analysis and the rank may be studied by using the small coke-oven suggested by Ritter and Juranek, and by practising granular coking.

Results have shown that, except in the case of really coking coals, size analysis has an important influence upon the formation of coke.

The comparison of the results of granular coking with the results of dilatometric tests and microscopic observations carried out on high temperature cokes obtained from coal to which low-volatile coal has been added, showed that many phenomena which have been difficult to understand in the past, can now be explained by the combination of all the results.

This reveals a field of use of coal petrography, particularly coal microscopy, which might well be very helpful in practice, side by side with the well known analyses of the microlithotypes, the macerals and the classes of coals.

Dans le cadre d'une courte communication, il n'est guère possible — et je ne me le propose pas — de passer en revue tous les progrès réalisés au cours de ces dernières années. Mon exposé se borne donc essentiellement aux problèmes qui ont été étudiés dans le Bassin de la Ruhr, surtout à l'Institut des Recherches à Essen-Kray, en collaboration avec plusieurs sociétés charbonnières et beaucoup de praticiens de la cokéfaction.

Le premier groupe de problèmes concerne l'uniformité de la pâte à coke. Le contrôle de son uniformité est relativement simple quand on exploite une seule veine, pratique relativement fréquente aux États-Unis; dans ce cas, le dosage des constituants et leur mélange, après un broyage approprié, suffisent. Mais le problème est beaucoup plus difficile en Allemagne et, si je suis bien informée, également en Belgique où le charbon brut provient de toute une série de couches, parfois de rangs très différents, et où les fines à coke en provenance de plusieurs fosses ou de plusieurs lavoirs sont dirigées par exemple vers des cokeries centrales pour y être cokéfiées ensemble. Dans ce cas, comme on le sait, la pâte est un mélange de plusieurs sortes de charbons que l'on ne peut plus caractériser suffisamment à l'aide des simples essais classiques. En tout cas, il n'est pas possible de dépister les causes des variations du pouvoir cokéfiant et de concevoir des me-

sures appropriées, soit au fond, soit au jour, permettant d'éliminer ces variations.

Un exemple tout à fait simple servira à illustrer le problème. La figure 1 montre cinq charbons, chacun ayant en moyenne une teneur en matières vola-

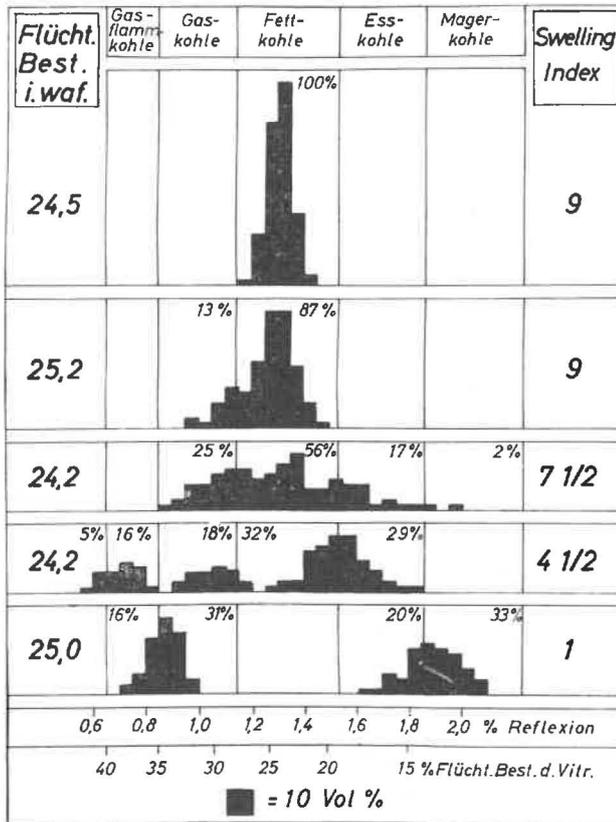


Fig. 1. — Réflectogrammes, matières volatiles et indices de gonflement de quelques charbons à coke.

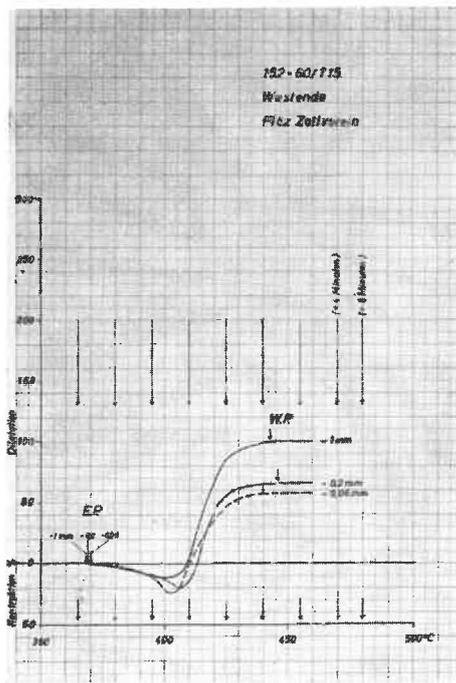
tiles d'environ 25 %, ce qui pourrait faire croire qu'ils sont similaires ; en réalité cependant, leurs indices de gonflement sont très différents. A la place de l'indice de gonflement, on pourrait aussi bien mettre la dilatation ou un autre essai technologique. Une explication de ce comportement différent n'est possible qu'à l'aide d'études microscopiques. Depuis les recherches de Hoffmann et Jenkner, on sait que le pouvoir réflecteur des vitrites, constituant principal pratiquement de tous les charbons, varie avec le rang du charbon, ce qui nous permet de déterminer avec une précision suffisante le rang de tout charbon par le truchement de son pouvoir réflecteur. De cette façon, il est possible d'analyser les charbons d'après leur nature — technique qui est presque entièrement automatisée et accélérée grâce aux appareillages mis à point au cours de ces dix dernières années, avec emploi d'un photomultiplicateur, d'un galvanomètre ou d'un comparateur par compensation (1,2). Au centre de la figure on a inscrit les résultats statistiques de pouvoirs réflecteurs qui nous permettent de comprendre facilement les différences dans l'indice

de gonflement, puisque le pourcentage de charbon gras bien cokéfiable décroît de 100 à 0 de haut en bas, tandis que le pourcentage des charbons moins bien cokéfiables, à haute ou basse teneur en matières volatiles, augmente proportionnellement. Inutile d'insister davantage sur l'importance d'une analyse de rang des charbons pour la pratique, puisqu'aussi bien celle-ci est la seule étude microscopique des charbons qui ait été acceptée par les praticiens sans la moindre hésitation. La seule objection, répétée maintes fois, est que cet essai demande trop de temps, environ 2 heures pour une analyse. Pour y répondre, il suffit de dire que la mesure de 500 pouvoirs réflecteurs à l'aide du photomètre Berek aurait demandé 4 à 6 semaines et que le tracé d'une courbe dilatométrique avec une vitesse de chauffe de trois degrés par minute demande également à peu près deux heures.

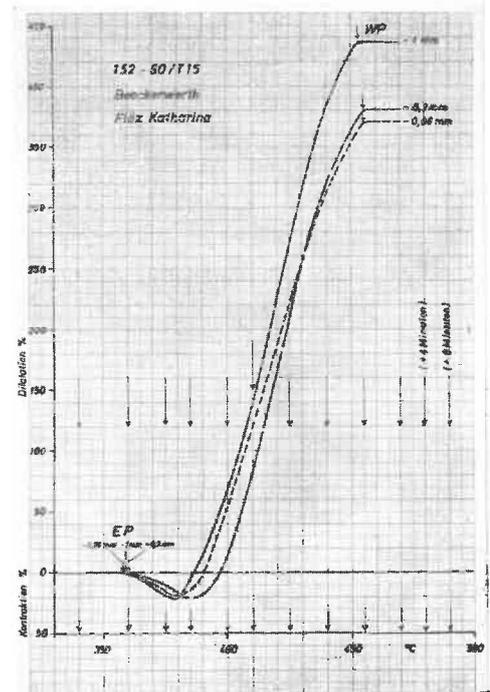
Mais la connaissance du rang des charbons qui composent une pâte à coke, complétée, en cas de besoin, par une analyse des macéraux ou des micro-lithotypes, par la courbe de dégazage, par l'essai dilatométrique ou par beaucoup d'autres essais, ne résout que partiellement le problème, parce qu'aucun de ces essais ne tient compte de la composition granulométrique de la pâte à coke, dont la variation peut cependant exercer une influence sensible sur la qualité du coke, comme tout praticien le sait. La même remarque vaut pour la vitesse de chauffe, bien que celle-ci reste pratiquement plus ou moins constante, puisqu'on ne change pas volontiers la température des carneaux. On comprendra donc que l'un des problèmes sur lesquels nous nous sommes penchés récemment est de savoir si le pouvoir cokéfiant est fonction de la granulométrie ou si la diminution de la densité en vrac, conséquence du broyage plus fin, est la seule cause de la marche différente du four et des variations de la qualité du coke.

Les essais technologiques classiques destinés à la détermination du pouvoir cokéfiant se font, en général, sur des échantillons d'un calibre normalisé, pour éliminer toute influence de la granulométrie. Contrairement à cette pratique, nous avons fait des essais dilatométriques sur des échantillons d'une granulométrie différente ; les résultats de ces essais sont donnés à la figure 2.

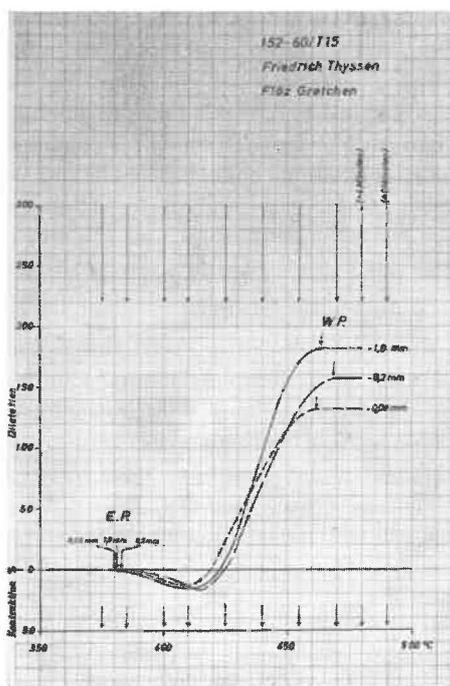
On y voit clairement que la dilatation diminue — plus ou moins fort — avec la diminution du calibre ou, autrement dit, qu'elle augmente avec le diamètre des grains. Sur le graphique 3, l'ordonnée 100 indique la dilatation que l'on obtient en effectuant l'essai sur un échantillon de composition granulométrique normalisée ; les courbes supérieure et inférieure représentent, en pourcent, l'écart de cette dilatation de référence, quand l'essai est fait sur des échantillons plus gros ou plus fins, la teneur en matières volatiles étant portée en abscisse. Il ressort



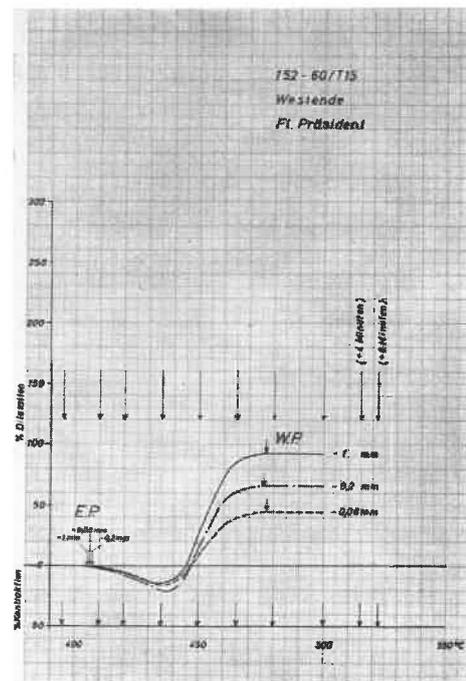
a
29,6



b
28,6

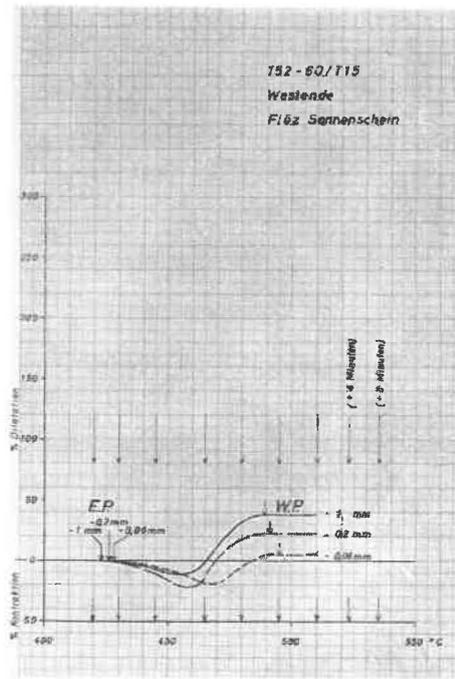


c
24,3



d
19,0

Fig. 2. — Relation entre la dilatation, la granulométrie d'enfournement et le degré de houillification.



e

16.8

Fig. 2 (suite). — Relation entre la dilatation, la granulométrie d'enfourement et le degré de houillification.

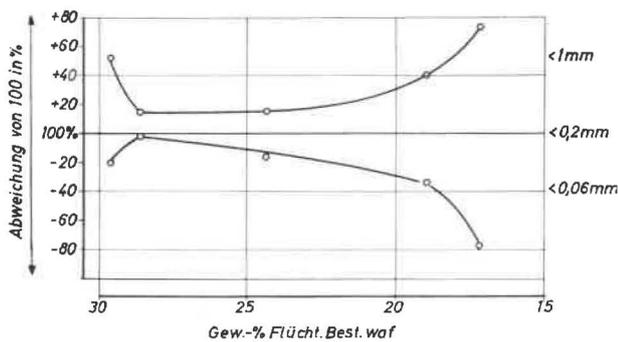


Fig. 3. — Ecart entre la dilatation des gros grains et des grains fins et celle de la granulométrie normale sous 0,2 mm.

de la figure que, dans le cas d'un charbon très bien cokéfiable — ici il s'agit d'un charbon gras —, la dilatation est beaucoup moins fonction de la granulométrie que dans le cas de charbons d'un pouvoir cokéfiant médiocre. Ceci prouve clairement qu'une relation entre la dilatation et les propriétés cokéfiantes ne peut exister que lorsque la cokéfaction se fait toujours dans des conditions absolument identiques, ce qui ne sera guère réalisable en pratique.

Un autre essai dans lequel le rôle de la composition granulométrique peut être encore plus intéressant, est la détermination de la poussée. C'est pourquoi nous avons effectué des essais de poussée, en appliquant la méthode Koppers, sur cinq fractions granulométriques différentes de deux charbons, dont

l'un était poussant, et l'autre non poussant, la densité en vrac (0,8) et la charge restant constantes. Ces essais ont abouti au résultat que, dans le cas du charbon non poussant, une contraction de l'ordre de 20 % commence toujours d'autant plus tôt que le calibre est plus petit, tandis que, dans le cas du charbon poussant, les catégories granulométriques les plus fines, inférieures à 1 mm et 0,5 mm, subissent une contraction manifestement plus élevée que les gros grains. Le praticien sait très bien qu'un broyage plus fin est un moyen non seulement pour éviter un gonflement trop fort d'un charbon à haute teneur en matières volatiles et, de ce fait, la production d'un coke spongieux, mais également pour prévenir une poussée excessive et inadmissible. On a toujours cherché à expliquer ce phénomène, surtout en ce qui concerne la réduction de la poussée, par la diminution de la densité en vrac résultant du broyage plus fin, mais les essais que je viens de mentionner, faits sur cinq échantillons d'une granulométrie différente, la densité en vrac étant la même, montrent clairement que la réduction de la densité en vrac ne peut pas être le facteur décisif et qu'on doit attacher une importance beaucoup plus grande à la granulométrie. En outre, plusieurs essais, non seulement à l'échelle semi-industrielle mais aussi dans des fours à coke de plusieurs cokeries, ont montré qu'on peut relever, par un appoint d'huile, la densité en vrac, après le broyage, sans que la marche

lente du four que l'on observe en cokéfiant une pâte d'une granulométrie plus grosse et d'une densité en vrac normale soit rétablie par une telle mesure. Ces essais prouvent donc que la diminution de la densité en vrac n'est pas la seule cause de la réduction de la poussée. Ils font plutôt supposer que, pour certains charbons aussi, la dilatation est une propriété qui dépend essentiellement de la granulométrie. Pour expliquer ce phénomène, nous devons mieux élucider les phénomènes qui accompagnent la formation du coke, surtout le gonflement et la contraction.

Il y a plusieurs années déjà que j'ai observé, en collaboration avec M. Echterhoff (5), qu'en règle générale, la formation des pores débute plus tôt dans les gros grains que dans les petits grains. Cette constatation a été confirmée par des essais systématiques effectués sur des catégories granulométriques différentes dans un petit four à coke, construit



Fig. 4. — Début du ramollissement. Les gros grains montrent des pores, les petits grains n'en montrent pas.

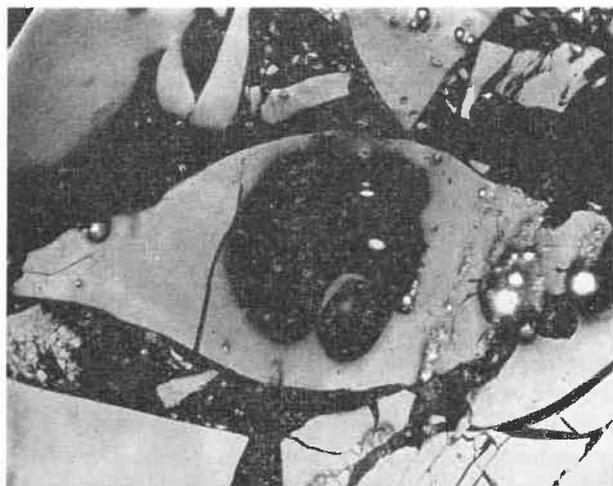


Fig. 5. — Expansion d'un gros grain dans les vides interstitiels de la pâte. Gross. : 160 \times , immersion d'huile.

suivant les idées de MM. Ritter et Juranek (4, 5). En outre, on a pu démontrer que toute formation de pores, au moins au début du ramollissement, est accompagnée d'une augmentation de volume qui est compensée, partiellement ou entièrement, par la contraction dans le stade ultérieur du ramollissement. La figure 4 montre de gros grains avec pores et de petits grains sans pores, les uns à côté des autres. A la figure 5, on peut observer la déformation d'un grain relativement gros, qui s'étend dans les interstices de la pâte. Cet agrandissement d'un grain par la formation de pores, et la relation entre la formation des pores et le calibre sont relativement faciles à expliquer. Le ramollissement du charbon est toujours accompagné d'une émission de gaz plus ou moins intensive. Si le volume de gaz libéré à l'intérieur d'un grain dans l'unité de temps, est plus grand que la quantité de gaz emportée par diffusion au cours du même temps, une pression s'établit à l'intérieur du grain, ou, autrement dit, il y a une différence de pression entre l'intérieur et l'extérieur qui se traduit par la formation de pores et un gonflement du grain. Il est exact que l'émission de gaz, rapportée au volume et au temps, est aussi grande dans les petits que dans les gros grains ; mais dans les petits grains, un pourcentage plus élevé de gaz peut diffuser à cause de voies de sortie plus courtes de sorte qu'une pression intérieure suffisante, si tant est qu'elle s'accumule, ne sera atteinte qu'à des températures élevées, donc à des vitesses de décomposition et de dégazage élevées. Mais il est bien possible que la longueur relative des voies de transport n'est qu'un seul facteur parmi beaucoup d'autres qui peuvent être la cause de conditions de pression différentes qui règnent à l'intérieur des grains ; on pourrait par exemple s'imaginer que les différences de tension superficielle y jouent un rôle. Pour éclaircir ce problème, des études supplémentaires sont nécessaires.

Pour avoir une idée plus précise de l'interaction du gonflement et de la contraction dans la zone plastique, ou pour mieux dire la formation du semi-coke, nous avons fait des essais spéciaux sur des charbons sélectionnés provenant de plusieurs couches de rangs différents. Nous appelons cette technique d'essai « la cokéfaction granulaire » ; par ce terme, nous entendons une cokéfaction de grains individuels sans leur permettre de se toucher au cours de la cokéfaction (6). Une telle technique crée les meilleures conditions d'expansion, beaucoup mieux que dans un four à coke rempli d'une pâte à coke avec une densité en vrac d'environ 0,8. Ces essais de cokéfaction granulaire ont été effectués avec une vitesse de chauffe de 2° par minute ; ils furent arrêtés à une température de 500° et des sections polies furent préparées à partir des grains semi-carbonisés. La figure 6 montre le résultat pour la catégorie granulométrique de 5 à 3 mm. On y voit qu'il y a des

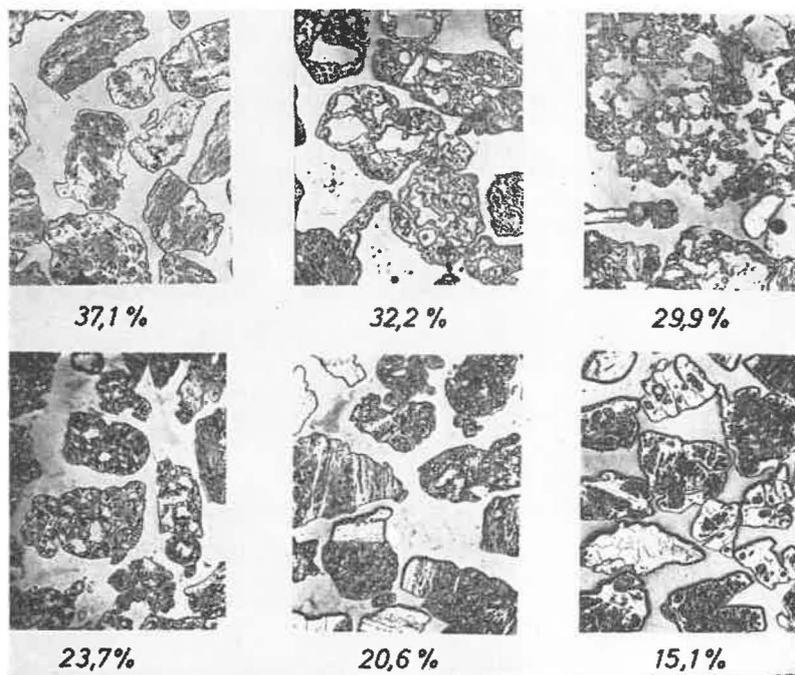


Fig. 6. — Vues, en surface polie, après cokéfaction granulaire, d'une série de charbons de rang croissant (fraction granulométrique : de 3 à 5 mm).
Gross. : 15 ×, à sec.

pores dans tous les grains, mais leur volume et leur forme ainsi que l'épaisseur des parois cellulaires diffèrent en fonction du rang ; on comprend très bien que les charbons à haute ou à basse teneur en matières volatiles se ramollissent moins bien que les gras proprement dits. Il est particulièrement surpre-

nant de constater que l'on obtient un coke de structure poreuse même à partir de demi-gras dont la teneur en matières volatiles ne s'élève qu'à 15 % environ, alors que dans un coke de haute température, à partir d'une pâte qui contient un appoint de demi-gras du même rang, on peut distinguer ces

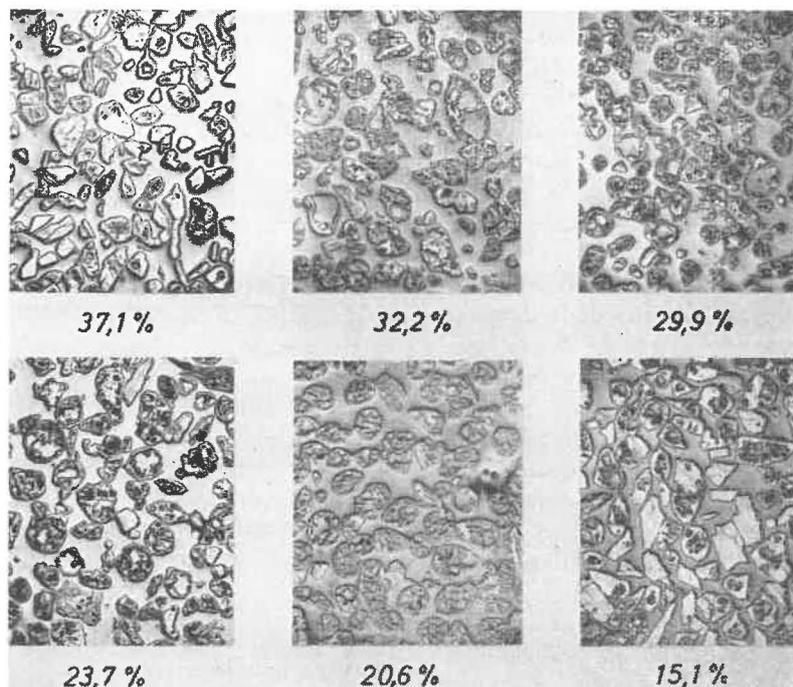


Fig. 7. — Vues, en surface polie, après cokéfaction granulaire, d'une série de charbons de rang croissant (fraction granulométrique : de 0,5 à 1,0 mm).
Gross. : 15 ×, à sec.

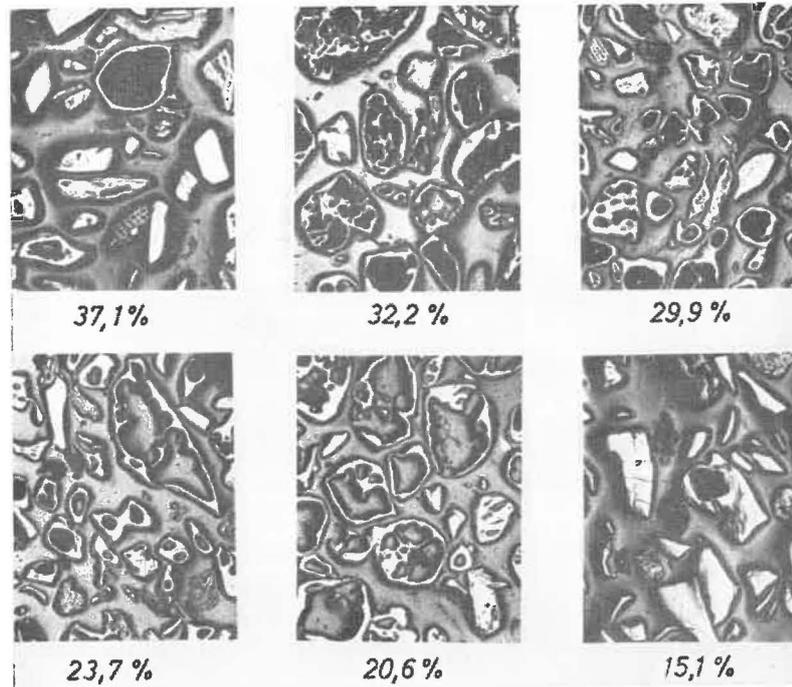


Fig. 8. — Vues, en surface polie, après cokéfaction granulaire, d'une série de charbons de rang croissant (fraction granulométrique : de 0,2 à 0,5 mm).
Gross. : 50 \times , à sec.

demi-gras sous forme de grains non fondus sans pores ou, s'il y en a, avec un très petit nombre de pores extrêmement fins. Nous reviendrons sur ce phénomène plus tard.

La figure 7 montre la fraction granulométrique de 1 à 0,5 mm. Dans cette catégorie un peu plus fine, on constate que c'est seulement dans le domaine des charbons gras que tous les grains carbonisés montrent des pores, tandis que, parmi les charbons moins cokéfiables, on remarque déjà un certain pourcentage de grains sans pores. La figure 8 représente les mêmes phénomènes pour la fraction inférieure à 0,5 mm où la relation entre la formation de pores dans un grain et le calibre est beaucoup plus nette que dans les catégories granulométriques supérieures. Les deux tableaux de la figure 9 rassemblent les résultats de l'ensemble de nos essais. Les chiffres mettent en évidence que, dans le domaine des demi-gras et des charbons à gaz, la porosité du coke dépend dans une large mesure du calibre des grains, alors que, dans le domaine des charbons gras, l'influence de la granulométrie sur la formation des pores est un peu plus faible. Ces observations coïncident avec les études dilatométriques déjà mentionnées qui ont également abouti au résultat que, dans le domaine des charbons gras, les valeurs enregistrées au dilatomètre dépendent beaucoup moins du calibre que dans le domaine des charbons d'un rang supérieur ou inférieur.

Pour pousser encore plus loin le dépouillement de ces essais de cokéfaction granulaire, nous avons dé-

M.V. des charbons enfournés % en poids	37,1	32,2	29,9	23,7	20,6	15,1
5 - 3 mm	100	100	100	100	100	94
3 - 1 mm	98	100	100	100	100	95
1 - 0,5 mm	98	100	100	100	100	78
0,5 - 0,2 mm	62	94	95	88	89	23
< 0,2 mm	23	41	37	30	25	—

Part des fractions granulométriques cokéfiées qui revient aux grains montrant des pores de dégazage (substance cokéfiée, sans fusite ni stérile).

M.V. des charbons enfournés % en poids	37,1	32,2	29,9	23,7	20,6	15,1
5 - 3 mm	44	64	76	66	59	58
3 - 1 mm	40	60	71	61	57	42
1 - 0,5 mm	25	56	58	60	41	28
0,5 - 0,2 mm	19	53	53	36	37	9
< 0,2 mm	4	22	19	23	24	—

Porosité des grains contenant des pores de dégazage (substance cokéfiée, sans fusite ni stérile).

Fig. 9.

terminé le nombre et le diamètre des pores dans les grains individuels. On a constaté que le nombre et le volume des pores sont inversement proportionnels. L'aspect le plus intéressant de cette série d'essais était probablement la détermination de l'accroisse-

ment du volume des grains individuels jusqu'au stade du semi-coke. Dans ce but, nous avons déterminé, dans les différentes fractions granulométriques, le diamètre moyen des grains avant l'essai et après cokéfaction granulaire. Le résultat de ces étu-

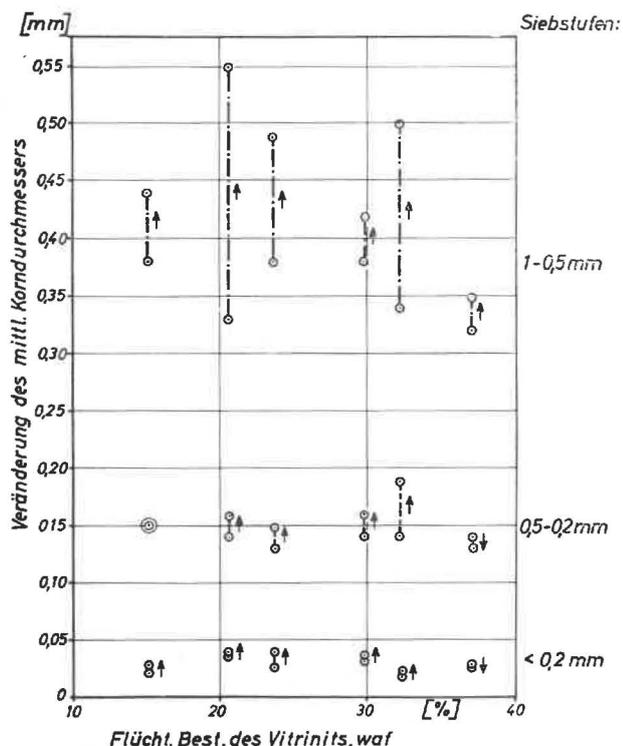


Fig. 10. — Changement du diamètre moyen des grains de la fraction granulométrique de départ après cokéfaction granulaire.

des ressort de la figure 10. Elle montre qu'il n'y a pratiquement pas d'accroissement de volume dans la fraction granulométrique inférieure à 0,06 mm, quel que soit le rang, tandis que, dans la fraction granulométrique de 1 à 0,5 mm, les demi-gras ont subi un accroissement de volume considérable qui est la cause de la poussée, laquelle, nous l'avons déjà dit, est beaucoup plus forte dans les fractions granulométriques supérieures que dans les fractions fines. Il convient de signaler que l'un des deux charbons à gaz étudiés se distingue également par une mauvaise contraction et, de ce fait, par un agrandissement sensible du volume des grains dans la classe granulométrique de 1 à 0,5 mm ; cette observation pose un problème, auquel nous ne pouvons pas donner une réponse pour le moment, mais nous avons entrepris des essais pour l'éclaircir.

En résumant les résultats de la cokéfaction granulaire, on peut dire que le volume et le nombre des pores sont fonction de la granulométrie quand on compare des charbons de même rang. En outre, les études ont montré que, dans le domaine des bons charbons à coke, le gonflement et la contraction jusqu'à la formation de semi-coke empêchent un agran-

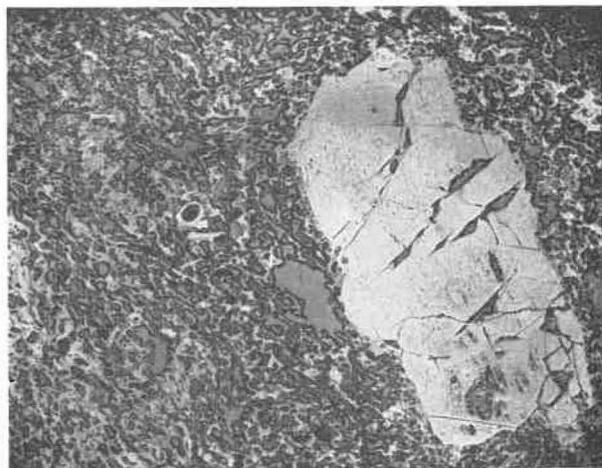


Fig. 11. — Grain de charbon demi-gras non fondu dans un coke de haute température (rang du demi-gras : 14,5 % de matières volatiles). Gross. : 8 ×, objectif Milar.

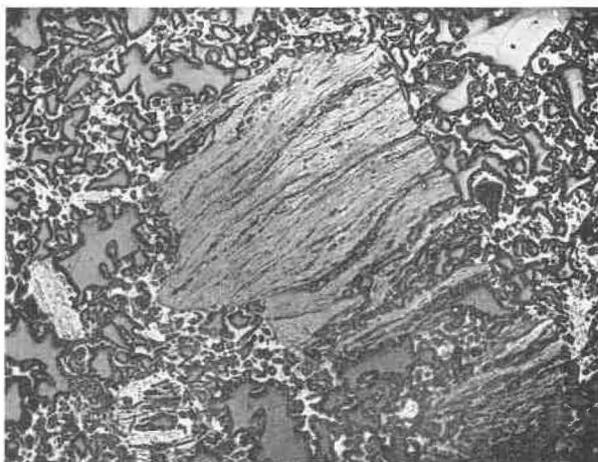


Fig. 12. — Grain de charbon demi-gras non fondu dans un coke de haute température (rang du demi-gras : 15-16 % de matières volatiles). Gross. : 8 ×, objectif Milar.

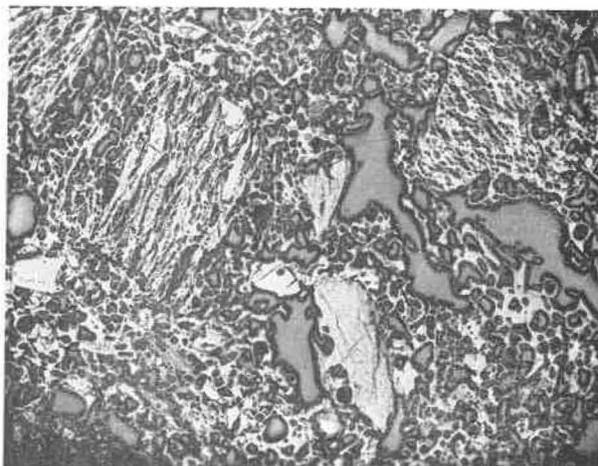


Fig. 13. — Grain de charbon demi-gras non fondu dans un coke de haute température (rang du demi-gras : 17-18 % de matières volatiles). Gross. : 8 ×, objectif Milar.

dissement trop considérable des grains individuels, tandis que, surtout dans les cas des charbons poussants, le gonflement n'est pas compensé par une contraction suffisante. L'explication de ce fait réside probablement dans la microtexture des charbons, mais je m'abstiens d'approfondir cette question, les recherches n'étant pas encore terminées.

J'ai déjà attiré votre attention sur l'observation surprenante que la cokéfaction granulaire des demi-gras fournit un coke bien poreux, non seulement dans la fraction granulométrique de 5 à 3 mm, mais encore dans les catégories plus fines, tandis que la carbonisation à haute température de mélanges qui contiennent un certain appoint de demi-gras, aboutit à des cokes dans lesquels on retrouve ces demi-gras sous forme de grains non fondus. La figure 11 montre un coke de haute température avec de tels grains demi-gras non fondus et sans pores, étroitement encastrés dans la masse du coke, chose étonnante. La figure 12 montre un coke de haute température produit à partir d'une pâte qui contenait des demi-gras d'un rang un peu plus bas. Là également les grains demi-gras se retrouvent pratiquement non fondus dans le coke, bien qu'on remarque ici quelques petits pores allongés dans ces grains. Lorsque la teneur en matières volatiles des demi-gras monte à 17 ou 18 %, le nombre des pores dans les grains demi-gras augmente, mais on les discerne toujours clairement parce qu'ils sont mal fondus.

Ce comportement différent des demi-gras en fonction de leur rang s'explique facilement à l'aide de courbes dilatométriques. La figure 14 montre les

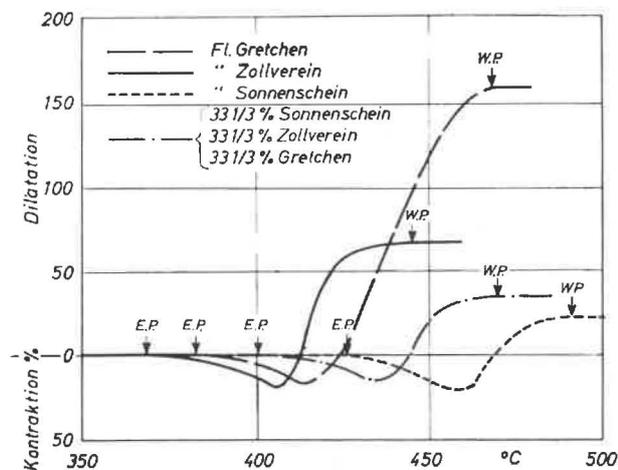


Fig. 14. — Courbes dilatométriques d'un charbon à gaz, d'un charbon gras et d'un charbon demi-gras, ainsi que d'un mélange de ces trois charbons.

courbes dilatométriques de trois charbons, un charbon à gaz, un charbon gras et un charbon demi-gras, qui sont entrés à parties égales, un tiers chacun, dans une pâte à coke. La courbe dilatométrique en traits pleins est celle du mélange. On voit que

c'est le charbon à gaz qui a commencé le premier à se contracter ; le charbon gras, fait bien connu, se ramollit un peu plus tard, mais son expansion commence quand le charbon à gaz se trouve encore en état plastique. Les demi-gras, par contre, ne commencent à gonfler que lorsque le charbon à gaz et le charbon gras ont déjà atteint ou dépassé la température de resolidification. Voici sans doute l'explication du phénomène que les demi-gras incorporés dans le mélange ne peuvent plus s'étendre et devenir poreux : ils sont enfermés dans un squelette de coke solide. D'après nos connaissances et idées actuelles, il semble que la pression des gaz sortant des grains demi-gras pousse ces grains faiblement ramollis contre les parois cellulaires des parties du coke, qui se produisent à partir des grains de charbon gras et de charbon à gaz, et assure de cette façon une liaison étroite entre les demi-gras et la masse du coke ; cette liaison subsiste malgré la contraction qui accompagne la transformation du semi-coke en coke de haute température.

Une comparaison des résultats de la cokéfaction granulaire avec les résultats des essais dilatométriques et des études microscopiques de coke de haute température obtenu à partir de pâtes contenant un appoint de demi-gras nous permet donc, je ne dis pas d'éclaircir entièrement, mais de mieux éclaircir, par une combinaison de tous les résultats, plusieurs phénomènes difficiles à comprendre jusqu'à présent.

Cet exposé avait pour but de démontrer de quelle façon une combinaison d'études microscopiques et technologiques avec les expériences pratiques ou les résultats d'essais de cokéfaction à l'échelle semi-industrielle peuvent contribuer à jeter un peu plus de lumière sur les phénomènes de la cokéfaction, particulièrement ceux qui accompagnent la formation du coke.

Il faut admettre que les connaissances acquises jusqu'ici ne résolvent qu'une partie relativement faible des problèmes ; on peut quand même espérer que la poursuite systématique des recherches nous mettra tôt ou tard en mesure de maîtriser le processus de cokéfaction et tous les facteurs susceptibles de l'influencer à un tel point qu'il deviendra possible, moyennant une préparation appropriée et une cokéfaction bien menée, de produire sans trop de difficultés un bon coke métallurgique, même à partir de charbons difficiles à cokéfier.

À la fin de cet exposé, je ne veux pas manquer de mentionner que les résultats que je viens d'exposer sont, cela va sans dire, le fruit d'un travail commun et que je dois mes remerciements non seulement aux membres des services pétrographiques et minéralogiques de notre Institut mais aussi, et tout particulièrement, aux collègues des services physico-chimique et de la recherche opérationnelle, et notamment à M. Echterhoff, Ingénieur principal.

BIBLIOGRAPHIE

- (1) KOETTER, K. — *Brennstoff-Chemie*, 41 (1960) 263-272.
- (2) KOETTER, K. — *Brennstoff-Chemie*, 42 (1961) 380-385.
- (3) ECHTERHOFF, H. et MACKOWSKY, M.-Th. — *Glückauf*, 96 (1960) 618/26.
- (4) RITTER, H. et JURANEK, G. — *Brennstoff-Chemie*, 41 (1960) 170/76.
- (5) RITTER, H. et JURANEK, G. — *Brennstoff-Chemie*, 42 (1961) 17/21.
- (6) MACKOWSKY, M.-Th. — *Erdöl-Kohle*, 15 (1962) 441/51.

DISCUSSION

M. STASSEN : Je remercie vivement M^{elle} Mackowsky pour son remarquable exposé et tous les auditeurs sont unanimes à vous féliciter de la façon dont vous avez maîtrisé la langue française tout au long de votre conférence. Ceux qui ont eu l'occasion de faire des exposés en langue étrangère connaissent les difficultés de cet exercice et apprécient à sa juste valeur l'effort méritoire que vous avez fait pour nous parler cet après-midi.

Vous nous avez fait une magnifique synthèse des variations de la porosité, du volume des pores et des qualités du coke en fonction de la granulométrie des produits soumis à la cokéfaction. Vous avez abordé là un sujet nouveau, extrêmement intéressant. Antérieurement il y avait bien eu certaines recherches empiriques dans ce domaine mais vos travaux y apportent des précisions du plus haut intérêt et ouvrent la voie à de nouvelles recherches où, comme vous l'avez dit, il reste encore beaucoup à faire.

M. BONTE : Je tiens d'abord à assurer M^{elle} Mackowsky de mon souvenir reconnaissant de ce qu'elle a bien voulu pendant de nombreuses semaines être mon professeur de pétrographie.

Ma question n'a pas toutefois trait à la genèse du coke mais à un essai que vous avez mentionné : il s'agit de l'essai de gonflement, qui est extrêmement important pour les cokiers, car il s'agit de savoir si les charbons ne détruiront pas leurs batteries. Dans l'essai que vous avez signalé, il faut faire un mélange à 0,8 de densité. Seulement, dans cet essai, quand on a fait son mélange à 0,8, en mettant 80 g de charbon dans une cornue, sous 34 mm de hauteur, on lui applique une pression de 10 kg ; la densité devient alors ce qu'elle veut. Quelle est la valeur de cet essai et de la notion de densité.

M^{elle} MACKOWSKY : Il s'agit ici de la densité en vrac et vous avez une pression constante. Si vous n'avez pas de contraction, la pression dans cet appareil, évite l'extension. C'est seulement si vous avez une contraction que vous avez la courbe que j'ai montrée. Si vous avez un charbon qui ne produit aucune contraction, la courbe reste absolument sur le même point, parce que la pression évite une extension, de sorte que l'on peut déterminer la contraction des grains.

M. BONTE : Je veux dire que cette densité initiale de 0,8 ne reste pas constante.

M^{elle} MACKOWSKY : Si vous travaillez avec différentes granulométries, il est nécessaire de mentionner que dans toutes ces granulométries vous avez la même densité en vrac et que, normalement, si la granulométrie diminue, vous avez une densité en vrac plus faible. Nous avons augmenté légèrement cette densité, notamment pour les grains très fins, pour commencer chaque test avec la même densité en vrac. Ces résultats ne sont pas absolument parfaits, mais la question la plus importante débattue dans notre laboratoire est de savoir quelle est l'influence la plus importante pour la poussée : la densité en vrac ou la granulométrie ? Nous sommes maintenant presque convaincus que le rôle de la granulométrie est plus important qu'on ne l'a cru jusqu'à présent. Dans la pratique on sait depuis longtemps que c'est la granulométrie et non la densité en vrac, parce que l'on peut augmenter la densité en vrac sans que la poussée n'apparaisse.

M. ALPERN : Vous avez montré la relation entre le gonflement des grains et la granulométrie mais vous avez montré antérieurement aussi, et cela est bien connu à l'heure actuelle, qu'il y a une relation entre la granulométrie et la teneur en exinite, résinite, clarite, etc... On sait, par exemple, que la clarite est plus abondante dans les grosses granulométries. Ce facteur ne peut-il jouer un certain rôle ?

M^{elle} MACKOWSKY : Nous avons évidemment étudié, dans les différentes fractions, la composition macérale et la composition des microlithotypes. Comme pétrographe, vous venez de mentionner un problème qui nous touche : l'analyse avec l'oculaire de Kötter nous permet d'avoir des résultats assez reproductibles pour des épaisseurs de 50 microns et par ce fait, l'influence de la granulométrie sur la composition des microlithotypes est amoindrie, ce qui ne me plaît pas. C'est pourquoi nous voulons réaliser une analyse des grains entiers et il est clair que dans les gros grains le pourcentage de clarite et de clarodurite est plus élevé que dans les fractions plus fines. Mais les différences de composition pétrographique ne peuvent pas, me semble-t-il, élucider les différences observées dans la forma-

tion des pores parce que, même dans les grains plus petits que 0,1 mm, on a de la clarté mais pas de pores.

Il est clair que le grand pourcentage de gaz qui provient de l'exinite pendant la zone plastique donne une pression intérieure très élevée. C'est pourquoi, je suis convaincue, encore aujourd'hui, que l'analyse des microlithotypes a une signification importante pour les cokiers, parce que ce dégazage de l'exinite à l'intérieur des grains donne une pression intérieure plus élevée que dans les vitrinites pures. Ce que j'ai voulu surtout montrer c'est que chez nous pour la cokéfaction la granulométrie a plus d'influence qu'on ne l'a cru jusqu'à présent, même dans l'essai au dilatomètre, et que l'influence de la granulométrie varie avec le rang. Dans les charbons gras cette influence est assez petite mais dans les charbons à gaz, les charbons flambants à gaz et les charbons 1/2 maigres, cette influence est très élevée, même dans des charbons 1/2 gras dans lesquels l'influence des différents macéraux n'est pas aussi importante.

M. STASSEN : M. Grand'Ry, au cours de son exposé, nous a montré que dans un même charbon des grains de diamètre différent pouvaient avoir des compositions macérales très différentes.

Dans un charbon brut qui sort de la mine, les fines peuvent donc avoir une composition macérale

très différente de celle des grains. Pour vos essais êtes-vous partis de grains d'une dimension déterminée broyés successivement à 5 mm, 3 mm, 1 mm et 0,5 mm, ou avez-vous directement prélevé dans le brut des grains de chacune des fractions granulométriques ?

M^{lle} MACKOWSKY : Nous n'avons pas fait exactement cet essai. Nous avons un charbon sous 10 mm et nous avons étudié seulement les fractions naturelles 5 à 3 mm, 3 à 1 mm. Mais nous avons broyé tout le charbon sous 5 mm et après cela, nous avons broyé tout le charbon sous 3 mm, car il n'est pas possible d'étudier un grain de 5 mm et après la cokéfaction de le broyer plus finement.

Je crois que les grains ayant un diamètre de 5 mm se comportent différemment des grains de 1 mm au cours de la formation du coke parce que les états physicochimiques à l'intérieur du grain sont différents.

M. STASSEN : Je tiens à remercier une dernière fois les conférenciers M. Grand'Ry et M^{lle} Mackowsky, qui ont eu l'amabilité de nous faire part du fruit de leurs recherches. Je puis les assurer que ces recherches d'avant-garde ont vivement intéressé tous les auditeurs. Je remercie également tous ceux qui ont animé la discussion et je lève la séance.