

N° 2. — Sur la proportion de carbone et d'hydrogène contenue dans les schistes houillers; contribution à l'étude de la formation de la houille; par M. W. SPRING.

J'ai déterminé comment varie la proportion de carbone et d'hydrogène, dans les schistes houillers, avec l'éloignement de la couche de houille. Les résultats obtenus me paraissant présenter quelque intérêt général, je demande la permission de faire connaître à la Société chimique le résumé de mes recherches (1).

On a prélevé, dans les régions du toit et du mur d'une couche de houille du charbonnage de Saint-Gilles, à Liège, des échantillons de schiste houiller, en des points de plus en plus éloignés, mais équidistants de 0^m,50, à partir de la couche, de manière à comprendre aussi une prise dans le schiste directement appliqué sur la houille.

Les échantillons du toit, au nombre de cinq, ont été marqués *a, b, c, d, e*, ceux du mur : 1, 2, 3. On conservera ces signes dans la suite.

Après avoir grillé ces schistes en vue d'éliminer les matières combustibles, on a procédé à l'analyse des cendres. La proportion de SiO_2 , Al_2O_3 et Fe_2O_3 a été trouvée sensiblement la même. Les différences comportant, au plus, quelques unités pour 100 ne sont pas assez grandes pour obliger à dire que la composition minérale de ces schistes variait véritablement; on peut admettre que l'on a affaire, dans le cas présent, à des schistes toujours comparables entre eux, malgré l'inégalité de leur distance à la couche de houille.

On arrive à un résultat bien différent, en ce qui concerne la proportion de carbone et d'hydrogène. Voici le tableau des analyses

(1) Le travail *in extenso* se trouve dans les *Mémoires de la Société géologique de Belgique*, t. 14, p. 131-154; 1887.

	HOUILLE.	TOIT.					MUR.		
		a.	b.	c.	d.	e.	1.	2.	3.
Carbone.....	88.61	7.54	3.35	2.21	1.20	0.70	0.99	0.93	0.80
Hydrogène.....	4.65	0.79	0.62	0.54	0.56	0.59	0.84	0.53	0.58
Cendres.....	1.84	88.33	92.03	93.06	92.00	94.08	95.16	93.50	93.20
O, S, etc., par différence.	4.90	3.34	3.98	4.19	6.24	4.63	3.01	5.04	5.42
	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00	100.00

On le voit, la proportion de carbone et d'hydrogène varie très fortement. Si l'on compare le toit de la couche au mur, on trouve environ sept fois plus de carbone dans le premier que dans le second. Ensuite, dans chacune de ces régions, le carbone diminue à mesure que l'on s'éloigne de la couche de houille.

On peut rendre la loi de cette diminution visible en relevant, sur une courbe, les nombres du tableau précédent.

Du côté du mur, on trouve que la courbe se rapproche beaucoup d'une droite peu inclinée sur l'axe des abscisses ; du côté du toit, au contraire, les quantités de carbone varient sensiblement du simple au double pour les divers points équidistants. La courbe a donc, à très peu près, une signification géométrique : elle appartient à la famille des logarithmiques ; elle exprime par conséquent, que la cause de la diminution du carbone est en fonction inverse de la distance à l'origine, c'est-à-dire à la couche de houille. Il est possible de tirer de là quelques renseignements sur l'origine des matières charbonneuses dans les schistes et même sur la formation de la houille.

A première vue, on pourrait penser que les schistes du toit se sont imprégnés de matières charbonneuses aux dépens de la houille qu'ils couvrent, comme si cette dernière avait émis, par suite d'une espèce de distillation sèche, des produits carbonés de volatilité diverse : les plus volatils auraient pu cheminer plus loin à travers les schistes, tandis que les autres auraient dû s'arrêter plus près de la houille. Cependant on ne peut accepter cette conclusion comme établie que si la quantité d'hydrogène qui accompagne le carbone aux points *a, b, ... e*, augmente en sens inverse du carbone, car alors seulement la volatilité peut avoir un agent effectif.

En comparant les nombres figurant sous le titre hydrogène dans le tableau des analyses aux quantités respectives de carbone, on voit immédiatement qu'ils sont en dehors de toute proportion avec le rapport de l'hydrogène fourni par la houille.

Il y a même plus, ils conduisent simplement à une impossibilité chimique. En effet, si l'on calcule pour l'un des échantillons de schiste, par exemple pour le dernier, *e*, le rapport atomique des éléments C et H, on arrive très près de CH^{10} qui montre, à l'évidence, que l'hydrogène ne peut pas être exclusivement combiné au carbone. Pour les échantillons de schiste plus riches en carbone, on obtient, bien entendu, d'autres rapports, mais les conclusions restent les mêmes : ainsi pour *a* on a encore C^8H^{10} , tandis que la houille donne sensiblement $\text{C}^{16}\text{H}^{10}$.

La raison de cette anomalie provient de ce que les schistes houillers renferment de l'eau d'hydratation qui ne se dégage pas à 120° , mais qui vient s'ajouter dans l'analyse à l'eau provenant de la combustion de matières hydrocarbonées.

Pour tenir compte de cette eau, on a dissous la partie minérale des schistes, autant que possible, dans de l'acide fluorhydrique. Quand l'enrichissement en matières charbonneuses fut achevé, on a déterminé directement, par l'analyse élémentaire, le rapport du carbone à l'hydrogène. On a trouvé :

	a.	b.	c.	d.	e.	1.	2.	3.
Rapport C : H.	24.80	30.45	36.00	?	?	19.80	?	?

Le résultat ayant été incertain pour les schistes *d* et *e*, 2 et 3, par suite de l'extrême faiblesse de la quantité d'hydrogène, j'ai préféré ne pas le mentionner.

Pour faciliter la comparaison, on peut rapporter maintenant, par le calcul, l'hydrogène aux quantités absolues de carbone telles qu'elles figurent dans le premier tableau. On obtient :

	HOUILLE.	TOIT.					MUR.		
		a.	b.	c.	d.	e.	1.	2.	3.
Carbone.....	88.61	7.54	3.35	2.21	1.20	0.70	0.99	0.93	0.80
Hydrogène.....	4.65	0.30	0.11	0.03	?	?	0.05	?	?
Rapport C : H.	19.09	24.28	30.45	36.00	?	?	19.80	?	?

On le voit, cette fois, au mur de la couche, le rapport de l'hydrogène au carbone diffère peu de ce que donne la houille elle-même : 19.80, au lieu de 19.09. On peut en conclure, me semble-

t-il, que le mur contient des particules de houille peu altérée.

Les résultats fournis par les schistes du toit sont remarquables : le rapport va continuellement en augmentant, c'est-à-dire que l'hydrogène diminue relativement au carbone. On ne s'éloigne même pas beaucoup de la vérité en ajoutant que, pour *d*, et surtout pour *e*, l'hydrogène n'existe plus en quantité appréciable.

Les conclusions énoncées plus haut ne se vérifient donc pas : les schistes du toit n'ont pas été imprégnés de matières hydrocarbonées issues de la houille. Dès lors, la transformation des végétaux en houille ne s'est probablement pas accomplie sous l'influence d'une température relativement élevée. Le procédé qui a permis à M. Fremy d'obtenir, dans le laboratoire, la transformation de certaines matières en houille ne paraît pas avoir été celui de la nature. La transformation des végétaux doit s'être produite plutôt par le procédé dit *ulmique*.

Au sein des masses marécageuses primitives, les substances végétales ont donné, à la suite d'une fermentation spéciale, des matières ulmiques qui ont imprégné le tout et se sont modifiées et durcies avec le temps sous l'influence des agents extérieurs.

En outre, les alluvions qui ont recouvert les tourbières destinées à devenir nos houillères ont pu être mêlées de plus ou moins de matières végétales. Celles-ci ont dû subir le même sort que leurs voisines de la tourbière et passer à l'état de houille. Mais alors, bien que, à la vérité, la proportion de carbone ne doive pas nécessairement être la même en tous les points du schiste, on trouverait cependant partout l'*hydrogène* et le *carbone* dans le même rapport : celui de la houille, ou à peu près. Si le contraire s'observe, c'est que des actions étrangères sont venues gêner la transformation en houille, ou même s'y opposer.

En réalité, les variations constatées dans la teneur en carbone ne sont pas quelconques ou sans ordre, mais elles accusent une diminution graduée avec l'éloignement de la couche de houille. Cette allure ne paraît pas s'accorder avec les hasards de la végétation, ou avec d'autres facteurs qui auraient eu inévitablement pour conséquence une répartition irrégulière du charbon dans les schistes ; elle paraît plutôt l'indice d'une action qui s'est fait sentir d'une manière constante dans la suite des temps.

Tout paraît s'accorder pour montrer qu'il doit s'être passé, dans ces alluvions, avant ou peut-être après leur transformation en schistes, un phénomène d'oxydation lente sous l'influence de l'humidité et grâce à la porosité relative des matières minérales. L'oxygène aura agi d'une manière plus active sur l'élément pour

lequel il a le plus d'affinité : l'hydrogène. Il l'aura enlevé en plus grande quantité, et, en dépouillant les matières végétales en voie de transformation houillère, il les aura fait passer à l'état de charbon de plus en plus pauvre en composés propres à fournir des gaz, pour l'amener lentement jusqu'à l'état d'antracite, peut-être.

Il est clair que, dans ces conditions, le dépouillement des matières hydrocarbonées devait se faire en fonction inverse de la profondeur, en d'autres termes cette action peut se représenter par une courbe logarithmique. C'est bien ce que nous avons trouvé.

D'après cela, la formation et la conservation d'une houille à gaz abondants n'a pu avoir lieu, à travers les âges géologiques, que si elle se trouvait suffisamment protégée contre l'action des agents atmosphériques. Les mille variétés de houille doivent probablement leur origine plutôt à la façon inégale dont elles ont été protégées contre une consommation lente, qu'à une différence dans les espèces végétales dont elles dérivent, ainsi qu'on l'a prétendu souvent. D'ailleurs, n'a-t-on pas constaté qu'à notre époque encore les houilles les plus grasses donnent les dégagements les plus abondants de grisou. Or, la présence de ce gaz, sous forte tension, dont la diffusibilité est si grande, est un témoignage certain de l'imperméabilité des roches entre lesquelles cette houille se trouve enfermée.

Il est superflu, je pense, de faire remarquer que les phénomènes d'oxydation auxquels il vient d'être fait allusion ont dû nécessairement subir l'influence des alternatives dans les dépôts de tourbe et d'alluvions qui ont eu lieu pendant toute l'époque houillère. Si, en effet, les matières organiques du schiste peuvent protéger la houille contre l'action destructrice de l'oxygène, *a fortiori* une couche de houille aura un pouvoir protecteur. On serait peut-être renseigné à cet égard si l'on possédait une série aussi complète que possible d'analyses de schistes et de grès houillers, prélevés en travers tout un bassin. Ajoutons encore que les failles, les cassures, et les dérangements nombreux survenus dans le terrain, avant ou après sa consolidation, ont inévitablement eu pour conséquence de rendre moins efficace cette action protectrice, en permettant aux eaux de la surface, chargées d'oxygène, de s'insinuer dans le bassin houiller et de continuer alors leur action chimique.

Un mot encore :

D'après les analyses mentionnées plus haut, les schistes du mur de la couche de houille contiennent considérablement moins de carbone que ceux du toit. Il ne sera peut-être pas sans utilité de

16 MÉMOIRES PRÉSENTÉS A LA SOCIÉTÉ CHIMIQUE.

vérifier si cette remarque est susceptible de généralisation, car on posséderait alors un moyen commode pour distinguer le toit du mur.