



移动扫码阅读

李焕同,张卫国,王楠,等.湖南寒婆坳矿区煤层夹矸的岩石矿物特征及其地质意义[J].煤炭科学技术,2022,50(4):206-212.

LI Huantong,ZHANG Weiguo,WANG Nan,*et al.*Mineral characteristics and geological significance of coal gangue in Hanpoao Coal Mining Area,Hunan Province[J].Coal Science and Technology,2022,50(4):206-212.

湖南寒婆坳矿区煤层夹矸的岩石矿物特征及其地质意义

李焕同^{1,2},张卫国¹,王楠¹,潘彦宁¹,陈应涛¹

(1.西安科技大学 地质与环境学院,陕西 西安 710054;2.陕西省煤炭绿色开发地质保障重点实验室,陕西 西安 710054)

摘要:煤变质程度升高和煤层夹矸中矿物的转化与周围变形环境变化密切相关,利用偏光显微镜、X 射线衍射(XRD)等测试手段,对湖南寒婆坳矿区煤层夹矸的岩石矿物学特征、伊利石结晶度等进行了研究,并探讨了黏土矿物特征直接或间接指示煤变质程度,以及对温度、压力等变化的响应。结果表明:黏土矿物这一层状结构硅酸盐矿物对研究区变形环境变化反应十分敏感,煤层夹矸中红柱石(空晶石)与伊利石、叶蜡石和绿泥石等共生,伊利石结晶度高,结晶度分布于 $0.140\ 60^{\circ}\sim 0.090\ 90^{\circ}\Delta 2\theta$,平均晶层厚度(L_c)大于 $566\times 10^{-1}\text{ nm}$;利用伊利石(001)峰面积、半高宽分别与不规则部分 γ 峰的面积和半高宽的比值,伊利石结晶有序度显示与煤有机结构演化一致的特征;镜质体反射率和拉曼光谱地质温度计揭示煤系石墨形成的变质温度为 $400\sim 500\text{ }^{\circ}\text{C}$ 或更高,指示研究区煤层遭受低级浅变质作用,煤层夹矸中伊利石为 $2M_1$ 多型, b_0 分布于 $8.883\ 6\sim 9.030\ 5\times 10^{-1}\text{ nm}$,指示煤层及围岩遭受低中压的变形环境,形成的压力条件在 $250\sim 400\text{ MPa}$ 或更高;依据不同变质程度煤的 XRD 结构参数随形成温度的变化,显示较高的受热条件是有机质演化和夹矸中矿物转变的重要因素,但是相近温度变化区间内煤中有机质结构单元面网间距(d_{002})持续减小,指示着地质过程强烈的构造应力能明显催化石墨化进程。

关键词:湖南寒婆坳矿区;煤层夹矸;矿物特征;伊利石;煤系石墨

中图分类号:P571;P611.2

文献标志码:A

文章编号:0253-2336(2022)04-0206-07

Mineral characteristics and geological significance of coal gangue in Hanpoao Coal Mining Area, Hunan Province

LI Huantong^{1,2},ZHANG Weiguo¹,WANG Nan¹,PAN Yanning¹,CHEN Yingtao¹

(1.College of Geology and Environment,Xi'an University of Science and Technology,Xi'an 710054,China;

2.Shaanxi Provincial Key Laboratory of Geological Support for Coal Green Exploitation,Xi'an 710054,China)

Abstract:The increase of coal metamorphism and the transformation of minerals in the gangue are closely related to the change of the surrounding deformation environment.The mineralogy characteristics and illite crystallinity of coal gangue in Hanpoao Coal Mining Area of Hunan Province were studied by means of polarizing microscope and X-ray diffraction (XRD).The characteristics of clay minerals directly or indirectly indicate the degree of coal metamorphism and its response to temperature and pressure changes were discussed.The results show that the clay mineral, a layered silicate mineral, is very sensitive to the change of deformation environment in the study area.The andalusite (chiastolite) in the coal seam is symbiosis with illite, phyllite and chlorite, etc.The crystallinity of illite is high, and the crystallinity is distributed in $0.140\ 6^{\circ}\sim 0.090\ 9^{\circ}\Delta 2\theta$, the average crystal thickness (L_c) is greater than $566\times 10^{-1}\text{ nm}$.The crystalline order degree of illite was consistent with the organic structural evolution, compared with the peak area, half height and width of illite (001) and the γ peak of irregular part.Vitrinite reflectance and Raman spectra of coal geological thermometer revealed graphite formation of the metamorphic temperature of $400\sim 500\text{ }^{\circ}\text{C}$ or higher, indicating the study area of coal seam by low-level epimetamorphism, illite in coal gangue is more than $2M_1$ model, b_0 distributed in $8.883\ 6\sim 9.030\ 5\times 10^{-1}\text{ nm}$, indicates the deformation environment of coal seam and surrounding

收稿日期:2021-12-01

责任编辑:周子博

DOI:10.13199/j.cnki.cst.2020-1526

基金项目:国家自然科学基金资助项目(41502160,41802187);陕西省自然科学基金基础研究计划资助项目(2019JM-126)

作者简介:李焕同(1986—),男,山东单县人,讲师,硕士生导师,博士。E-mail:htlcumt@126.com

rock under low and medium pressure, the pressure conditions formed are 250~400 MPa or higher. According to the change of XRD structure parameters of coal with different metamorphism degree with formation temperature, it shows that higher heating condition is an important factor of organic matter evolution and mineral transformation in gangue. However, the d_{002} spacing of organic matter structural basic units in coal continues to decrease in the range of similar temperature changes, indicating that the strong tectonic stress in the geological process can catalyze the graphitization process significantly.

Key words: Hanpoao Coal Mining Area of Hunan Province; coal gangue; mineral characteristics; illite; coal measure graphite

0 引言

煤层夹矸是在成煤过程中与煤层伴生的一种含碳量低、比煤坚硬的深灰色砂、泥质岩石,呈透镜体状、似层状或层状,使煤层结构复杂化及灰分增高,会给工业开采带来一定困难,通常用作发电、制造建筑材料、陶瓷、耐火材料或直接井下充填等。一定范围内稳定展布的煤层夹矸层可作为可靠的标志层帮助煤层对比,为恢复聚煤期古地理、沉积特征提供依据,并且之中的黏土矿物在成岩过程中对低温低压敏感,其成分、结构、形态、共存矿物等标型特征可反映成煤期后的变形环境,如利用伊利石结晶度、多型等^[1-4]定性或半定量的地质温度计估算温度值,利用伊利石 b_0 值分析变形环境中的压力条件;黏土矿物随着温、压力等环境的转变如同煤中有机质结构的演化一样是不可逆转的^[5],因此其特征可作为指示有机质成熟度的重要标志。煤同样对成煤期后的物理化学条件的变化特别敏感^[6-9],其有机质结构演化受温度、变质压力(尤其是剪应力)、变质持续时间、矿物质催化、流体成分和成煤原始物质等的综合影响^[7,10-11],趋势是增碳、脱氢氧、结构有序化程度逐渐提高^[12]。不同变质温度条件下,有机质或炭质物具有不同的拉曼光谱吸收谱带,利用该技术检测炭质物的结晶度,并利用炭质物拉曼光谱温度计^[13]反演不同变质类型煤的形成温度。

有机质的演化路径受温度、压力、流体及矿物催化等多种因素影响,尤其是温度和压力为最重要的因素。然而,不同地区的构造-热作用具有差异性,以致在对比有机质演化不同控制因素的贡献程度时存在一定难度,但是某一地区特定背景下有机质演化的控制因素(如温度、压力)可经过多方面证据逐一核实。因此,笔者研究了雪峰山构造带东缘寒婆坳矿区下古生界测水煤层夹矸显微构造特征、黏土矿物伊利石结晶度、煤中镜质体反射率及激光拉曼光谱地质温度计,探讨了岩浆热变质作用下煤层夹矸中矿物反映的温压环境的地质意义,研究天龙山岩体侵入引起煤系变质作用强度和规律,为本地区高煤级煤分级分质利用、煤炭由燃料向工业原料转变提供支持。

1 样品来源与测试

样品采自湖南寒婆坳矿区稠木煤矿、胜利煤矿、稗冲煤矿和石巷里煤矿3、5号煤层及夹矸(编号为g-CM、g-SL、g-BC、g-SXL3、g-SXL5),均为井下采样,采集后及时装入塑料样袋中封存,避免污染。煤样依据GB/T 212—2008、GB/T 31391—2015和GB/T 6948—2008分别进行工业分析、元素分析、镜质体反射率测定。

利用偏光显微镜进行了显微构造现象的观测与拍照;煤层夹矸样品在室内自然温度下经空气干燥,然后选择适量样品粉碎过筛至200目(0.074 mm)以下,同时与脱矿煤粉样品,分别采用MSAL-XD2X射线衍射仪获取相应谱图,测试条件为Cu靶,K辐射,管流30 mA,发散狭缝1 mm,接收狭缝0.30 mm,步进式扫描,步宽 0.02° ,扫描速度 $2(^\circ)/\text{min}$,扫描范围为 $5^\circ\sim 70^\circ$ 。采用LabRam HR Evolution型光谱仪对脱矿煤粉进行Raman测试,Ar⁺激发,激光波长532 nm,扫描范围 $400\sim 4\,000\text{ cm}^{-1}$,由于煤的非均质性,每次测试都在煤粉样的6个不同位置进行。

2 结果与讨论

2.1 岩石矿物学特征

2.1.1 岩石学特征

寒婆坳矿区测水组煤层中夹矸的主要岩石类型为泥岩、炭质泥岩(图1a、图1b)和砂质泥岩(图1c、图1d),颜色为深灰色,薄-中厚层状,致密硬实,层理较发育,层面上含稀疏植物化石碎屑。在花岗岩体侵入的热变质作用和定向应力影响下,随着向岩体接近,在强应变下岩石中矿物旋转向(图1a、图1c);重结晶过程未达到充分平衡时,仅部分矿物重结晶,形成红柱石(空晶石)(图1b),残留炭质包裹体呈带状或面状分布,热峰后退变质表现为红柱石绢云母化;高温环境中,石英晶粒不规则边界会逐渐变直,颗粒粒径增大,静态恢复重结晶使石英颗粒呈现六边形镶嵌结构(图1d左上);同时,靠近岩体的煤层转变成无烟煤-半石墨,直至隐晶质石墨。煤系中泥质类岩石形成红柱石(空晶石)等各类角岩,所需的温、压条件中,较主要的还是较高的受热条件。

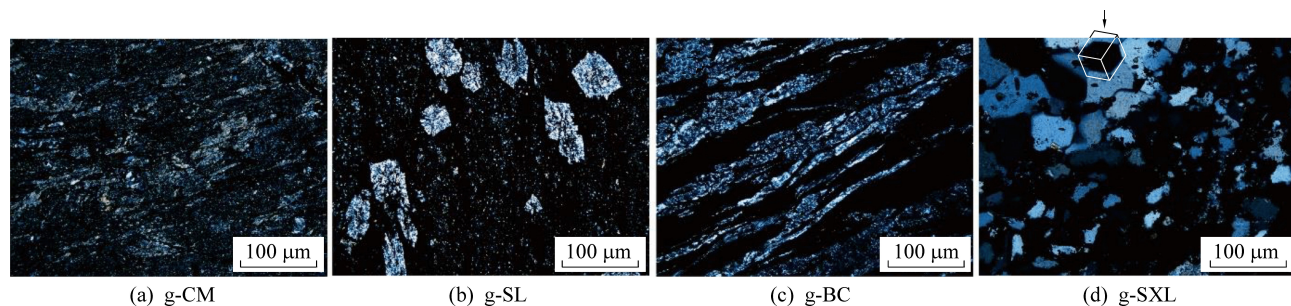


图1 煤层夹矸显微镜下典型照片(正交偏光)

Fig. 1 Typical micrograph of coal gangue in Hanpoao Coal Mining Area (cross-polarized light)

2.1.2 矿物学特征

天龙山岩体侵位引起煤系强烈变形、变质,同时使其围岩发生热变质作用,形成绿泥石带、红柱石(空晶石)带不同程度的变质带,煤层夹矸中主要矿物成分为黏土矿物(伊利石)、石英及炭质,另外还有少量电气石、白云石和菱铁矿等(表1,图2);黏土矿物以伊利石(白云母)、绿泥石、叶蜡石为主,含有少量绿泥石、云母、高岭石。根据黏土矿物和脆性矿物的含量将煤层夹

矸划分为泥(页)岩(石英质量分数<25%)、砂质泥(页)岩(石英质量分数一般为35%~75%),变质作用开始后变为板岩和千枚岩,如变形岩石中石英常表现为刚性(图1a),黏土矿物和炭质作为塑性基质常通过粒间滑移构成条带状构造(图1c),石英颗粒波状消光、变形纹、剪裂纹等较发育(图1d),反映一定程度上构造应力使岩石内部物质结构发生调整,变形环境总体上属于低温低压的脆性-韧脆性构造域。

表1 煤层夹矸中矿物含量特征

Table 1 Contents of minerals in coal gangue

| 样品编号 | 工业分析 | | 矿物质量分数 | | | | | | | | | | | | | % |
|--------|-------|------|--------|------|-------|------|------|------|-------|------|------|------|------|------|------|---|
| | 灰分 | 绿泥石 | 伊利石 | 云母 | 叶蜡石 | 高岭石 | 电气石 | 石膏 | 石英 | 钾长石 | 钠长石 | 方解石 | 白云石 | 菱铁矿 | 黄铁矿 | |
| g-CM | 83.26 | 1.79 | 37.79 | — | 53.14 | 1.73 | 0.36 | — | 2.67 | 0.93 | 0.38 | 0.32 | 0.19 | 0.13 | 0.58 | |
| g-SL | 95.47 | — | 23.17 | — | 45.23 | 3.31 | — | — | 26.80 | 1.06 | 0.21 | — | 0.14 | 0.08 | — | |
| g-BC | 96.28 | — | 15.77 | — | 41.28 | 1.43 | 0.67 | — | 37.73 | 2.01 | 0.80 | — | 0.14 | 0.17 | — | |
| g-SXL3 | 89.73 | 1.97 | 52.18 | 9.65 | 5.98 | — | 0.55 | — | 20.73 | 5.38 | 2.73 | — | 0.37 | 0.46 | — | |
| g-SXL5 | 85.76 | — | 34.57 | 2.99 | 11.05 | 2.13 | 0.40 | 1.33 | 44.93 | 1.56 | 0.59 | — | 0.24 | 0.20 | — | |

注:灰分测试方法依据 GB/T 212—2008 ;“—”为峰不明显或者未检出。

伊利石是一种含钾、硅和铝的含羟基层状结构硅酸盐矿物,通常与白云母相似,大多数是2:1型结构单元层的二八面体类型,并已被证实有 $2M_1$ 、 $1M$ 、 $1Md$ 和 $3T$ 等多型,化学结构式为 $KAl_2[(Si, Al)_4O_{10}] \cdot (OH)_2 \cdot nH_2O$ 。X射线衍射图中(图2a),伊利石 $d_{001}=9.98 \sim 10.19 \times 10^{-1} \text{ nm}$,其他衍射峰也很明显。在沉积盆地或浅变质岩区,伊利石可为物源区原生沉积,或由蒙脱石、高岭石在富钾、碱性条件下转变而成^[5,14],伊利石结晶程度取决于伊利石形成的古温度、压力、化学环境及生长时间等,但温度起决定性作用。而且随埋藏深度或者古地温增加,伊利石(001)峰峰形变窄、趋于对称,不规则肩峰(γ 峰)则逐渐收缩(图2b,图2c),反映无序度减小,而研究区伊利石结晶度均小于 $0.25^\circ \Delta 2\theta$,属于低级变质带,靠近岩体的石巷里煤层夹矸中伊利石结晶度最好, $KI=0.0909^\circ \Delta 2\theta$ (表2)。

叶蜡石一种结晶结构为2:1型的层状含羟基铝硅酸盐矿物,晶体有 $2M$ 、 $1T$ 等多型变体,理想结构式为 $Al_2Si_4O_{10}(OH)_2$ 。X射线衍射图中(图2a),煤层夹矸中叶蜡石的 $d_{001}=9.21 \sim 9.23 \times 10^{-1} \text{ nm}$ 。通常煤系中叶蜡石出现与低级变质作用有关,叶蜡石的形成温度(300°C)高于伊利石,在华北石炭二叠纪煤系的太原西山、豫西及北京门头沟等均有报道^[14-16]。叶蜡石的形成原因与热液交代作用、受热接触变质作用或动力变质作用相关^[15],但是寒婆坳矿区煤层中未见岩浆侵入,从而排除热液交代作用,同时煤层夹矸中发现红柱石(空晶石)等热接触变质矿物,由此认为叶蜡石形成与受热接触变质密切相关,是硅铝酸盐矿物在温度压力增高的硅化脱水而成。

2.2 煤层夹矸中伊利石结晶度、多型、 b_0 的地质意义

伊利石结晶度研究包括晶体结构的完整程度,以及结构中原子或离子在三度空间上的延展和有序

性,一些学者利用伊利石结晶度与其形成温度之间的关系提出了成岩-极低级变质作用的划分方案^[2,17]:即晚期成岩带(高级成岩带)的伊利石结晶度为 $1.0^{\circ}\sim 0.42^{\circ}\Delta 2\theta$,温度上限 200°C ;低级近变质带(极低级变质带 I)的伊利石结晶度在 $0.42^{\circ}\sim 0.30^{\circ}\Delta 2\theta$;高级近变质带(极低级变质带 II)的伊利石结晶度变化于 $0.30^{\circ}\sim 0.25^{\circ}\Delta 2\theta$,温度上限 $300\sim 350^{\circ}\text{C}$;浅变质带的伊利石结晶度 $<0.25^{\circ}\Delta 2\theta$,温度

下限 350°C 。由表 2 可知,伊利石结晶度变化于 $0.1406^{\circ}\sim 0.0909^{\circ}\Delta 2\theta$ 之间,平均值 $0.1195^{\circ}\Delta 2\theta$,石巷里煤矿煤层夹矸变形相对强烈,反映热变质对伊利石结晶度的较大影响,其伊利石结晶度为 $0.0909^{\circ}\Delta 2\theta$ 。按照成岩-极低级变质作用的划分方案^[2,17],表明研究区变质温度高于 350°C ,早古生代测水组煤系属于低级变质带,伊利石结晶度依次升高:g-CM \rightarrow g-SL \rightarrow g-BC \rightarrow g-SXL3 \rightarrow g-SXL5。

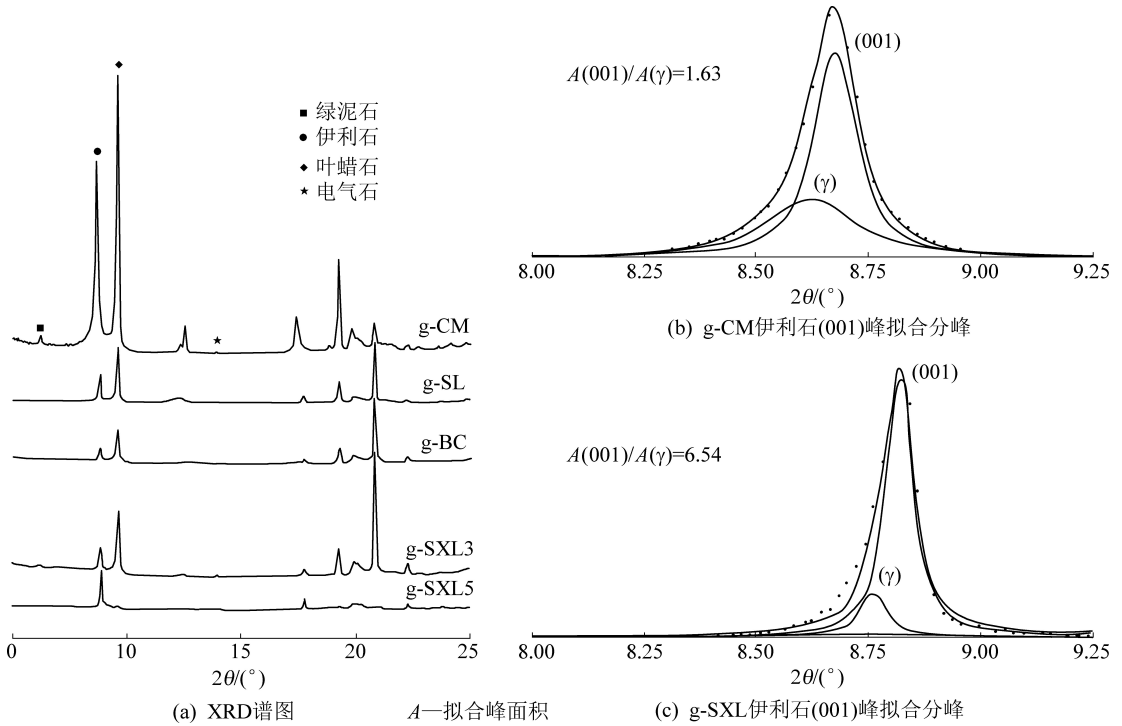


图2 寒婆坳矿区煤层夹矸 XRD 谱图

Fig. 2 X-ray of coal gangue in Hanpoao Coal Mining Area

伊利石(白云母)多型是结构单元层的叠置方式不同而形成的变体,每一种多型成分相同,晶体结构有差异。 $2M_1$ 型伊利石,在 $d_{006}=3.36\times 10^{-1}\text{nm}$ 衍射峰两侧,还有 3.88 、 3.65 、 3.10 、 2.86 和 $2.57\times 10^{-1}\text{nm}$ 等 7 条清晰的衍射峰,而 1M 型伊利石,在 $d_{003}=3.33\times 10^{-1}\text{nm}$ 衍射峰两侧只有对称的 3.62 和 $3.08\times 10^{-1}\text{nm}$ 两个衍射峰。伊利石(白云母)多型与形成时的古温度、压力等因素密切相关。伊利

石(白云母)1Md 多型,经常出现在晚期成岩带,形成温度一般小于 200°C ^[17]; $2M_1$ 多型,多为极低级变质作用的产物,形成温度一般大于 200°C ,寒婆坳矿区煤层夹矸中伊利石(白云母)多型均为 $2M_1$ 多型,堆垛高度 L_c 为 $566.89\sim 876.83\times 10^{-1}\text{nm}$,平均层数 N 为 $56.62\sim 88.86$,反映形成时的古温度相对较高,在 200°C 以上,属于近变质带-浅变质带的产物,这同伊利石结晶度的研究结果一致。

表2 寒婆坳矿区煤层夹矸伊利石(白云母)XRD 参数

Table 2 Structure parameters from XRD spectra of illite (Muscovite) in coal gangue, Hanpoao Coal Mining Area

| 样品编号 | 结晶度 $\text{KI}/(^{\circ}\Delta 2\theta)$ | $b_0/10^{-1}\text{nm}$ | 多型 | $2\theta_{(001)}/(^{\circ})$ | $d_{001}/10^{-1}\text{nm}$ | $L_c/10^{-1}\text{nm}$ | N |
|--------|---|------------------------|--------|------------------------------|----------------------------|------------------------|-------|
| g-CM | 0.140 6 | 8.883 6 | $2M_1$ | 8.67 | 10.19 | 566.89 | 56.62 |
| g-SL | 0.103 7 | 8.997 1 | $2M_1$ | 8.83 | 10.01 | 768.42 | 77.78 |
| g-BC | 0.103 5 | 8.922 7 | $2M_1$ | 8.83 | 10.01 | 769.60 | 77.88 |
| g-SXL5 | 0.097 1 | 9.030 5 | $2M_1$ | 8.81 | 10.02 | 820.64 | 82.86 |
| g-SXL3 | 0.090 9 | 8.993 6 | $2M_1$ | 8.85 | 9.98 | 876.83 | 88.86 |

伊利石(白云母)可以作为一种应力矿物应用在成岩-极低变质作用研究中,其单位晶胞结构参数 b_0 值作为岩体形成应力的函数^[1,4]。根据伊利石(白云母) b_0 值的大小^[1],将应力划分成3个系列: $b_0 < 9.000\ 0 \times 10^{-1}\text{ nm}$,为低压相; $9.000\ 0 \times 10^{-1}\text{ nm} < b_0 < 9.040\ 0 \times 10^{-1}\text{ nm}$,属中压相; $b_0 > 9.040\ 0 \times 10^{-1}\text{ nm}$,是高压相。研究区伊利石(白云母) b_0 值分布于 $8.883\ 6 \sim 9.030\ 5 \times 10^{-1}\text{ nm}$,平均值 $9.019 \times 10^{-1}\text{ nm}$,表明区内早古生代地层的变质压力属于低-中压的环境,而且仅有g-SXL5样品 b_0 值偏高,其余与构造岩组研究显示区域上的低压环境相一致。

2.3 煤变质程度与煤层夹矸矿物特征的关系

煤样根据GB/T 5751—2009中国煤炭分类,属于无烟煤二号,其镜质体最大反射率(R_{\max})变化于 $5.46\% \sim 7.89\%$ (表3),平均值 6.51% ,根据

表3 寒婆坳矿区煤样综合测试成果^[7-8]

Table 3 Integrative experimental result of coal samples in Hanpoao Coal Mining Area^[7-8]

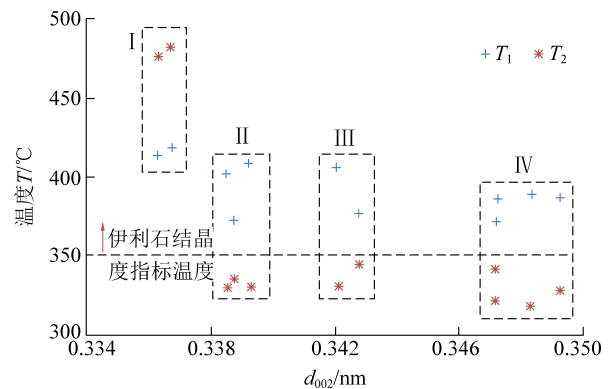
| 采样地 | $R_{\max}/\%$ | 工业分析/% | | | | 元素分析/% | | d_{002} | L_c | L_a |
|-------|---------------|-----------------|-------------|------------------|------------------|------------------|------------------|---------------|-------------|-------------|
| | | M_{ad} | 灰分 | V_{daf} | FC_{ad} | C_{daf} | H_{daf} | | | |
| 稠木煤矿 | 5.46~6.29 | 0.45~6.22 | 1.23~13.30 | 4.23~6.95 | 77.08~93.50 | 88.05~94.54 | 0.79~1.33 | 0.3471~0.3492 | 1.77~2.05 | 5.42~8.12 |
| | 6.02(4) | 1.94(4) | 7.27(4) | 5.06(4) | 86.19(4) | 91.63(4) | 1.11(4) | 0.3480(4) | 1.89(4) | 7.11(4) |
| 胜利煤矿 | 5.67~7.20 | 1.81~5.26 | 1.39~12.38 | 4.66~5.79 | 78.06~91.19 | 87.22~93.05 | 0.74~0.93 | 0.3393~0.3428 | 2.94~6.06 | 8.09~10.70 |
| | 6.59(3) | 3.67(3) | 7.46(3) | 5.22(3) | 84.20(3) | 90.93(3) | 0.85(3) | 0.3414(2) | 4.15(3) | 9.41(3) |
| 稗冲煤矿 | 6.13~7.29 | 1.27~1.97 | 6.26~10.26 | 4.21~4.65 | 84.75~87.51 | 91.68~94.50 | 0.47~0.71 | 0.3385~0.3388 | 7.50~12.18 | 13.41~27.18 |
| | 6.71(2) | 1.62(2) | 8.26(2) | 4.43(2) | 86.13(2) | 93.09(2) | 0.59(2) | 0.3387(2) | 9.84(2) | 20.29(2) |
| 石巷里煤矿 | 7.56~7.89 | 1.42~3.05 | 11.62~42.86 | 4.85~6.83 | 51.92~81.19 | 94.21~95.27 | 0.44~0.45 | 0.3363~0.3368 | 23.20~27.20 | 55.68~58.82 |
| | 7.73(2) | 2.24(2) | 27.24(2) | 5.84(2) | 66.56(2) | 94.74(2) | 0.45(2) | 0.3366(2) | 25.20(2) | 57.25(2) |

注:数据格式
最小值~最大值
平均值(样品数)。

采用研究区煤样有机质结构的拉曼光谱参数^[7,9],根据拉曼光谱地质温度计 $T = 221Z_2^2 - 637.1Z_2 + 672.3$ ^[3],其中 $Z_2 = D_1 / (G + D_1 + D_2)_{\text{area}}$, Z_2 为中间参数代号, D_1 、 G 、 D_2 为拉曼光谱拟合分峰。估算寒婆坳矿区煤层的变质古地温为 $312 \sim 480\text{ }^\circ\text{C}$,其中石巷里煤矿煤层的变质温度要远大于利用镜质组反射率温度计估算结果,同时PRESSWOOD等^[19]利用式 $\ln R_o = 0.007\ 8T_{\max} - 1.2$ 估算岩浆侵入影响煤样的变质温度时,亦发现由镜质体反射率温度计估算值偏低,这种情况在一定程度上也可以理解为在岩体侵位的热变质作用下形成煤系石墨时,有机质结构的跃变(拉曼参数等)要优先于物理参数 R_m 的变化。综合研究区岩石特征、矿物特征、镜质组反射率和拉曼参数等研究,可推断煤系石墨的变质温度应为 $400 \sim 500\text{ }^\circ\text{C}$ 或更高(图3)。

煤是一种短程有序、长程无序的非晶态物质,其

ISO 11760:2005(E)分类,煤级处于高阶无烟煤阶段。镜质组反射率是公认的反映沉积有机质热演化成熟度的指标,亦是煤化作用阶段的划分和对比的重要指标,由于芳环结构缩合和缔合形成芳香层片密集单元使反射率升高,并保持连续不可逆的变化,所以可记录地质历史时期有机质遭受的变质温度。一般认为浅变质带 R_o (镜质组反射率) $>4.0\%$,温度大于 $300 \sim 350\text{ }^\circ\text{C}$ ^[17],因此可定性地描述镜质体反射率与古地温(极低级变质作用)的关系。又如利用镜质组反射率地质温度计式 $\ln R_o = 0.007\ 8T_{\max} - 1.2$,来估算最大的古地温^[18],由此式,可计算得出研究区煤层所遭受的变质温度为 $373 \sim 419\text{ }^\circ\text{C}$ (图3),因而形成煤系石墨的温度应在 $410\text{ }^\circ\text{C}$ 以上。由镜质组反射率地质温度计估算的温度值与伊利石结晶度正相关,同时与其反应的变质温度一致。



T_1 —镜质组反射率地质温度计; T_2 —拉曼光谱地质温度计;

I—石墨;II—半石墨;III—超无烟煤;IV—无烟煤

图3 不同变质类型煤的形成温度随XRD结构参数的变化
Fig. 3 Changes of formation temperature of different metamorphic coals with XRD structural parameters

对应力、应变和温度的作用敏感,随着变质程度增高,煤的基本结构单元线度持续增大,面网间距 d_{002}

持续减小,一般采用结构参数 d_{002} 划分石墨 ($d_{002} < 0.338 \text{ nm}$)、半石墨 ($0.338 \text{ nm} \leq d_{002} \leq 0.340 \text{ nm}$)、超无烟煤 ($0.340 \text{ nm} \leq d_{002} \leq 0.344 \text{ nm}$) 和无烟煤 ($d_{002} > 0.344 \text{ nm}$) 等类型,可见研究区煤样(表3)呈现出超无烟煤~隐晶质石墨的分带^[7],煤系石墨形成的最大温度在 $480 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 左右(图3)。然而,无烟煤在人工条件下 $2\,000 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 以上的高温才能转化为石墨,远大于自然条件下煤系石墨的形成温度,即使在无烟煤样品加压热处理进行时,整个样品在 $1\,700 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 才突然转化为石墨^[11],图3中在无烟煤阶段 IV~半石墨 II 阶段随着结构参数 d_{002} 减小而变质温度变化不显著,所以推断在较高温度作用的基础上,构造应力(挤压或剪切应力)缩聚机制致使芳香结构向整体秩序化扩展,面网间距快速减小,才是天然条件下煤中有机质大分子结构向石墨这种无机矿物转变的重要促进因素。再者,根据伊利石(白云母) b_0 值(低中压的环境)判断研究区相当于绿片岩相变质带,估计天然石墨形成的压力条件在 $250 \sim 400 \text{ MPa}$ 或更高,显然强烈的构造应力能明显加速石墨化进程。

煤中有机质结构变化不仅是温度的函数,而且还受到热事件持续时间、压力、剪切应力、原始物质类型(煤岩组分)和岩浆热液成分(水、碱金属卤化物)的影响,光学性质变化表现在镜质组反射率不断增加,化学结构和成分的变化使芳香稠环结构面网间距减小、延展度及堆砌度增大。黏土矿物基本结构相似的含水层状硅酸盐矿物,对构造物理化学条件同样敏感,相应其结构也会产生变化,所以本次对 $d_{001} = 10.0 \times 10^{-1} \text{ nm}$ 峰进行拟合(图2),用(001)峰面积、半高宽与不规则部分 γ 峰相比,记为 $A(001)/A(\gamma)$ 、 $FWHM(001)/FWHM(\gamma)$,煤层夹矸中伊利石结晶有序度与煤变质程度(图4)、结构演化相一致,并能提供温度、压力等更有意义的信息。

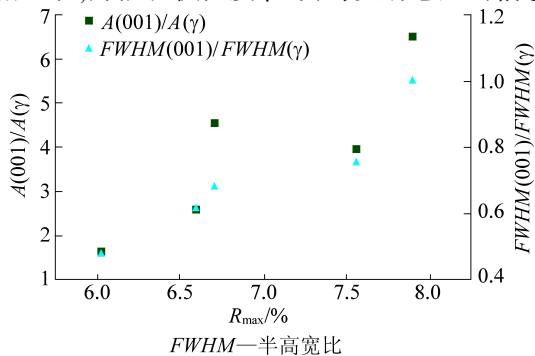


图4 煤层夹矸中伊利石(001)峰与 γ 峰的分峰面积、半高宽比值随 R_{\max} 演化趋势

Fig. 4 Area, FWHM of illite (001) and γ peak change with R_{\max} evolution trend in coal gangue

3 结 论

1) 寒婆坳矿区测水组煤层夹矸中红柱石(空晶石)与伊利石、叶蜡石和绿泥石等共生,表现为热峰后退变质绢云母化,残留炭质包裹体呈带状或面状分布,伊利石结晶度高,构造岩组分析变形环境整体为较高受热条件的低温低压的脆性-韧脆性构造域。

2) 煤层夹矸中伊利石结晶度分布于 $0.140\,6^{\circ} \sim 0.090\,9^{\circ} \Delta 2\theta$, 多为 $2M_1$ 多型, b_0 分布于 $8.883\,6 \sim 9.030\,5 \times 10^{-1} \text{ nm}$, 表明研究区变质温度高于 $350 \text{ }^{\circ}\text{C}$, 属于低级浅变质带低中压的环境,煤系石墨形成的压力条件在 $250 \sim 400 \text{ MPa}$ 或更高。

3) 镜质组反射率和拉曼光谱地质温度计揭示煤系变质温度为 $400 \sim 500 \text{ }^{\circ}\text{C}$ 或更高,与伊利石结晶度等一致;利用伊利石(001)峰面积、半高宽与不规则部分 γ 峰的面积和半高宽的比值,伊利石结晶有序度显示与煤有机结构演化一致的特征。

参考文献 (References):

- [1] GUIDOTTI C V, SASSI F P. Classification and correlation of metamorphic facies series by means of muscovite b_0 data from low grade metapelites [J]. Neues Jahrbuch für Mineralogie Abhandlungen, 1986(153): 363-380.
- [2] 毕先梅, 莫宣学. 成岩—极低级变质—低级变质作用及有关矿产 [J]. 地学前缘, 2004, 11(1): 287-294.
BI Xianmei, MO Xuanxue. Transition from diagenesis to low grade metamorphism and related minerals and energy resources [J]. Earth Science Frontier, 2004, 11(1): 287-294.
- [3] AOYA M, KOUKETSU Y, ENDO S, et al. Extending the applicability of the Raman carbonaceous-material geothermometer using data from contact metamorphic rocks [J]. Journal of Metamorphic Geology, 2010, 28(9): 895-914.
- [4] 胡大千, 韩春元, 马 瑞, 等. 内蒙古锡林郭勒地区上古生界极低级变质作用: 伊利石和镜质体反射率的证据 [J]. 岩石学报, 2012, 28(9): 3042-3050.
HU Daqian, HAN Chunyuan, MA Rui, et al. The very low grade metamorphism in the Upper Paleozoic in Xinlingol area of Inner Mongolia, NE China: Evidence from studies of illite and vitrinite reflectance [J]. Acta Petrologica Sinica, 2012, 28(9): 3042-3050.
- [5] 任磊夫, 陈芸菁. 从粘土矿物的转变讨论沉积成岩到变质过程中的阶段划分 [J]. 石油与天然气地质, 1984, 5(4): 325-334.
Ren Leifu, Chen Yunjing. On the devision of diagenesis stages according to the transformation of clay minerals [J]. Oil & Gas Geology, 1984, 5(4): 325-334.
- [6] 李小明, 曹代勇. 不同变质类型煤的结构演化特征及其地质意义 [J]. 中国矿业大学学报, 2012, 41(1): 74-81.
LI Xiaoming, CAO Daiyong. The structural evolution character of different types of coal metamorphism and its geological significance [J]. Journal of China University of Mining & Technology, 2012,

- 41(1):74-81.
- [7] 李焕同,王楠,朱志蓉,等.高煤级煤—隐晶质石墨的 Raman 光谱表征及结构演化[J].煤田地质与勘探,2020,48(1):34-41.
- LI Huantong, WANG Nan, ZHU Zhirong, *et al.* Raman spectrum characteristic and structural evolution of high rank coals—cryptocrystalline graphite[J].Coal Geology & Exploration,2020,48(1):34-41.
- [8] 李焕同,陈飞,邹晓艳,等.湖南新化天龙山岩体侵位对煤系变形变质的构造效应[J].煤炭学报,2019,44(7):2206-2215.
- LI Huantong, CHEN Fei, ZOU Xiaoyan, *et al.* Effect of intrusion of the Tianlongshan Granite Body on coal seam deformation and metamorphism characteristics in Xinhua Area, Hunan Province[J].Journal of China Coal Society,2019,44(7):2206-2215.
- [9] 李焕同,王楠,朱志蓉,等.湖南寒婆坳矿区热变质煤结构演化及其矿物学特征响应[J].地质学报,2020,94(11):3503-3514.
- LI Huantong, WANG Nan, ZHU Zhirong, *et al.* structural evolution and mineralogical characteristics of magmatic metamorphic coals in Hanpoao coal mining area, Hunan Province[J].Acta Geologica Sinica,2020,94(11):3503-3514.
- [10] BUSTIN R M, ROSS J V, ROUZAUD J N. Mechanisms of graphite formation from kerogen: experimental evidence[J].International Journal of Coal Geology,1995,28(1):1-36.
- [11] BONIJOLY M, OBERLIN M, OBERLIN A A. possible mechanism for natural graphite formation[J].International Journal of Coal Geology,1982,1(4):283-312.
- [12] BUSECK P R, BEYSSAC O. From organic matter to graphite: graphitization[J].Elements,2014,10(6):421-426.
- [13] BEYSSAC O, GOFFÉ B, CHOPIN C, *et al.* Raman spectra of carbonaceous material in metasediments: a new geothermometer[J].Journal of Metamorphic Geology,2002,20(9):859-871.
- [14] 张慧.西北中生代煤系粘土矿物与煤变质关系[J].中国煤田地质,1994,6(4):44-47.
- ZHANG Hui. The relationship between coal measure clay minerals and coal metamorphism in Northwest Mesozoic[J].Coal Geology of China,1994,6(4):44-47.
- [15] 史斌,刘鑫,辛蜜蜜,等.京西门头沟叶腊石泥岩矿物学特征[J].煤田地质与勘探,2017,45(3):25-31.
- SHI Bin, LIU Xin, XIN Mimi, *et al.* Mineralogic characteristics of pyrophyllite mudstone in Mentougou, western Beijing[J].Coal Geology & Exploration,2017,45(3):25-31.
- [16] 魏孔明.晋城矿区无烟煤层中泥岩夹矸的变化特征及成因探讨[J].岩石矿物学杂志,2003,22(2):150-154.
- WEI Kongming. Characteristics and origin of tonstein intercalations in the anthracite bed of Jincheng Mining Area[J].Acta Petrologica et Mineralogica,2003,22(2):150-154.
- [17] BEVINS RICHARD E, ROBINSON DOUG. Low-grade metamorphism[J].Geology Today,1992,8(1):23-27.
- [18] BARKER C E, PAWLEWIEZ M J. The correlation of vitrinite reflectance with maximum temperature in humic organic matter[J].Lecture Notes in Earth Science,1986(5):79-81.
- [19] PRESSWOOD SEVERIN M, RIMMER SUSAN M, ANDERSON KEN B, *et al.* Geochemical and petrographic alteration of rapidly heated coals from the Herrin (No.6) Coal Seam, Illinois Basin[J].International Journal of Coal Geology,2016,165:243-256.