

格陵兰东北地区的富树脂煤： 一种从未认识的高富油侏罗系源岩

J. A. Bojesen-koefoed F. G. Christiansen H. I. Petersen 等(丹麦)

摘 要 格陵兰东北霍克斯特朗半岛地区的富树脂、高硫煤是优质的油源岩。 I_H 可能超过了700,其总生烃潜力估计为 27×10^6 bbl/km²。这种低阶煤还没有完成生烃潜力,其整体上以壳质组显微组分为主,其中树脂为最主要的组份,占煤的70%。抽提饱和烃组分的生标分布显示出一系列特征,包括高含量的倍半萜和二萜、高Pr/Ph比值、低CPI、烷基和甲基烷基环己烷优势、低含量的三环三萜和藿烷及明显的C₂₉比C₂₇甾烷优势。泥炭沉积于静水近海岸环境,以少量的碎屑物注入和偶尔的海侵为特征,母质植物以未知的裸子植物为主。

关键词 烃源岩 富树脂煤 热解实验 格陵兰东北

1 引 言

在过去的几十年间,“煤成油”理论引起了广泛的关注。其中中侏罗系富树脂煤沉积物尤其引人关注。煤层散布于格陵兰东北的绝大多数地区,在其中许多地方都发现了不同年龄和规模的煤层沉积。另外,煤的漂砾在许多地区非常普遍,说明煤为非原地煤层沉积。

目前,还没有一处这类沉积矿床被彻底地研究过。然而,分布于霍克斯特朗半岛西南边缘的中侏罗系产煤地层已经引起了关注。露头含三层煤,它们交互沉积于以砂为主的沉积地层中,以异常高的树脂含量为特征。本文的研究对象就是取自于东北格陵兰不同地区的煤层沉积物和煤的漂砾。

本项研究的目的:①报道这些煤的岩石学和有机地球化学的分析结果;②评价这些煤的生油潜力;③对泥炭的形成环境提出一个初步解释。

2 地质背景

晚加里东沉积物广泛存在于格陵兰岛东和东北部,但是75°N以北仅有少量广泛展布的沉积盖层的遗迹被保存在下落断层的断块和半地堑中。在有着连续沉积物的霍克斯特朗半岛和大科尔德威地区已经鉴定出石炭、侏罗和早白垩系的沉积物。

格陵兰东北侏罗系沉积物主要有三个相:含石英砂岩的粗砾岩,硅化树干和树叶印痕;含化石的浅海砂岩,灰色片状泥岩块和与黑色泥岩及砂岩互层的煤层。Surlyk(1978)把这些地层沉积描述为受控于旋转断层的断块。海相沉积分布于海槽中,滨海沉积向着脊部展布。古纬度大约是35°N,南北向至少250 km的煤的存在表明在中侏罗系整个地区以这种沉积

环境为主。覆盖于含化石的浅海砂岩之中的黑色泥岩表明在早基默里奇阶(晚侏罗世)海平面相对上升。产煤地层露头位于霍克斯特朗半岛南部的卡尔哈斯地区,其从下到上分别为 Joswa、Godthaab 和 Tobias 等三层(图 1)。精确的厚度不能确定,但每层厚度大约介于 2~4 m 之间。树叶和树枝的印痕非常普遍,小根可以在煤层下的砂岩中找到。复合煤层与油页岩互层并含有相当高的黄铁矿。煤被细微地层化,煤层实际上比现在描述的更复杂。煤的精确年龄不得而知,Plasecki(1994)报道了零星的且保存较差的孢子和花粉植物群为侏罗系,可能是中侏罗。位于煤层之上的海相地层的双壳类的年龄为中侏罗世—早牛津阶(晚侏罗世),剖面上部中的菊石类为晚牛津阶。位于底部海床中的一个稀疏甲藻植物群表明年龄为中(到晚)卡洛夫阶。因而煤的年龄不会晚于中卡洛夫阶(中侏罗世)。

3 样品及分析方法

煤样采集:从雅涅尔斯地区(图 1)的 Tobias、Godthaab 和 Joswa 煤层中分别采集 35 个、9 个和 5 个样品。在霍克斯特朗半岛、大科尔德威、卡尔哈斯和瓦尔罗索登湾地区收集了四个松散的岩块样品。

分析工作包括:①在 LECO 感应电炉中烧燃除去碳酸盐的样品的总有机碳分析(TOC);②总硫(TS)分析;③使用 II 型生油评价仪进行生油评价热解分析。

使用二氯甲烷+甲醇(93+7 v/v)溶液进行索氏抽提。通过正戊烷,沉淀沥青烯。使用 HPLC 仪,按照 Radke 等的程序,除去沥青烯的抽提物分离成饱和和烃、芳烃和极性组分。

利用 HP5890 气相色谱(25m HP1 WCOT 柱,无分流注入)对饱和烃进行色谱分析。HP5890 系列 II 型气相色谱与 HP5971A 四极质量选择检测器连用对样品进行色-质分析。同时进行了选择性离子监测(SIM)与全扫描分析。将热解炉与 HP5890 气相色谱仪连接对抽提后的样品及沥青烯进行了热解气相色谱分析(Chrompack 50 m CB-Sil-8 WCOT 柱),热解温度区间为 300~550℃,升温速率为 20℃/min。温度用 Newtronics TP5 装置控制。

用 Zeiss II 型显微镜进行显微组分分析,用 Leitz Orthoplan 显微镜进行镜质组/腐殖组反射的测定。每个样品都计数 500 个点,分析程序、显微组分鉴定及命名都遵照 ICCP 标准。

4 结果

4.1 分析数据

TOC、TS 和热解岩石评价数据列于表 1 中。尽管有些波动,但 Joswa 和 Godthaab 层有机碳、硫含量及热解产量较稳定,并且相互类似。因而, Joswa 层的有机碳含量范围为 49.5%~68.50%(平均为 61.34%,重量百分比,下同), Godthaab 层含量范围为 57.90%~68.80%(平均 63.39%)。总硫含量相当高, Joswa 层为 3.34%~5.80%,平均为 4.22%,

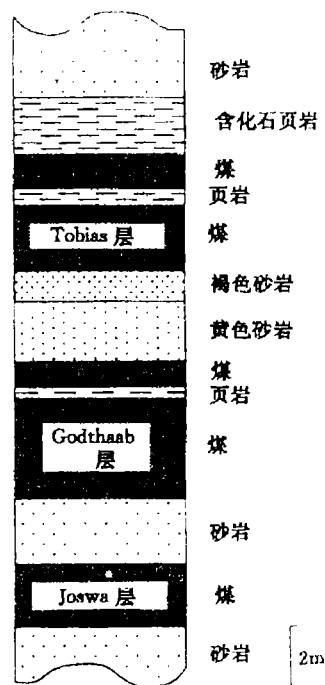


图 1 雅涅尔斯沉积剖面

Godthaab 层为 4.21%。Joswa 的 TOC/TS 比范围为 10.7~20.5,平均为 15.0,Godthaab 层平均为 15.3。热解产率(S_2 ,kg 烃/t 岩石)相当高,Joswa 层的变化范围为 147~425 kg/t,平均为 304 kg/t,Godthaab 层为 316 kg/t。对应的 I_H 在 Joswa 层为 237~652,平均为 491,Godthaab 层为 501(表 1)。

表 1 煤热解实验结果

| 样品号 | TOC(%) | TS(%) | T _{max} (℃) | S ₁ (kg/t) | S ₂ (kg/t) | I _H |
|----------------------------------|--------|-------|----------------------|-----------------------|-----------------------|----------------|
| Tobias 层 255108 | 9.46 | 8.25 | 417 | 1.18 | 33.60 | 355 |
| Tobias 层 255107A1 | 58.30 | 4.27 | 429 | 8.69 | 404.05 | 693 |
| Tobias 层 255107A2 | 57.20 | 4.29 | 430 | 8.18 | 406.36 | 710 |
| Tobias 层 255107B | 51.60 | 5.51 | 427 | 6.98 | 244.71 | 474 |
| Tobias 层 255106 | 21.70 | 11.58 | 424 | 3.23 | 87.42 | 403 |
| Godthaab 层 255110A | 57.90 | 5.33 | 430 | 8.08 | 310.88 | 537 |
| Godthaab 层 255110B | 65.20 | 4.02 | 431 | 10.46 | 425.38 | 652 |
| Godthaab 层 255109 | 61.00 | 4.33 | 428 | 6.10 | 270.16 | 443 |
| Godthaab 层 255111A | 68.30 | 3.34 | 427 | 10.16 | 345.59 | 506 |
| Godthaab 层 255111B | 64.20 | 3.68 | 426 | 9.67 | 287.90 | 448 |
| Godthaab 层 255112 | 59.70 | 4.34 | 427 | 9.62 | 303.01 | 508 |
| Godthaab 层 351569-1A | 61.90 | 3.91 | 424 | 14.25 | 359.25 | 580 |
| Godthaab 层 351569-1B | 68.80 | 4.61 | 422 | 8.36 | 22.81 | 328 |
| Godthaab 层 351569-2 | 63.50 | 4.37 | 424 | 11.66 | 319.33 | 503 |
| Joswa 层 255113A | 49.50 | 3.69 | 427 | 6.56 | 232.81 | 470 |
| Joswa 层 255113B | 62.00 | 5.80 | 424 | 4.36 | 147.04 | 237 |
| Joswa 层 255114 | 68.50 | 3.61 | 429 | 12.54 | 412.00 | 601 |
| Joswa 层 351566A | 62.60 | 4.17 | 427 | 9.23 | 334.30 | 534 |
| Joswa 层 351566B | 64.10 | 3.82 | 429 | 8.73 | 393.49 | 614 |
| 松散岩样 255104(Hvalrosodden) | 71.00 | N. A. | 426 | 14.01 | 505.98 | 713 |
| 松散岩样 255115(Hochstetter Forland) | 66.70 | N. A. | 424 | 14.42 | 329.03 | 493 |
| 松散岩样 360381(Kulhøj) | 66.95 | N. A. | 428 | 13.21 | 481.28 | 719 |
| 松散岩样 360486(Store Koldewey) | 67.75 | N. A. | 427 | 14.90 | 487.27 | 719 |

Tobias 层的有机碳及硫含量与 Jowa 和 Godthaab 层不同。尽管 Joswa 和 Godthaab 层表现为相当均一,但 Tobias 层沿层面含量差异很大。Joswa 和 Godthoaab 层缺少这种波动,可能与采样有关,这两层的上部和底部都没有取样。Tobias 层底部的为高硫含碳油页岩,但中部为低硫纯煤,上部又为高硫含碳油页岩。有机碳含量在层的底部为 21.70%,中部为 57.20%,上部为 9.46%。对应的 TS 值分别为 11.58%,4.29%和 8.25%。TOC/TS 比值从 1.15~13.65。TOC 和 TS 的平均值分别为 39.65%和 6.78%。同样,热解产率也相当高,为 33.60~406.36 kg/t,平均约为 235kg/t。对的 I_H 值为 355~710,平均为 527。

对松散样品的分析结果类似于 Joswa 与 Godthaab 层的样品,但其具有高的生烃潜力,例如,瓦尔罗索登湾样品的热解产率高达 506 kg/t。

因而,生油评价结果表明这些煤具有相当大的生烃潜力。为了更形象地说明这些煤的生烃潜力,计算出每平方公里的生烃潜量,根据 Frebold(1932)作的煤层厚度图(图 1),Joswa、Godthaab 和 Tobias 煤层的厚度分别为 2 m、4.2 m、3.6 m。利用上述的 S_2 值及煤的平均密度为 1.3 t/m^3 ,烃产率为 $3\,633 \text{ kg/m}^2$ 。假定烃的密度为 0.83 t/m^3 ,总产率为 $4\,377 \times 10^6 \text{ l/km}^2$,大致对应于 $27 \times 10^6 \text{ bbl/km}^2$ 。

4.2 岩相学

霍克斯特朗半岛地区样品的腐殖组反射率为 $0.37\% \sim 0.44\%$,大科尔德威,瓦尔罗索登湾和卡尔哈斯半岛地区的松散样品腐殖组反射率较低,大约为 0.38% ,因而,煤阶为褐煤到亚烟煤。

样品有着良好的微层理,并含有不同的颗粒粒级,在以相对大的颗粒为主的薄层中粒级分选不发育,以小颗粒为主的薄层中分选发育。

在这种煤中矿物质通常含量较少,以壳质组显微组分为主。除少数样品外,树脂是其最主要的成份,树脂体占煤的 50% 左右,其大小从 $10 \mu\text{m}$ 或更小到大约 $1 \sim 3 \text{ mm}$ 。树脂体一般情况下应为椭圆形,但由于压实作用已变得扁平,树脂也偶尔充填于木栓质体之中,采用油浸及入射白光照射,树脂体为半透明,显红褐色,经常伴有桔红色反射光。采用荧光诱发蓝光加上油浸或水,树脂体展现出一系列颜色,从黄色到红褐黄色再到黄褐色。有些情况下,在蓝光下察看树脂体,树脂体的氧化部分在其表面和沿着裂隙有一圈黑光边,除此之外,再观察不到氧化现象。观察手标本,较大的树脂体呈板条状,长可达几厘米,厚 $2 \sim 3 \text{ mm}$ 。薄的角质体颗粒很常见,碎屑壳质体也很普遍,可能存在一些微体藻类族象基质带有或不带有少量粘土矿物充填于大的颗粒之间,小的薄壁孢子很少被找到,但未鉴定出来。腐殖组显微组分主要以本质结构体及腐木质体的网状结构存在,并平行于微层理排列。带有凝胶体充填物的腐木质体及充分分解腐本属体厚条带偶尔可见,小的惰质体存在,没有发现腐殖质颗粒的氧化边,小的丝质体颗粒很少见。除粘土碎屑颗粒外,也常见孤立的次圆状石英颗粒,与其它存在的矿物颗粒相比,这些石英颗粒较大,以独立的单颗粒存在为特征。

4.3 热解气相色谱

尽管有小的变化,沥青烯和抽提后煤的热解产物组成大体上类似,除个别热解样品外,所有的色谱图都包含一个完整的正构烷烃/烯烃系列,偶尔能延伸到 C_{32} 或更高,这些峰的分布有规律地降低或在 nC_{23-25} 附近有第二个最大值,在 C_{14-17} 范围内,热解产物包含相当数量的化合物,它们可能是倍半萜和二萜。除几个样品例外,这类化合物在沥青烯热解产物中明显占优势。 nC_{16} 与 nC_{17} 双峰之间有一个峰,初步鉴定其为萜烯。

4.4 可溶抽提

所有样品的可溶性抽提产率及沥青烯含量都相当高。抽提产率的范围为 $52 \sim 156 \text{ mg EOM/g TOC}$,沥青烯占的比例为 $31\% \sim 72\%$,除沥青烯的馏分组成以 NSO 组分为主,平均占 71% 左右,芳烃组分平均占 23% 左右,而饱和烃组分含量较低,平均占 6% 左右。

4.5 气相色谱及气相色—质谱

饱和抽提馏分的气相色谱分析表明,尽管其含量在各个样品中不同,但其整体特征类似,无环类异戊二烯烃,尤其是姥鲛烷,含量非常高,因而导致高的 Pr/Ph 值(平均为 11.5),

和高的 Pr/nC_{17} 值(平均为 6.7)。Tobias 层上部和最下部样品的这些值远低于平均值。样品的蜡质组分含量及 CPI 都较低,但在低碳数范围内,有明显的奇碳优势,尤其是 C_{15} 、 C_{17} 和 C_{19} 同系物更明显,松香烷或海松烷型骨架的三环二萜及扁枝烷型骨架的四环二萜含量较高,在 $\text{nC}_{12}\sim\text{C}_{21}$ 范围内,可观察到由未分开的支链和环倍半萜及二萜构成的萜烷突起峰,组成 14 到 25 碳原子同系物的正烷基环己烷含量非常高。对 C_{15} 、 C_{17} 、 C_{21} 和 C_{23} 正烷基环己烷同系物而言,奇碳优势非常明显,而且,还观测到了各种各样的甲基烷基环己烷异构体同系物,其最少分布到 C_{23} 。

从雅涅尔斯地区采自煤层原地样品及松散样品而言,各样品间的三萜和三环萜极其类似。不含或含极少量三环三萜,TS、29TS,升藿烷的碳数超过 32 为其特征,无 γ 蜡烷和 β 藿烷含量丰富,升藿烷和二升藿烷异构化达到或接近平衡。

卡尔哈斯,瓦尔罗索登湾和大科尔德威三地区的松散样品的三萜的分布特征有所不同。在这些样品中,升藿烷的量非常低,主要含 $17\beta(\text{H})$ -三降藿烷、藿烷、降莫烷和莫烷。升藿烷和二升藿烷 $22\text{S}/(22\text{S}+22\text{R})$ 异构化比值没有达到平衡。

从 $\text{C}_{27}\sim\text{C}_{29}\alpha\beta$ 异构体的相关分布来看,很明显,在所有的样品中 C_{29} 甾烷占明显优势,尽管在 Tobias 层的上部和底部及 Godthaab 层的下部 C_{29} 甾烷的量较低,但一般情况下, C_{29} 甾烷占 60%~100%,除 Tobias 层的上部及最底部的样品及卡尔哈斯和大科尔德威地区松散样品外,重排甾烷的量较低。

不管是原地样品和松散样品,甾烷 $20\text{S}/(20\text{S}+20\text{R})$ 异构体比值都远未达到平衡,藿烷与甾烷比值相对较低,变化范围为 1~6。

5 讨 论

5.1 成熟度

就烃生成而言,根据 T_{max} 值、腐殖组反射率及生物标志物数据,这些煤都不成熟。在霍克斯特朗半岛地区的单个煤层中,煤阶发生变化是不可能的,因为地层埋深很接近。因而,生标异构化比值的微小变化可能归因于催化异构化过程的粘土矿物的变化,也可能是由于有机质类型的不同造成的。单层样品中腐殖组反射率的不同可能归因于低阶煤腐殖质显微组分的胶凝作用不完全。另外,也可能与煤的细微岩相组成有关。由于早期成岩过程中,类脂化合物吸附于腐殖质胶体之上,含类脂质高的样品比含类脂低的样品 R_o 值要低。

然而,大科尔德威、瓦尔罗索登湾和卡尔哈斯地区松散样品与霍克斯特朗半岛地区样品在坐标参数及腐殖组反射率之间的极大差异说明,在这一地区其它地方也存在着类似的甚至更低阶的煤沉积。

5.2 煤组成

由于倍半及二萜的比例高,热解产物的组成与沉积物的高树脂的特点一致,另外,也与高树脂 IV 组煤的热解产物组成吻合。上面已经提到,与沥青烯热解产物相比,煤的热解产物组成变化较大,一种解释是,沥青烯可能被看作是沥青质与其母质干酪根的中间产物。因为在任何热成熟阶段,就沥青质的形成而言,全煤仅有一部分是“活着”的,沥青烯基本上反应了这一部分的组成。另一方面,煤的热解产物是由这一不稳定组分及其它较稳定组分形成的,而且在每个样品中,它们的比例是不同的,因而导致煤的热解产物组成变化较大。

所有鉴定出来的二萜,包括蒽烯,都与裸子植物的树脂有关,从沥青烯的热解产物及抽

提物的馏分可看到,与树脂有关的大比例的倍半萜和二萜也支持了早期的烃类是由树脂质生成的观点。

可溶抽提物和气相色谱数据与观测到的煤的岩相组成一致。在产树脂质的沉积物及产于高树脂质石油中都可以观测到高的抽提产率和芳烃/饱和烃比值、低含量的蜡组分、高比例的二萜类(尤其是倍半萜和三环二萜)、高的 Pr/Ph 值。

正烷基环己烷在石油和沉积物抽提物中都存在,然而,这些组分的来源不十分清楚。从实验得知,烷基环烷烃、甲基烷基环烷烃、正构烷烃是由不饱和脂肪酸和正构酸的环化反应形成的。这些化合物主要成因模式可能是长链脂肪酸的环化,另外还可能来源于环己酸,在上述煤样品中,烷基环己烷和正构烷烃存在方式极其类似,说明这些化合物有一个共同的来源。

5.3 沉积环境

这些煤的沉积环境掌握得还不详细。煤的岩相组成表明它们大部分是原地生成,但缺乏分选和氧化证据。低的矿物含量表明泥岩形成的环境无大量碎屑的注入,煤层相当大的厚度表明泥炭的沉积速率能够在很长的一段时间内与本地水面上升的步伐一致。尽管在夹层或上层的海相地层沉积期间,海水的侵入会经常导致硫含量的升高,但在与煤有关的沉积物中发现的高硫组分、沉积结构及化石表明了泥炭的沉积环境为近滨或近海环境,另外,相对低的藿烷与甾烷比值与近滨环境一致。因而,认为是一个受海洋影响的半咸水环境。但还没有从煤中发现海相化石,泥岩沉积可能与海平面的变化有关。Tobias 层记录了泥岩形成的周期。该层底部含碳页岩具有中等含量的 TOC,非常高的 TS 的特点。与 C_{29} 有关的 C_{27} 甾烷比例的增加说明了泥岩早期是在一个强烈受海洋影响的泻湖/海岸沼泽形成环境。这一现象在煤层中部的煤中有所显示,海平面的逐渐上升导致泥炭沉积的中止,和与底部页岩相类似的上层含碳页岩的沉积。最后,上覆薄层海相砂岩记录了与海侵类似的组成趋势。

5.4 区域应用及烃潜力

Hunt(1991)认为,只要煤满足一套简单的要求就可成为油源岩: H/C 比值大于 0.9; I_H 超过 200;壳质组含量高于 15%。尽管这种说法存在争议,但格陵兰东北的煤是很好的生油岩是无多大疑问的。加拿大西北的波弗特—马更些盆地已展示了成熟度较低($R_o < 0.6\%$)的富树脂沉积可以生成凝析油。而且已在昆士兰州的科拉撒尼和默奇森—鲍恩盆地发现了树脂质生成的早期烃。

关于煤成烃,普通的观点认为煤生成的石油被强大的毛细管力抑制于煤的毛细孔隙中,只有当增大的热力作用才能使石油组分裂解成气而释放出来。但是,基于热解数据,Durand 和 Paratte 发现到 R_o 为 1.5%~30% 时重的煤可被转化为烃,这些烃的大部分为像油的组分(C_{6+})。如果这样,关于液体石油从煤中排出的可能性问题就是一个重要的研究方向。像 Katz 等人(1991)所发现的那样,煤内大量石油的生成会导致煤的微孔隙系统的破坏,并消除了微孔隙对烃的抑制能力。这里报道的热解数据表明,某些格陵兰东北的煤可生成 50% 重量的烃。这必将导致煤微细结构的剧烈改变。因而,即使小于 50% 煤被转化为石油,也很难想象油能从微孔隙系统中排出。而且,基于微量激光热解研究,Stout 发现石油从煤中的排出强烈依赖于显微组分的组合,即显微煤岩类型,因而,排烃在碎屑煤中比在含有大量块状腐殖质显微组分的煤中更容易。

就北大西洋地区的烃类开发而言,煤成油可能很重要。在北大西洋地区的西部,报道了

在下侏罗世 Are 组有富 H 煤,可能是烛煤或藻煤。这些煤被推测为 SmØrbuukk SØr 地区的石油源岩,而且,挪威的 Andøya 岛上存在着中侏罗世—晚侏罗世的烛煤和油页岩。沿着挪威的西海岸,可以发现藻煤卵石和大的煤块。推测这些煤的块体和卵石来自于对产煤地层露头的侵蚀。这些发现结合起来,包括对格陵兰东北富树脂煤的发现,说明这种沉积物在北大西洋地区的下—中侏罗统广泛存在。尽管还没有确切的证据去论证这些煤是目前可开采石油的源岩,但很清楚,如果这种沉积物存在于滨海地区,包括挪威贝伦特大陆架,它们可能是烃类的重要区域性资源,因而,它们对本地区烃类潜在储量的可能贡献不应该被忽视。

6 结 论

格陵兰东北霍克斯特朗半岛地区的富树脂、高硫煤是优质的油源岩, I_H 偶尔超过 700。这种低阶煤以壳质组显微组分为主,在很大程度上还没有完成其生油潜势。热解—气相色谱、色谱、色—质数据显示出此种煤的一系列特征,包括高含量的与裸子植物树脂有关的倍半萜和二萜,高的 Pr/Ph 比值,相对低的 CPI,正构烷基和甲基烷基环己烷优势,低含量的三环三萜和扩展的藿烷及明显的 C_{25}/C_{27} 甾烷优势。沉积环境的细节还不清楚,但这些煤为近海环境沉积,以少量碎屑物注入、偶尔的海侵为特征,母体植物以不知名的裸子植物为主。树脂富集的机理尚不清楚。

挪威哈尔滕近岸地区下侏罗统烛煤/藻煤的存在、挪威北部 Andøya 岛烛煤和油页岩以及挪威西海岸的藻煤岩块,再加上这里报道的格陵兰东北的高含树脂煤,可以看出这种沉积物在北大西洋近岸地区作为烃源岩的可能重要性。

姜峰. 译自 Bulletin of Canadian Petroleum Geology, 1996, 44(3): 458~473. 刘文汇校.