

您可能感兴趣的文章、专题：

盘点《煤炭学报》2020 年热点论文

《煤炭学报》2021 年第 1 期

“新锐科学家”专题

“深部岩体力学与开采理论”专题

“煤加工与洁净化工技术”专题

“黄河流域矿区生态保护与可持续发展”专题

“煤矿热动力灾害防控技术与装备”专题

“煤矿快速智能掘进理论与技术”专题

“煤系天然气聚集理论与勘探开发技术”专题

“低品质煤浮选过程强化”专题

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net

煤炭加工与利用

新疆淖毛湖煤田 A_4 煤层优质直接液化用煤煤质特征与成因

宁树正[1],黄少青[1],杜芳鹏[2],张 莉[1],张建强[1],朱士飞[3]

(1. 中国煤炭地质总局勘查研究总院,北京 100039; 2. 西安科技大学 地质与环境学院,西安 710054; 3. 江苏矿产地质设计研究院,江苏 徐州 221006)

摘 要:新疆淖毛湖煤田 A_4 煤层具有优质的直接液化特性,以淖毛湖煤田 A_4 煤层为对象开展直接液化用煤研究,对优质直接液化用煤质量特征和成因认识具有重要意义。研究样品采集于淖毛湖煤田白石湖露天矿,测试结果显示淖毛湖煤田 A_4 煤层煤中各样品的氢碳原子平均值达 0.94,挥发分产率平均达 49.2%,直接液化的活性组分(镜质组+壳质组)含量高达 97.7%,而 A_4 煤层灰分平均 5.2%,灰分极低,且灰分中对直接加氢液化有不良影响的 SiO_2 和 Al_2O_3 质量分数较低,对液化有催化作用的 Fe_2O_3 质量分数较高。所以淖毛湖煤田煤岩煤质"三高一低"(高氢碳原子比、高挥发分及高活性组分、低灰分)的特征为直接液化带来了有利条件。淖毛湖煤样镜质组最大反射率平均值为 0.42%,处在直接液化的最佳煤化阶段。煤相研究结果表明,淖毛湖煤田 A_4 煤层形成的早侏罗世八道湾组沉积所处的泥炭沼泽环境为富钙环境,保证了泥炭堆积早期的腐殖化作用和生物化学凝胶化作用,地层层序属于水进序列,能够很好的在泥炭堆积后迅速被上覆沉积物所覆盖,保证了泥炭处在缺氧的还原环境,使得凝胶化作用充分进行;同时,煤层上覆、下伏地层均隔水性良好,保证了煤岩组分的演化过程不易受到来自顶底板的富氧水的影响,上述因素,形成淖毛湖煤田煤超高的直接液化活性组分(镜质组+壳质组)的重要因素,为优质直接液化用煤形成提供了有利条件。

关键词:直接液化用煤;淖毛湖煤田;八道湾组;液化性能;煤岩组分;凝胶化作用

中图分类号:TQ529;TQ531 **文献标志码**:A **文章编号**:0253-9993(2021)01-0251-12

Characteristics and origin of high quality direct liquefaction coal of A_4 coal seam in Naomaohu coalfield, Xinjiang Province

NING Shuzheng[1], HUANG Shaoqing[1], DU Fangpeng[2], ZHANG Li[1], ZHANG Jianqiang[1], ZHU Shifei[3]

(1. *General Prospecting Institute of China National Coal Geology Administration, Beijing* 100039, *China*; 2. *College of Geology and Environment, Xi'an University of Science and Technology, Xi'an* 710054, *China*; 3. *Jiangsu Design Institute of Geology for Mineral Resources, Xuzhou* 221006, *China*)

Abstract: The A_4 coal seam of the Naomaohu coalfield in Xinjiang has a characteristic of high-quality for direct liquefaction by previous experiments. This research took the A_4 coal seam of the Naomaohu coalfield as the object to carry out the study on coal for direct liquefaction, which is important for the quality characteristics and genetic understanding of the high-quality direct liquefaction coal. The research samples were collected at the Baishihu open-pit mine in the

收稿日期:2020-11-03 **修回日期**:2020-12-26 **责任编辑**:韩晋平 **DOI**:10.13225/j.cnki.jccs.2020.1734

基金项目:中国地质调查局地质调查资助项目(DD20160187);中国煤炭地质总局科技创新资助项目(ZMKJ-2019-J01)

作者简介:宁树正(1977—),男,山东诸城人,教授级高级工程师,博士。E-mail:nsz0321@126.com

引用格式:宁树正,黄少青,杜芳鹏,等. 新疆淖毛湖煤田 A_4 煤层优质直接液化用煤煤质特征与成因[J]. 煤炭学报,2021,46(1):251-262.

NING Shuzheng, HUANG Shaoqing, DU Fangpeng, et al. Characteristics and origin of high quality direct liquefaction coal of A_4 coal seam in Naomaohu coalfield, Xinjiang Province[J]. Journal of China Coal Society, 2021, 46(1):251-262.

移动阅读

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net

Naomaohu coalfield. The test results show that the average ratio of H/C in the A_4 coal seam is 0.94, and the average volatile production rate is 49.2%. The active components of directly liquefied (vitrinite+chitin) content are as high as 97.7%, while the average ash content of A_4 coal seam is 5.2%, which is extremely low, and the ash content has a low contents of SiO_2 and Al_2O_3, which harm direct hydro liquefaction. The Fe_2O_3 content has a higher value, which has a catalytic effect on liquefaction. Therefore, the characteristics of three high and one low coal quality (high H/C ratio, high volatile and high active components, and low ash content) of the Naomaohu coalfield have brought favorable conditions for the direct liquefaction process. The average maximum reflectance of the vitrinite group is 0.42% in the Naomaohu coal sample, which stays in the best coalification stage of direct liquefaction. The results of coal facies studies indicate that the early Jurassic Badaowan Formation deposits formed by the A_4 coal seam in the Naomaohu coalfield are in a calcium-rich peat swamp environment, which ensures the early humification and biochemical gelation of peat accumulation. The stratigraphic sequence belongs to the water inlet sequence, which can be quickly covered by the overlying sediments after the peat is accumulated, ensuring that the peat stays in an oxygen-deficient and reducing environment so that the gelation is fully carried out. Meanwhile, the overlying and underlying strata have good water resistance, which ensures that the evolution process of maceral specification is not easily affected by the oxygen-rich water from the roof and floor. The above factors form the ultra-high direct liquefaction active component (vitrine of the Naomaohu coalfield). The important factors of the group (vitrinite and exinite group) provide favorable conditions to the formation of high-quality coal for direct liquefaction.

Key words: direct liquefiable coal; Naomaohu coalfield; Badaowan Formation; liquefaction performance; coal petrography; gelatinization

据《BP 世界能源统计年鉴》(2019)数据显示,2019 年中国石油对外依存度高达 72%,根据我国能源结构,煤炭资源相对丰富,以煤为化工原料生产油品对我国油气资源战略补充具有重要意义[1]。此外,随着环保形势的日趋严峻,转变煤炭利用方式,提高煤炭清洁度已然成为煤炭工业的重中之重[2]。煤炭直接液化是提升能源战略安全、提高煤炭清洁利用水平的重要选项[3-4]。

煤的直接液化是相对于间接液化而言的,是指将煤研磨后混合于溶剂中,在加温、加压、加氢(或不加)、加催化剂的情况下,使部分煤分子发生裂解,形成溶于溶剂的液态产品[5-8]。另一方面,由于直接液化的实质是将原料煤固态大分子 H/C 原子比增加到 2.0 左右,使之形态转换为液体小分子的过程[9-10],煤本身的性质是影响直接液化的重要因素。

2019 年,煤炭科学技术研究院有限公司对新疆淖毛湖煤直接加氢液化特性的研究,在 420 ℃,15 MPa 和 60 min 的反应条件下,煤的转化率可达 93%,油产率 65%[11],取得良好的直接液化效果,具有一定的代表性。因此,进一步厘清淖毛湖煤田煤质及煤岩学特征将有助于更加深入、全面地认识优质直接液化用煤的特征及形成环境,也可以为进一步扩展淖毛湖煤田直接液化研究规模提供基础数据和理论依据,为新疆立足本区资源优势,促进经济发展提供了技术参考。

1 地质背景

三塘湖盆地是侏罗纪北疆泛盆的组成部分,形成于区域弱伸展构造背景,其基底为石炭纪—二叠纪前陆盆地沉积层[12]。侏罗纪为盆地主要成煤期,其上为白垩纪和新生代地层所叠加。三塘湖盆地总体具有“南北分带,东西分块”的特点,由北而南可划分为东北冲断隆起带、中央凹陷带、西南逆冲推覆带 3 个一级构造单元[13],淖毛湖煤田位于中央坳陷带东南端的淖毛湖凹陷(图 1),新生代构造活动致使淖毛湖煤田部分区域煤层抬升至近地表。

淖毛湖煤田含煤地层为下侏罗统八道湾组(J_1b)和中侏罗统西山窑组(J_2x),均为河流-三角洲环境沉积[13]。八道湾组(A 煤组)含煤 1 ~ 6 层,累计煤层厚度 0.71 ~ 57.58 m;西山窑组(B 煤组)含煤 1 ~ 14 层,累计煤层厚度 0.34 ~ 51.53 m。煤田北部西山窑组缺失,八道湾组近地表出露,白石湖露天矿主采煤层为 A_4 煤层,厚 13 m,煤类为长焰煤。

2 采样及测试

本次样品采集于淖毛湖煤田白石湖露天矿,采样点煤层为新近揭露的煤层,样品新鲜,无污染。采样煤层为八道湾组 A_4 煤层,煤层厚度为 13 m,由底至顶依次分层采样,样品间隔约为 1 m,累计采集煤岩样品 17 件,夹矸 1 件;样品由下至上依次编号为 N-1 ~ N-18(图 2)。

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net

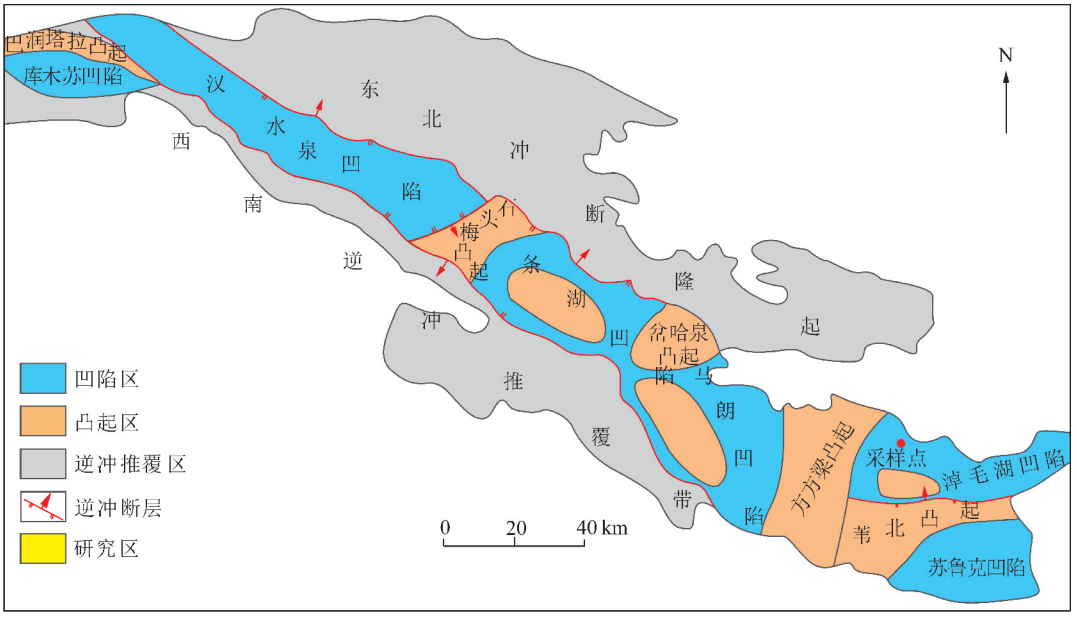


图 1　研究区构造位置

Fig. 1　Structural location map of the study area

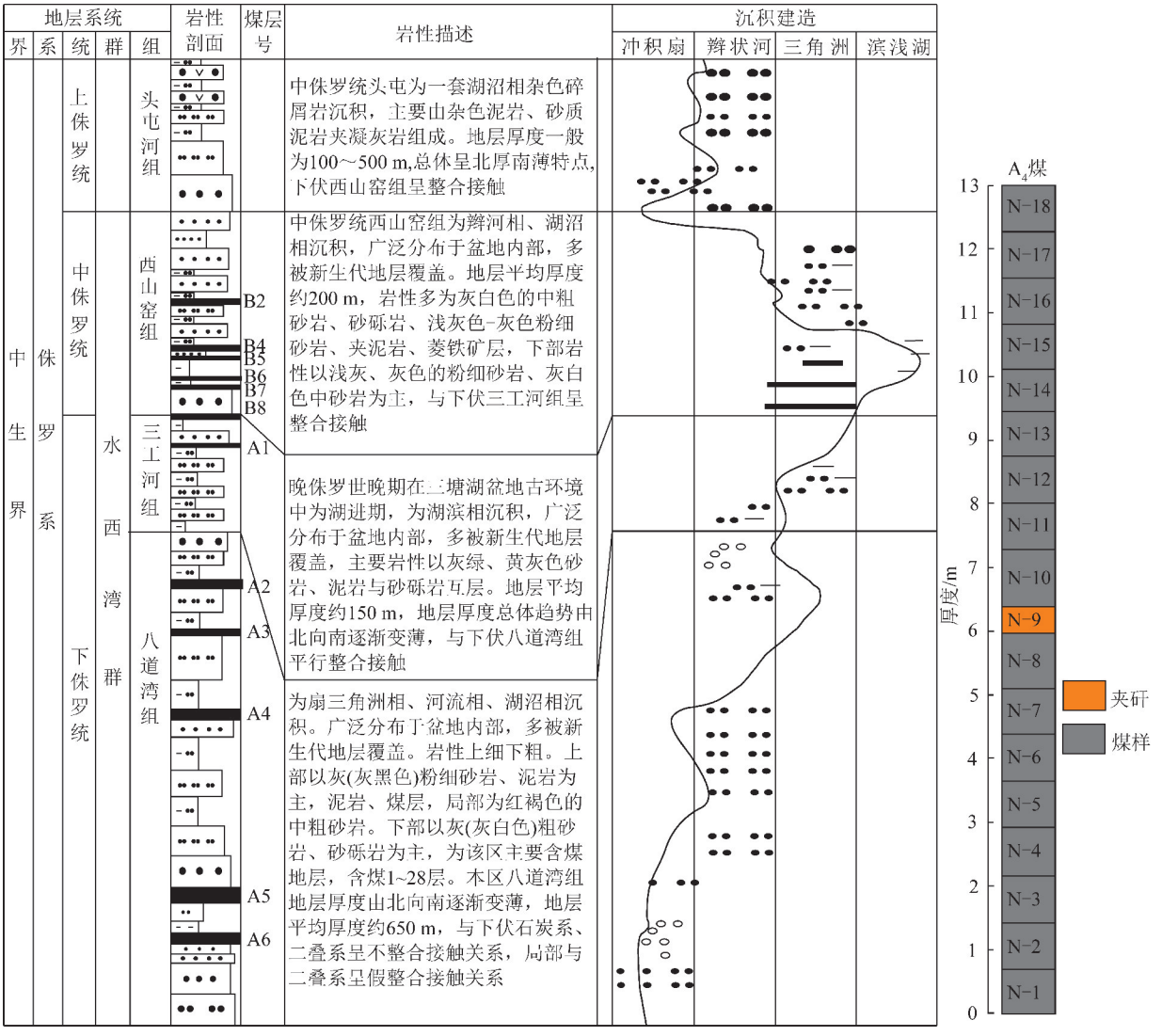


图 2　淖毛湖煤田地层柱状图及 A_4 煤层样品垂向分布(据文献[14]修改)

Fig. 2　Stratigraphic histogram and vertical distribution map of coal seam A_4 in Naomaohu coalfield(after Reference[14])

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net

对上述采取的样品进行了煤的工业分析、灰成分分析、岩石薄片鉴定、微量元素测试、X 射线衍射。测试分析均在中国煤炭地质总局煤系矿产资源重点实验室完成。工业分析测试依照国标 GB/T 30732—2014,全硫分析依照国标 GB/T 215—2003。煤岩样品粉碎筛分至 200 目以开展元素分析、X 衍射分析。煤灰成分测试依照国标 GB/T 1574—2007,将煤岩样品进行高温灰化(815 ℃),继而测试其中主量元素氧化物的质量分数。微量元素测试手段为激光耦合等离子质谱分析(ICP-MS),测试仪器型号为 ICAP-Qc。C,H,N 质量分数使用 CTCH500 碳氢化合物分析仪测试,O 质量分数为计算值。煤岩组分鉴定采用显微镜 Leica-BMRXP 完成,分类及命名依照 GB/T 15589—2013. X,X 射线衍射分析仪器型号为 AX-iOX MAX,全岩扫描范围为 5°~50°。

3 测试分析结果

3.1 煤质测试结果

A_4 煤层各个样品的工业分析、全硫分析、形态硫分析和元素分析结果见表 1。17 个煤样挥发分产率(V_{daf})为 46.8%~52.7%,挥发分从上至下变化不大,平均 49.2%;同时,煤层平均镜质体反射率为 0.42%,根据 ASTM 国际煤划分标准,A_4 煤层为高挥发分烟煤。各样品灰分产率(A_d)为 4.2%~7.4%,平均 5.2%,根据国标 GB/T15224.1—2010 划分标准,均为特低灰煤;样品碳质量分数 65.3%~73.4%,平均值为 70.5%,氢质量分数 4.7%~6.0%,平均为 5.5%,氧质量分数 19.4%~28.7%,均值为 22.8%,氢碳原子比在 0.86~1.01,均值为 0.94,氧碳原子比在 0.20~0.33,均值为 0.24。

表 1 淖毛湖煤田 A_4 煤层煤质基本分析结果统计

Table 1 Basic analysis results of coal quality of A_4 coal seam in Naomaohu coalfield %

样品号	工业分析			元素分析							
	M_{ad}	A_d	V_{daf}	$S_{t,d}$	$S_{p,d}$	$S_{s,d}$	$S_{o,d}$	O_{daf}	C_{daf}	H_{daf}	N_{daf}
N-1	8.69	4.23	47.74	0.20	0.02	0.01	0.16	27.34	66.58	4.79	1.09
N-2	8.09	4.36	48.62	0.20	0.03	0	0.16	28.66	65.26	4.73	1.15
N-3	8.68	4.80	48.44	0.28	0.11	0.01	0.16	21.29	71.95	5.34	1.13
N-4	9.12	4.86	50.05	0.26	0.02	0	0.24	20.77	72.26	5.64	1.04
N-5	7.96	4.83	47.11	0.22	0.02	0.01	0.18	21.62	71.58	5.55	1.02
N-6	8.37	5.65	46.79	0.24	0.07	0.02	0.15	23.35	69.60	5.69	1.10
N-7	7.30	4.89	51.13	0.15	0.03	0	0.12	25.37	68.00	5.50	0.96
N-8	9.70	6.17	50.11	0.40	0.20	0.02	0.18	19.39	73.36	5.83	0.99
N-10	7.50	5.15	52.70	0.30	0.12	0.02	0.16	21.64	71.16	6.04	0.83
N-11	8.30	6.31	51.75	0.61	0.40	0.01	0.20	20.81	71.87	5.82	0.85
N-12	7.44	5.19	47.07	0.17	0.02	0.01	0.14	23.07	70.35	5.47	0.92
N-13	7.76	5.42	48.01	0.17	0.02	0.01	0.14	21.94	71.24	5.69	0.95
N-14	8.22	4.95	51.23	0.24	0.07	0.01	0.16	24.03	69.28	5.61	0.84
N-15	7.21	4.83	48.43	0.15	0	0	0.15	21.76	71.61	5.55	0.92
N-16	7.10	5.41	46.77	0.15	0	0	0.15	21.82	71.83	5.31	0.88
N-17	7.46	4.95	51.52	0.24	0.05	0.01	0.17	21.46	71.69	5.70	0.90
N-18	7.36	4.19	47.77	0.17	0.02	0.01	0.14	23.40	70.30	5.23	0.89
平均值	8.02	5.07	49.13	0.24	0.07	0.01	0.16	22.81	70.47	5.50	0.97

全硫质量分数($S_{t,d}$)为 0.15%~0.61%,平均 0.25%,17 个试验样为特低硫煤,占 94.4%;1 个试验样为低硫煤,占 5.6%。A_4 煤层属于中侏罗世含煤地层,主要为河流-湖泊三角洲沉积体系,因此硫分普遍低。总体而言,可确定淖毛湖煤田 A_4 煤层为高挥发分、特低灰分、特低硫长焰煤[15]。

3.2 煤岩组分

A_4 煤层根据野外肉眼鉴定资料,煤岩组成均以亮煤为主,丝炭及暗煤次之,暗煤多呈条带状分布,丝炭组分呈线理透镜状分布,宏观煤岩类型多为半亮型煤及光亮型煤为主。

显微煤岩组分鉴定结果见表 2,全层 17 个煤层样品的镜质组质量分数为 77.6%~96.9%,平均为 89.1%,惰质组质量分数为 0.3%~1.8%,平均 0.75%,壳质组质量分数为 3.0%~24.2%,平均 8.6%(表 2)。全煤层总体表现为高镜质组、超低惰质组和较高壳质组的特征。镜质组中,基质镜质体质量分数最高,平均达 79.1%,团块镜质体(图 3(b))

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net

次之,结构镜质体(图 3(a))和均质镜质体(图3(c))质量分数较低;惰质组主要由碎屑惰质体(图3(d))为主,含少量微粒体;壳质组主要为角质体(图3(e),(f)),平均质量分数为5.5%,其余组分包括孢子体(图3(g),(h))、树脂体(图3(i))、碎屑壳质体和沥青质体。

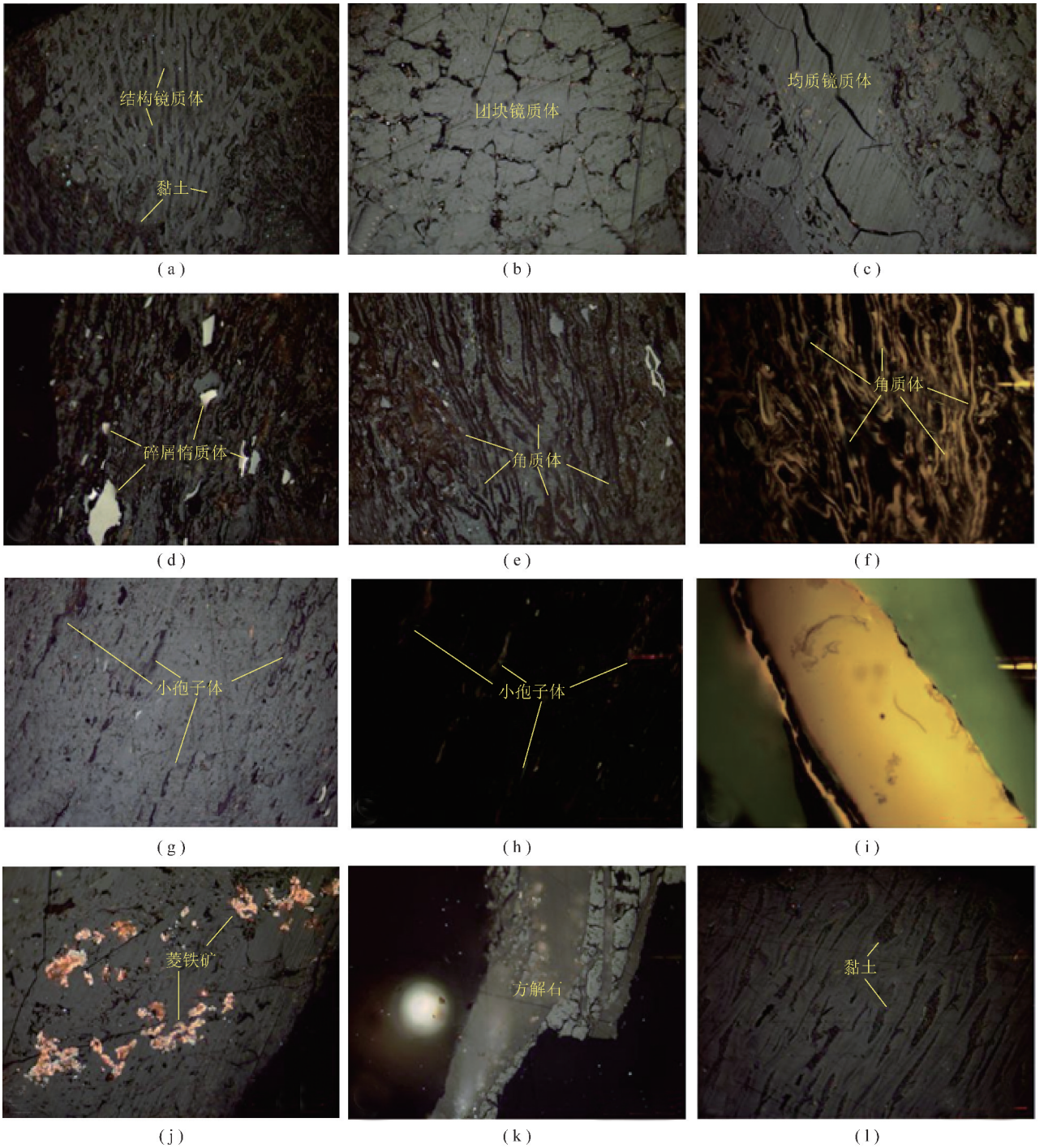
表 2　A_4 煤层剖面各分层的显微组分质量分数

Table 2 Maceral content of each layer in A_4 coal seam profile　　%

	样品编号		N-1	N-2	N-3	N-4	N-5	N-6	N-7	N-8	N-10
镜质组 V	结构镜质体 T		0.6	2.7	0.7	1.8	5.8	1.2	0	1.4	4.3
	无结构镜质体 C	均质镜质体 C1	1.1	2.0	0.7	0.6	0	2.4	2.7	0.7	0.6
		基质镜质体 C2	77.0	77.6	87.5	65.5	76.6	80.5	73.2	82.6	72.4
		团块镜质体 C3	10.9	8.8	1.4	9.7	6.6	10.1	10.3	6.3	9.2
	镜质组总和		89.7	91.2	91.0	77.6	89.1	94.1	86.2	91.0	86.5
惰质组 I	丝质体		0.6	0.7	0	0	0	0	0	0	0
	半丝质体 Sf		0	0	0	0	0.7	0.6	0	0	0
	微粒体 Mi		0	0	0	0	0	0	0	0	0
	碎屑惰质体 ID		0.6	0	0.7	1.2	0	0.6	0.3	0.7	1.8
	惰质组总和		1.1	0.7	0.7	1.2	0.7	1.2	0.3	0.7	1.8
壳质组 L	小孢子体 Sp2		2.9	0.7	0.7	0	0.7	0.6	1.1	0.7	1.8
	角质体 Cu		2.3	4.8	3.5	13.9	1.5	0.6	9.2	4.2	8.0
	树脂体 Re		1.1	1.4	0	3.0	0	0.6	1.1	1.4	0.6
	沥青质体 Bt		1.1	0.7	0.7	1.8	0.7	0.6	0.5	0	0
	碎屑壳质体 ED		0.6	0.7	0	2.4	0	0.6	1.1	0	0
	壳质组总和		8.00	8.20	4.90	21.20	2.90	3.00	13.00	6.30	10.40
矿物 M	黏土类 CM		1.1	0	3.5	0	7.3	1.8	0.5	0.7	1.2
	硫化物类 SM		0	0	0	0	0	0	0	0	0
	碳酸盐类 CaM		0	0	0	0	0	0	0	1.4	0
	矿物总和		1.1	0	3.5	0	7.3	1.8	0.5	2.1	1.2

	样品编号		N-11	N-12	N-13	N-14	N-15	N-16	N-17	N-18	平均值
镜质组 V	结构镜质体 T		1.8	0	2.6	2	1.1	0	0.7	3.4	1.8
	无结构镜质体 C	均质镜质体 C1	0.6	0.5	2.6	0	1.4	1.2	0	0	1.0
		基质镜质体 C2	77.2	86.9	79.9	79.3	77.5	85.1	83.6	82.4	79.1
		团块镜质体 C3	5.4	9.4	4.5	5.6	8.4	6.7	2.9	5.4	7.1
	镜质组总和		85	96.9	89.5	86.9	88.5	93	87.2	91.1	89.1
惰质组 I	丝质体		0.6	0	0	0	0	0	0	0	0.1
	半丝质体 Sf		0.6	0	0	0	0	0	0	0	0.1
	微粒体 Mi		0	0	0	1	0	0	0	0	0.1
	碎屑惰质体 ID		0	0.5	0.3	0	0.3	0.4	0.4	0.2	0.5
	惰质组总和		1.2	0.5	0.3	1	0.3	0.4	0.4	0.2	0.75
壳质组 L	小孢子体 Sp2		1.8	0.5	0.6	1.5	0	0.6	0.7	1.3	1
	角质体 Cu		7.2	1	6.4	7.6	7.9	3.6	8.0	4.7	5.5
	树脂体 Re		0.6	0	1.3	0	2.2	0	2.2	1.3	1
	沥青质体 Bt		0.6	0	0.6	0	0.6	0	0.7	0	0.5
	碎屑壳质体 ED		1.8	0	0.6	0.5	0	0	0	1.3	0.6
	壳质组总和		12.00	1.60	9.60	9.60	10.70	4.20	11.70	8.70	8.59
矿物 M	黏土类 CM		1.2	0.5	0	1.5	0.6	1.8	0.7	0	1.3
	硫化物类 SM		0.6	0	0	0	0	0	0	0	0
	碳酸盐类 CaM		0	0.5	0.6	1	0	0.6	0	0	0.2
	矿物总和		1.8	1	0.6	2.5	0.6	2.4	0.7	0	1.6

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net



注:(a)~(e),(g),(k),(l)为反射光干物镜拍摄;(j)为(e)的反射荧光照片;(h)为(g)的反射荧光照片;(i)为反射荧光拍摄

图 3 淖毛湖煤田 A_4 煤层典型煤岩组分照片

Fig. 3 Coal petrographic composition of coal seam A_4 in Naomaohu coalfied

A_4 煤层中矿物质量分数总体较低,平均占煤岩组成的 1.59%(含矿物基),矿物类型包括黏土矿物、碳酸盐岩矿物和硫化物。黏土矿物质量分数最高,占煤岩组成的 1.32%,主要充填在细胞腔中(图 3(l));其次为碳酸盐岩矿物,占煤岩的 0.24%;脉状分布的方解石(图 3(k))和零散分布的菱铁矿(图 3(j))是其主要类型,主要分布层段为 A_4 煤层上部;黄铁矿质量分数极低,呈浸染状分布。

X 衍射分析显示 A_4 煤层中夹矸(N-9)的矿物组成以方解石为主,石英、菱铁矿和黏土各占少量;煤层顶板以石英为主,其次为斜长石和钾长石,黏土质量分数较低(图 4)。

3.3 灰成分特征及工业分析

煤岩样品灰成分以碱性氧化物质量分数高为特征,其中 CaO 质量分数最高,为 41.75% ~ 64.29%,平均达 46.80%,其质量分数远高于其

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net

他任何组分;相比之下,酸性氧化物质量分数明显较低,代表性的 SiO_2 质量分数仅为 5.03% ~ 14.55%,平均 10.93%。此外,需要特别指出的是,煤岩样品中 Na_2O 质量分数较高,比 K_2O 质量分数高一个数量级;Fe_2O_3 质量分数较高,仅次于 CaO,平均为 14.5%(表 3),这与夹矸中碳酸盐矿物、含铁矿物、硅铝矿物等的质量分数特征相似(图 4)。

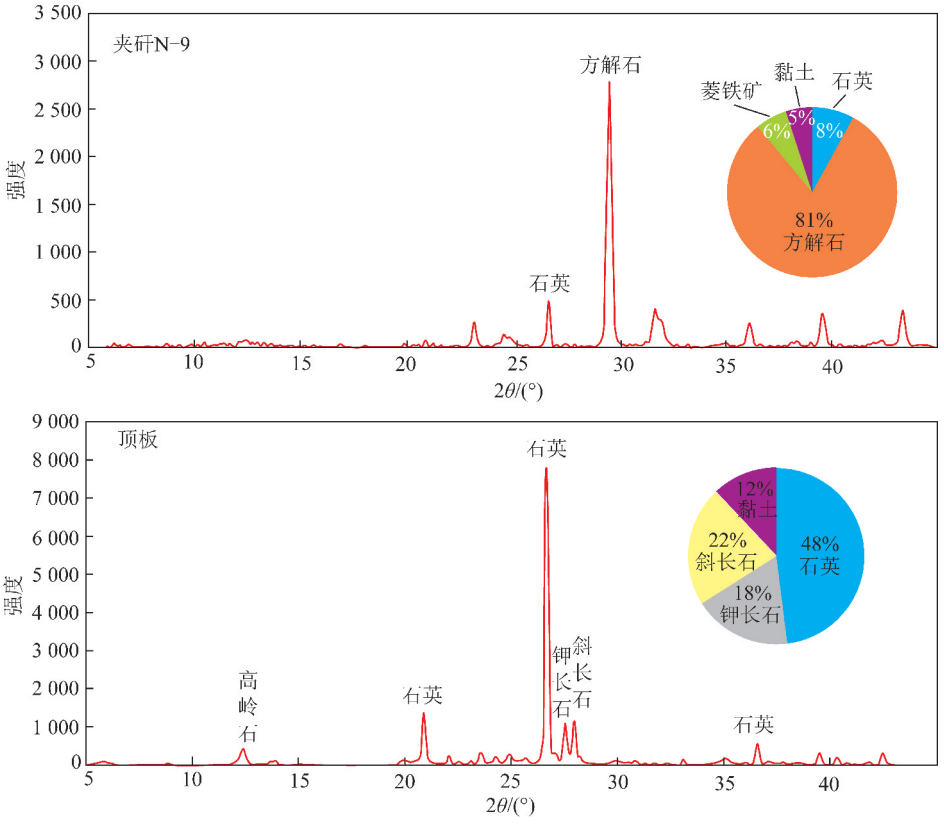


图 4　淖毛湖矿区 A_4 煤顶板和夹矸 X 衍射谱图及矿物质量分数

Fig. 4　XRD spectra and mineral content pie chart of A_4 coal roof and gangue in Naomaohu coalfiled

表 3　淖毛湖煤田煤灰成分质量分数

Table 3　Mass fraction of coal ash composition of Naomaohu coalfield　%

样品编号	煤灰成分质量分数									
	K_2O	Na_2O	SiO_2	Al_2O_3	Fe_2O_3	CaO	MgO	SO_3	TiO_2	MnO_2
N-01	0.18	4.00	7.98	13.50	12.09	42.86	1.35	15.30	0.28	0.09
N-04	0.18	3.92	11.69	11.12	11.56	41.75	1.51	15.82	0.43	0.13
N-07	0.22	2.14	13.87	16.07	8.99	45.70	1.62	8.25	0.38	0.10
N-09	0.14	0.12	5.03	2.51	25.12	64.29	1.36	0.32	0.25	0.76
N-10	0.19	3.48	9.16	8.08	15.60	44.14	1.96	14.44	0.54	0.24
N-12	0.20	3.18	12.11	9.07	15.96	44.38	3.35	8.52	0.46	0.28
N-15	0.16	3.76	14.55	13.09	12.60	42.80	2.1	7.50	0.33	0.23
N-17	0.24	4.48	10.12	8.62	12.22	48.50	2.87	9.44	0.42	0.18

注:本次研究煤灰成分随机选择表 8 中个样品进行测试。

相关性分析显示,Fe_2O_3,MnO 和 CaO 质量分数与灰分产率呈明显正相关关系,相关系数分别为 0.72,0.71 和 0.49;而 Al_2O_3,SiO_2 与灰分产率表现为负相关,这明显有别于我国其他地区煤灰成分特征,可能是因为矿物质中方解石和含铁矿物质量分数较多有关;另外 Na_2O 和 K_2O 质量分数与灰分产率负相关;其余组分与灰分产率相关性较弱。各氧化物质量分数与全硫质量分数的相关关系类似于与灰分产率的相关关系。各氧化物之间的相关性分析表明,Fe_2O_3,MnO 和 CaO 三者间正相关,SiO_2,Al_2O_3,Na_2O,K_2O,MgO 和 SO_3 相互正相关(图 5)。

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net

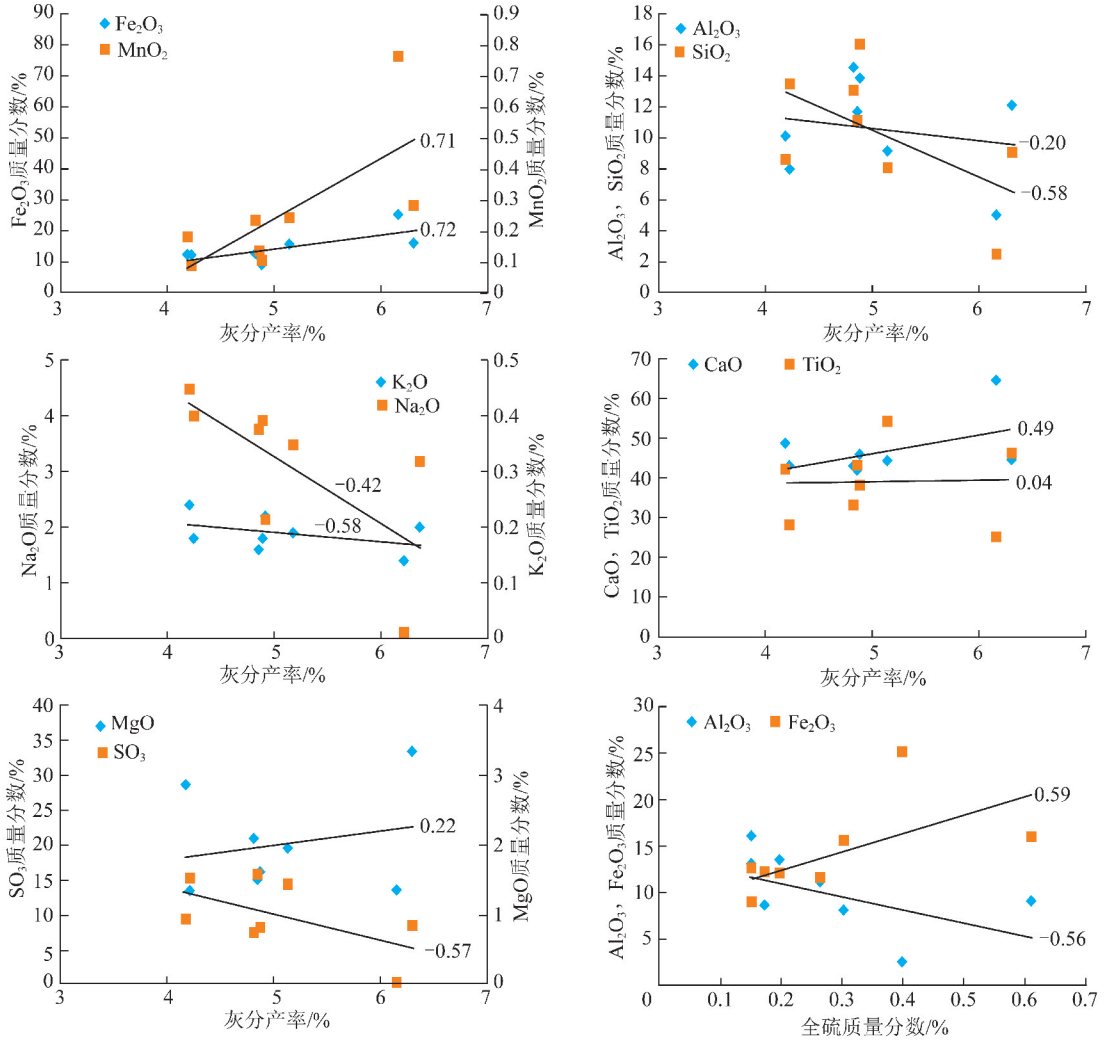


图 5 淖毛湖矿区 A_4 煤层煤主量元素氧化物质量分数与灰分产率相关性分析

Fig. 5 Correlation diagram of major elements mass fraction and ash yield of A_4 coal seam in Naomaohu coalfield

4 讨 论

煤的液化是一个很复杂的动态变化过程,前人大量的研究成果表明,煤的性质与煤的直接液化性能具有密切的关系。另一方面,从煤岩学角度来看,煤的性质取决于煤的组成和煤的变质程度,煤的组成是指煤岩显微组分及矿物质,受控于沉积环境和泥炭沼泽环境,煤的变质程度受控于泥炭形成后在地下温度,压力的变化,而这些地质条件及演化,最终影响煤炭利用途径。

4.1 煤的性质对直接液化性能的影响

煤的挥发分产率和碳氢原子比与液化性能表现出良好的线性关系[16],挥发分产率与转化率的相关系数为 0.81,碳氢原子比与转化率的相关系数为 0.18,朱晓苏[17]和罗星云[18]研究发现,一般碳质量分数不应低于65%,H/C 原子比大于0.75,O/C 原子比在 0.06 ~ 0.26。《煤化工用煤技术导则》和《直接液化用原料煤技术条件》中均要求直接液化原料煤中挥发分 V_{daf}>35%,要求直接液化原料煤中 H/C 原子比>0.75。煤中高水分是煤液化的不利因素,因为水分的存在会使氢化反应速度放慢;灰中的 Fe,Co,Mo 等元素对液化有催化作用,但灰中的 Si,Al,Ca,Mg 等元素易结垢、沉积,影响传热和正常操作,给液化操作带来诸多不便[19],会影响煤转化终端产品的质量与过程效益,因此原料煤的灰分较低为好,一般认为液化用原料煤的灰分应小于 10%,最好低于 5%。淖毛湖煤田煤样挥发分产率(V_{daf})为 46.77% ~ 52.70%,属于高 ~ 特高挥发分煤,碳质量分数 65.26% ~ 73.36%,平均值为 70.47%,H/C 原子比在 0.86 ~ 1.01,均值为 0.94,氧碳原子比在 0.20 ~ 0.33,均值为 0.24,样品灰分在 4.19% ~ 7.45%,平均 5.20%,煤灰成分中 Fe_2O_3 质量分数达到 14.1%,可能会对煤的直接液化产生催化效果,而 SiO_2,Al_2O_3 原子比之和仅为 20.8%,这也给直接

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net

液化工艺带来了有利条件。

一般认为,煤的显微组分中镜质组和壳质组是煤直接液化的活性组分,易于液化,而惰质组通常较难液化[20-26],艾军等[27]对神东富含惰质组的煤样的液化性能进行研究,发现惰质组对煤液化总转化率及油产率有一定贡献。不同宏观煤岩成分的煤液化转化率,可以看出镜煤转化率最高为 98%,其次是亮煤、暗煤,丝炭的转化率最低,仅为 11.7%(表 4)。八道湾组煤显微组分中镜质组含量较高,达到 90% 以上,宏观煤岩类型以亮煤为主,是优质的直接液化用煤。

表 4　不同宏观煤岩成分的煤液化转化率[29]

Table 4　Coal liquefaction conversion rate of different macroscopic coal petrographic composition[29]

宏观煤岩成分	H/C 原子比	转换率/%
丝炭	0.4	11.7
暗煤	0.7	59.8
亮煤	0.8	93.0
镜煤	0.8	98.0

另外,除无烟煤不能液化外,其他煤均可不同程度的液化,煤炭加氢液化的难度随煤的变质程度的增加而增加,即泥炭<年轻褐煤<褐煤<高挥发分烟煤<低挥发分烟煤,煤 H/C 原子比随煤化程度的增高而降低,H/C 原子比高的煤液化率高,但实验发现,H/C 原子比高到一定值后,液化率随之减小,这是因为煤化程度低的煤含脂肪族碳和氧较多,加氢液化生成的气体和水增多。煤中挥发分的高低是煤化程度的一种表征指标,越年轻的煤挥发分越高、越易液化,通常选择挥发分大于 35% 的煤作为直接液化煤种。镜质体反射率直接反映了煤级,申凤山[28]认为镜质体平均最大反射率 $R_{o,max}$ 小于 0.7% 的煤大多适于液化,最佳为平均 $R_{o,max}$ 为 0.5% 左右。淖毛湖煤样镜质组最大反射率平均值 0.42%,处在直接液化的最佳煤化程度阶段。

4.2　成煤环境和泥炭沼泽环境对煤直接液化性能的控制

一般认为镜质组是由古植物,经凝胶化作用而形成,而德国鲁尔高挥发分烟煤直接液化实验表明,惰质组中经凝胶化作用的半丝质体、部分菌类体、粗粒体具有一定的反应活性,而未经凝胶化作用组分如火焚丝质体等则表现为完全惰性[31-33],可见煤的直接液化性能与凝胶化程度密切相关。而凝胶化程度与覆水条件直接相关,只要覆水条件好,凝胶化作用过程都比较充分[34]。淖毛湖煤田为三塘湖盆地的一部分,位于三塘湖盆地东北端,构造形态为向斜,即淖毛湖向斜,发育一条北西西向断层(图 1)。三塘湖盆地中下侏罗统时期岩相古地理,古气候,植被覆盖等因素和含煤层序结构具有其特殊性和多样性,造成成煤覆水条件及凝胶化程度的差异。早侏罗世八道湾组沉积时期,三塘湖盆地整体还处于半干旱-潮湿环境中,被暖湿气流所控制,坳陷中心较为平坦,植物较为发育,湖水面积明显增大,条湖西南部也发育为半深湖沉积,与汉水泉西南部的半深湖为统一的湖盆,条湖矿区西南主要为深湖-半深湖沉积,中部为滨湖及三角洲前缘,东北淖毛湖凹陷部为三角洲平原、泛滥平原相沉积(图 2),覆水条件较好,有关层序地层学方面的研究则认为,八道湾组煤层形成于水进序列,能够很好的在泥炭堆积后迅速被上覆沉积物所覆盖,保证泥炭始终处在缺氧的还原环境下,并且该煤系下伏地层为一套巨厚石炭系灰绿色、灰凝灰砂岩、硬砂岩、中-酸性火山熔岩,含水、导水能力弱,上覆地层为一套隔水性较好的泥岩-细砂岩-粉砂岩组合,再次保证了煤层很快处于还原缺氧环境,凝胶化作用得以充分进行,煤岩组分的演化过程不易受到来自顶底板的富氧水的影响。因此 A_4 煤层具有超低 TPI(结构保存指数)和高凝胶化指数 GI 指数,结构保存差、凝胶化程度高(图 6),煤显微组分中镜质组含量较高,在淖毛湖煤田达到 90% 以上,得以形成优质的直接液化用煤。而在三塘湖盆地中侏罗世西山窑组水体普遍下降,枯水期滨浅湖边滩成为大量成煤植物发育的场所,该时期的主要聚煤凹陷为辫状河和冲积扇沉积(图 7),成煤环境以高位沼泽为主,处于弱还原-氧化环境,煤的凝胶化程度减弱,并且层序地层学方面的研究则认为,西山窑组形成于水退序列,因此宏观煤岩类型以暗淡-半暗煤为主,微观煤岩组分镜质组含量相对于八道湾组明显减少,平均约为 30% 左右[12,14,35],惰质组含量约为 30%,直接液化性能不佳。

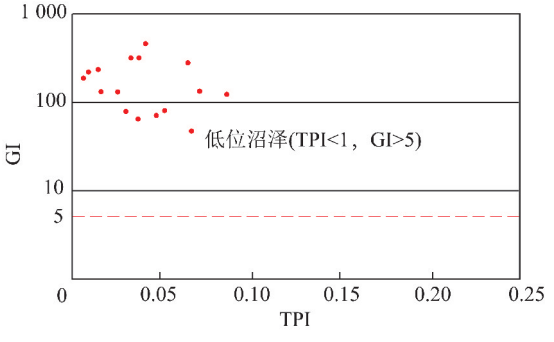
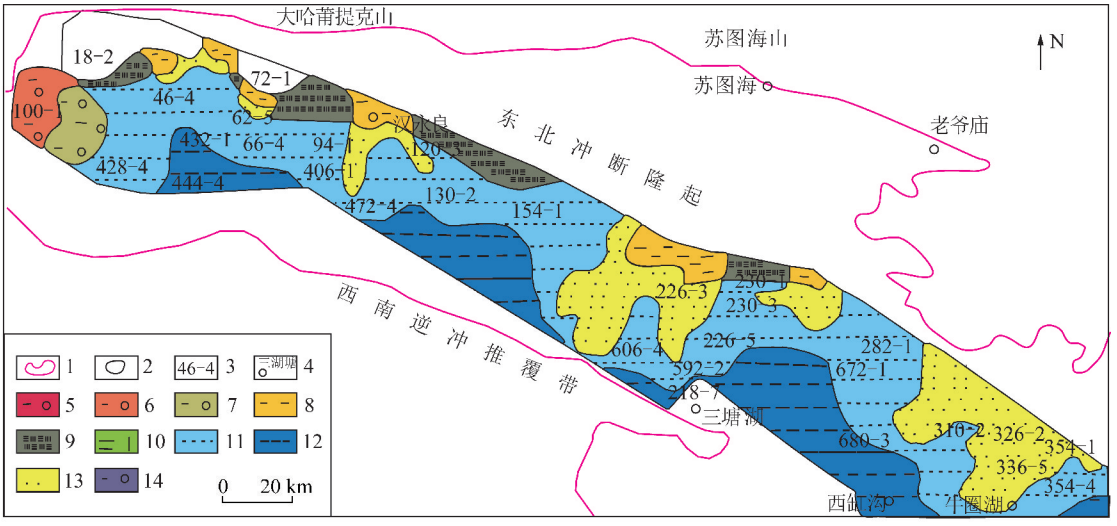


图 6　淖毛湖煤田 A_4 煤层煤相分析

Fig. 6　Coal facies analysis diagram of A_4 coal seam in Naomaohu coalfield

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net



1—盆地边界；2—勘查区边界；3—钻孔；4—地名；5—冲积扇；6—扇三角洲平原；7—扇三角洲前缘；8—三角洲前缘；9—泥炭沼泽；10—泛滥平原；11—滨浅湖；12—半深湖；13—三角洲前缘；14—重力流

图 7 三塘湖盆地西山窑组中期沉积相[12]

Fig. 7 Sedimentary facies of middle of Xishanyao Formation in Santanghu Basin[12]

淖毛湖煤田 A_4 煤层原煤平均灰分产率仅为 5.20%，灰成分主要为 CaO，占比超过 40%，与多数陆相盆地煤灰成分特征相左，SiO_2 和 Al_2O_3 所占比例远低于其他陆相盆地煤，显示泥炭可能是在富钙的沼泽中沉积，斯塔赫在其编著的《煤岩学教程》中指出[36]，富钙沼泽环境比海水能更大程度的降低泥炭的酸度，细菌的活动性加剧，结构导致植物遗体的分解作用、早期腐殖化作用和生物化学凝胶化作用强烈，接下来由于八道湾组煤层形成于水进序列[14]，预示着能够很好的在泥炭堆积后迅速被上覆沉积物所覆盖，保证了“地球化学凝胶作用”所需的埋藏深度和岩石温度，使得泥炭、软褐煤中的腐殖组向烟煤镜质组的转变，形成超高镜质组煤。与之形成对比的是三塘湖盆地西山窑组，煤灰成分中 CaO 质量分数一般低于 20%，且处于水退沉积序列，凝胶化作用较弱，煤的镜质组含量在 30% 左右，而惰质组含量达到 40% ~60%，影响直接液化性能。

煤灰中的 SiO_2 和 Al_2O_3 主要来源于陆源碎屑矿物，而 A_4 煤层中超低灰分产率，以及 SiO_2 和 Al_2O_3 在灰成分中所占的低比例均表明 A_4 煤层中陆源碎屑供给非常低。这表明八道湾组 A_4 煤层沉积期盆地形态平坦，沉积区距离物源区距离较远[37-43]。所以沉积期盆地形态平坦，沉积区距离物源区距离较远，造就了淖毛湖煤较好的直接液化工艺条件。

5 结 论

(1)从煤质特征看，淖毛湖煤田 A_4 煤层煤中各样品的氢碳原子比均大于 0.8，平均值达 0.94，挥发分产率平均达 49.2%，为高挥发分煤，镜质组最大反射率为 0.42%，显微煤岩组分镜质组和壳质组含量超过 90%，镜质组以基质镜质体为绝对主体，这些都为淖毛湖煤的加氢直接液化提供了优质反应对象及物质基础。

(2)从煤灰成分看，淖毛湖 A_4 煤层灰分平均 5.2%，灰分极低，且灰分中对直接加氢液化有不良影响的 SiO_2 和 Al_2O_3 含量较低，对液化有催化作用的 Fe_2O_3 含量较高，淖毛湖煤田 A_4 煤灰产率及成分也是有利于煤炭直接加氢液化工艺的。

(3)从成因条件看，淖毛湖煤田 A_4 煤层形成的早侏罗世八道湾组沉积时期，整体气候湿热，所处的泥炭沼泽环境推测为富钙环境，地层层序属于水进序列，这些条件保证了泥炭堆积早期的“腐殖化作用和生物化学凝胶化作用”和之后的“地球化学凝胶作用”，充分的凝胶化作用是形成淖毛湖煤田煤超高的直接液化活性组分(镜质组+壳质组)的重要因素；同时淖毛湖盆地成煤期形态平坦，沉积区距离物源区距离较远，使得煤灰产率较低，煤灰中 SiO_2 和 Al_2O_3 含量较低，使得直接液化工艺性能较好。

参考文献(References)：

[1] 王双明. 对我国煤炭主体能源地位与绿色开采的思考[J]. 中国煤炭，2020，46(2)：11-16.
WANG Shuangming. Thoughts about the main energy status of coal and green mining in China[J]. China Coal，2020，46(2)：11-16.

[2] 王双明，孙强，乔军伟，等. 论煤炭绿色开采的地质保障[J]. 煤

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net

炭学报,2020,45(1):8-15.
WANG Shuangming, SUN Qiang, QIAO Junwei, et al. Geological guarantee of coal green mining[J]. Journal of China Coal Society,2020,45(1):8-15.

[3] 宁树正,张宁,吴国强,等. 我国特殊煤种研究进展[J]. 中国煤炭地质,2019,31(6):1-4.
NING Shuzheng, ZHANG Ning, WU Guoqiang, et al. Advances in special coal species research in China[J]. Coal Geology of China, 2019,31(6):1-4.

[4] 周俊虎,方磊,程军,等. 神华煤液化残渣的热解特性研究[J]. 煤炭学报,2005,30(3):349-352.
ZHOU Junhu, FANG Lei, CHENG Jun, et al. Study on pyrolysis property of Shenhua coal liquefaction residual[J]. Journal of China Coal Society,2005,30(3):349-352.

[5] 陈鹏. 中国煤炭性质、分类和利用[M]. 北京:化学工业出版社,2007.

[6] 赵仕华,宋宜诺,郑衡. 神华煤液化蒸馏残渣加氢液化动力学研究[J]. 化工文摘,2009(3):26-28.
ZHAO Shihua,SONG Yinuo,ZHENG Heng. Kinetic study on hydrogenation liquefaction of distillation residua in Shenhua coal[J]. China Chemicals,2009(3):26-28.

[7] 秦云虎,李壮福,王双美,等. 华东地区液化煤资源评价指标及总体构成[J]. 中国煤炭地质,2009,21(6):14-16.
QING Yunhu,LI Zhuangfu,WANG Shuangmei,et al. Assessment indices and general constituting of coals for liquefaction in east China [J]. Coal Geology of China,2019,31(6):14-16.

[8] 杜芳鹏,李聪聪,乔军伟,等. 陕北府谷矿区煤炭资源清洁利用潜势及方式探讨[J]. 煤田地质与勘探,2018,46(3):11-14.
DU Fangpeng,LI Congcong,QIAO Junwei,et al. Discussion on the potential and way of clean utilization of coal resources in Fugu mining area,Northern Shaanxi[J]. Coal Geology & Exploration,2018, 46(3):11-14.

[9] 戴和武. 煤炭液化与煤炭资源的利用[J]. 煤炭科学技术,1980(11):2-6,33,61.
DAI Hewu. Coal liquefaction and utilization of coal resources[J]. Coal Science and Technology,1980(11):2-6,33,61.

[10] 戴和武. 煤炭液化基础研究的进展[J]. 煤炭科学技术,1983(3):3-9,62.
DAI Hewu. Progress in basic research on coal liquefaction[J]. Coal Science and Technology,1983(3):3-9,62.

[11] 赵鹏. 新疆淖毛湖煤直接加氢液化特性的研究[J]. 煤炭科学技术,2019,47(7):244-248.
ZHAO Peng. Study on direct hydrogenation liquefaction characteristics of Naomaohu coal in Xinjiang[J]. Coal Science and Technology,2019,47(7):244-248.

[12] 张冀,韦波,田继军,等. 新疆哈密三塘湖特大整装煤田中—下侏罗统煤层煤质及煤相特征[J]. 地质学报,2015,89(5):917-930.
ZHANG Ji,WEI Bo,TIAN Jijun,et al. Characteristics of coal quality and coal facies of Middle-Lower Jurassic coal seam in large ready coalfield of the Santanghu Basin,Hami,Xinjiang[J]. Acta Geologica Sinica,2015,89(5):917-930.

[13] 柳顺彬,马小平,周继兵,等. 新疆三塘湖盆地赋煤构造单元划分与构造特征[J]. 地质论评,2017(S1):271-272.
LIU Shunbin,MA Xiaoping,ZHOU Jibing,et al. Xinjiang Santanghu Basin coal division of tectonic units and tectonic characteristics [J]. Geological Review,2017(S1):271-272.

[14] 冯烁. 三塘湖盆地中—下侏罗统沉积演化及聚煤规律研究[D]. 乌鲁木齐:新疆大学,2015:19-35.
FENG Shuo. Sedimentary evolution and coal accumulation of the lower and the middle Jurassic in Santanghu Basin[D]. Urumqi: Xinjiang University,2015:19-35.

[15] 李文华,白向飞,杨金和,等. 烟煤镜质组平均最大反射率与煤种之间的关系[J]. 煤炭学报,2006,31(3):342-345.
LI Wenhua,BAI Xiangfei,YANG Jinhe,et al. Correspondence between mean maximum reflectance of vitrinite and classification of bituminous coals[J]. Journal of China Coal Society,2006,31(3): 342-345.

[16] 司胜利,李小彦,田新娟,等. 我国西部低煤级煤的液化性能[J]. 煤田地质与勘探,2009,37(3):10-14,18.
SI Shengli,LI Xiaoyan,TIAN Xinjuan,et al. Liquefaction property of low rank coal in west China[J]. Coal Geology & Exploration, 2009,37(3):10-14,18.

[17] 朱晓苏. 中国煤炭直接液化优选煤种的研究[J]. 煤化工,1997(3):32-39.
ZHU Xiaosu. Research on Chinese optimum coal types used in direct liquefaction[J]. Coal Chemical Industry,1997(3):32-39.

[18] 罗星云. 云南褐煤直接液化可行性研究[J]. 煤炭科学技术,2013,41(S2):412-415.
LUO Xingyun. Feasibility study of brown coal direct liquefaction in Yunnan Province[J]. Coal Science and Technology, 2013, 41 (S2):412-415.

[19] 王生维,李思田. 抚顺长焰煤的液化性能研究[J]. 煤炭转化,1996(4):79-84.
WANG Shengwei, LI Sitian. Study on liquefaction properties of Fushun long flame coal[J]. Coal Conversion,1996(4):79-84.

[20] 侯慧敏,胡社荣,潘响亮,等. 腐植煤生油显微组分研究现状与进展[J]. 中国煤田地质,1997,9(2):24-29.
HOU Huiming,HU Sherong,PAN Xiangliang,et al. Research status and progress of maceral from humus coal[J]. Coal Geology of China,1997,9(2):24-29.

[21] 刘兵元. 华亭煤液化性能分析[J]. 煤质技术,2006(4):70-71.
LIU Bingyuan. The analysis on liquefaction property of Huating Coal[J]. Coal Quality Technology,2006(4):70-71.

[22] 刘大永. 中国典型含煤盆地镜质组结构特征及生烃、同位素动力学研究[D]. 广州:中国科学院广州地球化学研究所,2004:1-99.
LIU Dayong. Vitrinites in typical coal-bearing basins of China: The moleeular charaeterization and their kinetic studies on the hydroearbon generation and carbon isotope fractionation [D]. Guangzhou:Guangzhou Institute of Geoehemistry,Chinese Academy of Seienees Guangzhou P. R. China,2004:1-99.

[23] 刘全有,BERNHARD M Krooss,金之均,等. 塔里木盆地煤及其显微组分超高温开放体系热模拟实验气态产物对比研究[J]. 天然气地球化学,2008,19(6):748-753.
LIU Quanyou,BERNHARD M Krooss,JIN Zhijun,et al. Compari-

中国煤炭行业知识服务平台 www.chinacaj.net

son of the gas compound generation of Tarim Coal and its macerals in open system non-isothermal pyrolysis with ultra-high temperature [J]. Natural Gas Geoscience,2008,19(6):748-753.

[24] 吴春来. 煤炭液化在中国的发展前景[J]. 地学前缘,2005,12(3):309-313.
WU Chunlai. Development perspective of coal liquefaction in China [J]. Earth Science Frontiers,2005,12(3):309-313.

[25] 姚素平. 煤成油有机岩石学研究进展[J]. 地球科学进展,1996,11(5):439-445.
YAO Suping. Advances in organic petrology of coal-derived oil[J]. Advances in Earth Science,1996,11(5):439-445.

[26] 赵鹏,张晓静,李军芳,等. 新疆淖毛湖煤加氢液化特性及液化产物中氢的分布规律[J]. 煤炭转化,2018,41(4):42-47.
ZHAO Peng,ZHANG Xiaojing,LI Junfang,et al. Liquefaction characteristics and hydrogen distribution in product of Naomaohu Coal from Xinjiang[J]. Coal Conversion,2018,41(4):42-47.

[27] 艾军,郭治,李克健. 神东煤富惰质组加氢液化反应动力学的研究[J]. 煤炭转化,2008(2):25-27.
AI Jun,GUO Zhi,LI Kejian. Study on kinetics of hydrogenation liquefaction in inert formation of Shendong coal[J]. Coal Conversion,2008(2):25-27.

[28] 申凤山. 浅析煤种、煤质对气化的影响[J]. 化工技术与开发,2013,42(7):36-37,41.
SHEN Fengshan. Analysis on influence of coal type and coal property on gasification[J]. Technology & Development of Chemical Industry,2013,42(7):36-37,41.

[29] 蒋立翔. 煤质对煤液化效果的影响分析[J]. 煤质技术,2008(5):46-49.
JIANG Lixiang. Analysis on the ef fect of coal quality on coal liquefaction[J]. Coal Quality Technology,2008(5):46-49.

[30] WARD C R. Coal geology and coal technology[M]. Melbourne: Blackwell Scientific Publising,1984.

[31] 刘大永,彭平安,于赤灵. 西北侏罗纪低成熟煤中镜质组热解产物特征及地质意义[J]. 煤田地质与勘探,2009,37(4):1-5.
LIU Dayong,PENG Pingan,YU Chiling. Molecular characterization of flash pyrolysates of Jurassic vitrinites in Northwest China and its geological implications[J]. Coal Geology & Exploration,2009,37(4):1-5.

[32] 罗霞,李剑,胡国艺,等. 鄂尔多斯盆地侏罗系煤生、排油能力实验及其形成煤成油可能性探讨[J]. 石油实验地质,2003,25(1):76-80.
LUO Xia,LI Jian,HU Guoyi,et al. An experiment of generation and expulsion of oil from the jurassic coals and its implication of coal generated oil in the Ordos Basin[J]. Petroleum Geology & Experiment,2003,25(1):76-80.

[33] 钟宁宁,陈恭洋. 中国主要煤系倾气倾油性主控因素[J]. 石油勘探与开发,2009,36(3):331-338.
ZHONG Ningning,CHENG Gongyang. Key controls of the gas and oil preferences of China's major coal-bearing sequences[J]. Petroleum Exploration and Development,2009,36(3):331-338.

[34] 黄文辉,敖卫华,翁成敏,等. 鄂尔多斯盆地侏罗纪煤的煤岩特征及成因分析[J]. 现代地质,2010,24(6):1186-1197.
HUANG Wenhui,AO Weihua,WEN Chengming,et al. Characteristics of coal petrology and genesis of Jurassic coal in Ordos basin [J]. Geoscience,2010,24(6):1186-1197.

[35] 陆星宇,田继军,冯烁. 新疆三塘湖煤田汉水泉区西山窑组煤层煤岩煤相特征及演替[J]. 煤炭技术,2018,37(1):116-118.
LU Xingyu,TIAN Jijun,FENG Shuo. Characteristics of coal petrography and coal facies during Xishanyao formation of Hanshuiquan district in Xinjiang Santanghu Coalfield[J]. Coal Technology,2018,37(1):116-118.

[36] STACH E,MACKOWSKY M Th,TEICHMULLER M. 杨起,译. 斯塔赫煤岩学教程[M]. 北京:煤炭工业出版社,1990:22-25.

[37] DAI S,REN D,CHOU C,et al. Geochemistry of trace elements in Chinese coals: A review of abundances, genetic types, impacts on human health, and industrial utilization[J]. International Journal of Coal Geology,2012,94:3-21.

[38] DAI S, LIU J, WARD CR, et al. Petrological, geochemical, and mineralogical compositions of the low-Ge coals from the Shengli coalfield, China: A comparative study with Ge-rich coals and a formation model for coal-hosted Ge ore deposit[J]. Ore Geology Reviews,2015,71(119):318-349.

[39] FENG Jie,LI Jun,LI Wenying. Influences of chemical structure and physical properties of coal macerals on coal liquefaction by quantum chemistry calculation[J]. Fuel Processing Technology,2013,109:19-26.

[40] FINKELMAN R B,PALMER C A,WANG P. Quantification of the modes of occurrence of 42 elements in coal[J]. International Journal of Coal Geology,2018,185:138-160.

[41] GUO Bingfeng,ZHOU Wei,LIU Shuai,et al. Effect of γ-ray irradiation on the electrochemical liquefaction of Shenhua coal[J]. Fuel,2015,143:236-243.

[42] CAO Daiyong, WANG Anmin, NING Shuzheng, et al. Coalfield structure and structural controls on coal in China[J]. International Journal of Coal Science & Technology,2020,7(2):220-239.

[43] WANG Xiaoshuai,TANG Yuegang,WANG Shaoqing,et al. Clean coal geology in China:Research advance and its future[J]. International Journal of Coal Science & Technology,2020,7(2):299-310.