

黄健欣, 安燕飞, 韩郑, 等. 接触变质煤微形貌特征及成因分析[J]. 岩矿测试, 2023, 42(6): 1132-1141. doi: 10.15898/j.ykcs.202301160009.

HUANG Jianxin, AN Yanfei, HAN Zheng, et al. Micromorphological Characteristics and Origin Analysis of Contact Metamorphic Coal[J]. Rock and Mineral Analysis, 2023, 42(6): 1132-1141. doi: 10.15898/j.ykcs.202301160009.

接触变质煤微形貌特征及成因分析

黄健欣, 安燕飞*, 韩郑, 何舒扬, 郑硕, 刘丙祥
(安徽大学资源与环境工程学院, 安徽 合肥 230601)

摘要: 煤层作为岩石圈重要的碳库, 被岩浆破坏和吞噬, 直接加速了地质历史上岩石圈的碳循环。为揭示该过程中接触变质煤微形貌的变化过程和原因, 本研究采集了皖北袁店二矿岩体外围不同热变质程度的接触变质煤样品, 进行了煤质分析、可溶有机组分分离、气相色谱-质谱(GC-MS)、偏光显微镜(PLM)、扫描电镜(SEM)等实验。结果显示, 趋近岩体, 样品挥发份、氢、氮、可溶有机质含量减少; 灰分产率和镜质组反射率增加; 可溶芳烃当中萘系列相对含量降低, 菲系列相对含量升高。未受影响煤和浅热变质煤显微组分主要由胶质结构体组成, 后者裂隙发育。天然焦主要由镶嵌结构体组成, 局部发育形状不规则的脱挥发孔, 孔径多介于 $20\mu\text{m}\times 50\mu\text{m}$ 至 $50\mu\text{m}\times 150\mu\text{m}$ 。火夹焦主要由多孔炭和炭微球组成: 多孔炭富含圆形-椭圆形气孔, 孔径多介于 $0.5\sim 3\mu\text{m}$, 炭微球群发育在裂隙以及气孔内壁上。分析表明, 趋近岩体, 煤层热变质程度持续增加: 浅热变质煤是煤层受较弱热变质而脆性断裂的产物; 天然焦是浅热变质煤脱挥发份、塑性形变所致; 火夹焦是天然焦被岩浆进一步中间相化的结果。因此, 本文认为, 接触变质煤消失过程中微形貌的变化是煤岩组分热蚀变、脱挥发份、中间相化的过程。

关键词: 袁店煤矿; 接触变质煤; 扫描电镜; 镶嵌结构; 炭微球

要点:

- (1) 运用烃源岩族组分分离技术, 获得接触变质煤中可溶有机质含量和组成新数据。
- (2) 结合偏光显微镜和扫描电镜结果, 揭示了接触变质煤微组构“中间相化→熔融→气化”的演化规律。
- (3) 利用煤质及有机组分分析, 阐明了接触变质煤微组构演化的有机地球化学过程。

中图分类号: X14

文献标识码: A

煤层是化石燃料的重要组成部分, 保障了国家经济发展的能源供给, 尽管它是生物、沉积和煤化作用缓慢累积的产物, 但却是地球系统中重要的碳库储备^[1-2]。煤层在构造运动和地质活动过程中, 会被岩浆破坏和吞噬^[3-5], 不仅加速了地质历史上的缓慢碳循环过程, 而且改变和破坏了当时的岩石圈的碳循环平衡^[6]。作为中生代的全球性构造岩浆活动期, 燕山期岩浆侵入中生代含煤盆地, 大规模侵入和吞噬煤层^[7-10]。

岩浆的接触变质作用, 强烈改变煤岩组成和组

分特征, 主要表现为: 镜质组反射率增大、灰分产率增加, 挥发份和氢元素大幅减少, 产生光学各向异性组分^[11]。另一方面, 在岩浆热的驱动下, 煤层被热解和混入大量新生物质, 导致有毒元素富集^[12-14], 瓦斯突出风险增大^[15-16], 矿物组成改变^[17-20]。现有的接触变质煤的相关研究主要集中在煤层煤质、煤层气、微量元素、矿物, 这些认识大多是通过工业分析、光谱分析、X射线衍射(XRD)等方法间接地认识接触变质煤, 其煤岩组分的微形貌特征还有待于进一步研究^[21-24]。

收稿日期: 2023-01-16; 修回日期: 2023-03-17; 接受日期: 2023-06-16

基金项目: 国家自然科学基金项目(41602173, 42272203); 安徽省高校自然科学基金项目(KJ2021A0082)

第一作者: 黄健欣, 硕士研究生, 从事变质煤微组构研究。E-mail: jianxinh@foxmail.com。

通信作者: 安燕飞, 博士, 副教授, 从事热变质煤岩学、煤岩微组构研究。E-mail: anyanfei0557@163.com。

为了探讨该过程中被岩浆侵入和吞噬的煤层微形貌的演化过程,本文以皖北袁店二矿岩-煤接触变质带样品为研究对象,通过工业分析、元素分析、可溶有机组分分离、GC/MS、偏光显微镜(PLM)、扫描电镜(SEM)等实验数据,分析其微形貌特征,厘定接触变质煤的具体形成过程,特别是天然焦中显微组分的演化关系,从而揭示煤层被岩浆吞噬的热变质过程,加深科技工作者对中生代岩石圈碳库快速活化的认识。

1 研究区概况

袁店二矿位于中国安徽省亳州市境内。其大地构造位于华北板块东南缘的光武—固镇断裂附近。矿区含煤地层为石炭系和二叠系。工业煤层为 3_2 、 7_2 、10,总厚6.17m,占可采煤层总厚的77.7%,以烟煤为主。矿井部分区域岩浆岩顺断层上侵入至7煤层(组)中。侵入岩岩墙主要为中性闪长岩、闪长玢岩和基性辉长岩、辉绿岩。岩墙宽约0.5~1.2m。煤层部分因岩浆侵入被蚀变形成岩-煤接触变质带。从岩体向外,接触变质带依次可划分为焦-岩混合带、天然焦带、浅热变质煤带、未受影响煤带。焦-岩混合带厚度小于0.1m;天然焦带厚约0.5m;浅热变质煤带厚约0.8m;未受影响煤带分布于岩墙1.4m以外(图1)。

2 实验部分

2.1 样品采集

样品采自袁店二矿8-3采区7-2煤层7238工作面(图1),依据《煤层煤样采集方法》(GB/T 482—2008)。采样位置侵入岩体为基性辉绿岩。本次一共采集了4种类型样品(样品编号YE01~YE06)。

火夹焦样品YE01取自焦-岩混合带;天然焦样品YE02取自天然焦带;浅热变质煤样品YE03取自浅热变质煤带;未受影响煤样品YE04~YE06取自未受影响煤带。图2给出不同类型样品的手标本照片。火夹焦以裂隙脉的方式展布于岩体边缘,含方解石脉,致密、坚硬、黑色、无光泽(图2a)。天然焦坚硬多孔、钢灰色、光泽暗淡(图2b)。浅热变质煤裂隙发育、黑灰色、有光泽(图2c)。未受影响煤质地轻脆、无明显裂隙、黑色、金属光泽、染手(图2d)。

2.2 样品测试

工业分析:测定样品水分、灰分、挥发份等指标,所使用仪器为SDTGA 5000a工业分析仪。

元素分析:测定样品碳、氢、氮等指标,所用仪器为VarioEL-3元素分析仪。

镜质组反射率测试:所使用仪器为MPV-SP型显微光度计,测试标准物为钨镓石榴石(浸油反射率1.72%)。

正交偏光显微镜型号为Olympus BX53,该设备配有4、10、20、50倍物镜以及CellSens显微成像软件、Olympus图像分析软件和D73摄像头。超高分辨率扫描电子显微镜型号为Regulus 8230,仪器加速电压为1~30kV,图像最大分辨率高于5nm。

样品研磨至200目后,用于索氏提取和有机组分分离实验,采用仪器为HP-Agilent 6890/5973气相色谱仪。气相色谱仪设定条件:4℃/min升温至300℃,60℃保持5min,300℃保持15min;电子能量70eV,变化范围50~650Da。芳香烃的鉴定基于ChemStation软件。

2.3 测试数据质量控制

样品采集后,立即密封储存在样品袋中,减少污

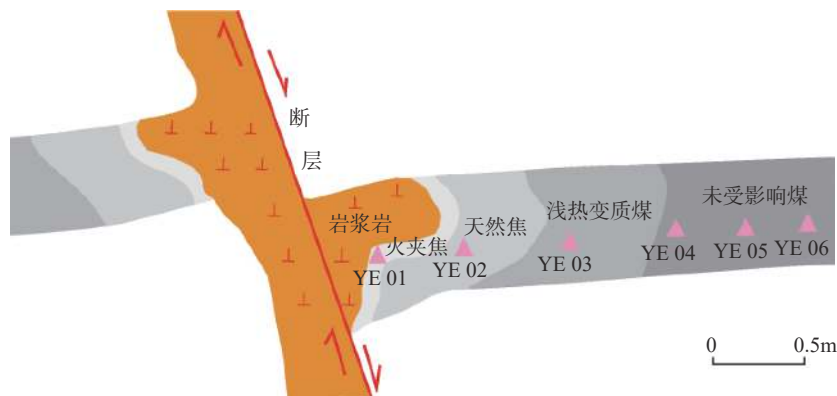
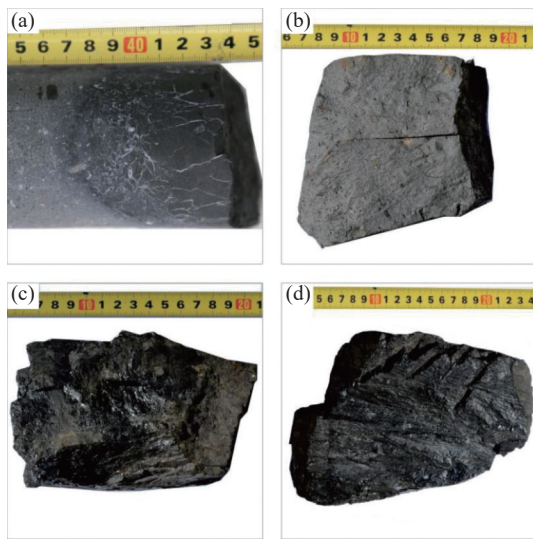


图1 袁店二矿8-3采区7-2煤层7238工作面剖面取样示意图

Fig. 1 Sampling profile of metamorphic coal from working face 7238 of coal seam 7-2 in mining area 8-3 of Yuandian No.2 coal mine.



a—火夹焦 YE01; b—天然焦 YE02; c—浅热变质煤 YE03; d—未受影响煤 YE05。

图2 袁店二矿 8-3 采区 7-2 煤层 7238 工作面样品手标本照片
Fig. 2 Hand specimen pictures from working face 7238 of coal seam 7-2 in mining area 8-3 of Yuandian No.2 coal mine.

染和氧化。工业分析、元素分析实验中,样品被充分研磨,均匀混合。工业分析仪器中需放置底托、坩埚,再称取规定量样品,盖上坩埚盖子,每次放置样品后需擦拭药勺。元素分析测试依次称取 15mg、20mg 以及 25mg 的标准待测样,利用压样器、坐样器将包好标准样品的锡纸进行压实,并且保证锡纸没有破损,没有样品漏出,如果锡纸破损,则重新称取标样。镜质组反射率测试中,每个样品测定位置大于 30 处。偏光显微实验中,共制取 20 个样品显微薄片,在不同倍镜下进行观察,共拍摄 500 余张照片。扫描电镜实验中,每类样品分别制备 8~12 个样品颗粒,颗

表 1 袁店二矿 8-3 采区 7-2 煤层 7238 工作面样品基本特征

Table 1 Coal quality parameters of metamorphic coal from 7238 working face samples of 7-2 coal seam in 8-3 mining area of Yuandian No.2 coal mine.

样品编号	样品类型	工业分析指标 (%)			元素分析指标 (%)			Rr
		M _{ad}	A _d	V _{daf}	C _d	H _d	N _d	
YE01	火夹焦	1.47	21.33	8.06	60.39	1.28	0.96	3.19
YE02	天然焦	1.85	11.93	7.29	71.52	1.76	1.44	2.31
YE03	浅热变质煤	1.01	11.44	20.47	72.38	3.30	1.53	1.43
YE04	未受影响煤	1.18	6.30	34.90	75.31	4.62	1.72	0.96
YE05	未受影响煤	1.31	7.84	34.08	73.47	4.48	1.63	0.95
YE06	未受影响煤	1.07	7.71	32.41	72.45	4.40	1.60	0.90

注: M_{ad}—水分(空气干燥基); A_d—灰分(干燥基); V_{daf}—挥发份(干燥无灰基); C_d—碳(干燥基); H_d—氢(干燥基); N_d—氮(干燥基); Rr—镜质组平均随机反射率。

粒厚 1~1.5mm,面积约为 3mm×5mm,在实验前均进行了烘干与喷金处理,共拍摄 400 余张高清照片。有机组分分离实验中样品用活化铜芯片处理(去除硫),研磨 200 目筛,在索氏提取装置中反复煮沸和蒸馏 72h。

3 结果

3.1 接触变质煤的煤质特征

前人研究表明^[11],通过测定接触变质煤的灰分、挥发份等工业组成,碳、氢、氮等元素组成,以及镜质体反射率的大小,能够有效地对接触变质带进行划分。当接触变质带煤镜质体反射率数值趋于正常煤大小时,可以认为已处于接触变质带的末端。样品的工业分析、元素分析以及随机镜质组反射率测试结果见表 1。工业分析显示,样品的水分含量范围为 1.07%~1.85%;由未受影响煤(YE04、YE05、YE06)至火夹焦(YE01),灰分产率由 6.30%~7.84% 变化至 21.33%,挥发份含量由 32.41%~34.90% 变化至 7.29%~8.06%。元素分析显示,从未受影响煤至火夹焦,氢元素(H)含量由 4.40%~4.62% 变化至 1.28%,氮元素(N)含量由 1.60%~1.72% 变化至 0.96%;火夹焦样品中碳元素(C)的相对含量为 60.39%,其余类型样品在 71.52%~75.31% 之间。镜质组反射率测试中,镜质组平均随机反射率(Rr)从未受影响煤中 0.90%~0.96% 变化至火夹焦中 3.19%。不难发现,趋近岩体,接触变质煤连续脱氢,灰分产率明显升高,挥发份含量显著降低,H 元素与 N 元素含量减少,Rr 值明显升高。

3.2 接触变质煤可溶有机质的含量和芳香烃的分布

通过索氏抽提法和族组分分离方法能够有效地揭示接触变质煤中有机抽提物特征^[1]。接触变质

煤样品中可溶有机质及其中芳香烃、饱和烃和极性物(沥青质、非烃)的含量见表 2。从未受影响的煤(YE04)、浅热变质煤(YE03)、天然焦(YE02)至火夹焦(YE01), 可溶有机质含量从 7.91mg/g 变化至 0.10mg/g; 其中饱和烃含量从 1.31mg/g 变化至 0.05mg/g, 芳香烃含量从 2.70mg/g 变化至 0.02mg/g, 极性物含量从 3.90mg/g 变化至 0.03mg/g。图 3 展示了接触变质煤样品中可检测出的萘系、苈系、菲系、联苯系、蒽系等 10 种类型芳香烃化合物的相对含量。不难看出, 从未受影响煤至火夹焦, 分子量较轻的萘系列相对含量逐渐降低, 与之不同的是, 分子量更高的菲系列相对含量逐渐升高。相较于未受影响煤与浅热变质煤, 天然焦中萘系、苈系、蒽系、蒹系、荧蒹系在可溶芳香烃化合物总量中占比降低, 菲系、联苯系占比升高。火夹焦样品中, 只有少量的菲系和蒹

系被检出。分析显示, 趋近岩体, 接触变质煤可溶有机质含量明显降低; 可溶芳香烃的含量以及其在可溶有机质中的相对占比降低; 各类型芳香烃化合物占比明显不同。

3.3 接触变质煤的显微特征

偏光显微镜, 能够有效地对接触变质煤的显微组分进行识别和鉴定^[12]。显微鉴定结果显示, 未受影响煤显微组分主要为胶质结构体^[25], 平整、均匀、致密, 单偏光下为灰色(图 4a), 正交偏光下呈黑色(图 4b)。浅热变质煤整体相对平整, 但内部发育裂隙; 裂隙在单偏光下呈黑色(图 4c), 在正交偏光下呈亮白色(图 4d)。天然焦由镶嵌结构体和脱挥发孔(囊状结构)组成。镶嵌结构体在单偏光下呈熔融状灰白色(图 4e), 正交偏光下为白色、灰色相间的马赛克状(图 4f)。脱挥发孔的形状不规则, 多数孔径处于

表 2 袁店二矿 8-3 采区 7-2 煤层 7238 工作面样品可溶有机质含量

Table 2 Content of organic extracts of metamorphic coal from working face 7238 of coal seam 7-2 in mining area 8-3 of Yuandian No.2 coal mine.

样品编号	有机质含量 (mg/g)	有机组分含量 (mg/g)		
		饱和烃	芳香烃	极性物
YE01	0.10	0.05	0.02	0.03
YE02	0.18	0.09	0.03	0.06
YE03	6.77	1.07	2.29	3.41
YE04	7.91	1.31	2.70	3.90

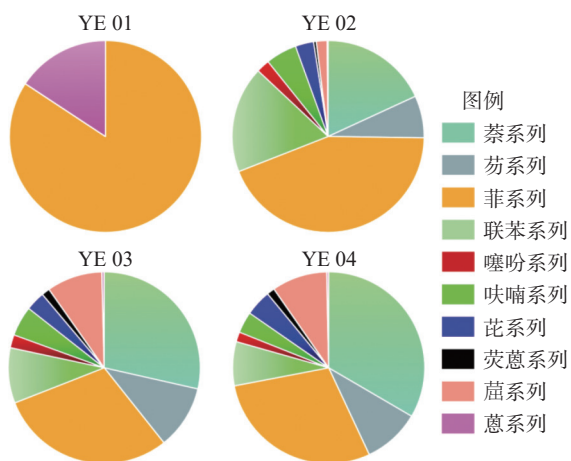
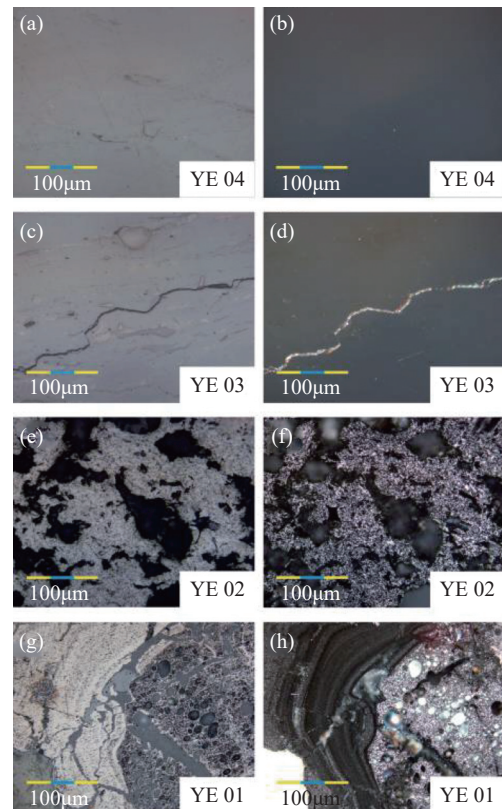


图 3 袁店二矿 8-3 采区 7-2 煤层 7238 工作面样品中可识别的各系列芳香烃化合物相对占比

Fig. 3 Identified aromatic hydrocarbons of metamorphic coal from working face 7238 of coal seam 7-2 in mining area 8-3 of Yuandian No.2 coal mine.



a—胶质结构体(单偏光×500); b—胶质结构体(正交偏光×500); c—裂隙(单偏光×500); d—裂隙(正交偏光×500); e—镶嵌结构体、脱挥发孔(单偏光×500); f—镶嵌结构体、脱挥发孔(正交偏光×500); g—左侧流纹状热解炭、左下角辉绿岩、右侧多孔炭(单偏光×500); h—左侧流纹状热解炭、左下角辉绿岩、右侧多孔炭(正交偏光×500)。

图 4 袁店二矿 8-3 采区 7-2 煤层 7238 工作面样品显微照片

Fig. 4 Photos of metamorphic coal from working face 7238 of coal seam 7-2 in mining area 8-3 of Yuandian No.2 coal mine under microscope.

20 μm ×50 μm 至50 μm ×150 μm 范围,单偏光下为黑色(图4e),正交偏光下呈雾状白色(图4f)。利用Olympus图像分析软件进行统计,手动描绘出镶嵌结构体和脱挥发孔对应的面积,然后换算成百分比发现,天然焦断面中镶嵌结构体约占70%~85%,脱挥发孔约占15%~30%。火夹焦样品中存在多孔炭^[26]、流纹状热解炭以及辉绿岩三个部分。多孔炭中气孔呈圆形-椭圆形,分布密集,多数孔径介于1~10 μm ,单偏光下呈灰色、黑色(图4g右侧),正交偏光下为亮白色(图4h右侧)。流纹状热解炭单偏光下呈白褐色(图4g左侧),正交偏光下为黑色且具有流动状(图4h左侧),光学各向同性。辉绿岩单偏光下为灰色(图4g左下角),正交偏光下呈白色(图4h左下角)。

分析显示,未受影响煤和浅热变质煤显微组分主要为胶质结构体,未受影响煤致密均匀,浅热变质煤中裂隙发育。天然焦内,存在着孔径较大且形状不规则的脱挥发孔,胶质结构体转变为镶嵌结构体。相较于天然焦,火夹焦内气孔孔径变小,数目增多,外观更加规则,以圆孔、椭圆孔为主。

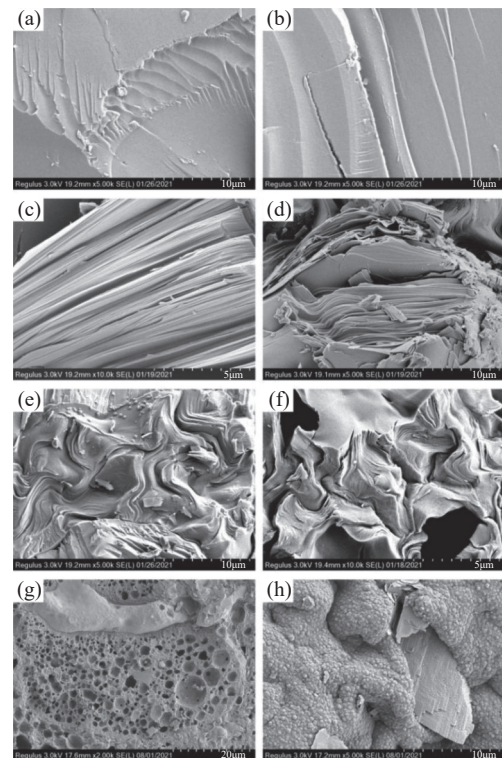
3.4 接触变质煤的微形貌特征

为了更清晰地观察到接触变质煤的微形貌,并建立接触变质煤在PLM和SEM两种手段下实验结果之间的联系,对接触变质煤样品采集了扫描电镜(SEM)图像,如图5所示。结果显示,未受影响煤主要为胶质结构体,断面相对光滑、致密(图5a),存在定向排列,呈现平行条带状(图5b)。浅热变质煤中微裂隙发育,呈碎裂片层状(图5c);单片层长10~15 μm ,厚0.1~0.2 μm ;片层相对平直,局部少见轻微的弯曲(图5d)。天然焦主要由熔融折曲状的片层结构(图5e)和脱挥发孔(图5f)组成,其中脱挥发孔面积占比小于40%,形状不规则,大小不一,孔径多在5 μm ×10 μm 至50 μm ×150 μm 。火夹焦中有机组分主要包括多孔炭(图5g)、炭微球群^[26](图5h)。多孔炭中气孔面积占比达65%~72%,孔径多介于0.5~3 μm 。炭微球或填充于裂隙当中,或填充于面积较大的气孔当中。在火夹焦中,实验还观察到石英(图5g上)、铁白云石等无机矿物(图5h右)。不难看出,从未受影响煤至火夹焦,煤岩组分经历了由脆性断裂到塑性软化熔融的变化过程。

4 讨论

4.1 浅热变质煤的形成

工业分析、元素分析、有机组分分离实验结果



a—胶质结构体($\times 5000$); b—胶质结构体($\times 5000$); c—片层状裂隙($\times 10000$); d—片层状裂隙($\times 5000$); e—镶嵌结构体($\times 5000$); f—镶嵌结构体、脱挥发孔($\times 10000$); g—多孔炭、石英($\times 2000$); h—炭微球群、铁白云石($\times 5000$)。

图5 袁店二矿8-3采区7-2煤层7238工作面样品扫描电镜照片

Fig. 5 Photos of metamorphic coal from working face 7238 of coal seam 7-2 in mining area 8-3 of Yuandian No.2 coal mine under SEM.

(表1、表2)显示,从未受影响煤到浅热变质煤,挥发份、H元素以及可溶有机质含量降低不明显,各类型芳香烃占比也未发生明显变化,这表明浅热变质煤还未遭受明显热变质。扫描电镜实验也印证了这一点,可以发现样品中可溶有机质、可溶芳烃的含量变化与样品显微组分的变化是有直接关系的,未受影响煤中显微组分以胶质结构体为主,光滑致密(图5a),浅热变质煤虽发生断裂,但依然以胶质结构体为主(图5c),这两种状态下样品可溶有机质含量较高。而天然焦中,胶质结构体已转变为镶嵌结构体(图4f),火夹焦中则以更加熔融态的多孔炭和炭微球为主(图5中g,h),这两种状态下样品可溶有机质含量急剧降低。从未受影响煤到浅热变质煤,可溶芳香烃含量的降低不明显(表2),这很可能是因为煤分子结构中的芳香核相对稳定,当距离岩体较远时,热解温度比较低,不易参与化学反应^[27-30]。与

未受影响煤相比,浅热变质煤中胶质结构体存在一定破坏,裂隙发育,这是受到岩浆热源影响,其镜质组干燥、收缩,发生脆性断裂所致^[31-32]。因此,浅热变质煤是未受影响煤层受较弱热变质而脆性形变的产物,其形成主要是物理变化,化学结构未发生明显改变。

4.2 天然焦的形成

结合光学显微图像发现,天然焦中熔融折曲状的片层结构(图5e),实质是我们在偏光显微镜下观察到的镶嵌结构体(图4f)。工业分析、元素分析、有机组分分离实验结果显示,从浅热变质煤到天然焦,挥发份、H元素以及可溶有机质含量降幅明显,这表明此阶段接触变质煤中原有组分以气体形式大量逸散。这是因为当距离岩体很近时,热解温度较高,接触变质煤中芳香族结构会发生缩聚脱氢反应^[27-30]。强烈的缩聚脱氢反应,导致芳香氢的丢失,从而使天然焦、火夹焦中可溶芳香烃含量降低。与浅热变质煤对比发现,天然焦中熔融折曲状的片层结构(图5e),是由浅热变质煤中平直的片层状裂隙(图5c)弯曲形变而来。一方面,岩浆侵入使得接触变质煤持续大量脱出气态挥发份^[11-12];另一方面,受岩浆的高温影响,原本平整、纯净的胶质结构体会软化、熔融,形成一种介于液体和固体之间的中间相物质;这些以气体形式逸出的挥发份,进一步推动已经软化处于半塑状态的中间相物质,使原本平直的片层状裂隙变得弯曲褶皱,形成形状更加不规则的镶嵌结构体^[33-37]。因而,天然焦中镶嵌结构体的形成是浅热变质煤脱挥发份、塑性形变所致。

4.3 火夹焦的形成和消失

与天然焦(图5f)相比,火夹焦(图5g)中气孔数量增多,孔径变小(多介于0.5~3 μm),且形状由不规则转变为圆形-椭圆形。这可能是脱出的气体在流变现象^[34]强烈的中间相物质中逸散导致的;此时,气泡表面自由能增大,中间相炭黏度变小,接触变质温度升高。对比天然焦,火夹焦中还出现了新生组分炭微球。炭微球聚集在裂隙或者面积较大的气孔当中,每颗球粒直径不足1 μm 。结合光学显微图像发现,火夹焦裂隙、次生发孔内,聚集的、紧密分布的炭微球(图5h),实质上组成了我们在偏光显微镜下观察到的流纹状热解炭(图4h左侧)。有研究表明,煤热解过程中,部分气态或者液态物质,遇冷会凝固、凝华形成焦油或沥青状固体,这些新生组分会存在于一些气孔、裂缝和裂隙当中^[38]。因此,炭微球群

的出现很可能是高温熔融的中间相(炭液相)冷凝的产物。进而本研究认为火夹焦中主要包括两种形态:一种是溶解了大量气泡的熔融态的中间相炭——多孔炭;另一种是悬浮在气体当中的中间相炭小“液滴”——炭微球。不难发现,火夹焦中炭微球与多孔炭是天然焦被岩浆进一步软化液化的结果。

火夹焦样品中C元素相对含量较低,是因为其距岩体较近,受到了岩浆岩中矿物组分的影响^[17-20]。本研究在火夹焦中观察到了石英(图5g上)和铁白云石(图5h右)等矿物,由于中基性岩浆岩基本不含石英和铁白云石等矿物,说明这些矿物是接触变质过程中的交代蚀变产物^[17]。本研究认为,煤层内碳、氢被岩浆氧化后形成的碳酸根,与Ca、Mg、Fe等元素的阳离子结合,进而导致硅酸盐矿物因丢失阳离子而释放硅酸盐骨架,形成大量次生石英。这些矿物主要包裹在炭微球周围,或者填充在气孔内,证明了这些矿物的形成晚于多孔炭和炭微球,同时也说明这些气孔里应该富含二氧化碳气体。从天然焦至火夹焦,挥发份、H元素以及可溶有机质含量降低不明显,这说明火夹焦阶段脱挥发份基本结束,新出现的相当一部分次生气孔并不是脱挥发份形成的。这些新生气孔可能是火夹焦与岩浆接触界线上,已经被岩浆吞噬消失的炭,受到岩浆氧化,形成的气体所留下的。即多孔炭和炭微球释放出来的气体,很可能是一氧化碳、二氧化碳等气态氧化物。由此可见,火夹焦的消失是熔融态的多孔炭和炭微球被岩浆热解而氧化为一氧化碳、二氧化碳等气态氧化物的结果。

5 结论

综合偏光显微镜、扫描电镜实验结果,揭示了接触变质煤微组构“中间相化→熔融→气化”的演化规律,并利用煤质分析、有机组分分析,阐明了接触变质煤微组构演化的有机地球化学过程。研究表明袁店矿区未受影响煤与浅热变质煤显微组分以胶质结构体为主。浅热变质煤内部裂隙发育,是未受影响煤脆性断裂的结果。天然焦中镶嵌结构体的形成与浅热变质煤脱挥发份挤压,促进煤岩组分塑性形变有关。与胶质结构体相比,镶嵌结构体中可溶有机质含量急剧降低。镶嵌结构体会进一步软化熔融为多孔炭和炭微球。多孔炭是溶解了大量气泡的熔融态的中间相炭冷却所形成的;炭微球是悬浮于气体当中的中间相炭小“液滴”冷凝的产物。

本研究认识到岩浆吞噬煤层的接触变质过程,是煤层有机组分受热、软化的连续脱挥发份的热解过程,该过程直接导致了煤层的消失。然而,本研究只观察了胶质结构体一种显微组分,煤当中的其他显微组分受岩浆影响,其微形貌的变化特征,以及天然焦的光学各向异性是如何形成的等科学问题值得

进一步开展研究。

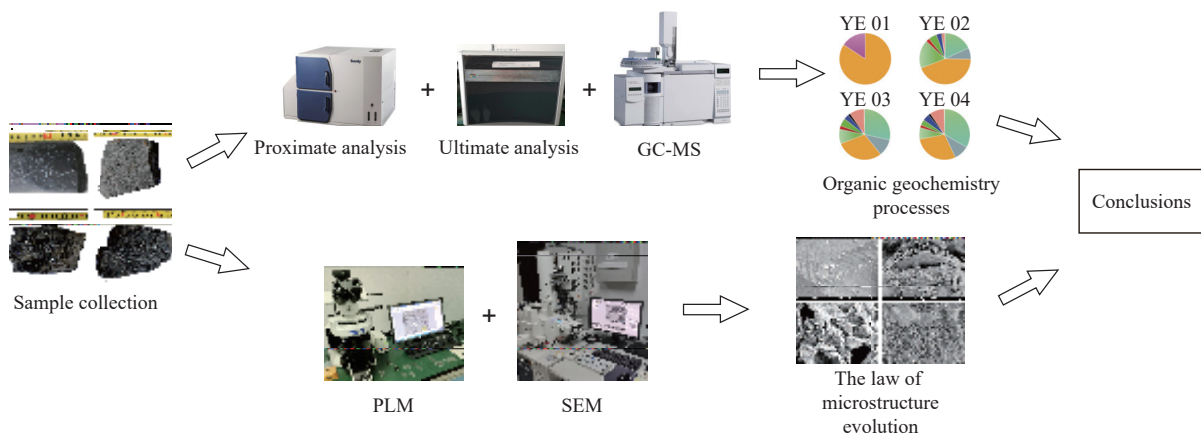
致谢: 本研究在实验和分析过程中得到了中国矿业大学(北京)唐跃刚教授、安徽大学林中清老师、安徽省煤田地质局第三勘探队汪宏志、程晋和李云峰同志的指导与帮助,在此一并表示感谢!

Micromorphological Characteristics and Origin Analysis of Contact Metamorphic Coal

HUANG Jianxin, AN Yanfei*, HAN Zheng, HE Shuyang, ZHENG Shuo, LIU Bingxiang
(School of Resources and Environment Engineering, Anhui University, Hefei 230601, China)

HIGHLIGHTS

- (1) New data of soluble organic matter content and composition in contact metamorphic coal were obtained by means of source rock group component separation technique.
- (2) Combined with the PLM and SEM results, the evolution of contact metamorphic coal microstructure of “intermediate phase→melting→gasification” was revealed.
- (3) The organic geochemical processes underlying the microstructural evolution of contact metamorphic coals were elucidated using coal quality and organic fraction analysis.



ABSTRACT

BACKGROUND: During tectonic movements and geological activities, coal seams are destroyed and engulfed by magma, which not only accelerates the slow carbon cycling process in geological history, but also changes and disrupts the carbon cycling balance of the lithosphere at that time. As a global period of tectonic magmatism in the Mesozoic, the Yanshan period magma intruded into the Mesozoic coal-bearing basins and intruded and engulfed coal seams on a large scale.

OBJECTIVES: To reveal the process and reasons for the change of contact metamorphic coal micromorphology during the process.

METHODS: Contact metamorphic coal samples with different degrees of thermal metamorphism at the periphery of the Yuandian II mine in northern Anhui Province were collected and subjected to coal quality analysis, organic fraction separation, GC-MS, polarized light microscopy (PLM) and scanning electron microscopy (SEM).

RESULTS: Toward the rock, the contents of volatile, hydrogen, nitrogen and soluble organic matter of the sample decreases; ash yield and mirror group reflectance increases; relative content of naphthalene series decreases; relative content of phenanthrene series among soluble aromatics increases. The microfractions of unaffected coal and shallow thermal metamorphic coal consist mainly of colloidal structural bodies, and the latter is fracture developed. The natural coke is composed mainly of mosaic structure with irregularly shaped devolatilized pores, and the pore sizes range from $20\mu\text{m}\times 50\mu\text{m}$ to $50\mu\text{m}\times 150\mu\text{m}$. The magma coke is composed mainly of porous carbon and carbon microspheres: the porous carbon is rich in round-elliptical pores, the pore sizes range from 0.5 to $3\mu\text{m}$, and the carbon microspheres are developed on the fissures and the inner wall of the pores.

CONCLUSIONS: Tending to the rock, the degree of thermal metamorphism of coal seams continues to increase: Shallow thermally metamorphosed coals are the products of brittle fracture of coal seams subjected to weaker thermal metamorphism; Natural coke is the result of volatile fraction removal and plastic deformation of shallow thermally metamorphosed coals; Magma coke is the result of further intermediate phase transformation of natural coke by magma. Therefore, the change of contact metamorphic coal micromorphology is considered to be caused by the process of thermal alteration, devolatilization and intermediate phase transformation of coal rock components.

KEY WORDS: Yuandian coal mine; contact metamorphic coal; scanning electron microscopy; mosaic structure; carbon microbeads

参考文献

- [1] 唐跃刚,王绍清,郭鑫,等.煤有机地球化学研究进展与展望[J].矿物岩石地球化学通报,2021,40(3): 574-596,777.
Tang Y G, Wang S Q, Guo X, et al. Researches on the organic geochemistry of coal: Progresses and prospects[J]. Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry, 2021, 40(3): 574-596, 777.
- [2] 赵宁,周蕾,庄杰,等.中国陆地生态系统碳源/汇整合分析[J].生态学报,2021,41(19): 7648-7658.
Zhao N, Zhou L, Zhuang J, et al. Integration analysis of the carbon sources and sinks in terrestrial ecosystems, China[J]. Acta Ecologica Sinica, 2021, 41(19): 7648-7658.
- [3] Zheng S, An Y F, Lai C K, et al. Genesis of high-Mg adakites in the southeastern margin of North China Craton: Geochemical and U-Pb geochronological perspectives[J]. *Frontiers in Earth Science*, 2021, 9: 731233.
- [4] 胡靓,张德贤,娄威,等.含膏盐建造铁矿床中磁铁矿 LA-ICP-MS微量元素测定与地球化学特征研究[J].岩矿测试,2022,41(4): 564-574.
Hu L, Zhang D X, Lou W, et al. *In situ* LA-ICP-MS determination of trace elements in magnetite from a gypsum salt bearing iron deposit and geochemical characteristics[J]. Rock and Mineral Analysis, 2022, 41(4): 564-574.
- [5] 张学君,张焱焱,刘凯,等.锆石U-Pb和Lu-Hf同位素研究内蒙乌努格吐山斑岩型铜钼矿岩浆岩特征[J].岩矿测试,2022,41(5): 774-788.
Zhang X J, Zhang Y Y, Liu K, et al. Zircon U-Pb and Lu-Hf isotopic dating of magmatic rocks in the Wunugetushan porphyry copper-molybdenum deposit, Inner Mongolia[J]. Rock and Mineral Analysis, 2022, 41(5): 774-788.
- [6] 姜禾禾.从碳源到碳汇:大陆弧演化过程中岩浆与剥蚀作用对长期碳循环的影响[J].岩石学报,2022,38(5): 1302-1312.
Jiang H H. From carbon source to carbon sink: Influences of magmatism and erosion in continental arcs on long-term carbon cycle[J]. *Acta Petrologica Sinica*, 2022, 38(5): 1302-1312.
- [7] 安燕飞,汪米娜,刘玲玲,等.淮北袁店8煤岩浆热蚀变的微结构响应[J].煤炭学报,2017,42(11): 2975-2980.

- An Y F, Wang M N, Liu L L, et al. Microfabrics response of coal to magma among coal seam VIII in Yuandian mine of Huaibei City, China[J]. *Journal of China Coal Society*, 2017, 42(11): 2975–2980.
- [8] Moura H, Suarez R I, Marques M M, et al. Influence of magmatic fluids on the organic and inorganic fractions of coals from the Peñarroya—Belmez—Espiel Basin (Spain)[J]. *International Journal of Coal Geology*, 2021, 235: 103679.
- [9] 王海军. 柳江盆地岩浆活动对主力煤田水文地质特征的影响[J]. *煤炭学报*, 2021, 46(5): 1670–1684.
Wang H J. Influence of magmatic activities in Liujiang Basin on hydrogeological characteristics of main coalfields[J]. *Journal of China Coal Society*, 2021, 46(5): 1670–1684.
- [10] Zhang B F, Chen J, Sha J D, et al. Geochemistry of coal thermally-altered by igneous intrusion: A case study from the Pansan coal mine of Huainan coalfield, Anhui, Eastern China[J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 2020, 213: 106532.
- [11] 宋晓夏, 马宏涛, 李凯杰, 等. 大同煤田石炭—二叠系接触变质煤的煤岩学特征研究[J]. *煤炭科学技术*, 2020, 48(12): 182–191.
Song X X, Ma H T, Li K J, et al. Study on coal petrology characteristics of contact metamorphosed coal from Carboniferous—Permian in Datong coalfield[J]. *Coal Science and Technology*, 2020, 48(12): 182–191.
- [12] 汪米娜, 安燕飞, 何凯, 等. 皖北石台矿岩浆蚀变煤中有毒元素分布、赋存及富集机理[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2019, 38(6): 1118–1128.
Wang M N, An Y F, He K, et al. Distribution, occurrence and enrichment mechanism of toxic elements in magmatic altered coal in Shitai mine, Northern Anhui[J]. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2019, 38(6): 1118–1128.
- [13] An Y F, Liu L L, Wang M N, et al. Source and enrichment of toxic elements in coal seams around mafic intrusions: Constraints from pyrites in the Yuandian coal mine in Anhui, Eastern China[J]. *Minerals*, 2018, 8(4): 164.
- [14] Qu Q Y, Liu G J, Henry M, et al. Tin stable isotopes in magmatic-affected coal deposits: Insights in the geochemical behavior of tin[J]. *Applied Geochemistry*, 2020, 119: 104641.
- [15] Chen M Y, Cheng Y P, Zhou H X, et al. Effects of igneous intrusions on coal pore structure, methane desorption and diffusion within coal, and gas occurrence[J]. *Environmental & Engineering Geoscience*, 2017, 23(3): 191–207.
- [16] 王亮, 郭海军, 程远平, 等. 岩浆岩环境煤层瓦斯异常赋存特征与动力灾害防控关键技术[J]. *煤炭学报*, 2022, 47(3): 1244–1259.
Wang L, Guo H J, Cheng Y P, et al. The abnormal coal seam gas occurrence characteristics and the dynamic disaster control technologies in the magmatic rock intrusion area[J]. *Journal of China Coal Society*, 2022, 47(3): 1244–1259.
- [17] 姜亚琳, 郑刘根, 程桦, 等. 淮北卧龙湖煤矿岩-煤蚀变带矿物变化特征[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2017, 36(3): 510–515.
Jiang Y L, Zheng L G, Cheng H, et al. Mineralogical characteristics of the alteration zone between coal and intrusion in the Wolonghu coal mine, Huaibei area, China[J]. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2017, 36(3): 510–515.
- [18] Rodrigues S, Esterle J, Ward V, et al. Flow structures and mineralisation in thermally altered coal from the Moatize Basin, Mozambique[J]. *International Journal of Coal Geology*, 2020, 228: 103551.
- [19] Song X X, Li K J, Ma H T, et al. Characteristics of an altered diabase dike in a coal seam: A case study from the Datong coalfield, Shanxi, China[J]. *Geofluids*, 2020: 3593827.
- [20] Song X X, Ma H T, Saalidong B M, et al. Petrography, mineralogy, and geochemistry of thermally altered coal in the Tashan coal mine, Datong coalfield, China[J]. *Minerals*, 2021, 11(9): 1–28.
- [21] Chen H, Wang S Q, Zhang X M, et al. A study of chemical structural evolution of thermally altered coal and its effect on graphitization[J]. *Fuel*, 2021, 283: 119295.
- [22] Chen H, Wang S Q, Deng J S, et al. Petrologic characteristics and chemical structures of macerals in a suite of thermally altered coals by confocal Raman[J]. *ACS Omega*, 2021, 6(49): 33409–33418.
- [23] Matlala I V, Moroeng O M, Wanger N J. Macromolecular structural changes in contact metamorphosed inertinite-rich coals from the No. 2 seam, Witbank coalfield (South Africa): Insights from petrography, NMR and XRD[J]. *International Journal of Coal Geology*, 2021, 247: 103857.
- [24] Wang X L, Wang S Q, Hao C, et al. Quantifying orientation and curvature in HRTEM lattice fringe micrographs of naturally thermally altered coals: New insights from a structural evolution perspective[J]. *Fuel*, 2022, 309: 122180.

- [25] 代世峰,唐跃刚,姜尧发,等. 煤的显微组分定义与分类(ICCIP system 1994)解析 I: 镜质体[J]. 煤炭学报, 2021, 46(6): 1821–1832.
- Dai S F, Tang Y G, Jiang Y F, et al. An in-depth interpretation of definition and classification of macerals in coal (ICCIP system 1994) for Chinese researchers, I: Vitrinite[J]. Journal of China Coal Society, 2021, 46(6): 1821–1832.
- [26] Zhao M X, An Y F, Wang M N, et al. New genesis of natural coke around magmatic intrusion at the Shitai coalmine of Huaibei City, North China[J]. *Acta Geologica Sinica*, 2019, 93(4): 1158–1159.
- [27] Pan J N, Lü M M, Bai H L, et al. Effects of metamorphism and deformation on the coal macromolecular structure by laser Raman spectroscopy[J]. *Energy & Fuels*, 2017, 31(2): 1136–1146.
- [28] Wang R W, Liu G J. Variations of concentration and composition of polycyclic aromatic hydrocarbons in coals in response to dike intrusion in the Huainan coalfield in Eastern China[J]. *Organic Geochemistry*, 2015, 83-84: 202–214.
- [29] 王小华,赵洪宇,宋强,等. 不同性质褐煤催化裂解热解产物提质及机理分析[J]. 工程热物理学报, 2019, 40(5): 1194–1203.
- Wang X H, Zhao H Y, Song Q, et al. Catalytic upgrading of lignite pyrolysis tar over the different properties of lignite-based catalyst and the analysis of its mechanism[J]. *Journal of Engineering Thermophysics*, 2019, 40(5): 1194–1203.
- [30] 岳莉,陈召,赖仕全,等. 煤系针状焦原料在成焦过程中的红外光谱定量分析[J]. 光谱学与光谱分析, 2020, 40(8): 2468–2473.
- Yue L, Chen Z, Lai S Q, et al. Infrared spectroscopic quantitative analysis of raw material used as coal-based needle coke in the coking process[J]. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 2020, 40(8): 2468–2473.
- [31] Jiang J Y, Zhang Q, Cheng Y P, et al. Quantitative investigation on the structural characteristics of thermally metamorphosed coal: Evidence from multi-spectral analysis technology[J]. *Environmental Earth Sciences*, 2017, 76(11): 406.
- [32] Presswood S M, Rimmer S M, Anderson K 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.
- [33] 陈健,李洋,刘文中,等. 岩浆侵入对煤结构的影响评述[J]. 煤炭科学技术, 2021, 49(6): 170–178.
- Chen J, Li Y, Liu W Z, et al. Review on impacts of igneous intrusion in coal measures on coal texture[J]. *Coal Science and Technology*, 2021, 49(6): 170–178.
- [34] 陈儒庆. 煤化作用期间煤的地质流变学[J]. 煤田地质与勘探, 1991, 19(2): 36–39.
- Chen R Q. Geological rheology of coal during coalification[J]. *Coal Geology & Exploration*, 1991, 19(2): 36–39.
- [35] 方家虎,唐修义. 热变煤的光学结构及其地质意义[J]. 煤田地质与勘探, 1993, 21(5): 21–25.
- Fang J H, Tang X Y. The optical textures of the thermally altered coals and their geological implications[J]. *Coal Geology & Exploration*, 1993, 21(5): 21–25.
- [36] Rimmer S M, Crelling J C, Yoksoulian L E. An occurrence of coked bitumen, raton formation, Purgatoire River Valley, Colorado, USA[J]. *International Journal of Coal Geology*, 2015, 141-142: 63–73.
- [37] Ward C R, Warbrooke P R, Roberts F I. Geochemical and mineralogical changes in a coal seam due to contact metamorphism, Sydney Basin, New South Wales, Australia[J]. *International Journal of Coal Geology*, 1989, 11(2): 105–125.
- [38] Sanyal S. Nature of a thin vein of solidified tarry matter formed during natural carbonization of coal from Victoria west colliery Raniganj coalfield, India[J]. *Fuel*, 1965, 44(5): 333–338.