

# 煤岩热模拟产物演化特征与煤层气形成关系

高 岗<sup>1</sup>, 康 莉<sup>2</sup>, 刘敬明<sup>3</sup>

(1. 中国石油大学(北京) 油气资源与探测国家重点实验室, 北京 102249; 2. 中国石油新疆油田公司 风城油田作业区, 新疆 克拉玛依 834000; 3. 中国石油新疆油田公司 开发公司, 新疆 克拉玛依 834000)

**摘要:**为探讨煤岩中煤层气的热演化特征,选取柴达木盆地侏罗系未成熟煤岩样品进行加水热模拟实验,分析了煤岩气、液态产物及固体有机质的热演化特征。实验结果表明,气态烃可以形成于煤岩热演化的各个阶段,液态烃主要在生油窗范围内生成且生成量相对低。生油高峰时烃类气体中甲烷产率较低,之后迅速增加;重烃气体在大量生油阶段和高成熟阶段早期产率相对较高,之后开始降低。非烃类气体中二氧化碳的体积分数明显高于氮气的体积分数,均主要形成于生油阶段;氢气的体积分数普遍较高,随温度升高先降低后增高,最小值出现于生油高峰之后。煤岩能够生成气态烃和液态烃,总体具有较高的甲烷产率,远高于一般煤层实测的含气量,具备形成煤层气的物质基础。

**关键词:**煤岩 加水热模拟 气态产物 液态产物 煤层气

**中图分类号:**TE112.3

**文献标识码:**A

**文章编号:**1009-9603(2012)06-0033-04

中国西北地区分布大量侏罗系煤系地层<sup>[1-3]</sup>,吐哈、塔里木、柴达木、准噶尔和焉耆等盆地均发现与侏罗系煤系地层有关的油气<sup>[4-6]</sup>,这些油气既有来自成熟煤系烃源岩,也有来自高一过成熟煤系烃源岩<sup>[7-8]</sup>,表明煤系烃源岩在很宽的热演化范围内均能生成油气。煤作为煤系地层重要的烃源岩类型,其有机质丰度是普通泥岩的几十倍,生烃的物质基础雄厚。煤系烃源岩生成的天然气不但能够排出煤岩形成常规天然气聚集,也可以残留于煤岩中形成非常规的煤层气。有关煤系地层等不同岩性烃源岩的成油、成气特征,前人已做了许多研究<sup>[9-12]</sup>,其中基于烃源岩样品的分析仅能研究烃源岩生、排烃后残余有机质的特征,而不能对有机质的演化过程进行研究;烃源岩的生烃模拟实验可以展示烃源岩的演化过程,而不同模拟方法与地下地质条件的相似程度不同,以加水热模拟实验最为接近地下地质条件,是研究烃源岩热演化过程较好的方法<sup>[11,13]</sup>。目前研究多集中在烃源岩油气生成的总体演化特征方面<sup>[14-16]</sup>,虽然对演化过程中油气特征的对比、气体组分的相对组成与相对体积分数的演化特征等也进行过探讨,但缺乏对气态烃不同成分及其与液态烃形成模式的研究。笔者根据柴达木盆地侏罗系煤岩样品加水热模拟实验结果,探讨了煤岩气、液态产物及固体有机质的热演化特征及其与煤层

气形成的关系,以期对煤层气的形成机理及其与液态烃的生成关系有进一步的了解。

## 1 样品基本特征与模拟方法

加水热模拟实验采用的煤岩样品取自柴达木盆地侏罗系,为湖沼相沉积,有机质丰度高,氯仿沥青“A”含量为1.104 7%,有机碳含量(TOC)为77.4%,总烃含量为 $8\ 685\times 10^{-6}$ ,生烃潜量为104.8 mg/g;有机质类型属于III型,其干酪根H/C原子比和O/C原子比分别为0.67和0.14,碳同位素值为-23.8‰,热解氢指数和氧指数分别为132和22 mg/g;镜质组反射率( $R_o$ )为0.43%,最高热解峰温为432 ℃,属于未成熟样品,适于进行煤系烃源岩成油、成气规律的研究。

实验采用金属密闭容器加水热模拟法,实验时间为24 h,样品用量为30 g,加水量主要考虑地下条件和实验仪器承受的压力极限,当温度低于370 ℃时,加水量为30 g,高于370 ℃时加水量减少。具体实验方法、步骤和样品收集方法见参考文献[11]。

## 2 气体组分热演化特征

对不同模拟温度下的气体组分进行气相色谱

收稿日期:2012-09-10。

作者简介:高岗,男,副教授,博士,从事油气地质与勘探的科研与教学工作。联系电话:(010)89732155,E-mail:gaogang2819@sina.com。

基金项目:国家重点基础研究发展计划“973”项目“中低丰度天然气藏形成机理”(2007CB209503)。

分析,得到主要组分的体积分数(表1)。天然气组分主要包括烃类气体和非烃类气体2部分,其中烃类气体主要包括甲烷、乙烷、丙烷、正丁烷、异丁烷、正戊烷、异戊烷及少量烯烃,其中甲烷的体积分数最高,明显高于乙烷及重烃气体(碳数大于2),且重烃气体中随碳数增加,其体积分数逐渐减小,而烯烃体积分数普遍很低,一般小于1%;非烃类气体主要包括氢气、氮气、一氧化碳和二氧化碳等,其中二氧化碳的体积分数最高,其次为氢气和氮气,一氧化碳的体积分数最低。在常规天然气藏中,一般都有氮气和二氧化碳,而氢气与一氧化碳的体积分数很低或为0。一氧化碳体积分数低与其生成时生成量较少具有一定关系,由于在生成时的高温高压下发生水煤气转化反应<sup>[17]</sup>,导致一氧化碳大量减少,而氢气体积分数增加,但由于氢气的化学活性和扩散作用强,易发生扩散和各种化学反应而被消耗,因此,常规天然气藏中氢气体积分数一般较低。

| 表1 不同模拟温度下气体组分的体积分数 % |          |       |       |       |       |       |       |
|-----------------------|----------|-------|-------|-------|-------|-------|-------|
| 组分                    | 温 度 / °C |       |       |       |       |       |       |
|                       | 320      | 340   | 350   | 370   | 400   | 450   | 500   |
| 氢气                    | 7.69     | 6.52  | 6.09  | 6.22  | 5.11  | 6.34  | 13.79 |
| 氮气                    | 1.87     | 3.27  | 0.88  |       |       | 0.48  | 0.08  |
| 一 氧<br>化 碳            | 0.53     | 0.17  | 0.15  | 0.16  | 0.22  | 0.53  | 0.91  |
| 二 氧<br>化 碳            | 44.6     | 61.17 | 54.59 | 26.47 | 21.87 | 19.59 | 17.66 |
| 甲烷                    | 31.7     | 15.25 | 25.1  | 54.33 | 69.44 | 67.22 | 66.30 |
| 乙烷                    | 8.13     | 8.1   | 7.53  | 8.98  | 2.91  | 4.91  | 0.85  |
| 丙烷                    | 3.44     | 3.65  | 3.55  | 2.61  | 0.31  | 0.57  | 0.15  |
| 异丁烷                   | 0.44     | 0.3   | 0.46  | 0.38  | 0.04  | 0.06  | 0.01  |
| 正丁烷                   | 0.82     | 0.29  | 0.73  | 0.51  | 0.03  | 0.03  | 0.02  |
| 异戊烷                   | 0.24     | 0.11  | 0.26  | 0.09  | 0.02  |       |       |
| 正戊烷                   | 0.37     | 0.14  | 0.46  | 0.02  | 0.01  | 0.01  | 0.01  |
| 乙 烯                   | 0.02     | 0.23  | 0.05  | 0.01  | 0.02  | 0.15  | 0.10  |
| 丙 烯                   | 0.06     | 0.53  | 0.06  | 0.03  | 0.04  | 0.09  | 0.08  |
| 1-丁烯                  | 0.02     | 0.05  | 0.01  |       |       | 0.01  | 0.01  |
| 异丁烯                   | 0.03     | 0.13  | 0.02  | 0.02  |       | 0.01  | 0.02  |
| 2-反<br>丁 烯            | 0.02     | 0.05  | 0.26  | 0.01  |       | 0.01  | 0.01  |
| 2-顺<br>丁 烯            | 0.02     | 0.04  | 0.26  |       |       |       |       |

随着模拟温度的升高,有机质的热演化程度增强,相应的不同模拟温度下气体组分的体积分数也发生变化。烃类气体中甲烷的体积分数在温度为320℃时,为31.7%;至340℃时最低,为15.25%;随着温度继续升高,甲烷的体积分数增加,在350℃时为25.1%;至400℃时达最大值,为69.44%;之后稍有降低或保持稳定(表1)。二氧化碳体积分数在模

拟温度较低时高于甲烷,但在模拟温度较高时则低于甲烷,其体积分数先随温度升高而增加,最高值约在340℃,为61.17%,之后则逐渐降低,与甲烷体积分数变化呈近似的镜像关系(表1)。在不同模拟温度下,氢气、乙烷及重烃气体体积分数较低;当模拟温度等于或小于370℃时,氢气体积分数低于乙烷,大于370℃时则高于乙烷;氢气体积分数具有先降低后增大的变化特征,最低值约出现在400℃,为5.11%,最高值约出现在500℃,为13.79%。氮气体积分数整体较低,具有随温度升高而降低的特征。一氧化碳体积分数在模拟温度为340~370℃时较低,低于340℃则较高,且随温度升高而略有增加,其低值区对应大量生油阶段。重烃气体体积分数均随温度升高而降低,且以大量生油阶段和高成熟阶段早期体积分数较高(表1)。

天然气干燥系数是指甲烷与所有烃类气体体积分数的比值,具有随温度升高而先降低后升高的特征(表2),在模拟温度为320℃时约为0.7,属于湿气;至340℃时降至最低值,为0.55;之后随模拟温度升高,天然气干燥系数也快速升高,至400℃时达0.95,已属于干气;之后则缓慢升高,在500℃时达最高值,为0.98。乙烷与丙烷体积分数之比与天然气干燥系数具有类似的变化特征(表2),当模拟温度为370℃时为3.44,属于湿气;在400℃时,达到9.39;升高至450和500℃时,反而有所降低,其原因还有待于今后进一步研究。

| 表2 不同模拟温度下气体组分参数统计       |          |       |       |      |       |       |       |
|--------------------------|----------|-------|-------|------|-------|-------|-------|
| 气体组<br>分参数               | 温 度 / °C |       |       |      |       |       |       |
|                          | 320      | 340   | 350   | 370  | 400   | 450   | 500   |
| 干燥系数                     | 0.7      | 0.55  | 0.66  | 0.81 | 0.95  | 0.92  | 0.98  |
| 乙烷与丙烷<br>体积分数之比          | 2.36     | 2.22  | 2.12  | 3.44 | 9.39  | 8.61  | 5.67  |
| 二氧化碳与<br>甲烷体积<br>分数之比    | 1.41     | 4.01  | 2.17  | 0.49 | 0.31  | 0.29  | 0.27  |
| 氮气与甲烷<br>体积分数之比          | 0.059    | 0.214 | 0.035 | 0    | 0     | 0.007 | 0.001 |
| 烃类气体与<br>非烃类气体<br>体积分数之比 | 1.207    | 2.464 | 1.593 | 0.49 | 0.374 | 0.369 | 0.48  |

二氧化碳与甲烷体积分数之比、氮气与甲烷体积分数之比及烃类气体与非烃类气体体积分数之比均具有随温度升高而先增大后减小的特征,其最大值与干燥系数的最小值对应(表2),表明各项气体组分参数之间有内在联系。烃类气体与非烃类气体体积分数之比在达到最大值后开始减小,至400℃后又随温度升高而增大,表明当模拟温度较

高时,气体组分中烃类气体的体积分数逐渐增加。

### 3 气态和液态产物产率演化特征

气态和液态产物产率是烃源岩生烃特征的主要参数,可以反映烃源岩的生烃能力。气态和液态产物产率以单位质量有机碳含量对应的气态和液态产物的生成量来表示。不同气体组分的生成量可以通过其体积分数与总气体产率换算求得。液态产物产率随温度升高表现为先增大后减小的趋势,在温度为350℃时出现最大值。原始煤岩样品总液态产物产率为14.3 kg/t,最大值为55.4 kg/t,至500℃时降至4.2 kg/t,其变化特征符合液态油的生成模式(图1,图2)。总热解气产率、热解烃类气体

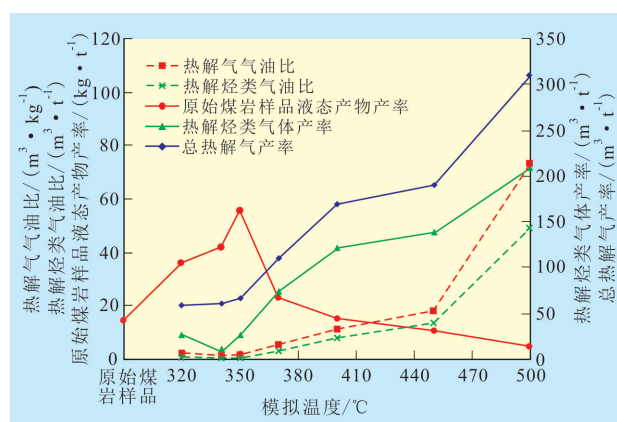


图1 单位质量有机碳的气、液态产物产率与模拟温度关系

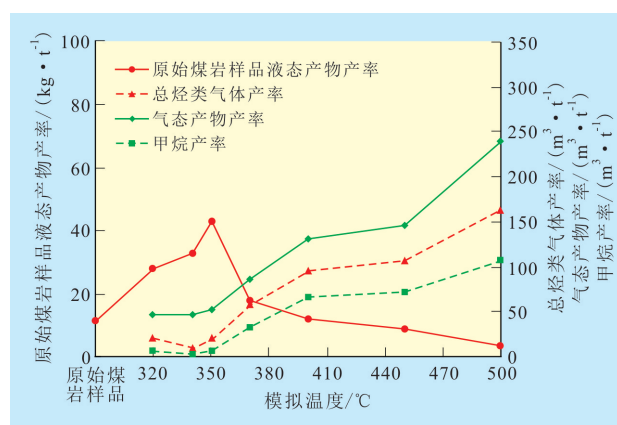


图2 单位质量煤岩的气、液态产物产率与模拟温度关系

产率均随温度升高而持续增加,且在达到生油高峰之前增加缓慢,之后则快速增加;其中热解烃类气体产率在达到生油高峰时为26 m³/t,至500℃时为209.5 m³/t,增加了8倍多。相应的热解气油比(气态产物量与液态油量之比)和热解烃类气油比(烃类气体产物量与液态油量之比)也具有相似的变化特征(图1),热解烃类气油比在320℃时为0.75 m³/

t,达到生油高峰时为3.29 m³/t,至500℃时为49.39 m³/t,比320℃时增大了近66倍。由此可见,在达到生油高峰后是气态产物生成的重要时期。

热解烃类、气体产率消除了不同煤有机碳含量不同的影响,主要反映有机质本身的成烃特征。而在煤成气和煤成油研究中,单位质量煤岩的气态和液态产物产率对于具体地区和具体层位煤岩的成烃特征评价更有意义。根据煤的有机碳含量和单位质量有机碳气、液态产物产率换算出单位质量煤岩的气、液态产物产率(图2),结果表明,原始煤岩样品中液态产物产率为11.5 kg/t,加热至320℃时达到28 kg/t;在350℃时出现最大值,为42.9 kg/t;之后随温度的增加呈逐渐减小的趋势,至500℃时为3.3 kg/t。相对于煤岩的气态产物产率在温度为320℃时为46 m³/t,达到生油高峰时为52 m³/t,至500℃时为240 m³/t,与总烃类气体产率的变化相类似。单位质量煤岩的甲烷产率在温度为320℃时为6.6 m³/t,在340℃时降至1.4 m³/t,在350℃达到生油高峰时仍比较低,仅为5.1 m³/t;但在达到生油高峰之后,单位质量煤岩的甲烷产率迅速增加,在温度为370℃时为31.3 m³/t,至500℃时达到107.5 m³/t(图2)。由此可见,单位质量煤岩的产气量很大。

### 4 残余煤有机碳含量和镜质组反射率演化特征

对原始煤岩样品和不同模拟温度下的煤岩样品进行了有机碳含量和镜质组反射率的测定。结果表明,由于原始煤岩样品本身TOC值较高,整体上不同模拟温度下煤岩样品的TOC值变化不大(图3);但通过对比发现,在模拟温度为340~350℃时,残余煤的TOC值变化较小,甚至在340℃时降至最低值,但之后随温度升高呈逐渐增加的趋势,表明

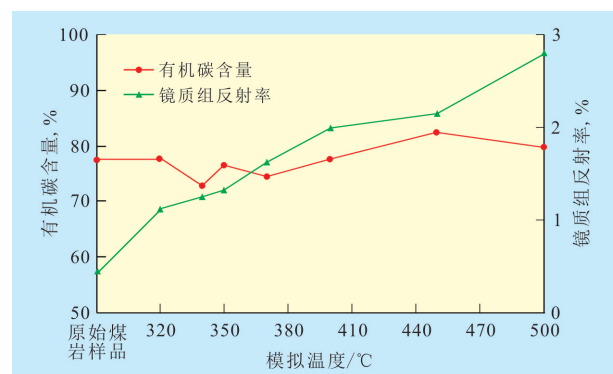


图3 残余煤的有机碳含量及镜质组反射率与模拟温度的关系

对于高煤阶煤层,残余煤的  $TOC$  值具有增大的趋势。原始煤岩样品的  $R_o$  值为 0.43%,处于未成熟阶段;热解后煤样的  $R_o$  随模拟温度的升高而增加,在 320 °C 时  $R_o$  值为 1.12%,达到生油高峰时对应的  $R_o$  值为 1.31%,至 400 °C 时  $R_o$  值为 1.99%,在 500 °C 时  $R_o$  值达到 2.8%。根据常规的生油模式,达到生油高峰时对应的  $R_o$  值约为 1%,而实验中生油高峰对应的  $R_o$  为 1.31%,其存在差异的原因与自然演化和模拟实验演化结果之间存在系统误差有关。因此,可以通过数据校正使模拟实验中达到生油高峰时对应的  $R_o$  大致位于 1%<sup>[16]</sup>,经过校正后模拟温度为 320, 340, 350, 370, 400, 450 和 500 °C 时所对应的  $R_o$  值分别为 0.88%, 0.97%, 1%, 1.2%, 1.44%, 1.52% 和 1.97%。由此可见,实验中最高模拟温度对应的热演化程度已达到高成熟阶段,接近过成熟阶段,且根据模拟结果可以归纳出侏罗系煤岩样品气、液态产物产率热演化模式(图4)。

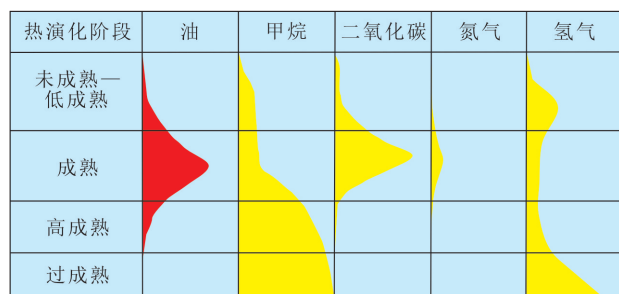


图4 侏罗系煤岩样品气、液态产物产率热演化模式

根据中国不同煤级煤层的实测结果可知<sup>[15]</sup>,低煤级煤层的气含量(每吨煤的含气量)为 4.92 m<sup>3</sup>/t;至高煤级无烟煤阶段,气含量可达 31.38 m<sup>3</sup>/t;不同煤级煤层的气含量峰值一般为 6~8 m<sup>3</sup>/t,且煤阶越高,气产率越高,甲烷产率也越高,而常规煤层的甲烷产率远高于实测煤岩样品的甲烷产率。研究选用的煤岩样品具有中国西北地区侏罗系多数煤岩的典型特征,在达到生油高峰之前,热成因的甲烷体积分数较低;达到生油高峰之后,为形成热成因煤层气的主要阶段,其演化程度越高,煤层气产率也越高,且煤层气应主要由固体有机质及其吸附的液态油裂解生成。

## 5 结束语

通过对柴达木盆地侏罗系煤岩样品进行加水热模拟实验及结果分析,建立了煤岩生油、生气的热演化模式。总体来说,在生油窗范围内,以生油为主,生气相对较少,热演化早期可以生成一定量

的甲烷等气体,但生成量较小。在生油高峰之后的高一过成熟阶段,液态烃发生裂解,为生成甲烷等烃类气体的主要阶段。非烃类气体中以二氧化碳体积分数最高,其次为氢气和氮气,而一氧化碳体积分数最低;在大量生油阶段二氧化碳和氮气体积分数最高,氢气体积分数则随温度升高先降低后增加,最小值出现在生油高峰之后。甲烷产率远高于一般煤层的残余气量,所以煤层气一部分残留于煤层中成为煤层气,另一部分则会排出煤层聚集为常规气藏气。有关煤岩生气组分的产率演化模式只是初步的研究成果,而不同沉积环境之间煤岩的生气组分存在差别,有待下一步继续深入研究。

## 参考文献:

- [1] 颜小宁.柴达木盆地胜利区块中下侏罗统烃源岩控制因素与发育特征[J].油气地质与采收率,2011,18(3):36-38.
- [2] 张建博,王红岩,赵庆波.中国煤层气地质[M].北京:地质出版社,2000.
- [3] 徐志诚.准噶尔盆地侏罗系地层和岩性油气藏形成条件及勘探前景[J].油气地质与采收率,2005,12(5):27-29,38.
- [4] 程克明.吐哈盆地油气生成[M].北京:石油工业出版社,1994.
- [5] 黄第藩,秦匡宗,王铁冠,等.煤成油的形成和成烃机理[M].北京:石油工业出版社,1995.
- [6] 胡雄,李延钧,陈新领,等.柴北缘马海地区油气全烃地球化学特征及成因[J].天然气地球科学,2006,16(5):612-616.
- [7] 王锐.准噶尔盆地中4区块D1井区油气来源与成藏模式[J].油气地质与采收率,2006,13(1):59-61.
- [8] 陈建平,邓春萍,宋孚庆,等.用生物标志物定量计算混合原油油源的数学模型[J].地球化学,2007,36(2):205-214.
- [9] 王绪龙,刘得光.准噶尔盆地腹部马桥凸起侏罗系原油油源分析[J].新疆石油地质,1995,16(1):33-37.
- [10] 秦建中,刘宝泉,郑伦举.海相碳酸盐岩排烃下限值研究[J].石油实验地质,2007,29(4):391-396.
- [11] 高岗,黄志龙,柳广弟,等.碳酸盐岩油气生成模拟方法[M].北京:石油工业出版社,2000.
- [12] 秦建中,刘宝泉.加温时间、加水量对模拟实验油气产率及地化参数的影响[J].石油实验地质,2002,24(2):152-157.
- [13] 刘全有.煤岩及煤岩加不同介质的热模拟地球化学实验[J].沉积学报,2001,19(3):465-468.
- [14] Seewald J S. Laboratory and theoretical constraints on the generation and composition of natural gas[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1998, 62(9): 1 599-1 617.
- [15] 高岗,王延斌,韩德馨.煤的加水热模拟气特征对比[J].地质地球化学,2003,30(3):92-96.
- [16] 高岗,柳广弟,王兆峰.生烃模拟结果的校正[J].新疆石油地质,2005,26(2):202-205.
- [17] 李小彦,司胜利.我国煤储层煤层气解吸特征[J].煤田地质与勘探,2004,32(3):27-29.

编辑 邹澍滢