



推荐阅读：

[我国土地复垦与生态修复 30 年：回顾、反思与展望](#)

[我国采煤沉陷区治理实践与对策分析](#)

[中国煤炭资源高效清洁利用路径研究](#)

[水煤浆制备与应用技术及发展展望](#)

[我国煤基活性炭的应用现状及发展趋势](#)

[煤矿矿井水资源化综合利用体系与技术创新](#)

[现代煤化工废水处理研究进展及展望](#)

[煤气化废水处理技术研究进展](#)

[低阶煤热解关键技术问题分析及研究进展](#)

[煤加氢热解及热解焦气化特性试验研究](#)

[煤炭地下气化理论与技术研究进展](#)



移动扫码阅读

马 良.煤中硫分布特征及其沉积成因研究——以鄂尔多斯盆地榆横矿区南区为例[J].煤炭科学技术,2020,48(8):200-209. doi:10.13199/j.cnki.est.2020.08.025
 MA Liang. Study on distribution characteristics and sedimentary genesis of sulfur in coal; taking southern Yuheng Mining Area of Ordos Basin as a case[J]. Coal Science and Technology, 2020, 48(8): 200-209. doi: 10.13199/j.cnki.est.2020.08.025

煤中硫分布特征及其沉积成因研究

——以鄂尔多斯盆地榆横矿区南区为例

马 良

(中煤科工集团西安研究院有限公司,陕西 西安 710077)

摘要:鄂尔多斯盆地陕北侏罗纪煤田是我国重要的煤炭基地,以低灰、低硫、低磷、高发热量的优质煤炭资源为主。作为陕北侏罗纪煤田的一部分,榆横矿区南区原煤硫分普遍较高,中高硫煤和高硫煤资源量占总资源量的比例超过60%,属于该区一种特殊的地质现象,同时,煤中硫的富集也严重制约了该地区煤炭资源的清洁利用。为查明榆横矿区南区高硫区的分布特征、变化规律和沉积成因,以煤岩煤质和钻孔资料为基础,从煤岩学、煤地球化学和沉积学入手,揭示高硫煤分布特征和变化规律,建立了沉积微相与煤中硫分分布之间的成因联系,分析了相参数与硫分之间的相关关系,建立了陆相含煤地层中硫的富集模式,进而为煤炭资源开发总体规划、清洁利用及生态环境保护提供依据。研究结果表明,原煤全硫含量0.31%~4.95%,平均1.83%(质量分数,下同),高于全国早、中侏罗纪煤中硫含量的平均值0.58%。平面上,原煤硫分由西北向东南、由物源向湖盆方向呈增高的趋势,垂向上自下而上逐渐增高。煤中硫的聚集主要受控于成煤同生阶段和早期成岩阶段沉积微相控制,分流河道以中硫煤为主,分流间湾以中高硫煤为主,高硫煤主要分布于局限浅湖发育区。硫化铁硫含量与煤岩显微组分中的镜惰比、灰成分指数之间呈正向变化,表明凝胶化作用和还原性水介质有利用煤中硫的富集,而水介质中 Fe^{2+} 丰度是影响硫化铁硫含量的重要因素。

关键词:煤中硫;煤岩显微组分;沉积成因;鄂尔多斯盆地

中图分类号:P618.11 文献标志码:A 文章编号:0253-2336(2020)08-0200-10

Study on distribution characteristics and sedimentary genesis of sulfur in coal: taking southern Yuheng Mining Area of Ordos Basin as a case

MA Liang

(Xi'an Research Institute Co., Ltd., China Coal Technology and Engineering Group Corp., Xi'an 710077, China)

Abstract: As an important coal base in China, Jurassic Coalfield in Northern Shaanxi of Ordos Basin is famous for producing high quality coal with low ash, low sulfur, low phosphorus and high calorific value. As a part of Jurassic Coalfield in Northern Shaanxi, the sulfur in coal in southern Yuheng Mining Area is generally high, and the resources of medium sulfur coal and high sulfur coal account for more than 60% of the total resources, it is a special geological phenomenon in this area, at the same time, the enrichment of sulfur in coal seriously restricts the clean utilization of coal resources in this area. In order to find out the distribution characteristics, variation rules and sedimentary genesis of high sulfur area, based on the data of coal petrology, coal geochemistry and sedimentology, the distribution characteristics and variation rules of high sulfur coal are revealed, the genetic relationship between sedimentary microfacies and sulfur distribution in coal is established, the correlation between facies parameters and sulfur content is analyzed, and the enrichment model of sulfur in continental coal bearing strata is established, and then provide the basis for the overall planning of coal resources development, clean utilization and ecological environment protection. The results show that the total sulfur content of raw coal ranges from 0.31% to 4.95%, with an average of 1.83% (mass fraction, the same below), which is higher than the national average value of 0.58% in early and Middle Jurassic coal. On the plane,

收稿日期:2019-10-25;责任编辑:代艳玲

基金项目:中煤科工集团西安研究院有限公司科技创新基金资助项目(2019XAYMS19, 2019XAYMS20);国家科技重大专项资助项目(2016ZX05045-002)

作者简介:马 良(1982—),男,甘肃张掖人,助理研究员。E-mail: maliang@ccctegxian.com

the sulfur content of raw coal increases from northwest to southeast, from provenance to lake basin, and increases from bottom to top in vertical direction. The accumulation of sulfur in coal is mainly controlled by sedimentary microfacies in coal forming contemporaneous stage and early diagenetic stage. The distributary channel is dominated by medium sulfur coal, and the distributary bay is dominated by medium high sulfur coal. The high sulfur coal is mainly distributed in limited shallow lake development area. There is a positive correlation between sulfur content of iron sulfide and vitrinite and inertinite ratio and ash composition index, it is shown that there is enrichment of sulfur in coal by gelation and reductive water medium, and the abundance of Fe^{2+} in water is an important factor affecting sulfur content of iron sulfide.

Key words: sulfur in coal; coal macerals; sedimentary origin; Ordos Basin

0 引 言

硫作为煤中主要有害元素之一,严重影响了煤的储存、加工、清洁利用以及燃煤锅炉的达标排放。煤中硫元素的分布特征、沉积成因、脱硫、降硫方法等一直以来都是行业学者关注的热点,大量的研究成果见诸报道。研究领域涉及煤中硫区域分布、煤中硫的形态与结构、煤岩特征与硫的关系、煤中微量元素与硫的关系以及煤中硫的地质成因等^[1]。戴和武^[2]、胡军等^[3]、罗陨飞等^[4]、唐跃刚等^[5]先后从不同成煤时代、煤阶、聚煤区、行政区划等方面评述了我国煤中硫的分布特征和地质成因,提出我国煤炭资源总体以特低硫和低硫煤为主,全硫含量储量加权平均值为0.94%^[3]、1.02%^[4]、1.14%^[5],高硫煤主要分布于石炭-二叠系海相和海陆交互相成煤环境中,陆相成煤环境中煤中硫分普遍较低。刘大锰等^[6]、汤达祯等^[7]研究了华北晚古生代煤中形态硫的分布特征,分析了海相成煤环境中硫含量与凝胶化程度、成煤植物类型、水文条件、沼泽水介质、泥炭沼泽类型之间的成因关系,指出(准)同生、早期成岩阶段和晚期成岩阶段煤中硫的不同聚集机制。唐跃刚等^[8]进行了煤中黄铁矿的成因研究,提出了晶形黄铁矿和复杂黄铁矿的形成模式。代世锋等^[9]在内蒙古乌达矿区高硫煤中发现了黄铁矿化杆状菌落和蓝藻胶壳降解有机质,并指出菌藻类体对高硫煤形成的贡献,通过煤中有机硫和黄铁矿硫同位素研究,提出高硫煤中硫的演化模式^[10],进一步完善了高硫煤的沉积控制理论。近年来的相关研究工作多聚焦于川、滇、黔海相高硫煤,王建胜等^[11]指出受海水的影响程度较大、古气候环境潮湿的潟湖相的泥炭沼泽环境形成的煤层硫分普遍较高;李碧等^[12]指出形成于海进期的煤层硫分普遍高于海退期形成的煤层;袁利^[13]通过煤中硫同位素测试和煤的热分析结果,分析了黔西南高硫煤的硫分成因;赵福平等^[14]发现成煤早期海水的淹没、浸泡和后期渗流是海相煤田中、高硫煤形成的重要条件。但是,陆相高硫煤的分布特征和沉积成因研究鲜有报道。

鄂尔多斯盆地陕北侏罗纪煤田作为我国重要的煤炭基地,以低灰、低硫、低磷、高发热量的优质煤闻名^[15-16]。以往的研究认为榆横地区煤中高硫属于个别现象^[17-18]。近年来随着煤炭勘查程度的逐步提高,发现榆横矿区南区原煤硫分普遍较高,中高硫煤和高硫煤资源量占总资源量的比例超过60%,局部甚至形成了连片分布的高硫煤条带,给传统的认识带来挑战的同时也为矿区煤炭资源的存贮加工和清洁利用带来了难度。榆横矿区南区煤中硫的分布特征和沉积成因研究,可为煤炭产品脱硫降硫措施选择和煤炭开发对生态环境影响评价提供依据。基于此,笔者以矿区大量的地质钻探和煤岩煤质资料为基础,对煤中硫的分布、变化和成因进行了研究,分析了煤中硫的分布特征及煤中硫分与沉积环境之间的变化规律,提出了矿区三角洲体系不同沉积环境下煤中硫分的富集模式。

1 地质概况

榆横矿区南区北以无定河为界,南至北纬37°40'线,东起3号煤层剥蚀边界,西至陕蒙省界,东西长40.7~106.6 km,南北宽20.1~65.1 km,面积约4 479.6 km²。矿区位于鄂尔多斯盆地陕北斜坡中部,构造简单,为一西倾的平缓单斜,地层倾角0.5°~3.0°。榆横矿区南区成煤期主体沉积环境属于鄂尔多斯盆地延安组三角洲前缘横清朵叶体,西北部为广大的三角洲平原沉积,东南部为吴起-子长古湖(图1)。

含煤地层中侏罗统延安组全区分布,自上而下划分为4个岩性段,主力煤层3号煤层位于第3段顶部,全矿区可采,厚度0.81~4.23 m,平均2.80 m;4号煤层位于第3段中部,大部分地区可采,厚度0.15~2.64 m,平均1.24 m;5号煤层位于第2段顶部,局部可采,厚度0.66~2.07 m,平均1.25 m;8号煤层位于第1段顶部,一般不可采。煤质以不黏煤和长焰煤为主,具有低灰、中高挥发分、中高硫、高发热量的特征。

2 数据来源和测试方法

数据主要来源于研究区内各阶段地质勘查工

作,收集汇总了研究区各井田、勘查区原煤全硫含量测试数据1 053个,浮煤全硫含量数据1 023个,灰成分测试数据361个,显微煤岩组分数据67个,研究区主要煤化学参数见表1。

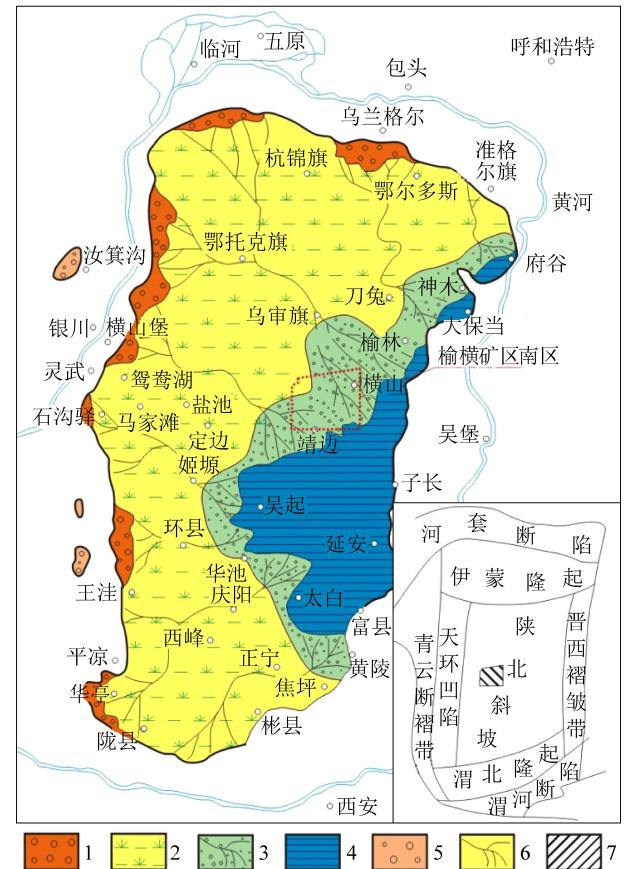


图 1 鄂尔多斯盆地延安组岩相古地理略图
 Fig.1 Lithofacies and paleogeography of Yan'an Formation in Ordos Basin

表1 研究区各煤层主要煤化学参数

Table 1 Chemical parameters of coal in study area

煤层编号	w(S) _{t,d} /%		灰成分质量分数/%			显微煤岩组分体积分数/%			R _{max} /%	
	原煤	浮煤	SiO ₂ +Al ₂ O ₃	Fe ₂ O ₃	CaO+MgO	V	I	有机总量		
3	0.42~4.95	0.31~2.30	10.99~76.88	4.95~45.16	2.42~67.47	41.9~78.8	21.2~49.5	83.7~98.3	0.9~3.7	0.55~0.73
	2.16	1.26	38.08	19.16	23.03	56.6	35.2	92.3	1.7	0.63
4	0.31~4.47	0.24~3.04	9.10~79.37	8.04~54.38	3.54~46.48	58.2~76.2	22.3~37.1	84.6~98.8	1.6~3.2	0.58~0.72
	1.63	1.00	48.89	17.57	17.22	67.3	27.7	93.9	2.5	0.66
5	0.35~4.49	0.30~2.10	14.24~78.49	6.41~39.77	3.78~31.75	46.9~74.6	18.4~50.7	73.8~99.0	0.9~3.0	0.53~0.73
	1.31	0.87	56.02	15.44	14.28	61.8	30.3	92.7	2.2	0.65

注: V 为镜质组含量, I 为镜质组含量。

经密度 1.40 g/cm^3 悬浮液分选后, 各煤层浮煤硫含量相差不大, 平均值分别为 1.26% 、 1.00% 和 0.87% 。分选前后煤中硫含量均有大幅降低(图

全硫含量按 GB/T 214—2007《煤中全硫的测定方法》,采用库伦滴定法检测,将数据按 GB/T 15224.2—2010《煤炭质量分级 第2部分:硫分》规定的煤炭资源硫分分级方法分为特低硫煤 SLS($w(S)_{t,d} \leq 0.5$)、低硫煤 LS($0.5 < w(S)_{t,d} \leq 1.0$)、中硫煤 MS($1.0 < w(S)_{t,d} \leq 2.0$)、中高硫煤 MHS($2.0 < w(S)_{t,d} \leq 3.0$)及高硫煤 HS($w(S)_{t,d} > 3.0$)等5类进行分类统计。

各形态硫测定按 GB/T 215—1996《煤中各种形态硫的测定方法》测定,硫酸盐硫通过测定煤中硫酸钡的质量获得,硫化铁硫通过氧化法测定,有机硫为全硫扣除硫酸盐硫和硫化铁硫后计算获得。

3 硫分分布特征

3.1 总体特征

矿区内3、4、5煤层全部样品的原煤全硫含量变化范围在0.31%~4.95%，平均值为1.83%，与邻近的榆横矿区北区和榆神矿区存在明显差异（表2），平均值远高于全国早、中侏罗纪煤中硫含量的平均值0.58%^[5]，亦高于榆横地区延安组煤中硫含量的平均值1.12%^[19]。分布特征为负偏态，中位数为1.73%，标准方差为0.79，全硫含量集中分布在0.8%~2.4%，以中硫煤和中高硫煤为主（图2a）。

矿区内各煤层特低硫煤较少。3 煤层原煤全硫含量 0.42%~4.95%，平均 2.16%，中硫煤和中高硫煤占绝大部分，二者占总见煤点数量的 82%（图 2b）；4 煤层原煤全硫含量 0.31%~4.96%，平均 1.63%，以中硫煤居多，占总见煤点数量的 57%，其次是低硫煤和中高硫煤；5 煤层原煤全硫含量 0.46%~3.53%，平均 1.42%，以低硫煤和中硫煤为主。

表2 鄂尔多斯盆地陕北侏罗纪煤田各煤层中硫分参数

Table 2 Parameters of sulfur in coal seams of Jurassic Coalfield in Northern Shaanxi, Ordos Basin

矿区	煤层	样品数量	原煤硫分/%				浮煤硫分/%			
			$w(S)_{t,d}$	$w(S)_{s,d}$	$w(S)_{p,d}$	$w(S)_{o,d}$	$w(S)_{t,d}$	$w(S)_{s,d}$	$w(S)_{p,d}$	$w(S)_{o,d}$
榆横矿区 (研究区)	3	601	0.42~4.95 2.16	0~1.39 0.09	0.06~4.69 1.35	0.01~3.59 0.77	0.31~2.30 1.26	0~1.26 0.08	0~1.42 0.43	0.18~1.62 0.79
	4	290	0.31~4.47 1.63	0.01~0.69 0.05	0.20~3.80 1.18	0.01~1.66 0.59	0.24~3.04 1.00	0~0.21 0.02	0~2.56 0.41	0.04~1.88 0.70
	5	161	0.35~4.49 1.31	0.01~0.19 0.04	0.02~3.12 0.72	0.06~2.67 0.69	0.30~2.10 0.87	0.01~0.22 0.03	0.01~0.80 0.19	0.16~0.96 0.63
榆横矿区 北区	2	69	0.34~3.80 1.99	0.01~0.83 0.08	0.09~3.20 0.89	0.17~1.96 0.68	0.28~2.23 1.27	0.00~0.16 0.05	0.01~0.38 0.13	0.15~1.47 0.62
	3	50	0.41~3.57 0.99	0.01~0.63 0.09	0.08~2.80 0.74	0.21~1.39 0.57	0.30~1.78 0.70	0.01~0.12 0.04	0.03~1.11 0.15	0.22~1.25 0.56
	3-1	94	0.31~2.90 0.94	0.01~0.23 0.06	0.07~2.47 0.62	0.11~1.36 0.48	0.45~0.97 0.64	0.01~0.21 0.04	0.00~0.32 0.09	0.19~1.37 0.45
	4-2	93	0.46~2.84 0.84	0~0.17 0.05	0.01~1.68 0.46	0.13~1.15 0.46	0.31~0.80 0.50	0.01~0.21 0.04	0.01~0.48 0.10	0.14~1.36 0.45
	2-2	156	0.27~1.13 0.40	0.01~0.07 0.02	0.03~0.24 0.10	0.12~0.22 0.18	0.12~1.82 0.60	0.02~0.07 0.03	0.46~1.38 0.84	0.44~0.68 0.58
榆神 矿区	3-1	108	0.21~0.90 0.36	0.01~0.06 0.03	0.02~0.34 0.10	0.09~0.66 0.23	0.07~1.24 0.55	0.01~0.06 0.03	0.02~0.34 0.10	0.09~0.66 0.23
	4-2	165	0.20~0.62 0.34	0.01~0.02 0.02	0.02~0.39 0.10	0.06~0.24 0.17	0.11~1.14 0.42	0.01~0.02 0.02	0.02~0.39 0.10	0.06~0.24 0.17
	5-2	138	0.20~1.34 0.46	0.01~0.06 0.03	0.04~0.30 0.16	0.08~0.33 0.19	0.13~1.42 0.40	0.01~0.04 0.03	0.04~0.30 0.16	0.08~0.33 0.19

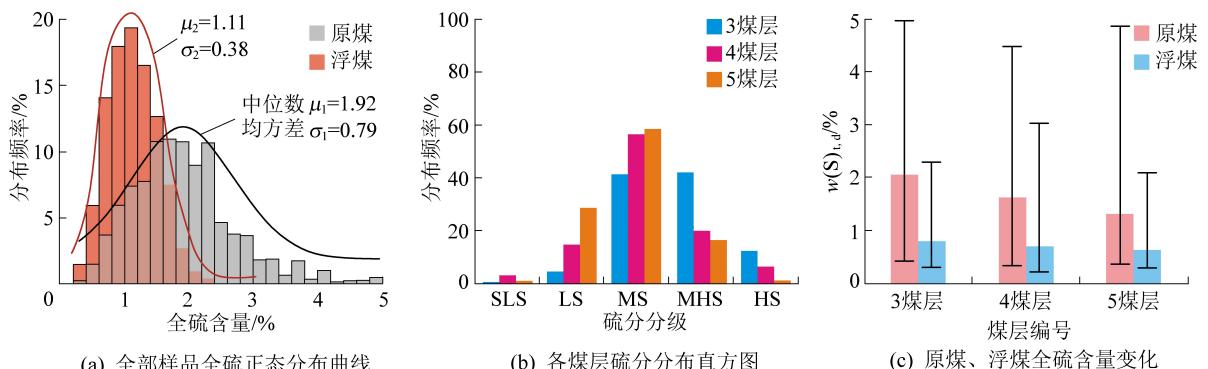


图2 研究区煤中硫分布特征

Fig.2 Distribution characteristics of sulfur in coals in the study area

3.2 平面分布特征

平面上,研究区3煤层以中硫煤和中高硫煤为主,大致呈北西南东走向,高硫区主要分布于研究区西部和南部;4煤层以中硫煤为主,中高硫北东南西向带状分布于可采区中部;5煤层以中硫煤和低硫煤为主,高硫煤分布面积比较局限。各煤层硫分均有由西北向东南、由物源向湖盆方向增高的趋势(图3)。

3.3 各形态硫

硫化铁硫($S_{p,d}$):研究区煤中硫以硫化铁硫为主,硫化铁硫含量在0.06%~4.62%,平均1.24%,硫化铁硫占全硫含量的11%~99%,平均59%。中高硫煤和高硫煤样品中硫化铁硫组分占比在80%以上,说明硫化铁

硫是研究区煤中硫含量高的主要原因。宏观上煤中硫化铁硫的赋存形式主要为分布于裂隙中的黄铁矿自形晶体和附着于裂隙面的黄铁矿薄膜。微观上硫化铁硫有4种表现形式:①分布于基质镜质体中,与基质镜质体共生的黄铁矿球状自形晶体(图4a),此部分含量极少;②分布于显微组分之间的豆状黄铁矿结核(图4b),含量也较少;③分布于微裂隙中的脉状黄铁矿,含量较多(图4c);④分布于菱铁矿周围,与菱铁矿呈交代关系的黄铁矿,含量较多(图4d)。

有机硫($S_{o,d}$):有机硫是研究区内煤中硫的另一个重要组成部分,原煤中有机硫含量在0.71%~2.78%,平均1.71%;中高硫煤和高硫煤原煤样品有

机硫组分占比多小于5% (图5)。普通分选对有机硫的脱硫作用有限, 分选后浮煤有机硫降幅不大^[22-23], 有机硫在全硫中的比例升高至50%~80%。

硫酸盐硫($S_{s,d}$)：研究区煤中硫酸盐硫含量甚微，一般不超过0.1%，不是煤中硫的主要组成部分。

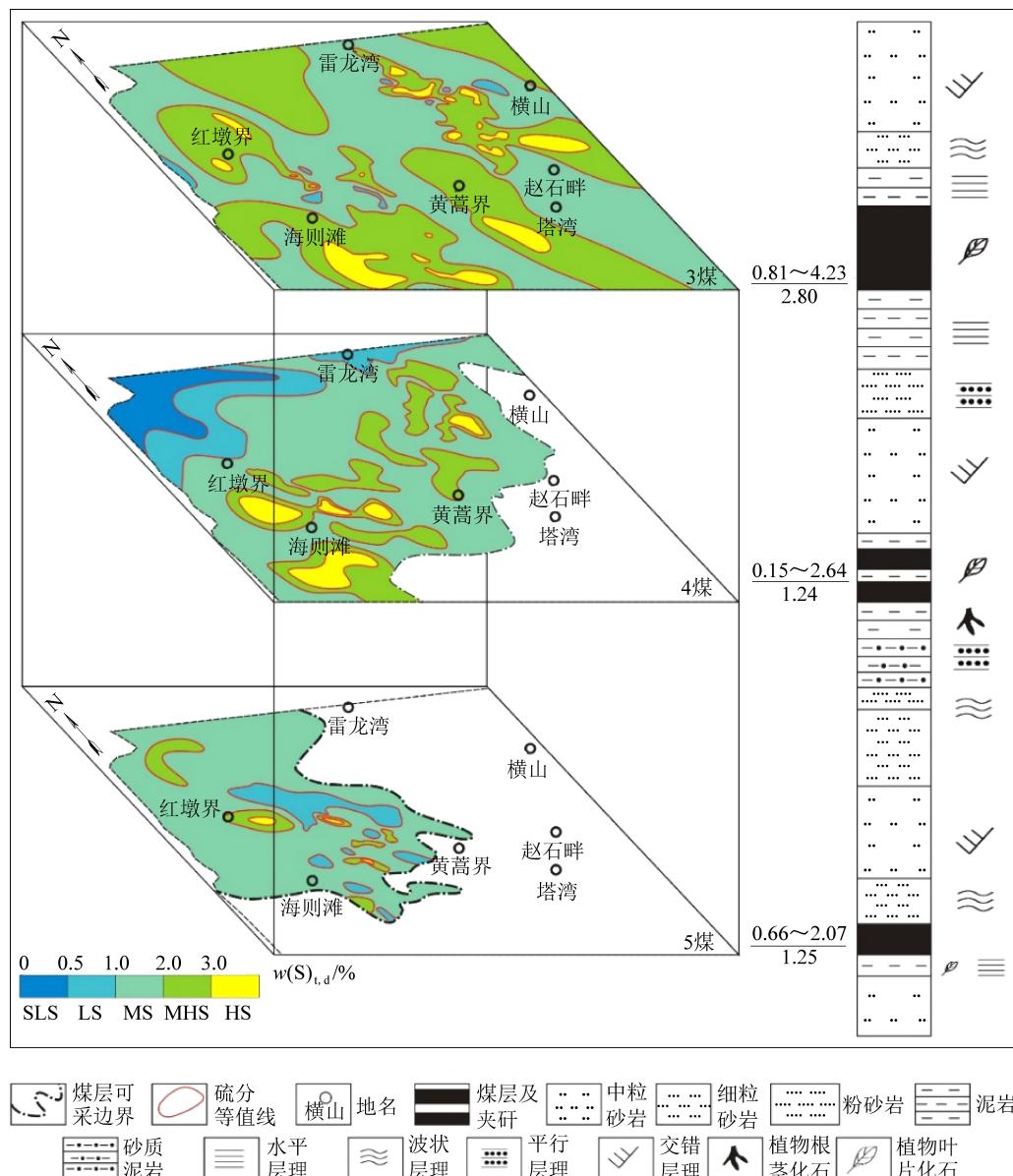


图3 榆横矿区南区各煤层硫分平面分布

Fig.3 Plane distribution of sulfur in coals in southern Yuheng Mining Area

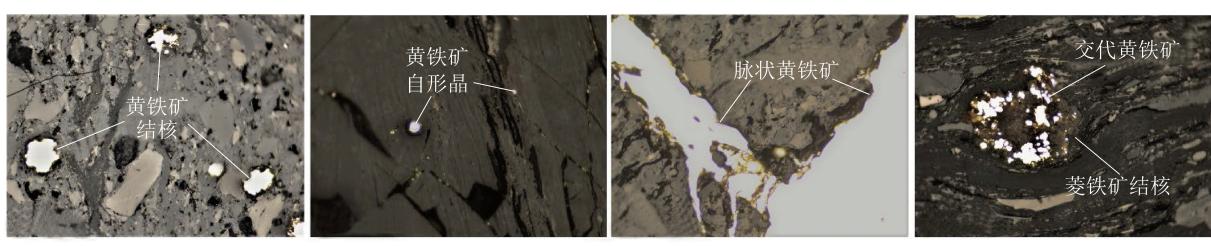


图4 研究区供土基处坡顶面形貌(以退丘积水)

Fig.4 Micrograph of urite in rock in study area (Oil immersion, reflected light)

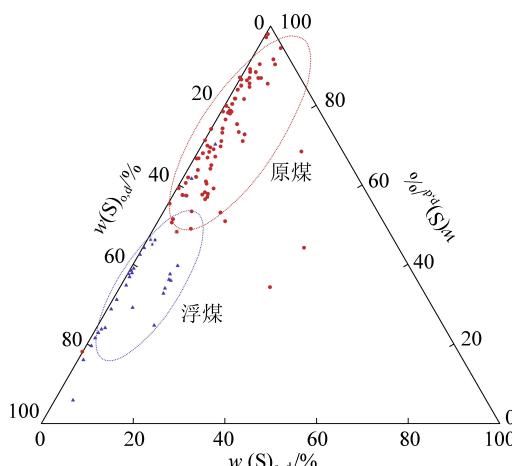


图 5 中高硫煤和高硫煤各形态硫百分含量三角图

Fig.5 Trigonometric graph of MHS and HS

4 煤中硫的沉积成因

煤中硫的聚集始于同生—准同生阶段,在早期成岩阶段达到顶峰,晚期成岩阶段和后生阶段硫的聚集作用甚微。作为鄂尔多斯中生代陆相含煤盆地一部分,在湖控三角洲成煤体系的大背景下,水介质和物源补给相对单一^[24-26],笔者认为研究区煤中硫的聚集主要受控于同生阶段和早期成岩阶段的沉积微相,同时成煤植物、凝胶化作用、氧化还原条件以及 Fe^{2+} 供给等因素在煤中硫的聚集过程中也起到了关键作用。

4.1 同生阶段沉积环境

延安组自下而上可分为初始充填体系域、超覆充填体系域和退覆充填体系域,每个体系域1~3个小层序组^[15],研究区主要成煤段——延安组第3段处于超覆充填体系域末期的第三、四小层序,平面上位于靖—横三角洲朵叶体东南边缘,毗邻南部的吴起—子长开阔湖,具有三角洲平原与三角前缘地过渡部位的沉积特征^[27-28]。成煤期地势较平坦,曲流河由北和西北2个方向进入研究区后发生多次迁移摆动,并逐渐向网状河变化,形成网状分流河道和分流河道之间的分流间湾湿地,并在相对低洼的位置形成局限浅湖(成因上类似于曲流河平原牛轭湖)。不同的沉积环境使煤化学参数产生了差异变化。反之,这些煤化学参数又具有成煤沉积环境指向意义。

底板沉积环境和煤中硫的分布之间具有良好的继承关系(图6)。高硫煤主要分布于局限浅湖的中心部位;分流间湾主要沉积了中高硫煤,而分流河道以中硫煤为主,甚至还出现了小面积的低硫煤。

分流河道:在区内呈网状分布,其物源来自西北部,由西北向东南流经研究区后注入东南部的吴

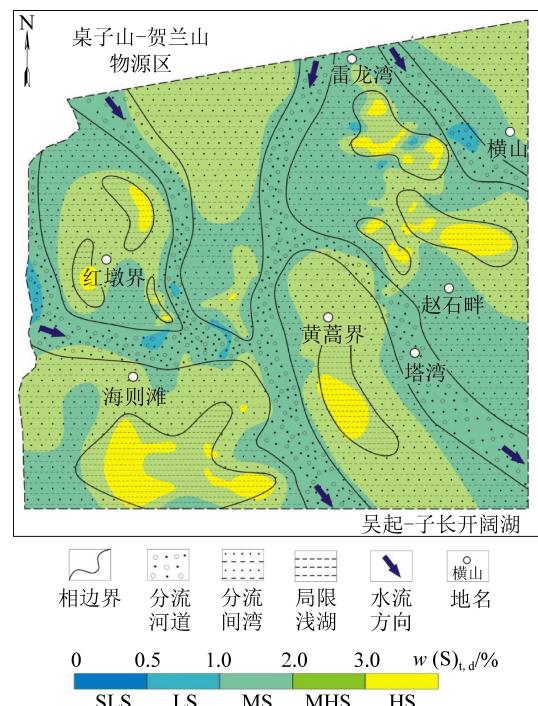


图 6 3煤层沉积环境与煤中硫的平面分布

Fig.6 Sedimentary environment and plane distribution of sulfur in No.3 coal seam

起—子长开阔湖。代表岩性为发育交错层理的灰白色长石石英中、粗粒砂岩,骨架砂体厚度在10~30 m。分流河道属于开放环境,水动力条件相对较强,硫酸盐随水流持续迁移,还原性较弱, Fe^{3+} 难以被还原为 Fe^{2+} ,从而限制了 FeS 的形成,煤中硫含量相对较低。

分流间湾:分布范围广泛,是研究区的主体沉积环境,岩性为发育波状层理的灰~深灰色粉砂岩、泥质粉砂岩和砂泥岩互层。分流间湾为半开放环境,河道对其有间断水流补给,沼泽还原性和水动力条件均介于分流河道和局限浅湖之间,以中高硫煤为主。靠近分流河道一侧也发育小范围的天然堤和决口扇,多沉积中硫煤。

局限浅湖:位于分流河道之间,分流间湾的中心部位岩性为发育平行层理或水平层理、富含碳质的深灰~灰黑色泥岩或粉砂质泥岩。由于远离分流河道,使局限浅湖水体能够长时间保持闭塞和静止,丰富的地下潜水补给则保证了一定的覆水深度和还原性。这些条件都有利于植物遗体发生凝胶化作用,同样有利于 SO_4^{2-} 和 Fe^{3+} 被还原后形成煤中的 FeS 。煤层底板泥岩中含有大量的菱铁质泥岩,接近煤层部分多见黄铁矿和菱铁矿混杂共生,呈薄层状成层富集,表明煤层同生阶段研究区总体是一个富铁的环境。

4.2 早期成岩阶段沉积环境

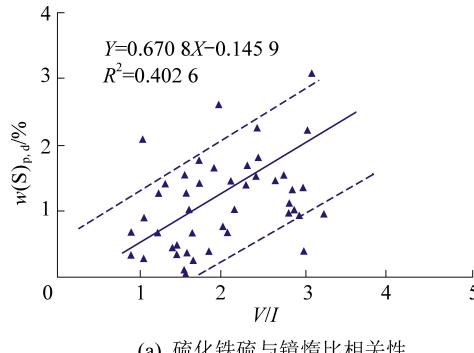
煤层顶板的沉积环境变化在早期成岩阶段煤中

硫的富集过程中仍发挥着重要作用。早期成岩阶段硫化铁硫在煤中富集的主要表现形式是填充于煤层裂隙表面的黄铁矿薄膜和煤层顶板附近的黄铁矿富集层。泥炭堆积压实后,来自顶板的硫元素和铁元素通过地下潜水淋滤下渗在煤层裂隙中富集,在厌氧还原菌的作用下,FeS的化学沉积一直持续到延安组沉积结束。

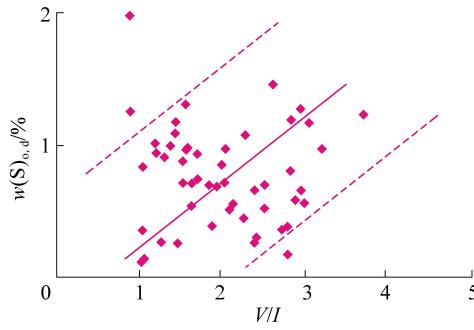
显微镜下,裂隙中脉状分布的黄铁矿是研究区煤中硫化铁存在的主要形式,其形态服从于裂隙的展布形态,说明这些脉状黄铁矿在形成时间上晚于煤层压实裂隙的产生。煤中大量的菱铁矿结核,其周缘和表面被黄铁矿交代共生,且菱铁矿外围的显微组分具有流动变形特征。这种显微组分、菱铁矿结核和黄铁矿交代证明了一个时空关系,即菱铁矿结核→有机质压实→黄铁矿交代。如果同生阶段具有富铁特征,则早期成岩阶段具有硫、铁同时富集的条件。

3煤层顶部夹矸及其顶板砂、泥岩中的硫含量为1.40%~13.13%,平均为3.90%,4煤层顶板以分流河道灰白色中、粗砂岩为主,硫化铁硫含量为0.09%~0.28%,平均为0.20%。

前人在海相煤中硫的研究中证明早期成岩阶段也是有机硫形成的重要阶段,煤中FeS形成要优先



(a) 硫化铁硫与镜惰比相关性



(b) 有机硫与镜惰比相关性

Fig.7 Correlation diagram between V/I and sulfur content in coal

4.5 氧化还原条件

泥炭沼泽的还原性是影响煤中硫聚集的重要条件,较强的还原环境更有利于 SO_4^{2-} 被还原为 H_2S , Fe^{3+} 被还原为 Fe^{2+} ,从而促进黄铁矿的形成;煤中次生有机硫生成是介质中还原型(S^{2-} , S^0)有机质中活性官能团作用的结果^[23],而活性官能团同样需要还原型的水介质环境。煤的灰成分指数 $K(w(\text{Fe}_2\text{O}_3 + \text{CaO} + \text{MgO})/w(\text{SiO}_2 + \text{Al}_2\text{O}_3))$ 已经被广泛地应用于表示泥炭沼泽的还原性的强弱的高低。研究区3煤层灰成分指数在0.17~5.05,平均1.44;4煤层为0.16~7.91,平均1.20;5煤层为0.16~2.69,平均0.61。

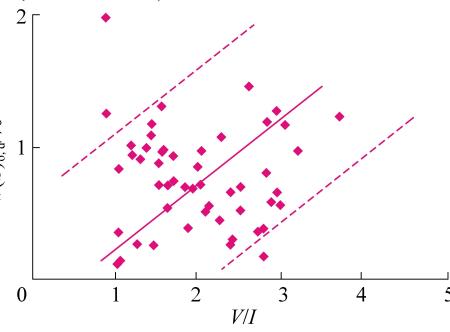
于有机硫^[20], S^{2-} 过饱和时,富余的 H_2S 与有机质结合产生了大量的有机硫。研究区煤中高有机硫说明FeS的形成大量消耗之后, S^{2-} 仍有富余,铁元素通常来自陆地物源,而数量巨大的硫元素补给来源仍需要进一步深入研究。

4.3 成煤植物

以往大量的孢粉分析和煤岩鉴定已经证实了研究区延安组成煤物质主要以银杏、松柏、苏铁、节蕨等为代表的木本植物为主,占56.9%;其次是草本植物,占33.1%^[16,21]。植物保存指数TPI较高,在2.50~9.02,平均6.13^[17]。不同成煤植物类型之间煤的含硫量差别不大,成煤植物对煤含硫量影响较小。

4.4 凝胶化作用程度

凝胶化作用是发生于成煤植物中的一个复杂的生物化学变化过程,可持续到成岩阶段。在这个过程中,煤中有机硫和无机硫的形成均有参与。煤岩学研究中一般将镜质组含量 V 或镜惰比 V/I (镜质组含量/惰质组含量)作为表示泥炭沼泽凝胶化作用强弱的直接尺度。从硫化铁硫和有机硫含量与 V/I 关系来看(图7),虽然镜惰比与硫化铁硫和有机硫之间并非严格的线性相关,但在某一区间内硫化铁硫和有机硫都随着镜惰比呈正向变化,说明一定范围内($1 < V/I < 3.5$)凝胶化作用有利于硫的聚集。



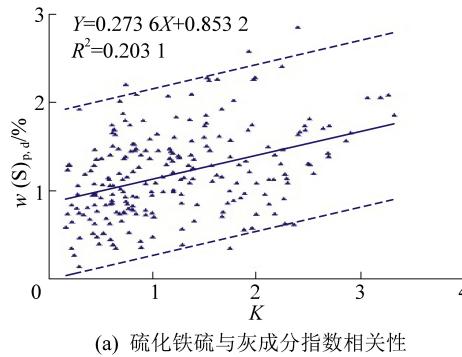
(b) 有机硫与镜惰比相关性

灰成分指数与黄铁矿硫和有机硫含量之间均为正相关关系,但并不严格服从线性关系(图8),灰成分指数越高,还原性越强,同时促进了黄铁矿硫和有机硫的形成。

4.6 水介质中铁离子丰度

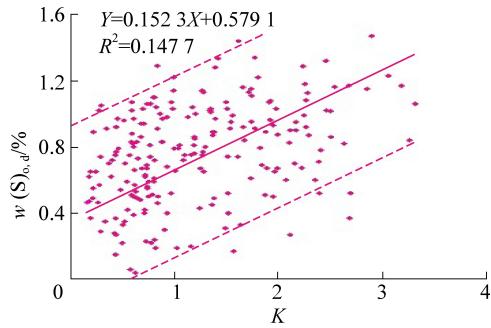
煤中黄铁矿形成的关键因素是 Fe^{2+} 、 SO_4^{2-} 、有机质以及细菌活动等^[21],相比于有机质, H_2S 优先与 Fe^{2+} 发生化学反应生成硫化物。陆相泥炭沼泽中,在 SO_4^{2-} 补给基本稳定的情况下(无间歇性的海水影响),铁离子(Fe^{2+} 和 Fe^{3+})的丰度对煤中硫的富集至关重要。用煤灰中 Fe_2O_3 含量来表示同生阶段和成

岩阶段铁离子的丰度,与全硫、硫化铁硫之间呈正相



(a) 硫化铁硫与灰成分指数相关性

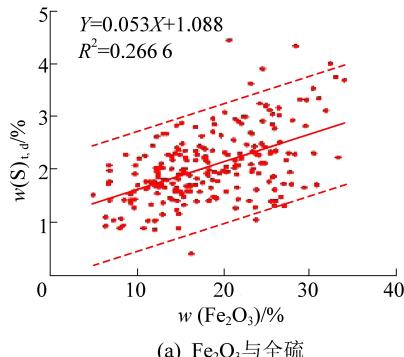
关性,与有机硫之间相关性不明显(图9)。



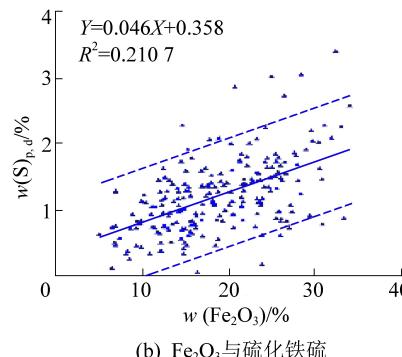
(b) 有机硫与灰成分指数相关性

图8 灰成分指数与硫化铁硫和有机硫之间的相关性

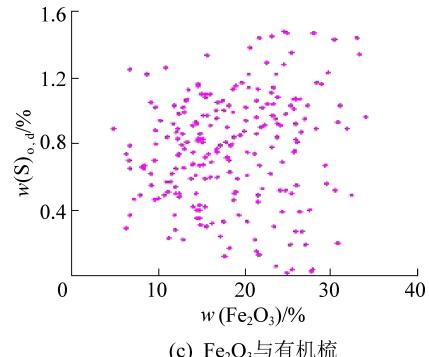
Fig.8 Correlation diagram between ash component index and pyrite-sulfur and organic-sulfur



(a) Fe₂O₃与全硫



(b) Fe₂O₃与硫化铁硫



(c) Fe₂O₃与有机硫

图9 煤灰 Fe₂O₃含量与全硫和形态硫的关系

Fig.9 Correlation diagram between Fe₂O₃ content in ash and total sulfur, pyrite-sulfur and organic-sulfur

通过上述分析,得出研究区煤中硫的聚集模式(图10),从同生阶段到晚期成岩和后生阶段,地表水和地下水中硫、铁元素的补给是源源不断、持续进行的;有机硫主要形成于同生阶段和早期成岩阶段初期,晚期成岩阶段和后生阶段再无有机硫形成;硫

化铁矿的形成贯穿整个成煤期,豆状黄铁矿主要形成于同生阶段,早期成岩阶段以交代黄铁矿和脉状黄铁矿为主,晚期成岩和后生阶段以脉状黄铁矿为主,随着成煤作用推进,煤层上覆堆积物厚度增大,地下水补给作用减弱,煤中硫的聚集作用越来越弱。

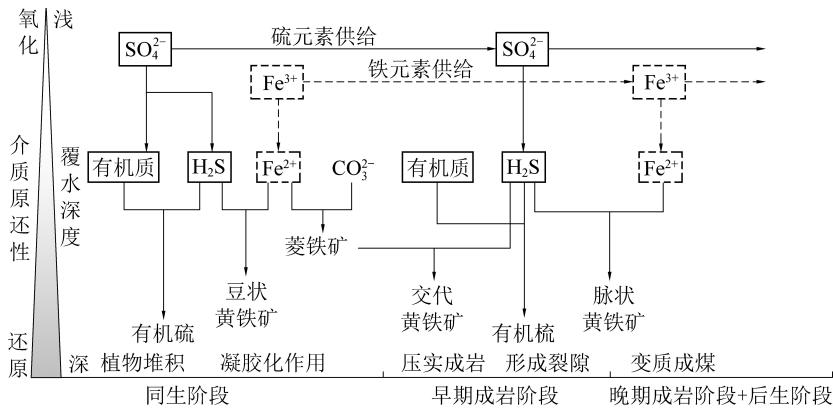


图10 榆横矿区南区煤中硫的聚集模式

Fig.10 Accumulation mode of sulfur in coal in southern Yuheng Mining Area

5 结 论

1) 榆横矿区南区煤中硫分普遍较高,以中硫煤、中高硫煤为主,高硫煤连片分布。各煤层中硫分平均值远高于鄂尔多斯盆地乃至全国早、中侏罗纪

煤中硫含量的平均值,属于陆相含煤盆地煤中硫分富集的特殊地质现象。

2) 平面上煤层硫分分布呈条带状,有自西北向东南、由物源向湖盆方向增高的趋势。垂向上,自下而上,各煤层硫分逐渐增大,分选后有机硫的比例

上升。

3) 同生阶段和早期成岩阶段的沉积微相是陆相含煤区煤中硫分富集的主要控制因素。分流河道发育区硫分相对较低,以中硫煤为主,分流间湾则以中高硫煤为主,局限浅湖为强还原的闭塞环境,有利于高硫煤的连片分布。此外,硫化铁硫的形成富集还受到凝胶化作用程度、氧化还原条件和水介质中的铁离子浓度的影响。有机硫的形成主要与凝胶化作用程度和还原条件有关。

4) 建立了陕北侏罗纪煤田陆相成煤环境下煤中硫的富集模式。煤中硫的富集主要受潮湿还原环境下地下水和地表水中硫、铁元素的补给控制,有机硫主要形成于同生阶段和早期成岩阶段初期,硫化铁矿的形成则贯穿了整个成煤期。随着煤层上覆堆积物厚度增大,地下水补给作用减弱,煤中硫的聚集作用越来越弱。

参考文献(References):

- [1] 周春光,杨起,康西栋,等.煤中硫研究现状[J].煤田地质与勘探,1999,27(1):16-20.
ZHOU Chuguang, YANG Qi, KANG Xidong, et al. Development on the study of sulfur in coal [J]. Coal Geology & Exploration, 1999, 27(1): 16-20.
- [2] 戴和武,陈文敏.中国高硫煤的特征和利用[J].煤炭科学技术,1989,32(5):30-35,62.
DAI Hewu, CHEN Wenmin. Characteristics and utilization of high sulfur coal in China [J]. Coal Science and Technology, 1989, 32 (5): 30-35, 62.
- [3] 胡军,郑宝山,王明仕,等.中国煤中硫的分布特征及成因[J].煤炭转化,2005,28(4):5-10.
HU Jun, ZHENG Baoshan, WANG Mingshi, et al. Distribution and forming cause of sulfur in Chinese coals [J]. Coal Conversion, 2005, 28(4): 5-10.
- [4] 罗陨飞,李文华,姜英,等.中国煤中硫的分布特征研究[J].煤炭转化,2005,28(3):14-18.
LUO Qifei, LI Wenhua, JIANG Ying, et al. Distribution of sulfur in coals of China [J]. Coal Conversion, 2005, 28(3): 14-18.
- [5] 唐跃刚,贺鑫,程爱国,等.中国煤中硫含量分布特征及其沉积控制[J].煤炭学报,2015,40(9):1977-1988.
TANG Yuegang, HE Xin, CHENG Aiguo, et al. Occurrence and sedimentary control of sulfur in coals of China [J]. Journal of China Coal Society, 2015, 40(9): 1977-1988.
- [6] 刘大锰,杨起,汤达祯,等.华北晚古生代煤中硫及微量元素分布赋存规律[J].煤炭科学技术,2000,28(9):39-42.
LIU Dameng, YANG Qi, TANG Dazhen, et al. Distribution and occurrence of sulfur and trace elements in late Paleozoic coal in North China [J]. Coal Science and Technology, 2000, 28 (9): 39-42.
- [7] 汤达祯,杨起,周春光,等.华北晚古生代成煤沼泽微环境与煤中硫的成因关系研究[J].中国科学(D辑:地球科学),2000,30(6):584-591.
TANG Dazhen, YANG Qi, ZHOU Chuguang, et al. Study on the relationship between the microenvironment of late Paleozoic coal-forming swamp in North China and the genesis of sulfur in coal [J]. Science in China (Series D), 2000, 30 (6): 584-591.
- [8] 唐跃刚,任德贻.煤中黄铁矿的成因研究[J].地质论评,1996,42(1):64-70.
TANG Yuegang, REN Deyi. The genesis of pyrites in coal [J]. Geological Review, 1996, 42 (1): 64-70.
- [9] 代世峰,任德贻,唐跃刚,等.乌达矿区高硫煤中菌藻类体的发现及意义[J].中国矿业大学学报,1999(1):64-67.
DAI Shifeng, REN Deyi, TANG Yuegang, et al. Findings and significance of algae and bacteria in high-sulfur coal seams in Wuda Coalfield, Inner Mongolia [J]. Journal of China University of Mining and Technology, 1999 (1): 64-67.
- [10] 代世峰,任德贻,唐跃刚,等.高硫煤中硫的地质演化模式:以内蒙古乌达矿区为例[J].地质论评,2001,47(4):383-387.
DAI Shifeng, REN Deyi, TANG Yuegang, et al. Model of sulfur accumulation in the high-sulfur coal: a case study from the Wuda Coalfield, Inner Mongolia [J]. Geological Review, 2001, 47 (4): 383-387.
- [11] 王胜建,高为,郭天旭,等.黔北林华井田煤质参数特征及其成煤沉积环境意义[J].煤炭科学技术,2017,45(10):162-168.
WANG Shengjian, GAO Wei, GUO Tianxu, et al. Coal quality parameters features and coal formation sedimentary environment significance of Linhua Minefield in North Guizhou [J]. Coal Science and Technology, 2017, 45 (10): 162-168.
- [12] 李碧,徐阳东,汤立方.织纳煤田红梅煤矿中硫分特征及其成煤环境研究[J].煤炭科学技术,2018,46(5):197-204.
LI Bi, XU Yangdong, TANG Lifang. Study on sulfur characteristics and coal paleoenvironment in Hongmei Mine of Zhina Coalfield [J]. Coal Science and Technology, 2018, 46 (5): 197-204.
- [13] 袁利.黔西南高硫煤的地质成因:黄铁矿与硫同位素分析[D].徐州:中国矿业大学,2014.
YUAN Li. Geological genesis of the high sulfur coal from Southwestern Guizhou: analysis of pyrite and sulfur isotope [D]. Xuzhou: China University of Mining and Technology, 2014.
- [14] 赵福平,舒万柏.贵州大方背斜南东翼煤中硫特征及成因分析[J].煤田地质与勘探,2006,34(5):9-12.
ZHAO Fuping, SHU Wanbai. Analysis on generation and distribution properties of sulfur of coal in south-eastern wing of Dafang anticline, Guizhou Province [J]. Coal Geology & Exploration, 2006, 34 (5): 9-12.
- [15] 王双明.鄂尔多斯盆地聚煤规律及煤炭资源评价[M].北京:煤炭工业出版社,1996.
- [16] 李小彦.陕甘宁盆地侏罗纪优质煤资源分类与评价[M].北京:地质出版社,2008.
- [17] 晋香兰,张泓.鄂尔多斯盆地侏罗系成煤系统[J].煤炭学报,2014,39(S1):191-197.
JIN Xianglan, ZHANG Hong. Jurassic coal system in the Ordos Basin [J]. Journal of China Coal Society, 2014, 39 (S1): 191-197.

- [18] 范立民,寇贵德,侯飞龙.榆神低硫煤中硫含量特征及成因探讨[J].中国煤田地质,2003,15(2):16-17.
FAN Limin, KOU Guide, HOU Feilong. Probe into features and geneses of sulfur content in low-sulfur coal of Yushen Mining Area[J]. Coal Geology of China, 2003, 15(2): 16-17.
- [19] 刘大猛,杨 起,汤达祯.鄂尔多斯盆地煤的灰分和硫、磷、氯含量研究[J].地学前缘,1999,6(S1):53-59.
LIU Dameng, YANG Qi, TANG Dazhen. A study on abundances and distribution of ash yield, sulfur, phosphorus and chlorine content of the coals from Ordos Basin[J]. Earth Science Frontiers, 1999, 6(S1): 53-59
- [20] 代世峰.内蒙古乌达矿区高硫煤中硫的成因[J].洁净煤技术,2000,12(1):41-45.
DAI Shifeng. Cause of sulfur formation in Inner Mongolia Wuda Coal Mine Areas high sulfur coal [J]. Clean Coal Technology, 2000, 12(1): 41-45.
- [21] 李智民.鄂尔多斯盆地侏罗纪坳陷湖泊的淤浅机制和聚煤作用:以陕西榆横区为例[M].北京:地质出版社,1992.
- [22] 唐跃刚,张会勇,彭苏萍,等.中国煤中有机硫赋存状态、地质成因的研究[J].山东科技大学学报:自然科学版,2002,21(4):1-4.
TANG Yuegang, ZHANG Huiyong, PENG Suping, et al. Study on occurrence mode and geological genesis of organic sulfur in coal in China[J]. Journal of Shandong University of Science and Technology: Natural Science, 2002, 21(4): 1-4.
- [23] 高青海.煤层成因和煤相研究历史回顾及其研究现状[J].中国煤田地质,2006,18(2):18-21,29.
GAO Qinghai. History review and research status of coal seam genesis and coal facies[J]. Coal Geology of China, 2006, 18 (2): 18-21,29.
- [24] 18-21,29.
王海军,马 良.陕北侏罗纪煤田三角洲平原沉积环境及其岩石力学特征[J].煤田地质与勘探,2019,47(3):61-69.
WANG Haijun, MA Liang. Study on sediment environment and rock mechanics characteristics of the delta plain of Jurassic Coalfield in Northern Shaanxi [J]. Coal Geology & Exploration, 2019, 47(1): 61-69.
- [25] 王双明.鄂尔多斯盆地构造演化和构造控煤作用[J].地质通报,2011,30(4):544-552.
WANG Shuangming. Tectonic evolution of the basin and Ordos Basin coal controlling structures[J]. Geological Bulletin, 2011, 30 (4): 544-552.
- [26] 王东东,邵龙义,李智学,等.鄂尔多斯盆地延安组层序地层格架与煤层形成[J].吉林大学学报:地球科学版,2013,43(6):1726-1739.
WANG Dongdong, SHAO Longyi, LI Zhixue, et al. Sequence stratigraphic framework and coal formation of Yan'an Formation in Ordos Basin [J]. Journal of Jilin University (Earth Science Edition), 2013, 43(6): 1726-1739.
- [27] 王海军.永陇矿区LYL井田2号煤层顶板沉积环境及其稳定性评价[J].煤田地质与勘探,2016,44(6):38-44.
WANG Haijun. Sedimentary environment and stability evaluation of seam roof of No. 2 seam in LYL Coal Mine of Yonglong Coalfield[J]. Coal Geology & Exploration, 2016, 44(6): 38-44.
- [28] 王海军.煤层顶板沉积环境对其稳定性影响研究[J].煤炭科学技术,2017,45(2):178-184.
WANG Haijun. Study on impact of sedimentary environment to stability of seam roof[J]. Coal Science and Technology, 2017, 45 (2): 178-184.