УДК 550.4:665.61

НИЗКОМОЛЕКУЛЯРНЫЕ АЗОТИСТЫЕ СОЕДИНЕНИЯ В НЕФТЯХ И ОРГАНИЧЕСКОМ ВЕЩЕСТВЕ ПОРОД ВЕРХНЕЙ ЮРЫ ЗАПАДНОЙ СИБИРИ

С.С. Яновская, Т.А. Сагаченко

Институт химии нефти Сибирского отделения РАН, г. Томск E-mail: azot@ipc.tsc.ru

Изучено распределение и состав низкомолекулярных азотсодержащих компонентов в нефтях и рассеянном органическом веществе верхнеюрского комплекса Западной Сибири. Установлено, что их количество в органическом веществе пород выше, чем в соответствующих нефтях. Во всех исследованных образцах низкомолекулярные азотистые соединения представлены смесью сильных и слабых оснований. В их составе присутствуют алкил- и нафтенопроизводные хинолина, бензо- и дибензохинолина, азапирена, бензотиазола, тиофено-, бензотиофенохинолина, циклические амиды типа пиридона, их гидрированные аналоги – лактамы, хинолин-, бензо- и дибензохинолинкарбоновые кислоты. Азотистые основания рассеянного органического вещества отличаются от нефтяных повышенным содержанием слабоосновных компонентов и структур с малоэкранированным атомом азота.

Ключевые слова:

Верхняя юра, нефть, органическое вещество пород, азотистые соединения, распределение, состав.

Key words:

Upper Jurassic, oil, organic matter of rocks, nitrogen compounds, distribution, composition.

Введение

Результаты сравнительного изучения количественного содержания и состава гетероатомных соединений в нефтях и битумоидах соответствующих пород могут быть использованы для решения фундаментальных и прикладных вопросов, связанных с происхождением и трансформацией этих соединений в геосфере, характеристикой миграционных процессов, прогнозом качества и добычей жидких флюидов. В настоящее время накоплен огромный материал по характеристике углеводородов различных типов органических веществ. Гетероатомные соединения, в частности азотсодержащие, изучены недостаточно.

В работе обсуждаются результаты исследования закономерностей распределения и особенностей структурно-группового состава низкомолекулярных азотистых соединений рассеянного органического вещества (РОВ) и нефтей из верхнеюрских отложений Западной Сибири, которые являются одним из основных нефтегазоносных комплексов в данном регионе.

Интерес к исследованию низкомолекулярных азотистых соединений объясняется, главным образом, их отрицательным влиянием на процессы каталитической переработки углеводородного сырья и технические характеристики горюче-смазочных материалов [1]. С другой стороны, являясь химически и термически стабильными, низкомолекулярные соединения азота могут использоваться, наряду с другими нефтяными компонентами, при изучении процессов формирования залежи [2–4].

Экспериментальная часть

В работе изучено РОВ пород баженовской свиты и нефти соответствующих площадей из коллекторов васюганской свиты. Образцы пород и нефтей отобраны в интервале глубин 2414,6...2833,5 и 2452...2849 м, соответственно, с площадей, расположенных на территории юго-восточной части Западной Сибири в пределах Томской области (табл. 1).

Битумоиды выделяли метанол-хлороформной смесью по стандартной методике [5].

Низкомолекулярные азотистые соединения экстрагировали из битумоидов и нефтей раствором серной кислоты в уксусной кислоте при соотношении минеральной, органической кислот и воды 25:60:15 [6].

Полученные концентраты подвергали хроматографическому разделению на кремниевой кислоте при соотношении образец : адсорбент, равном 1:100. Для десорбции применяли последовательно толуол, толуол : диэтиловый эфир (1:1 по объему) и толуол : этиловый спирт (5:1 по объему) с получением фракций Φ_1 , Φ_2 и Φ_3 соответственно. Контроль за процессом разделения вели по величине оптической плотности на спектрофотометре «SPE-COL-21» на длине волны 325 нм. Во всех случаях десорбцию осуществляли исчерпывающе.

Содержание общего азота N_{ofull} определяли методом сожжения в реакторе Покровского [7], содержание основного N_{och} и слабоосновного $N_{en.och}$ азота — методом неводного потенциометрического титрования диоксановым раствором хлорной кислоты в среде уксусного ангидрида [8].

ИК-спектры регистрировали на ИК-Фурье спектрометре «NICOLET 5700» в области 4000...400 см⁻¹. Образцы из их растворов в CCl₄ наносили в виде пленки на пластинки из KBr.

Масс-спектры снимали на приборе МХ-1321 с прямым вводом образца в ионный источник при энергии электронов 70 эВ. Масса пробы примерно 3...4 мкг. Масс-спектры регистрировали при температуре кварцевой ампулы с образцом 250 °C, соответствующей максимальному значению величины полного ионного тока. Для регистрации использовался шлейфовый осциллограф H-117. Интервал сканирования — 65...750 Да, скорость сканирования — 2 мин/декада. Расчет содержания различных классов соединений осуществляли на основе пиков молекулярных ионов в моноизотопных масс-спектрах [4, 9, 10], принимая коэффициенты чувствительности равными единице. Качественная идентификация проведена с привлечением информации, извлекаемой из осколочных масс-спектров и масс-спектров высокого разрешения тех участков спектра, где молекулярно-массовые распределения различных классов соединений перекрываются.

Результаты и их обсуждение

Как следует из данных табл. 1, суммарное содержание азотистых соединений в изученных нефтях варьирует в весьма широких пределах, составляя в среднем 0,10 мас. %. Количество оснований колеблется от 0,004 до 0,029 мас. % (в среднем 0,022 мас. %). В органическом веществе пород концентрация азотсодержащих соединений существенно выше (в среднем 0,89 мас. %), чем в нефтях, однако в их составе понижена доля оснований (в среднем 14,2 против 21,6 отн. %).

Таблица 1. Характеристика нефтей и РОВ пород верхней юры Западной Сибири

Nº - ∕-*	Площадь,	Глубина за-	Соде ние, г	ержа- иас. %	N _{осн.} /N _{общ.} × ×100, %			
⊓/⊓*	№ скважины	легания, м	N _{общ.}	N _{och.}				
Нефти								
1	Болтная, 1	24522460	0,02	0,004	20,0			
2	Федюшкинская, 2	28442849	0,13	0,028	21,5			
3	Ясная, 21	26412653	0,13	0,029	22,3			
4	Квартовая, Р-З	25952602	0,10	0,021	21,0			
5	Первомайская, 270	25362539	0,11	0,025	22,7			
6	Крапивинская, 191	26442648	0,08	0,019	23,7			
7	Столбовая, 75	25952598	0,13	0,026	20,0			
		POB						
8	Болтная, 1	2414,6	1,20	0,188	15,7			
9	Болтная, 1	2419,6	0,76	0,130	17,1			
10	Федюшкинская, 4	2833,5	0,63	0,100	15,9			
11	Ясная, 20	2642,1	1,16	0,130	11,2			
12	Квартовая, 10	2613,7	0,95	0,130	13,7			
13	Первомайская, 2278	2548,0	0,76	0,126	16,6			
14	Крапивинская, 211	2695,1	0,94	0,120	12,8			
15	Крапивинская, 191	2637,4	0,99	0,124	12,5			
16	Столбовая, 89	2601,1	0,62	0,079	12,7			

*Номер образца, сохранен далее во всех таблицах

Особенностью азотистых соединений органического вещества пород является также более высокое содержание низкомолекулярных компонентов. Из РОВ их экстрагируется в среднем 2,71 мас. %, из нефтей – только 0,15 мас. % (табл. 2). Факт повышенного содержания низкомолекулярных соединений азота в РОВ, по сравнению с нефтями, отмечен и в работах [2, 3, 11]. По данным элементного и функционального анализов все полученные концентраты представляют собой смесь сильных и слабых азотистых оснований (N_{общ}=N_{осн}+N_{спосн}). Степень извлечения низ-комолекулярных сильных оснований из POB составляет 21,2...31,9 (среднее значение – 26,0 отн. %). Для нефтей эта величина ниже (12,7...16,6, в среднем – 14,5 отн. %).

Таблица 2.	Характеристика	а концентрат	гов низкол	юлекуляр-
	ных азотистых о	соединений,	выделенны	ых из неф-
	тей и РОВ пород	q		

	_	C	одер>	кание	, %	NI (NI			
Номер	Выход,	N _{общ.}	N _{осн.} абс. отн.*		N _{сл.осн.}	N _{осн.} /N _{общ.} ×	N _{сп.осн.} /N _{общ.} × ×100, %		
Гооразца	NIAC. 70	абс.			абс.	×100, 70			
1	0,04	2,45	1,48	14,8	0,97	60,4	39,6		
2	0,14	3,18	2,54	12,7	0,64	79,9	20,1		
3	0,20	3,24	2,40	16,6	0,84	74,1	25,9		
4	0,14	2,98	2,18	14,5	0,80	73,2	26,8		
5	0,18	,18 2,78 2,03 14,6		0,75	73,0	27,0			
6	0,14	3,08	8 2,08 15,3		1,00	67,5	32,5		
7	0,20	2,65 1,70 13,1		0,95	64,2	35,8			
				PO	B		•		
8	5,45	2,30	0,95	27,5	1,35	41,3	58,7		
9	2,90	3,03	1,43	31,9	1,60	47,2	52,8		
10	2,00	2,69	1,28	25,6	1,41	47,6	52,4		
11	2,00	2,88	1,38	21,2	1,50	47,9	52,1		
12	3,47	2,60	0,97	25,9	1,63	37,3	62,7		
13	2,53	2,59	1,21	24,3	1,38	46,7	53,3		
14	2,20	2,87	1,27	23,3	1,60	44,3	55,7		
15	2,00	3,54	1,64	26,4	1,90	46,3	53,7		
16	1,80	2,65	1,23	28,0	1,42	46,4	53,6		

^{*}Расчет произведен по формуле: $N_{\text{осн.}}$, отн. % = (Выход концентрата, мас. %· $N_{\text{осн.}}$, абс. % в концентрате)/ $N_{\text{осн.}}$, абс. % в нефти или в РОВ.

Степень извлечения слабых оснований в концентрат не оценивали из-за возможных погрешностей в определении абсолютного содержания слабоосновного азота в исходных образцах методом неводного потенциометрического титрования [12].

По соотношению сильных и слабых азотистых оснований концентраты, выделенные из нефтей и POB, различаются. В составе азотистых соединений нефтей преобладают сильные основания (60,4...79,9, в среднем 70,3 отн. %). Относительное содержание сильных и слабых оснований в составе азотистых соединений, экстрагируемых из POB, практически одинаково (37,3...47,9 и 52,1...62,7, в среднем 45,0 и 55,0 отн. % соответственно).

Результаты ИК-спектроскопии указывают на сходство качественного состава низкомолекулярных азотистых соединений нефтей и РОВ. В колебательных спектрах всех исследованных концентратов проявляются полосы поглощения сильных оснований ряда пиридина (перегибы в области 1580...1520 см⁻¹), циклических амидов, которые относятся к слабым основаниям (3450...3300 и 1660 см⁻¹) и карбоксилсодержащих соединений (3200, 1715 см⁻¹) [13]. Последние, в зависимости от положения карбоксильной группы, могут проявлять как сильно- (в отдаленном положении этой группы от атома азота), так и слабоосновные (в ближайшем положении к атому азота) свойства [14].

О сходстве состава низкомолекулярных азотистых соединений нефтей и РОВ свидетельствуют и результаты их фракционирования на кремниевой кислоте (табл. 3). В обоих случаях исследуемые компоненты распределяются по трем фракциям. При этом нефти характеризуются более высоким (в среднем 59,7 отн. %), чем РОВ (в среднем 30,0 отн. %) содержанием хроматографически подвижных соединений, которые элюируются во фракции Φ_1 . В органическом веществе пород выше, чем в нефтях содержание прочно сорбируемых компонентов, элюирующихся во фракции Φ_2 и Φ_3 (в среднем 40,1 против 30,6 и 29,9 против 9,7 отн. % соответственно).

Таблица 3. Распределение низкомолекулярных азотистых оснований нефтей и РОВ пород по хроматографическим фракциям

Образец	Φ ₁	Φ ₂	Φ ₃					
	Выход, мас. %							
Нофти	<u>54,163,9*</u>	<u>26,634,2</u>	<u>7,612,6</u>					
пефть	59,7 (7)	30,6 (7)	9,7 (7)					
	<u>18,236,0</u>	<u>36,552,4</u>	<u>27,234,2</u>					
FOD	30,0 (9)	40,1(9)	29,9 (9)					
	Содержание N _{осн.} , отн. %							
Нофти	<u>79,381,8</u>	<u>12,114,6</u>	<u>6,06,7</u>					
пефть	80,3 (7)	13,4 (7)	6,3 (7)					
	<u>34,641,9</u>	<u>22,831,6</u>	<u>32,139,9</u>					
FOD	37,9 (9)	27,0 (9)	35,1 (9)					
	Содержание N _{сл.осн.} , отн. %							
Цофт	_	<u>81,288,3</u>	<u>11,718,8</u>					
пефть		84,8 (7)	15,2 (7)					
	_	<u>71,481,0</u>	<u>19,028,6</u>					
FUD		76,4 (9)	23,6 (9)					

*В числителе указан интервал изменения параметра; в знаменателе – его среднее значение; в скобках – количество образцов, по которым проведено усреднение.

По данным функционального анализа хроматографически подвижные соединения фракций Φ_1 как нефтяных образцов, так и РОВ представлены только сильными основаниями, а менее хроматографически подвижные соединения фракций Φ_{2} и Φ_3 – смесью сильно- и слабоосновных компонентов (табл. 3). Согласно [15] хроматографическая подвижность азотистых соединений зависит от степени экранирования атома азота в молекуле. Характер распределения низкомолекулярных азотистых оснований по продуктам разделения свидетельствует о том, что в составе сильных и слабых оснований нефтей преобладают экранированные, а в составе низкомолекулярных оснований органического вещества пород – малоэкранированные структуры. Так большая часть сильных оснований нефтей переходит во фракции Φ_1 (в среднем 80,3 отн. %), а большая часть сильных оснований РОВ распределяется по фракциям Φ_2 (в среднем 27,0 отн. %) и Ф₃ (в среднем 35,1 отн. %). Основная масса слабоосновных азотсодержащих соединений и нефтей, и РОВ представлена экранированными структурами, которые концентрируются во фракциях Φ_2 . Однако в РОВ их доля ниже, чем в нефтях (в среднем 76,4 против 84,8 отн. %). В то же время относительное содержание неэкранированных по азоту слабых оснований, элюирующихся во фракции Φ_3 , в РОВ выше, чем в нефтях (в среднем 23,6 против 15,2 отн. %). Преобладание неэкранированных структур в составе сильных и слабых оснований органического вещества пород может быть связано со слабой адсорбцией экранированных изомеров на глинистых минералах и/или их низкой растворимостью в пластовой воде [3].

Сведения о структурно-групповом составе низкомолекулярных азотистых оснований нефтей и POB получены на основе данных масс-спектрометрического анализа хроматографических фракций. В соответствии с результатами, приведенными в табл. 4, низкомолекулярные азотсодержащие компоненты всех изученных образцов представлены одинаковым набором соединений, состав которых выражается эмпирической формулой $C_n H_{2n-z} X$, где X = N, NS, NO и NO₂, а *z* – степень водородной ненасыщенности.

Соединения типа $C_nH_{2n-z}N$ и $C_nH_{2n-z}NS$ отражают состав сильных оснований, соединения типа $C_nH_{2n-z}NO$ — слабых оснований. Азотсодержащие компоненты с общей формулой $C_nH_{2n-z}NO_2$, могут проявлять как сильно-, так и слабоосновные свойства [14]. В нефтях доминируют основания типа $C_nH_{2n-z}N$ (34,8...37,0 отн. %), в РОВ — основания типа $C_nH_{2n-z}NO$ (38,7...40,3 отн. %).

Сильные основания всех изученных образцов представлены алкил- и нафтенопроизводными хинолина, бензо-, дибензохинолина, азапирена, бензотиазола, тиофено- и бензотиофенохинолина. Преобладающими типами соединений в нефтях являются бензохинолины (11,1...11,9 отн. %) и бензотиофенохинолины (8,5...9,5 отн. %), в РОВ – бензохинолины (9,0...10,6 отн. %) и бензотиазолы (9,9...11,8 отн. %). Максимум в распределении азааренов приходится на мононафтенопроизводные (z=19), максимум в распределении гибридных структур – на алкилпроизводные (z=21 и 9).

Среди слабоосновных компонентов идентифицированы производные циклических амидов типа пиридонов и их гидрированных аналогов – лактамов. Их содержание в нефтях составляет 13,2...14,8 и 7,0...7,5, в РОВ 25,0...28,0 и 12,3...13,9 отн. %, соответственно. Во всех образцах преобладают гетероциклические ароматические амиды с максимальным содержанием бензохинолонов (в нефтях 6,0...7,0, в РОВ 12,0...13,9 отн. %). В изобарных сериях этого ряда и в нефтях, и в РОВ превалируют алкилпроизводные (z=17). Большую часть лактамов составляют соединения с протонодефицитностью, равной 15 (в нефтях 2,6...3,0, в РОВ 4,6...6,9 отн. %).

	Молеку- z лярная	Содержание относительно суммы идентифицированных соединений в образце, отн. %														
Соединения		лярная	Нефти РОВ													
		масса	1	2	3	4	5	6	8	9	10	11	12	13	14	15
C _n H _{2n-z} N			34,8	36,0	36,4	37,0	35,9	35,5	22,0	21,4	22,3	22,6	22,7	22,3	23,9	22,0
Хинолины	11-17	129-249	8,8	9,0	9,4	9,6	9,4	9,7	7,9	7,4	6,9	7,2	7,8	7,0	7,3	6,6
	17	179	3,1	3,5	3,5	3,5	3,4	3,4	2,3	2,5	2,4	2,4	2,3	2,3	2,6	2,7
F	19	219	5,8	6,1	5,9	5,6	5,7	5,3	6,2	6,0	6,2	6,0	6,6	6,0	6,5	6,2
Бензохинолины	21	259	2,2	2,3	2,4	2,8	2,5	2,4	0,8	0,7	0,9	1,0	0,8	0,7	1,5	0,9
			11,1	11,9	11,8	11,9	11,6	11,1	9,3	9,2	9,5	9,4	9,7	9,0	10,6	9,8
Дибензохинолины	23, 25	229, 269	7,6	7,9	7,9	8,0	7,7	7,6	3,3	3,2	3,9	3,8	3,4	3,9	3,8	3,4
Азапирены	21, 23	203, 243	7,3	7,2	7,3	7,5	7,2	7,1	1,5	1,6	2,0	2,2	1,8	2,4	2,2	2,2
C _n H _{2n-z} NS			20,9	20,7	20,1	20,4	20,5	21,2	21,1	22,4	20,4	20,6	20,6	21,4	21,1	21,4
	9	135	1,7	1,8	1,5	1,5	1,4	1,6	4,6	5,0	4,1	4,0	4,1	4,8	4,2	4,8
Foundation	11	175	1,2	1,1	1,4	1,3	1,3	1,2	3,2	4,2	3,2	3,5	4,0	3,5	4,1	3,6
репзотиазолы	13	215	1,1	1,0	0,9	1,2	1,0	1,2	2,4	2,6	2,8	2,4	2,6	2,7	2,6	3,2
			4,0	3,9	3,8	4,0	3,7	4,0	10,2	11,8	10,1	9,9	10,7	11,0	10,9	11,6
Тиофенохинолины	15-19	185-265	8,0	7,4	7,7	7,9	7,5	7,7	3,6	3,2	3,2	3,6	3,5	3,7	3,9	3,5
	21	235	5,2	5,5	5,1	4,9	5,8	5,8	5,0	4,8	4,0	4,0	3,7	4,1	3,8	3,5
Бензотиофенохинолины	23	275	3,7	3,9	3,5	3,6	3,5	3,7	2,3	2,6	3,1	3,1	2,7	2,6	2,5	2,8
			8,9	9,4	8,6	8,5	9,3	9,5	7,3	7,4	7,1	7,1	6,4	6,7	6,3	6,3
C _n H _{2n-z} NO			21,8	20,7	21,6	20,5	21,2	21,3	40,3	39,5	39,4	39,7	39,5	38,7	38,8	38,8
	11	187	1,5	1,4	1,4	1,3	1,1	1,4	3,3	3,9	3,0	3,3	3,6	4,9	4,1	3,6
	13	227	1,8	1,8	1,8	2,0	1,7	1,9	2,7	2,8	3,0	3,0	2,5	2,3	1,8	2,0
Лактамы	15	197	2,7	3,0	2,9	2,7	2,8	2,6	4,9	5,9	4,6	4,6	5,5	5,0	6,9	6,2
	17	237	1,0	1,3	1,2	1,3	1,5	1,2	1,4	1,3	1,8	1,9	1,4	1,3	1,0	1,3
			7,0	7,5	7,3	7,3	7,1	7,1	12,3	13,9	12,4	12,8	13,0	13,5	13,8	13,1
Хинолоны	13, 15	185, 225	3,4	3,5	3,9	3,8	3,8	3,8	7,6	7,7	7,7	7,0	7,2	7,4	7,4	7,2
	17	195	2,4	2,4	2,5	2,3	2,4	2,3	5,9	5,0	5,7	6,1	5,8	5,1	5,0	4,7
	19	235	2,2	1,5	2,2	1,6	1,9	2,0	3,6	3,5	3,9	4,0	3,6	3,3	3,3	3,9
Бензохинолоны	21	275	1,5	1,4	1,5	1,3	1,2	1,5	2,8	2,3	2,7	2,3	2,3	2,6	2,7	2,8
	23	315	0,9	0,8	0,5	0,8	0,9	0,7	1,6	1,4	1,0	1,2	1,3	1,5	1,0	1,1
			7,0	6,1	6,7	6,0	6,4	6,5	13,9	12,2	13,3	13,6	13,0	12,5	12,0	12,5
Ди– + трибензохинолоны	23-29	245-295	4,4	3,6	3,7	3,4	3,9	3,9	6,5	5,7	6,0	6,3	6,3	5,3	5,6	6,0
С _n H _{2n-z} NO ₂ (кислоты)			22,5	22,6	21,9	22,1	22,4	22,0	16,6	16,7	17,9	17,1	17,2	17,6	16,2	17,8
	13	173	4,0	4,3	4,4	4,2	4,2	4,0	2,6	2,5	2,6	2,8	2,8	2,6	2,1	2,3
	15	213	3,2	3,4	3,2	3,1	3,4	3,2	2,4	2,0	2,1	1,7	1,7	2,4	2,0	1,8
Хинолинкарбоновые	17	253	2,5	2,2	2,4	2,3	2,4	2,3	0,8	1,3	1,7	1,5	1,3	1,3	1,3	1,3
	19	293	0,8	0,9	0,5	0,9	0,8	0,7	0,7	0,8	0,7	0,7	0,8	0,5	0,8	1,0
			10,5	10,8	10,5	10,5	10,8	10,2	6,5	6,6	7,1	6,7	6,6	6,8	6,2	6,4
	19	223	4,5	4,3	4,4	4,4	4,1	4,7	4,4	4,0	4,7	4,2	4,8	4,9	4,1	3,8
Бензохинолинкарбоновые	21	263	3,2	3,3	3,2	3,3	3,1	3,4	2,3	2,9	2,0	2,4	2,3	2,7	2,5	3,7
	23	303	0,8	0,9	0,6	0,8	1,1	0,6	0,8	0,4	1,0	0,7	0,8	0,8	0,9	1,1
			8,5	8,5	8,2	8,5	8,3	8,7	7,5	7,3	7,7	7,3	7,9	8,4	7,5	8,6
Дибензохинолинкарбоновые	25, 27	273, 313	3,5	3,3	3,2	3,1	3,3	3,1	2,6	2,8	3,1	3,1	2,7	2,4	2,5	2,8

Таблица 4. Структурно-групповой состав низкомолекулярных азотистых соединений нефтей и РОВ пород верхней юры Западной Сибири

В составе соединений с общей формулой $C_n H_{2n-7} NO_2$ установлено присутствие только гетероциклических ароматических кислот, количество которых изменяется в пределах 21,9...22,6 и 16,2...17,9 отн. % для нефтей и РОВ соответственно. Азотсодержащие кислоты исследованных образцов содержат в своей структуре хинолиновое, бензохинолиновое и дибензохинолиновое ядро. В нефтях преобладают хинолинкарбоновые кислоты (10,2...10,8 отн. %), для образцов РОВ характерно повышенное содержание бензохинолинкарбоновых кислот (7,3...8,6 отн. %). В обоих случаях максимум в распределении азотсодержащих кислот приходится на алкилированные структуры (z=13 и 19).

Выводы

- Выполнен сравнительный анализ данных по распределению и составу низкомолекулярных азотсодержащих компонентов в нефтях и пород верхней юры Западной Сибири.
- Установлено, что количество низкомолекулярных азотистых соединений в органическом ве-

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- Большаков Г.Ф. Азоторганические соединения нефти. Новосибирск: Наука, 1988. 215 с.
- Yamamoto M., Taguchi K., Sasaki K. Basic nitrogen compounds in bitumen and crude oils // Chem. Geol. – 1991. – V. 93. – P. 193–206.
- Yamomoto M. Fractionation of azaarenes during oil migration // Org. Geochem. – 1992. – V. 19. – № 4–6. – P. 389–402.
- Bakel A.J., Philp R.P. The distribution and quantitation of organonitrogen compounds in crude oils and rock pyrolysates // Org. Geochem. – 1990. – V. 16 – № 1–3. – P. 353–367.
- Li M., Yao H., Stasiuk L.D., Fowler M.G., Larter S.R. Effect of maturity and petroleum expulsion on pyrrolic nitrogen compound yields and distributions in Duvernay Formation petroleum source rocks in central Alberta, Canada // Org. Geochem. – 1997. – V. 26. – № 11–12. – P. 731–744.
- Герасимова Н.Н., Сагаченко Т.А., Бейко О.А., Огородников В.Д. Выделение и фракционирование азотистых оснований из нефти // Нефтехимия. – 1987. – Т. 27. – № 1. – С. 32–38.
- Чумаченко М.Н., Хандик Т.А., Соснина Н.П., Воротникова В.А. Определение азота в нефтях и нефтепродуктах // Химия и технология топлив и масел. – 1983. – № 5. – С. 39–40.
- Безингер Н.Н., Гальперн Г.Д. Функциональный анализ азотистых оснований и амидов и групповой анализ азотистых соединений нефти // В сб.: Методы анализа органических соединений нефти, их смесей и производных / Отв. ред. Г.Д. Гальперн. М.: Изд-во АН СССР, 1960. С. 141–169.

ществе пород существенно выше, чем в нефтях соответствующих площадей.

- Показано, что низкомолекулярные азотистые соединения представлены смесью сильных и слабых оснований, в составе которых присутствуют алкил- и нафтенопроизводные хинолина, бензо- и дибензохинолина, азапирена, бензотиазола, тиофено-, бензотиофенохинолина, циклические амиды типа пиридона, их гидрированные аналоги – лактамы, хинолин-, бензои дибензохинолинкарбоновые кислоты.
- 4. Особенностью азотистых оснований рассеянного органического вещества является повышенное содержание малоэкранированных структур. В нефтях преобладают сильные основания типа C_nH_{2n-z}N, в рассеянном органическом веществе – слабые основания с общей формулой C_nH_{2n-z}NO.
- Выявленные различия в распределении и составе низкомолекулярных азотистых оснований нефтей и рассеянного органического вещества могут быть связаны с фракционированием этих компонентов во время первичной миграции нефти.
- Бродский Е.С. Масс-спектрометрический анализ углеводородов и гетероатомных соединений нефти // В сб.: Методы исследования состава органических соединений нефти и битумоидов / Отв. ред. Г.Д. Гальперн. – М.: Наука, 1985. – С. 57–119.
- Полякова А.А. Молекулярный масс-спектральный анализ органических соединений. – М.: Химия, 1983. – 248 с.
- Clegg H., Wilkes H., Oldenburg T., Santamaria D., Horsfield B. Influence of maturity on carbazole and benzocarbazole distributions in crude oils and source rocks from the Sonda de Campeche, Gulf of Mexico // Org. Geochem. – 1998. – V. 29. – № 1–3. – P. 183–194.
- Сагаченко Т.А., Герасимова Н.Н., Цой Л.А. и.др. Определение соединений азота различной основности в нефтях и органическом веществе пород // Органическое вещество в современных и ископаемых осадках: Матер. VII Всес. семинара. – Ташкент, 1982. – С. 59–60.
- McKay J.F., Weber J.H., Latham D.R. Characterization of nitrogen bases in high-boiling petroleum distillates // Anal. Chem. – 1976. – V. 48 – № 6. – P. 891–898.
- Jewell D.M. The role of nonhydrocarbons in the analysis of virgin and biodegraded petroleum // Petroleum in the marine environment. Adv. in chem. – N.J., 1980. – Ser. 185. – P. 219–232.
- Лукьянов В.И., Бейко О.А. Анализ нефтяных азотистых соединений по типам методом жидкостной адсорбционной хроматографии с линейным элюированием // В сб. науч. тр.: Проблемы химии нефти / Отв. ред. Г.Ф. Большаков. – Новосибирск: Наука, 1992. – С. 56–64.

Поступила 25.06.2009 г.