中国科学: 地球科学 2015 年 第 45 卷 第 7 期: 953 ~ 962
www.scichina.com earth.scichina.com
《中国科学》杂志社
SCIENCE CHINA PRESS

论 文

四川盆地北部上三叠统须家河组高成熟煤系烃源岩芳烃热演化与应用

李颖[①], 朱扬明[①*], 郝芳[②], 邹华耀[③], 郭彤楼[④]

① 浙江大学地球科学系, 杭州 310027;
② 中国地质大学资源学院, 武汉 430074;
③ 中国石油大学地球科学学院, 北京 102249;
④ 中国石化勘探南方分公司, 成都 610000
* 联系人, E-mail: zyming@zju.edu.cn

收稿日期: 2014-10-14; 接受日期: 2015-02-28; 网络版发表日期: 2015-06-15
国家科技重大专项项目(编号: 2011ZX05005-03-009HZ)和教育部高等学校博士学科点专项科研基金博导类资助课题(编号: 20130101110051)资助

摘要 基于40余个芳烃组分的GC-MS及相关分析资料, 阐明了四川盆地北部上三叠统须家河组煤系烃源岩在成熟晚期到过成熟阶段(R_o=1.13%~2.85%)芳烃组成的热演化特征, 并剖析了适用于高-过成熟烃源岩有机质生源和沉积环境判识的芳烃指标. 研究结果表明, 在高热演化阶段这些烃源岩中低碳环数的萘及菲系列随成熟度增高而减少, 而芘、苯并萤蒽、苯并[e]芘等高碳环数化合物逐渐相对富集, 且母体化合物趋于增多, 是高地温条件下的裂解和持续的脱氢作用所引起的聚合反应所致. 它们的 MPI_1 值随成熟度(R_o)呈两段式线性变化趋势, 在 R_o<1.80%时随之升高, R_o>1.8%时降低, 两者的关系式分别为 R_o=0.98MPI_1+0.37 和 R_o=–0.90MPI_1+3.02, 不同于前人的结果. 当 R_o 值高于 1.1%时二苯并呋喃类化合物开始急剧减少, 导致芳烃三芴系列组成发生显著变化, 因而不适用于高-过成熟煤系烃源岩的沉积环境识别. 4-/1-MDBT 比值可作为反映有机相变化的有效指标, 能区分高成熟煤与泥岩. 2,6-/2,10-DMP, 1,7-/1,9-DMP比值和三芳甾烷丰度可作为高演化烃源岩的有机质生物源参数, 能指示陆源输入与水生生物贡献的大小.

关键词
高成熟烃源岩
芳烃
甲基菲指数
三芴系列
须家河组
四川盆地

烃源岩的芳烃化合物主要是沉积有机质的热演化产物. 相对于常规的生物标志物, 它们包含着更为特殊的地球化学信息, 被广泛应用于判识有机质生源及其沉积环境和确定热演化程度. 但随着成熟度的增高, 有机相对芳烃组成的影响大为减弱(Radke, 1988), 致使常用的指相芳烃参数的应用受到限制. 而另一方面, 芳烃成熟度参数有更宽的化学动力学范围(Alexander等, 1985), 在指示高、过成熟烃源岩的演化程度时尤为有效. 目前, 关于高热演化烃源岩的芳烃组成特征和演化规律的研究不多, 适用的生源

中文引用格式: 李颖, 朱扬明, 郝芳, 邹华耀, 郭彤楼. 2015. 四川盆地北部上三叠统须家河组高成熟煤系烃源岩芳烃热演化与应用. 中国科学: 地球科学, 45: 953–962
英文引用格式: Li Y, Zhu Y M, Hao F, Zou H Y, Guo T L. 2015. Thermal evolution and applications of aromatic hydrocarbons in highly mature coal-bearing source rocks of the Upper Triassic Xujiahe Formation in the northern Sichuan Basin. Science China: Earth Sciences, doi: 10.1007/ s11430-015-5084-8

和沉积环境芳烃指标很少. 四川盆地上三叠统须家河组(T_3x)煤系地层广泛发育, 是一套最重要的陆相烃源层, 已被勘探实践证实为盆地西部的主力气源岩. 近年来, 盆地北部的元坝、通南巴等区块中, 须家河组也展示了良好的勘探前景(盘昌林等, 2011), 尤其在元坝区块已成为当前勘探的主要目的层, 发现了高产气层, 并见有储层固体沥青. 该区域的须家河组烃源岩演化程度普遍很高, 大都处于高、过成熟阶段, 常规的地球化学指标难以判识其有机质生源及沉积环境, 导致它们的烃源识别缺乏有效的分子标志. 本研究在四川盆地北部的元坝、通南巴、大普光区块及川西北部的川科1井, 系统采集了不同演化阶段的须家河组泥岩和煤样, 剖析其芳烃化合物的热演化特征, 探讨适用于高演化煤系烃源岩的生源和沉积环境指标.

1 地质背景与样品分析

研究区在大地构造上位于米仓山-大巴山山脉的前缘地带, 包括元坝、通南巴、大普光及川西北部等区块(图1), 地理上属于四川盆地东北部和西北部地区, 是叠覆在古生代扬子地块被动大陆边缘之上的中、新生代前陆复合盆地. 区域内沉积演化经历了以海相碳酸盐岩为主的台地沉积阶段和陆相碎屑岩为主的盆地沉积阶段, 发育有从震旦系至第四系厚逾万米的沉积地层. 震旦系至中三叠统主要为海相沉积地层, 上三叠统至第四系主要为陆相沉积地层. 上三叠统须家河组主要为湖泊-三角洲沉积, 其中须一段在川西局部地区为海陆交互相沉积, 其余各段为陆相沉积, 主要发育于川西地区, 东北部地区相对较薄, 厚度一般在500 m以下.

本研究所涉的元坝、通南巴和大普光构造带属中国石化的勘探区块. 元坝区块位于川中平缓构造带北部, 通南巴区块位于米仓山冲断构造带和大巴山弧形冲断构造带的叠合部位, 大普光区块地处川东高褶带的西北部, 包括普光、东岳寨和毛坝等构造. 这些区块均是天然气富集区. 区内上三叠统须家河组煤系烃源岩主要为深灰色泥岩和煤, 有机质类型以Ⅲ型为主, 部分$\mathrm{II_B}$型, 大都处于高成熟-过成熟演化阶段.

烃源岩样品取自元坝(元陆4、元坝6和元坝271等井)、通南巴(马201井)、大普光(雷北1、普光3井)区块探井及川西北部川科1井的须家河组岩芯及岩屑, 包括32个泥岩和10个煤样. 煤样取自须三段和须

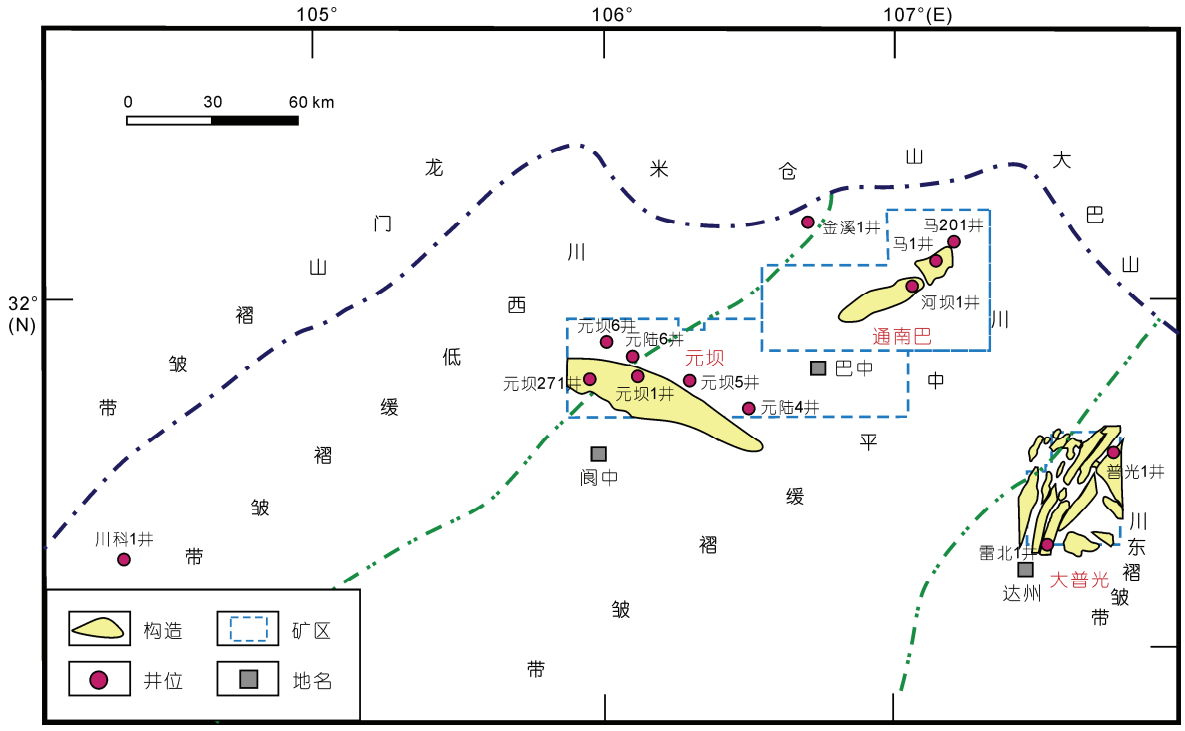

图 1　四川盆地北部相关含油气构造带和探井分布略图

五段地层, 泥岩样取自须一段至须五段地层. 这些样品实测的R_o值在1.13%~2.85%范围, 热演化程度从成熟晚期(生油高峰期后)到过成熟干气阶段; 其干酪根的δ^{13}C值在–23.6‰~–25.6‰, 按划分标准(胡见义和黄第藩, 1991)有机质类型主要为Ⅲ型.

岩样经清洗后粉碎至100目, 用氯仿索氏抽提72 h, 抽提物用石油醚沉淀去除沥青质后, 利用硅胶/氧化铝柱层析法分离出饱和烃和芳烃组分. 芳烃组分的GC-MS分析在Agilent 6890-5975CMSD色谱-质谱联用仪上进行, 所用色谱柱为30 m×0.25 mm HP-5MS石英毛细管柱. 柱室升温程序: 初始温度为60℃, 恒温5 min, 再以3℃/min的升温速率升温至310℃, 恒温30 min. 载气为氦气, 电子轰击源. 化合物鉴定依据文献资料和相对保留时间.

2 芳烃化合物的热演化特征与成熟度参数

2.1 高-过成熟阶段芳烃组成变化特征

GC-MS分析结果表明, 不同成熟度的须家河组烃源岩中芳烃组成和分布有明显的变化. R_o值在1.2%上下的成熟晚期烃源岩中, 芳烃组成与一般中等成熟的烃源岩相似, 以二、三环的萘和菲系列化合物为主(图2(a)), 相对含量分别占可定性芳烃化合物总量的20%和35%左右; 四环的芘系列次之, 在10%上下; 五环以上化合物较少, 低于10%. 当达到R_o值1.8%左右的高成熟阶段时, 芳烃的组成发生了明显的变化(图2(b)). 其萘系列很少, 不足1%; 菲和芘系列相对含量增高, 分别在45%和25%左右; 五环以上化合物变化不显著. 当R_o值达2.0%左右进入过成熟度阶段时, 三、四环的菲和芘系列相对含量有所减少, 而五环的苯并萤蒽、苯并[e]苝等化合物明显增多(图2(c)), 相对含量达20%以上. 随成熟度再增高到R_o约为2.5%时, 三、四环芳烃持续减少, 五环以上化合物进一步增多(图2(d)), 含量高于30%. 以上变化表明, 烃源岩在高热演化阶段的芳烃组成, 不同于快速升温的热模拟实验(Price, 1993)和受火成岩体影响地层(George, 1992)的芳烃, 不是以低碳环数化合物为主, 而以富集高碳环数化合物为特征. 这可能是在较高的地温条件下, 持续的脱氢作用所引起的聚合反应所致.

此外, 在图2中可观察到, 随成熟度增加芳烃中热稳定性较高的无烷基取代的母体化合物(如萤蒽、苝等)丰度升高, 同时在菲、芘等系列中多烷基化合物因裂解作用而相对减少, 表明芳烃化合物的组成受控于热动力学过程.

2.2 菲系列的演化与甲基菲指数

菲及其烷基取代物是烃源岩中最重要的芳烃化合物, 其组成和分布与有机源构成、沉积相和热演化程度相关(Szczerba和Rospondek, 2010). 对于同种有机质类型的烃源岩来说, 它们的分布主要与成熟度有关. Radke等(1982, 1983)通过不同成熟度的Ⅲ型烃源岩芳烃组份的气相色谱(GC)分析, 发现菲(P)与甲基菲4个异构体(3-、2-、9-、1-MP)的分布随成熟度呈规律性变化, 从而提出甲基菲指数(MPI_1=1.5(2-MP+3-MP)/(P+1-MP+9-MP)), 并回归出MPI_1与等效镜质体反射率R_c的方程式: R_c=0.60MPI_1+0.4(R_o<1.35%)和R_c=–0.60MPI_1+2.30(R_o>1.35%). 这两公式至今仍广泛应用于烃源岩和原油成熟度的确定.

所研究的须家河组烃源岩芳烃中, 菲系列化合物分布随成熟度的升高呈现规律性变化. 在R_o值为1.2%上下的样品中, 菲的相对含量中等, 甲基菲中2-和3-MP稍占优势(图3). 当成熟度增高到R_o值1.8%左右时, 菲的相对含量变化不大, 而甲基菲4个异构体的分布出现显著变化, 即2-和3-MP远高于1-和9-MP, 表明它们之间发生了通过甲基迁移的异构化作用, 由α构型的1-、9-MP向热稳定性更高的β构型的2-、3-MP转化. 随R_o值增高到2.0%上下时, 菲明显增多, 而甲基菲显著降低, 意味着在这个演化阶段出现了脱甲基化作用. 此时, 甲基菲中2-和3-MP相对另两异构体减少, 说明它们的脱甲基作用更为强烈. 当成熟度进一步升高到R_o值2.5%时, 这些菲系列化合物持续上述的演化过程, 导致菲含量更高, 而甲基菲变得更少, 其中2-和3-MP相对于9-、1-MP因脱甲基作用不均衡又有所减少. 另外, 在所研究的烃源岩成熟度范围内, 2-MP在甲基菲中均占优势, 表明其热稳定性高于其他同系物.

这些烃源岩中MPI_1值呈两段式线性变化(图3). 当R_o值在1.1%~1.8%时, MPI_1随R_o值的增加而逐渐增高, 在R_o值1.8%上下时达到最高值(1.52). 之后, 两者出现反向变化, 即随R_o值的增加MPI_1值不断降低, 直到R_o值2.85%时仍呈减少趋势. 根据42个样品的数据, 这两参数的回归方程式分别为R_o=0.98MPI_1+0.37(R=0.93, R_o<1.8%)和R_o=–0.90MPI_1+3.02(R=0.85,

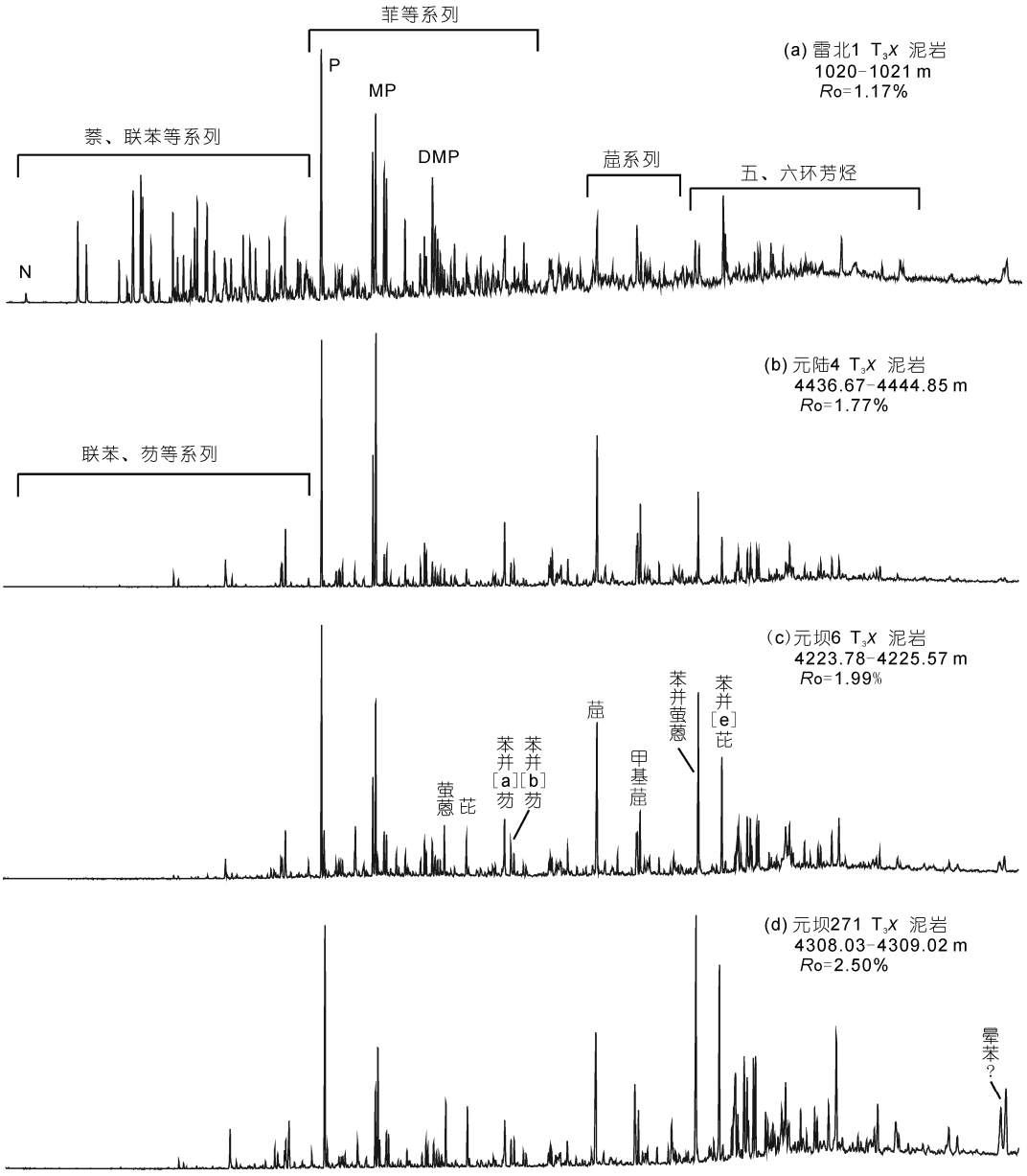

图 2　须家河组不同成熟度烃源岩的芳烃化合物分布变化图(TIC)

R_o>1.8%).

值得探讨的是, 本研究烃源岩的MPI_1值出现反向变化的R_o值在1.8%, 与Radke等(1982)的研究结果(R_o在1.35%)差别很大. 实际上, 关于Ⅲ型烃源岩MPI_1出现反向变化的R_o值, 文献上已见有不同的结果和认识. Boreham等(1988)根据澳大利亚一套陆相生油岩样品芳烃的气相色谱分析资料, 认为MPI_1在R_o为1.70%时出现反向变化, 从而修正了Radke等(1982)的方程式, 提出的新方程式为R_c=0.7MPI_1+0.22 (R_o<1.7%)和R_c=−0.55MPI_1+3.0(R_o>1.7%). 沈忠民等(2009)通过川西坳陷煤系烃源岩的分析, 指出MPI_1在R_o值小于1.5%时, 随热演化程度的增加而逐渐增大; 之后又有所降低. 最近, Szczerba等(2010)系统收集了文献中含Ⅲ型干酪根烃源岩的甲基菲丰度数据, 发现MPI_1在R_o高于1.35%时的变化趋势并不像前人认为的那样. 他们指出, R_o值低于1.35%时MPI_1确实随R_o增加而升高, 但在更高成熟度(R_o=1.35%~1.8%)时MPI_1还是呈总体增高趋势, 而不是与R_o呈负相关变

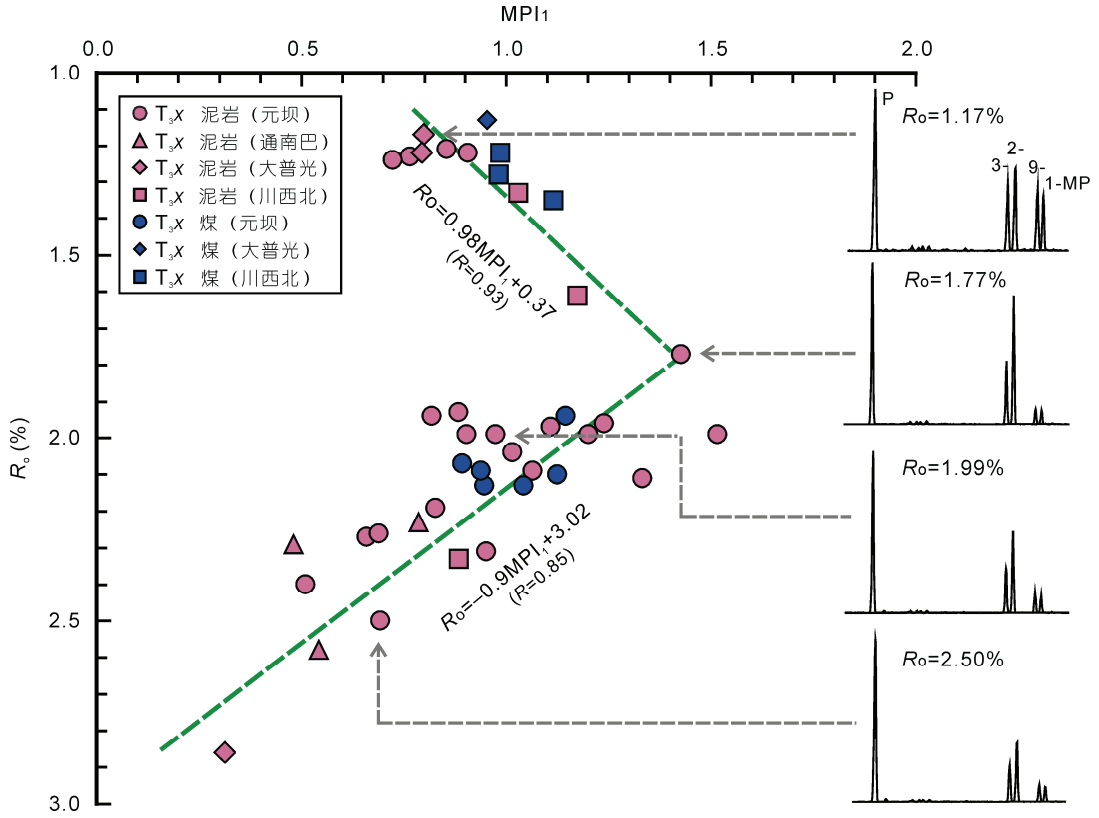

图 3　须家河组烃源岩甲基菲指数(MPI_1)与 R_o 值的相关变化图

化，因而认为Radke等(1982)的方程式所依据的数据不具有代表性. 本研究R_o值高于1.8%的样品近30个，随R_o值增加MPI_1逐渐降低的负相关性明显(R=0.85)，因而该反向变化折点的R_o值(1.8%)是可信的.

应指出的是，本研究的MPI_1值是依据芳烃组份GC-MS分析的质量色谱图(m/z178和m/z192)相关峰面积计算的，而Radke等(1982)和Boreham等(1988)是利用GC分析资料计算. 因为GC-MS分析的甲基菲响应因子不同于GC(Cassani等, 1988)，两种分析方法所得结果会有差别. 另外，经对比注意到，分别用GC-MS分析的总离子流图(TIC，相当于GC谱图)和质量色谱图(甲基菲偏低)峰面积算出的MPI_1也不同，前者要高0.2~0.3，但两者的MPI_1随R_o的变化趋势和反向变化的折点没变. 目前在有机地球化学领域普遍用GC-MS分析芳烃，并在质量色谱图上积分，因而本研究的结果更具有实用性，特别适用于高演化储层固体沥青和烃源岩成熟度的确定.

另一项与甲基菲分布有关的常用芳烃参数是由Kvalheim等(1987)提出的甲基菲分布分数F_1((2-MP+3MP)/(2-MP+3-MP+1-MP+9-MP)). 他们指出煤的F_1值在生油窗范围内与R_o成线性关系，两者方程式为R_o=−0.166+2.242F_1(基于芳烃GC分析数据)，并认为可适用于原油或其他类型有机质. 但F_1值是否可作为更高成熟度的有效参数，目前尚未得到论证. 本研究的须家河组煤系烃源岩中，F_1值随成熟度的分布也呈两段式变化趋势. 在R_o低于1.8%时，F_1与R_o呈线性正相关变化(图4)，两者方程式为：R_o=−0.33+2.46F_1 (R=0.86，R_o<1.8%)；当R_o高于1.8%时，两者为负相关关系，关系式为R_o=5.05−3.76F_1 (R=0.81，R_o>1.8%). 可见，该参数及其与R_o的先前方程式应用于高演化阶段时需修正.

3　与沉积环境有关的含硫、氧芳烃

3.1　三芴系列

芳烃中的芴(F)、硫芴(SF，即二苯并噻吩)和氧芴(OF，二苯并呋喃)系列具有相似的碳骨架结构，被称作三芴系列化合物. 三芴系列的相对含量被Lin等

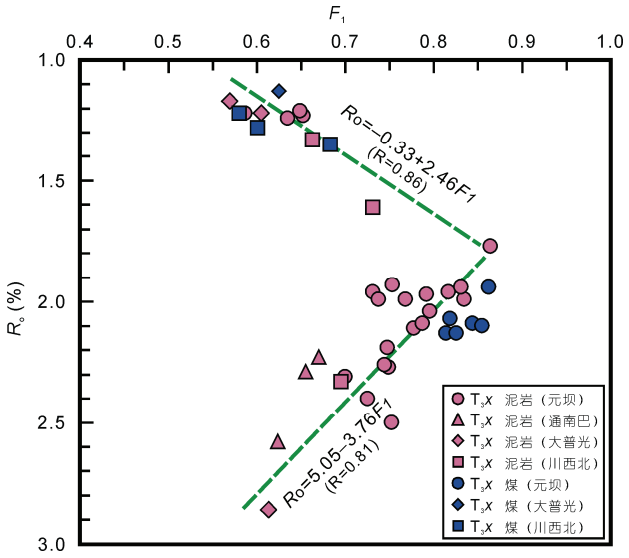

图 4　须家河组烃源岩甲基菲分布分数(F_1)与 R_o 值的相关变化图

(1991)提出可作为判别有机质沉积环境的指标，后由程克明等(1995)根据大量的实际分析资料划分了不同类型烃源岩的分布区(图5)，被广泛应用于烃源岩和原油的研究(朱扬明，1996; Li等，2010; 张敏等，2012). 但该指相芳烃参数能否适用于高成熟烃源岩，目前尚未见有报道.

研究区须家河组烃源岩的三芴系列组成明显与成熟度有关. 在R_o值为1.13%~1.35%的成熟晚期煤和泥岩样品中氧芴系列含量较高，在15%~55%范围，硫芴和芴系列分别为15%~55%和15%~45%，大部分数据点落在煤系烃源岩分布区域(图5)，与实际地层沉积相一致. 而在成熟度达R_o值1.35%以上的样品中，无论是煤还是泥岩都以低氧芴为特征，其相对含量大多在15%之下；芴系列普遍较丰富，大部分样品高于40%；部分样品还出现富硫现象，硫芴高于60%. 这些高-过成熟烃源岩样品数据点大多落在各类典型烃源岩分布区之外，部分在咸水湖相烃源岩区，与它们的真实沉积相完全不符. 上述结果表明，芳烃三芴系列只可用于成熟阶段(生油窗，R_o=0.6%~1.35%)烃源岩，而不适用于高-过成熟煤系烃源岩.

不同热演化程度的烃源岩中三芴系列组成的变

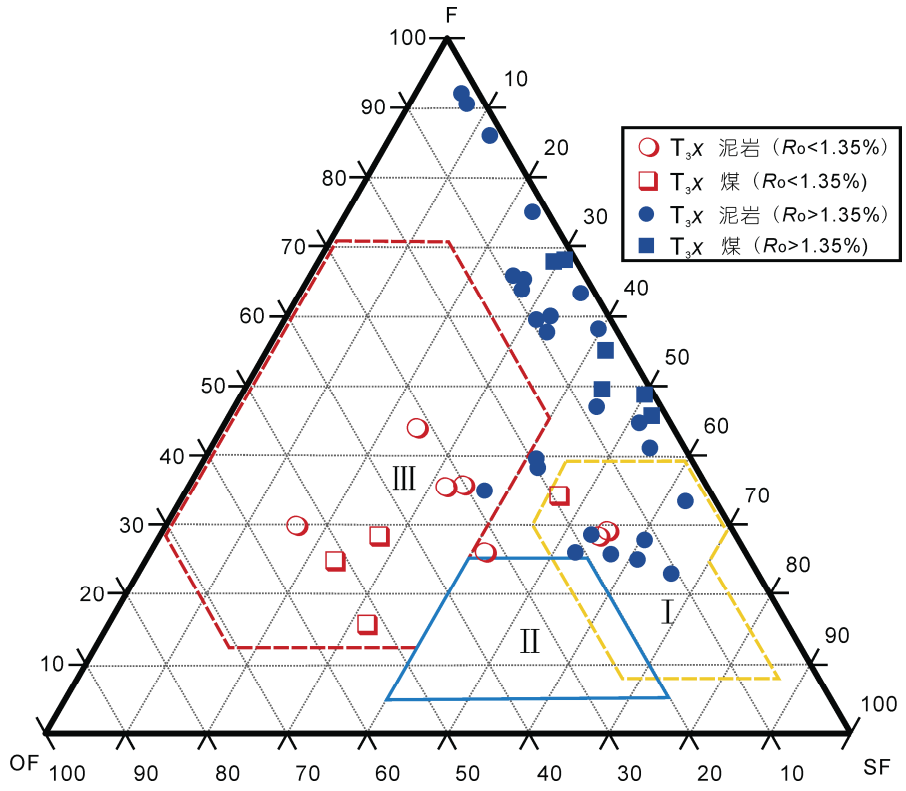

图 5　须家河组不同成熟度烃源岩芳烃三芴系列相对含量分布变化三角图

Ⅰ：盐湖相泥质岩；Ⅱ：淡水湖相(非煤系)泥质岩；Ⅲ：煤系烃源岩

化, 主要取决于硫芴与氧芴两者间的相对丰度. 二苯并噻吩系列化合物的热稳定性很高(Milner等, 1977), 其含量在不同演化阶段变化不大; 而二苯并呋喃类化合物的形成基本上与液态烃的生成同步, 在低成熟阶段较少, 之后逐渐增高, 在生油高峰期后的较高成熟阶段, 因热催化降解作用其含量又变低(Radke等, 2000). 所研究的须家河组烃源岩中这两类化合物相对含量有很大的变化. 如图6所示, 在R_o值低于1.35%的样品中, 氧芴/硫芴比值相对较高, 大多在0.5以上, 最高者达3.0以上, 表征煤系地层有机质富氧的组成特点. 而在R_o高于1.35%的样品中该比值均较低, 基本上都在0.5之下. 整个成熟度范围(R_o=1.13%~2.85%), 此比值呈明显的规律性减少趋势, 尤其在R_o值1.13%~1.35%更是急剧降低, 从3.4降低到0.5左右. 这证实了在较高成熟阶段二苯并呋喃类化合物热稳定性很低. 正因为这种原因, 导致三芴系列不能用于高-过成熟煤系烃源岩.

3.2　4-/1-MDBT

二苯并噻吩类化合物是烃源岩中含硫有机物的主要存在形式, 常用来确定沉积相和成熟度. 4-/1-MDBT(甲基二苯并噻吩)是一项常用的成熟度参数, 随热演化程度的增加而逐渐升高, 但受有机相影响(Radke等, 1986). Hughes(1984)指出, 与泥质岩相比, 碳酸盐岩及钙质页岩及所生原油中1-MDBT较高, 相应的4-/1-MDBT比值低. Huang等(1999)在研究渤海湾盆地原油时发现, 4-/1-MDBT在淡水湖相原油中呈高值, 而超咸水相原油中很低, 且与Pr/Ph具有很强的正相关性. 因而, 该参数既能确定成熟度, 又可用于判别沉积环境.

这些须家河组烃源岩的4-/1-MDBT比值随成熟度的变化表现出该参数上述的双重性. 在R_o值1.1%~1.8%, 该比值随之升高(图7); 而此后, 又逐渐降低, 可能因脱烷基作用所致(包建平等, 1996). 同时, 从图7可看出, 在R_o值相近的同地区煤与泥岩之间, 4-/1-MDBT存在较明显的差别, 煤样总体要比泥岩高得多, 反映出两者沉积环境氧化性的差别.

要说明的是, 煤系地层中煤与泥岩沉积环境的氧化还原性通常可用Pr/Ph等分子指标进行区分. 但在高热演化阶段, 这些饱和烃参数出现异常, 两类岩性烃源岩的Pr/Ph值相近且均大幅降低, 大都在1.0上下, 基本没有区别. 在这种情况下, 4-/1-MDBT比值不失为识别高成熟烃源岩沉积相的一项有效指标, 之前已有成功的应用实例(朱扬明等, 2012).

4　指示有机质生源的芳烃

对于煤系烃源岩有机质, 有不少可指示其高等植物生源的芳烃生物标志物, 如卡达烯、惹烯等, 但它们在中等成熟的烃源岩中就已大幅减少(Zhu等, 2012), 到了高演化阶段则更少而失去其生源意义. 因而, 探索适用于高成熟烃源岩的生源指标很必要.

4.1　二甲基菲比值

一些二甲基菲异构体的分布可指示有机质生源

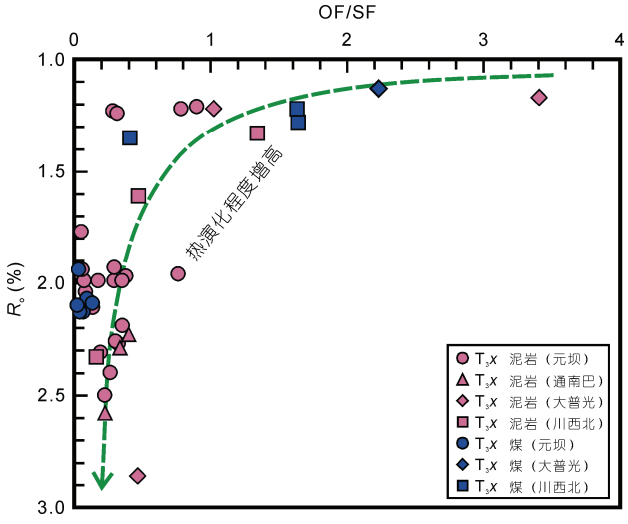

图 6　须家河组烃源岩的氧芴/硫芴比值随 R_o 值变化图

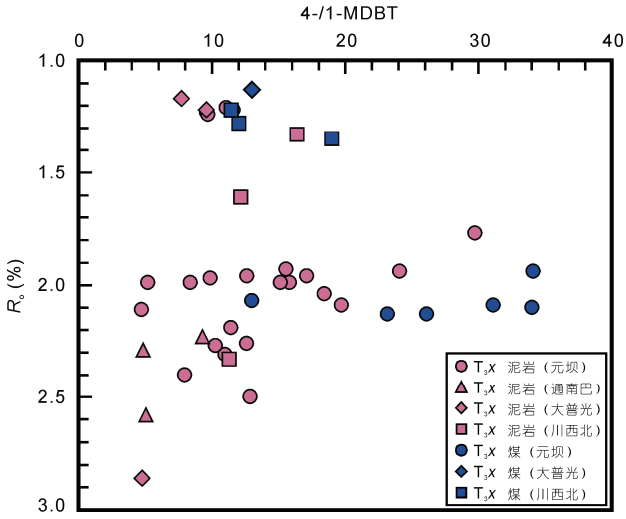

图 7　须家河组烃源岩的 4-/1-MDBT 和 R_o 值分布变化图

(Budzinski等, 1995), 1,7-DMP(二甲基菲)、2,6-DMP通常在陆源有机质同系物中占主导地位, 而像1,9-DMP、2,10-DMP等甲基取代在C-9或C-10位上的化合物则在海相有机质中具有优势. 据此, 本文利用2,6-/2,10-DMP与1,7-/1,9-DMP比值(因共逸出1,9-、2,6-、2,10-DMP含有其他异构体)来区分煤与泥岩有机源的差别. 由于这两个二甲基菲比值受成熟度影响, 因而笔者以成熟度相近(R_o值大多在2.0%上下)且样品数较多的元坝地区为例, 来探讨这个问题. 该地区7个须家河组煤样的1,7-/1,9-DMP和2,6-/2, 10-DMP比值均较高, 分别大于5.0和1.0(图8); 而同层位泥岩的这两比值总体较低, 大多分别低于5.0和1.0, 与煤形成了较好区别. 这表明这两个二甲基菲比值可作为区分高热演化烃源岩有机质生源的辅助指标.

需指出的是, 一般煤与泥岩的有机质生源很容易用饱和烃生物标志物, 如三环萜烷和甾烷分布加以区别. 但在高热演化阶段, 煤与泥岩的这些化合物分布没有差别(朱扬明等, 2012), 即发生了趋同性现象(梁狄刚等, 2009). 这些须家河组煤和泥岩也是如此, 原因尚不清楚.

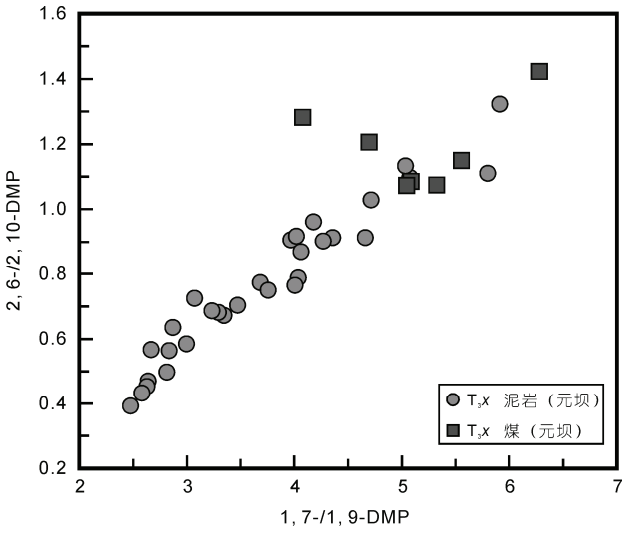

图 8 元坝地区须家河组煤和泥岩的二甲基菲异构体比值分布图

4.2 三芳甾烷

元坝地区须家河组煤与泥岩样品之间C_{26}~C_{28}三芳甾烷丰度存在明显差别(图9). 在所分析的7个煤样中几乎都不含这类化合物, 除一个样品的三芳甾烷/总芳烃比值为0.02%外, 其他样品均低于检出限. 与之形成对照的是, 泥岩中该系列化合物含量虽有较大变化但普遍较丰富, 三芳甾烷/总芳烃比值大多高于0.02%, 高者达1.0%以上, 23个样品的平均值为0.3%, 高于煤样至少一个数量级.

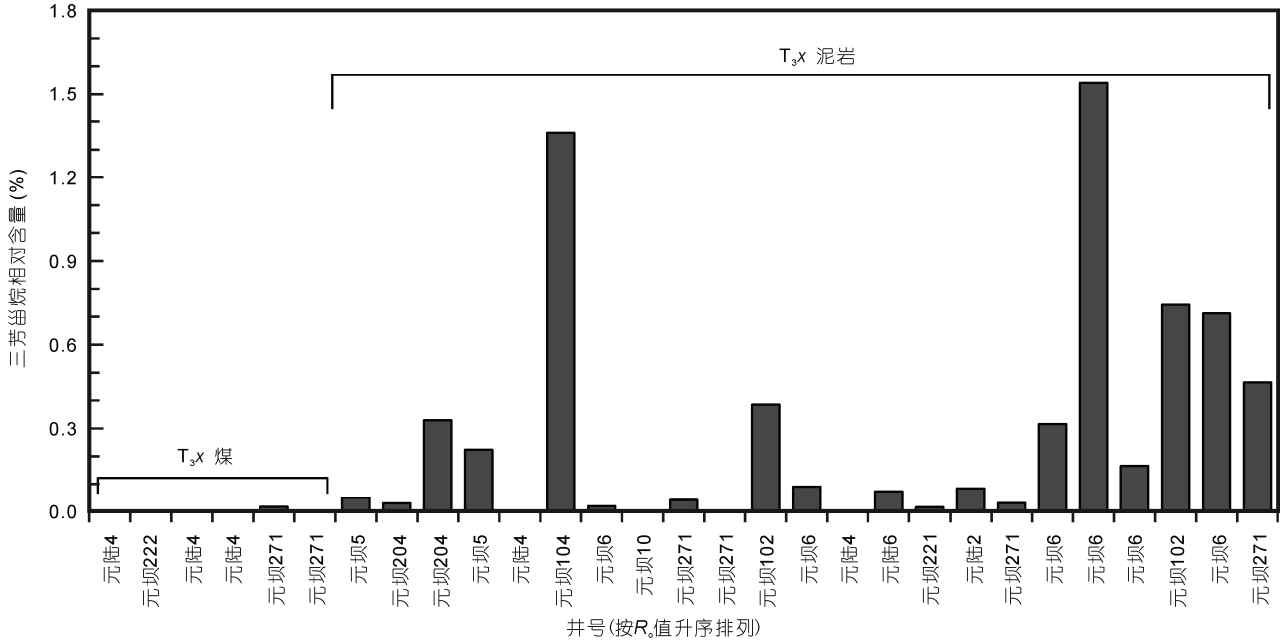

图 9 元坝地区须家河组煤和泥岩的三芳甾烷相对含量分布直方图

三芳甾烷是由甾醇在成岩作用过程中, 经甾烯形成单芳甾烷后再通过脱甲基和芳构化作用而来(Peters等, 2005), 因而与甾烷有共同的生物先质物, 两者具有数量上的相关性. 一般认为, 甾烷主要来源于水生藻类及高等植物, 通常在有机质生源以陆源高等植物为主的煤中较少, 而在具有水生生物有机质贡献的泥岩中相对丰富. 目前, 关于煤系地层中煤与泥岩之间三芳甾烷含量的差别尚未见有报道, 但依据它们与甾烷的共源性, 可推断煤中的三芳甾烷应少于泥岩. 这样, 上述须家河组煤与泥岩的三芳甾烷相对含量的不同, 反映了两者原始有机源构成上的差异性. 也即, 三芳甾烷含量指示了水生藻类的生源贡献.

5 结论

(1) 四川盆地北部上三叠统须家河组煤系烃源岩的芳烃组成在成熟晚期到过成熟演化阶段(R_o = 1.13%~2.85%)呈规律性变化. 随成熟度增高, 二环的萘及三环的菲系列不断减少, 而四环以上的芘、苯并萤蒽、苯并[e]芘等系列化合物逐渐相对富集, 且母体化合物趋于增加, 主要受控于热化学动力学机制. 它们的甲基菲指数MPI_1值随成熟度(R_o值)呈两段式线性变化趋势, 在R_o<1.80%时随之升高, R_o>1.8%时降低. 两者的关系式分别为R_o=0.98MPI_1+0.37和R_o=–0.90MPI_1+3.02, 适用于高演化阶段的成熟度确定.

(2) 这些煤系烃源岩在成熟晚期阶段(R_o值1.1%~1.35%)所含的二苯并呋喃类化合物开始急剧减少, 导致芳烃三芴系列组成发生显著变化, 因而不适用于高-过成熟(R_o>1.35%)的这类烃源岩沉积环境的判识. 4-/1-MDBT比值能区分高演化煤系地层中的煤与泥岩, 可作为反映有机相变化的有效指标.

(3) 高成熟烃源岩的2,6-/2,10-DMP和1,7-/1,9-DMP比值在煤中高于泥岩, 可作为陆源有机质输入的生源辅助指标. 三芳甾烷在煤与泥岩之间丰度相差悬殊, 能指示高演化煤系烃源岩原始有机质生源中水生生物的贡献比例.

致谢 本文GC-MS分析在长江大学地球化学实验室完成, 赵红高级工程师给予了热情的支持和帮助, 审稿专家提出宝贵修改意见, 在此一并致谢.

参考文献

包建平, 王铁冠, 陈发景. 1996. 烃源岩中烷基二苯并噻吩组成及其地球化学意义. 石油大学学报(自然科学版), 20: 19–23

程克明, 王铁冠, 钟宁宁, 等. 1995. 烃源岩地球化学. 北京: 科学出版社. 56–58

胡见义, 黄第藩. 1991. 中国陆相石油地质理论基础. 北京: 石油工业出版社. 189

梁狄刚, 郭彤楼, 陈建平, 等. 2009. 中国南方海相生烃成藏研究的若干进展(二): 南方四套区域性海相烃源岩的地球化学特征. 海相油气地质, 14: 1–15

盘昌林, 刘树根, 马永生, 等. 2011. 川东北地区须家河组天然气成藏主控因素分析. 断块油气田, 18: 418–423

沈忠民, 魏金花, 朱宏权, 等. 2009. 川西坳陷煤系烃源岩成熟度特征及成熟度指标对比研究. 矿物岩石, 29: 83–88

张敏, 黄光辉, 李洪波, 等. 2012. 四川盆地上三叠统须家河组气源岩分子地球化学特征-海侵事件的证据. 中国科学: 地球科学, 43: 72–80

朱扬明. 1996. 塔里木原油芳烃的地球化学特征. 地球化学, 25: 10–17

朱扬明, 顾圣啸, 李颖, 等. 2012. 四川盆地龙潭组高热演化烃源岩有机质生源及沉积环境探讨. 地球化学, 44: 35–44

Alexander R, Kagi R I, Rowland S J, et al. 1985. The effects of thermal maturity on distributions of dimethylnaphthalenes and trimethylnaphthalenes in some ancient sediments and petroleum. Geochim Cosmochim Acta, 49: 385–395

Boreham C J, Crick I H, Powell T G. 1988. Alternative calibration of the methylphenanthrene index against vitrinite reflectance: Application to maturity measurements on oil and sediments. Org Geochem, 12: 289–294

Budzinski H, Garrigues P, Connan J, et al. 1995. Alkylated phenanthrene distributions as maturity and origin indictors in crude oils and rock extracts. Geochim Cosmochim Acta, 59: 2043–2056

Cassani F, Gallango O, Talukdar S, et al. 1988. Methylphenanthrene maturity index of marine source rocks extracts and crude oils from the Maracaibo Basin. Org Geochem, 13: 73–80

George S C. 1992. Effect of igneous intrusion on the organic geochemistry of a siltstone and an oil shale horizon in the Midland Valley of Scotland. Org Geochem, 18: 705–723

Huang H, Pearson M J. 1999. Source rock palaeoenvironments and controls on the distribution of dibenzothiophenes in lacustrine crude oils, Bohai Bay Basin, eastern China. Org Geochem, 30: 1455–1470

Hughes W B. 1984. Use of thiophenic organosulfur compounds in characterizing crude oils derived from carbonate versus siliciclastic sources. In: Palacas J G, ed. Petroleum Geochemistry and Source Rock Potential of Carbonate Rocks. AAPG Studies Geol, 18: 181–196

Kvalheim O M, Christy A A, Telnaes N, et al. 1987. Maturity determination of organic matter in coals using the methylphenanthrene distribution. Geochim Cosmochim Acta, 51: 1883–1888

Li S M, Pang X Q, Jin Z, et al. 2010. Molecular and isotopic evidence for mixed-source oils in subtle petroleum traps of the Dongying South Slope, Bohai Bay Basin. Mar Pet Geol, 27: 1411–1423

Lin R Z, Wang P R. 1991. PAH in fossils and their geochemical significance. J Southeast Asian Earth Sci, 5: 257–262

Milner C W D, Rogers M A, Evans C R. 1977. Petroleum transformations in reservoirs. J Geochem Explor, 7: 101–153

Peters K E, Walters C C, Moldowan J M. 2005. The Biomarker Guide: Biomarkers and Isotopes in Petroleum Systems and Earth History. Cambridge: Cambridge University Press. 586–587

Price L C. 1993. Thermal stability of hydrocarbons in nature: limits, evidence, characteristics, and possible controls. Geochim Cosmochim Acta, 57: 3261–3280

Radke M, Welte D H, Willsch H. 1982. Geochemical study on a well in the Western Canada Basin: Relation of the aromatic distribution pattern to maturity of organic matter. Geochim Cosmochim Acta, 46: 1–10

Radke M, Walte D H. 1983. The methylphenanthrene index (MPI): A maturity parameter based on aromatic hydrocarbons. In: Bjoroy M, ed. Advances in Organic Geochemistry 1981. Hoboken: John Wiley and Sons Limited. 504–512

Radke M, Welte D H, Willsch H. 1986. Maturity parameters based on aromatic hydrocarbons: Influence of the organic matter type. Org Geochem, 10: 51–63

Radke M. 1988. Application of aromatic compounds as maturity indicators in source rocks and crude oils. Mar Pet Geol, 5: 224–236

Radke M, Vriend S P, Ramanampisoa L R. 2000. Alkyldibenzofuranes in terrestrial rocks: Influence of organic facies and maturation. Geochim Cosmochim Acta, 64: 275–286

Szczerba M, Rospondek M J. 2010. Controls on distributions of methylphenanthrenes in sedimentary rock extracts: Critical evaluation of existing geochemical data from molecular modeling. Org Geochem, 41: 1297–1311

Zhu Y M, Li Y, Zhou J, et al. 2012. Geochemical characteristics of Tertiary coal-bearing source rocks in Xihu depression, East China Sea basin. Mar Pet Geol, 38: 154–165