

文章编号: 1000-0550(2003) 03-0533-06

二次生烃迟滞性定量评价方法及其在渤海湾盆地中的应用¹

关德师^{1,2} 王兆云² 秦勇³ 程克明²

1(中国科学院广州地球化学研究所 广州 510640)

2(中国石油股份公司石油勘探开发研究院 北京 100083) 3(中国矿业大学 江苏徐州 221008)

摘要 中国叠合盆地古生界烃源岩具有多次埋藏、异常受热、多次生烃和多次成藏的特点。不同成熟度、不同母质类型样品热解和高压釜模拟实验反映烃源岩的二次生烃不遵循 Tissot 经典的连续生烃演化模式,具有显著的迟滞效应,这种迟滞程度与烃源岩二次生烃时的原始成熟度有关,当 R_o 等于 0.9% 左右时迟滞性最小。究其原因受化学动力学机制控制,二次生烃反应活化能的分布体现了一次生烃受热降解形成的中间产物在一次演化中止前未能有效释放而部分聚集在干酪根内的特性以及化学结构在冷却后的高度固化,导致二次增温初期间产物的快速释放和化学结构再次活化的惰性,从而使得二次生烃显现出脉冲式的非连续演化过程。基于二次生烃迟滞性量版,结合渤海湾盆地具体地质条件,从生烃史和生烃阶段组合的关键要素入手,采用关键要素递阶优选原则,依次通过对显著生烃深度、生烃率等要素的递阶分析,确定了渤海湾盆地二次生烃有利区。

关键词 二次生烃 迟滞性 定量评价体系 渤海湾盆地

第一作者简介 关德师 男 1962 年出生 高级工程师 煤田地质与勘探

中图分类号 P618.130.1 **文献标识码** A

1 二次生烃模拟实验样品及实验

综合考虑二次生烃的原始成熟度、主要生烃阶段、有机质类型等因素,高压釜实验完成人工模拟系列样品一个,热解生烃模拟实验完成自然演化系列的两组样品腐植型和腐泥型样品共 16 个。不同母质类型、不同成熟度系列样品的精细筛选及完整配套的气、液、固产物定量分析,包括油气的主生烃期及生烃量等,为二次生烃显现特征研究和定量评价体系的建立奠定了扎实基础。

1.1 高压釜二次生烃模拟实验

高压釜二次生烃模拟实验是采用人工模拟产物进行二次生烃研究,即将原始样品加热至一定温度后,模拟产物残渣再完成生烃演化系列。模拟生烃样品为 iv 型有机质,有机碳含量 2.43%, R_o 值 0.8%。模拟连续生烃的温度分别为 200 °C、240 °C、280 °C、320 °C 和 360 °C。模拟二次生烃过程是将一次生烃 280 °C 的残渣再进行 320 °C、350 °C 和 360 °C 的生烃实验。

连续生烃演化和二次生烃演化的生油率曲线示于图 1,对比二者演化过程最显著的特征是二次生烃的迟滞效应,如连续生烃演化过程中达最大生油率时 R_o 为 1.24%;而二次生烃演化过程,当起始成熟度 R_o 为

1.14% 的样品达最大生油率时 R_o 为 1.53% 左右。

1.2 腐植型和腐泥型系列样品热解二次生烃模拟实验

采用自然演化系列样品进行 PY-GC 二次生烃模拟实验,分腐植型和腐泥型两组,腐植型系列成熟度 R_o 分别为 0.35%、0.53%、0.72%、0.91%、1.03%、1.14%、1.21%、1.35%、1.46%、1.78%;腐泥型样品 R_o 分别为 0.43%、0.61%、0.82%、1.24%、1.42%、1.81%。不同起始成熟度二次生烃演化的瞬时生烃率曲线示于图 2(上),可见无论二次生烃的烃源岩处于低熟、成熟和过成熟何种演化阶段,在二次生烃过程中均存在一个生烃高峰;即一次生烃已达生烃高峰的烃源岩(R_o 大于 1.20%) 在二次生烃过程中同样存在一个生烃高峰。

做以镜质体反射率为横坐标的累积生烃量曲线(图 2,下),可见并非二次生烃起始成熟度越低,二次生烃潜力越大;而起始成熟度 R_o 处于 0.6%~0.9% 范围的烃源岩,二次生烃潜力最大。这就意味着烃源岩的生烃量不仅与原始生烃潜力(即原始有机质含量和类型)有关,还与所经历的热演化路径有关;而且二次生烃量与一次生烃量的总和并不等于连续热演化的

¹ 国家自然科学基金项目(批准号:40002008)资助

产烃量。

2 二次生烃迟滞性及其定量评价方法

将演化标尺由热模拟温度换算为镜质体反射率后的二次生烃瞬时生烃率曲线(图3)反映了有机质发生二次生烃的迟滞性特征。既无论起始成熟度处于低熟、成熟和高过熟何种演化阶段,并非有机质演化达到一次生烃末的成熟度后就可生烃,而具有一定的迟滞程度,这种迟滞性的大小可用二次生烃作用明显发生时对应的成熟度与起始成熟度之差加以定量表示(图4)。举例来说,若二次生烃起始成熟度 $R_o = 0.6\%$,当二次生烃量达到生烃总量的5%时,镜质体反射率迟滞量为0.25%,当二次生烃量达到生烃总量的30%时,镜质体反射率迟滞量为0.45%。由图可见当二次生烃的起始成熟度位于一次生烃的生油高峰时(即 $R_o = 1.0\%$ 左右),迟滞程度最低。

正是由于二次生烃迟滞性的影响,成熟度的二次演化并不意味着发生了二次生烃,另外二次生烃同样也不表明就发生过二次显著生烃,为此提出临界成熟度和显著生烃成熟度的概念(图5)。临界成熟度指有机质刚发生二次生烃作用时刻的成熟度,显著生烃成熟度指有机质发生显著二次生烃,生烃率大于 10mg/g 时的成熟度。

3 二次生烃显现特征动力学机制

模拟实验表明二次生烃的演化轨迹并不遵循经典的蒂索一次生烃演化模式,究其原因受化学动力学机

制控制。一般认为干酪根热解生烃是一个连续定向的过程,沉积有机质中各类化学键依次从低能量到高能量顺序开始裂解。然而,在二次生烃过程中由于先期受热降解形成的“中间产物”在一次演化中止前未能有效释放而部分聚集在干酪根内的特性以及化学结构在受冷却后的高度“固化”,导致了二次增温初期中间产物的快速释放和化学结构再次活化的“惰性”,从而使得二次生烃显现出“脉冲”式的非连续演化过程,二次生烃反应活化能的分布不同于一次连续生烃,显示出低 \rightarrow 增高 \rightarrow 降低 \rightarrow 再增高4个演化阶段(图6),有两个较高的能垒,iv对应的是受冷却的干酪根再次活化开始热降解生油所需的能量,③是干酪根开始热裂解生气所需的能量。

4 渤海湾盆地古生界烃源岩二次生烃研究

渤海湾盆地古生界烃源岩经历加里东、海西、印支、燕山和喜马拉雅多期构造运动^[1-7],埋藏、受热和生烃史复杂。印支期后的构造—沉积格局分异导致古生界埋藏历史出现显著分化;燕山期的构造格局转型及深部构造特征具备了区域异常高热古地热场发育的条件,加速了古生界成熟演化和生烃;喜山期的大幅度构造沉降使得古生界再次深埋,并在某些地带提供了有机质再次演化的埋藏条件。

4.1 古生界烃源岩埋藏、受热和生烃历史分析

在早古生代,渤海湾盆地处于华北克拉通统一沉积盆地中,地温梯度较低,在 $2.5\text{ }^\circ\text{C}/100\text{m}$ 左右。中奥

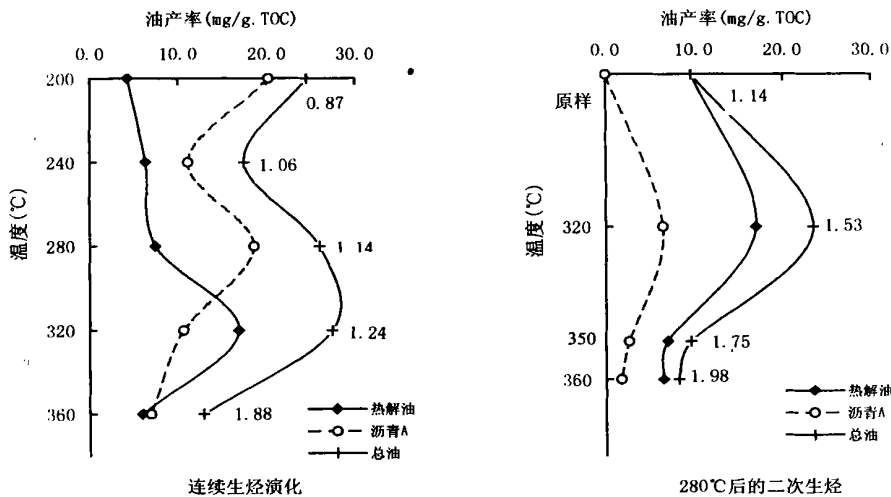


图1 连续生烃演化和二次生烃演化的生油和生气率曲线

(图中数据为该点的 R_o 值)

Fig. 1 The hydrocarbon generation curve under the continuous and secondary hydrocarbon generation evolution process (R_o value is shown in the figure)

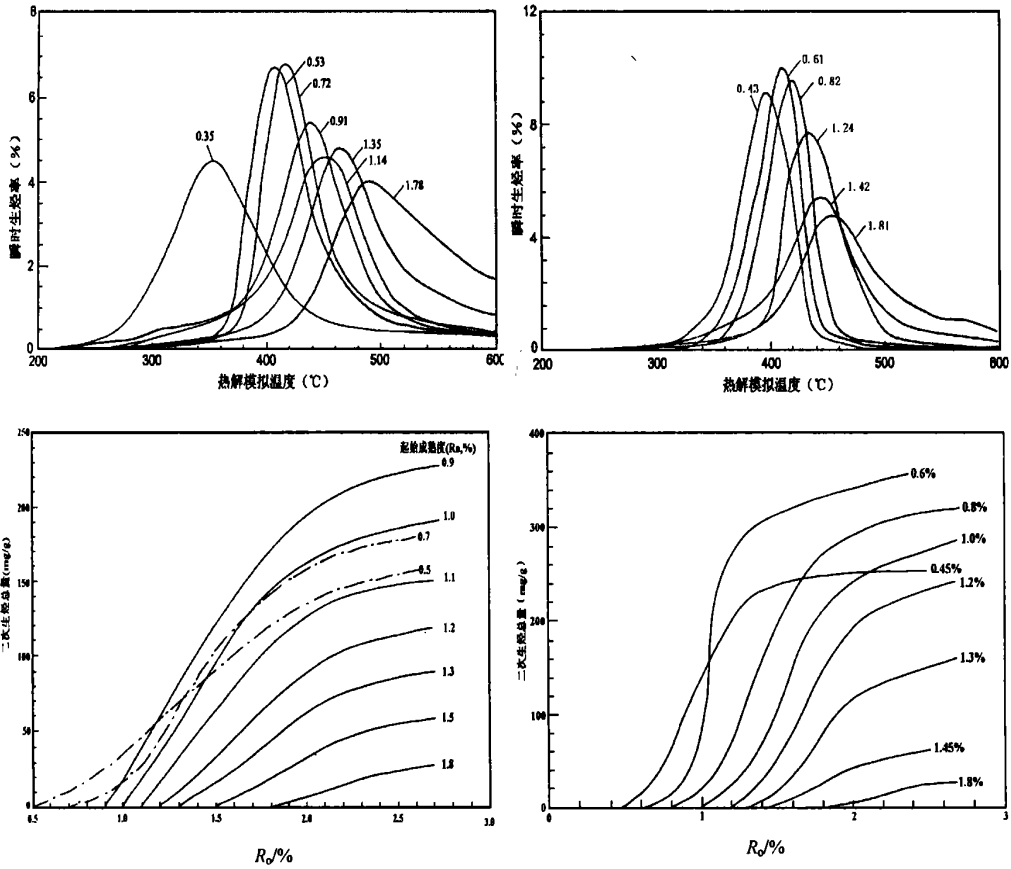


图 2 二次生烃的瞬时生烃率和累积生烃量曲线

Fig. 2 The curves of instantaneous hydrocarbon generation rate and accumulative hydrocarbon generation yield under the secondary hydrocarbon generation condition

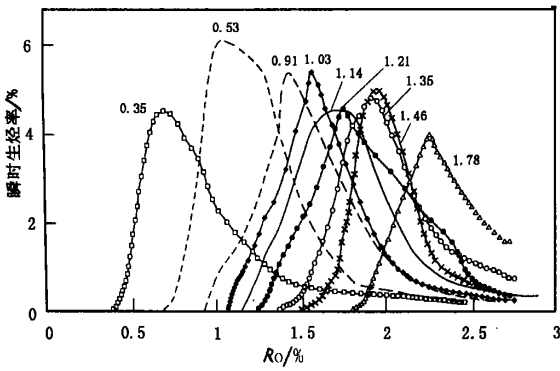


图 3 不同起始成熟度样品发生二次生烃的演化历程

Fig. 3 The secondary hydrocarbon generation evolution process of different samples

陶世末整体抬生, 此时中奥陶统底面埋深 1 200 ~ 1 800 m, 古地温最大不高于 60 °C, R_o 小于 0. 6%, 古生界烃源岩未进入生油门限。

在海西—印支期, 古生界烃源岩再次深埋增温, R_o 普遍达 0. 5% ~ 0. 8%, 已发生一次生烃。三叠纪

末的构造运动使古生界褶皱变形、抬升剥蚀, 温度降低, 有机质热演化减缓甚至间断, 一次生烃作用中止。

在燕山期, 渤海湾盆地属于裂谷前期构造运动阶段, 岩浆和火山活动剧烈, 大地热流增高, 地温梯度达 5. 2~ 6. 7 °C/100m。古生界烃源岩由于燕山期的异常高热, 开始了强烈的二次生烃作用, R_o 达 0. 55% ~

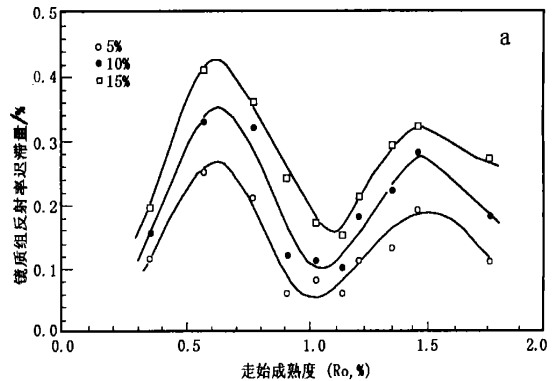


图 4 腐植型系列样品二次生烃迟滞性定量评价量版

Fig. 4 The quantitative plate of secondary hydrocarbon generation delaying of humic samples

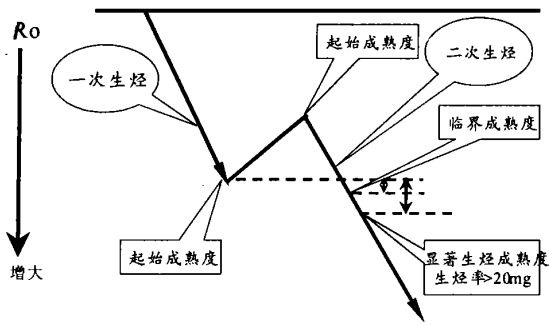


图5 二次生烃临界成熟度和显著生烃成熟度示意图

Fig. 5 The critical and obvious hydrocarbon generation maturity degree of secondary hydrocarbon generation

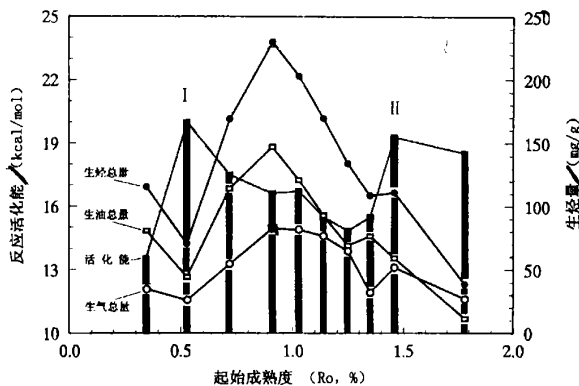


图6 二次生烃的生油气量和反应活化能的分布

Fig. 6 The yield of the secondary hydrocarbon generation and distribution of activation energy

1.6%, 最高可达 2.5%。白垩纪末的构造运动又一次使古生界烃源岩抬升降温, 生烃作用趋缓、停止。

在喜马拉雅期, 渤海湾盆地进入裂谷期, 地温梯度在 2.8~4°C/100m 之间。有的凹陷由于深埋作用, 在喜山早期发生了二次生烃作用, 而有的凹陷直到晚第三纪才发生二次生烃作用。

4.2 古生界烃源岩二次生烃率时空展布和二次生烃深度

根据二次生烃热模拟实验得出的二次生烃率/有机质成熟度量板, 古生界不同地质时期的生烃率分布具有如下特征: ①渤海湾盆地古生界烃源岩在燕山期的二次生烃作用明显强于喜马拉雅期。在燕山期渤海湾盆地大部分地区发生了二次生烃作用, 而在喜马拉雅期古生界烃源岩二次生烃的范围局限, 仅在东濮凹陷、惠民凹陷、黄骅拗陷中北区和廊固凹陷发生了二次生烃作用。④在同一时期, 马家沟组的生烃率高于太原组。在燕山期, 马家沟组烃源岩的生烃率一般在 50

~300mg/g 之间; 太原组一般在 10~100mg/g 之间。在喜马拉雅期, 马家沟组和太原组烃源岩二次生烃率分别在 10~80mg/g 和 5~40mg/g 之间。

生烃门限深度是油气勘探部署的重要依据。然而, 对于二次生烃来说, 更为重要且具有实际意义的是显著生烃深度。在此, 把生烃率为 10% 对应的深度定为二次显著生烃深度。基于热模拟结果, 腐植型有机质和腐泥型有机质的最大生烃率分别为 200mg/g 和 300mg/g, 则腐植和腐泥型有机质显著生烃的标准应分别为 20mg/g 和 30mg/g。

燕山期马家沟组和太原组显著生烃深度现埋深主要分布在 3500~5000 m 之间, 在盆地的边缘部分存在 <3500 m 的区域。喜马拉雅期古生界各层位显著生烃深度一般大于燕山期, 主要分布在 3500~6000 m 之间。其主要原因是喜马拉雅期的地温梯度低于燕山期, 同样热力学条件出现的深度在喜马拉雅期一般深于燕山期。

4.3 古生界烃源岩二次生烃有利区评价

二次生烃有利区是各种有利地质因素的综合。根据前面二次生烃的研究成果, 结合渤海湾盆地具体地质条件, 以生烃史或生烃阶段组合的关键要素入手, 通过对显著生烃深度、生烃率等关键要素的递阶分析, 将渤海湾盆地古生界不同区带的二次生烃潜力归纳为 4 种类型, 既极为有利 (iv₁)、有利 (iv₂, ㊸₁), 较为有利 (㊸₂—㊸₄) 和不利 (㊸₅)。渤海湾地区古生界二次生烃区带前景类别及其区域展布状况列于表 1。

5 结论

二次生烃过程不同与连续生烃演化具有自己的特征: ①一次生烃已达生烃高峰的烃源岩在二次生烃过程中同样存在一个生烃高峰, 一般存在两个生烃高峰, 这与中间产物的积聚与释放有关。④二次生烃作用总体表现为迟滞性, 这种迟滞程度与烃源岩二次生烃时的起始成熟度 (即烃源岩发生一次生烃末的成熟度) 及烃源岩所处的地质背景 (埋深、古地热、压力等因素) 有关; 当 R_o 等于 0.9% 左右时迟滞性最小。㊸在给定的热演化范围内, 二次生烃量与一次生烃量的总和不等于连续热演化的产烃量, 这就意味着烃源岩的生烃量不仅与原始生烃潜力 (即原始有机质含量和类型) 有关, 还与所经历的热演化路径有关。¼ 对应演化阶段的油气特征和油气比亦有差异, 主要表现为热解生烃演化经历了 3 个阶段, 第一阶段为残留烃释放阶段, 第二阶段为热降解阶段, 第三阶段为热裂解阶段。由此建立的二次生烃有机质起始成熟度/二次生烃迟滞成熟度/二次生烃量之间的关系量版, 不仅为多期构造盆

表 1 渤海湾盆地古生界二次生烃区带类型及其分布

Table 1 The type and distribution of secondary hydrocarbon generation of Palaeozoic strata in Bohai Bay Basin

坳陷	马家沟组			太原组		
	序号	类别	区带位置	序号	类别	区带位置
黄骅 坳陷	1	iv ₁	歧口凹陷中央	1	iv ₁	歧口凹陷中心局限地带
	2	⊕ ₁	歧口凹陷斜坡带	2	⊕ ₁	歧口凹陷斜坡带
	3	⊕ ₁	北塘凹陷	3	⊕ ₁	坳陷北部前两带周边
	4	⊕ ₁	坳陷北部前三带周边			
冀中 坳陷	5	iv ₁	廊固凹陷廊坊凹槽	4	iv ₁	廊固凹陷廊坊凹槽
	6	iv ₁	廊固凹陷固安凹槽	5	⊕ ₁	iv ₁ 带周边局限环带
	7	⊕ ₁	iv ₁ 带周边环带	6	⊕ ₁	文安, 苏桥, 晋县凹陷
	8	⊕ ₁	⊕ ₁ 带周边局限环带			
济阳 坳陷	9	⊕ ₂	惠民凹陷东部	9	⊕ ₂	惠民凹陷、东营凹陷、 沾化凹陷西部
	10	⊕ ₂	⊕ ₂ 带周边环带			
临清 坳陷	11	⊕ ₂	丘县凹陷西南部	7	⊕ ₂	丘县凹陷西南部
	12	⊕ ₂	丘县凹陷南部	8	⊕ ₂	iv ₂ 带周边环带
东濮 坳陷	13	iv ₂	西部次凹中段	10	iv ₂	西部次凹中段
	14	⊕ ₂	iv ₂ 带周边环带	11	⊕ ₂	iv ₂ 带周边环带
	15	⊕ ₂	东濮坳陷	12	⊕ ₂	东濮坳陷东南部
				13	⊕ ₂	⊕ ₂ 带周边环带
			14	⊕ ₂	东濮坳陷南部	

地烃源岩有效生烃量计算提供了地质模型, 而且发展和完善了对二次生烃评价具有指导作用的二次生烃理论体系。

参考文献(References)

1 李德生, 薛叔浩. 中国东部中生代盆地与油气分布[J]. 地质学报, 1983, 57(3): 224~ 234[Li Desheng, Xue Shuhao. The Mesozoic and Cenozoic Basins and the petroleum distribution in East China[J]. Acta Geologica Sinica, 1983, 57(3): 224~ 234]

2 李德生. 渤海湾含油气盆地的构造格局[J]. 石油勘探与开发, 1979, 6(2): 1~ 10[Li Desheng. The tectonic framework of the petroliferous basins in the Bohai Bay [J]. Petroleum Exploration and Development, 1979, 6(2): 1~ 10]

3 马杏垣, 吴正文, 谭应佳, 郝春荣. 华北地台基底构造[J]. 地质学报, 1979, 53(4): 293~ 304[Ma Xingheng, Wu Zhengwen, Tan Yingjia, Hao Chunrong. The basement tectonics of the Huabei platform [J]. Acta Geologica Sinica, 1979, 53(4): 293~ 304]

4 阎敦实, 王尚文, 唐智. 渤海湾含油气盆地断块活动与古潜山油气

田的形成[J]. 石油学报, 1980, 1(2): 1~ 10[Yan Dunshi, Wang Shangwen, Tang Zhi. The block activity of the petroliferous basins in the Bohai Bay and the formation of oil and gas field in the paleo-buried hill [J]. Acta Petrolei Sinica, 1980, 1(2): 1~ 10]

5 杨起, 潘治贵, 翁成敏等. 华北石炭—二叠纪煤变质特征与地质因素探讨[M]. 北京: 地质出版社, 1988[Yang Qi, Pan Zhigui, Weng Chengmin, et al. The metamorphic characteristics of upper Palaeozoic coal and its geological genesis in Huabei area [M]. Beijing: Geological Publishing House, 1998]

6 赵重远, 刘池洋. 华北克拉通沉积盆地形成与演化及其油气赋存[M]. 西安: 西北大学出版社, 1984[Zhao Zhongyuan, Lin Chiyang. The formation and development of the Huabei cratonic basin and the oil and gas occurrence [M]. Xi'an: Northwest University Publishing House, 1984]

7 何海清, 王兆云, 韩品龙. 华北地区构造演化对渤海湾油气形成和分布的控制[J]. 地质学报, 1998, 72(4): 313~ 322[He Haiqing, Wang Zhaoyun, Han Pinlong. Tectonic control on the oil-gas formation and distribution in Bohaiwan basin[J]. Acta Geologica Sinica, 1998, 72(4): 313~ 322]

Quantitative Evaluation Method of Secondary Hydrocarbon Generation and Its Application in Bohai Bay basin

GUAN De-shi^{1,2} WANG Zhao-yun² QIN Yong³ CHENG Ke-ming²

1 (Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640)

2 (Scientific Research Institute of Petroleum Exploration and Development, Beijing 100083)

3 (China University of Mining and Technology, Xuzhou Jiangsu 221008)

Abstract Palaeozoic source rocks developed in Bohai Bay basin have the characteristics of multiple-burial, abnormally heated, secondary hydrocarbon generation, and multiple-reservoir formation. Based on the artificial simula-

tion on secondary hydrocarbon generation and pyrolysis simulation on samples of different maturity, it is indicated that the evolution passway of secondary hydrocarbon generation do not follow the Tissot's model of continuous hydrocarbon generation. The obvious characteristics of secondary hydrocarbon generation is the lag effect and the degree of lag is related to the original maturity. The degree of lag is the least while R_o is about 0.9%. This is determined by chemical kinetic mechanism. The activation energy distribution of secondary hydrocarbon generation indicates that the intermediate products formed in the first hydrocarbon generation are not totally decomposed, and rapidly decomposed at the beginning of secondary hydrocarbon generation, but the chemical structure of kerogen quite solidify when cooled and become activated again during the secondary hydrocarbon generation. So the evolution of secondary hydrocarbon generation present discontinuous pulse progression. According to the lag plate of secondary hydrocarbon generation and the geological condition of Bohai Bay basin, through the study of the history and stage of hydrocarbon generation, and analyzing the obvious depth and ratio of secondary hydrocarbon generation, prospective areas of secondary hydrocarbon generation can be pointed out.

Key words secondary hydrocarbon generation, lag characteristics, quantitative evaluation method, Bohai Bay basin

(Continued from page 532)

than that of Jingbian. The difference is equal to 3.6%. According to individual carbon isotopes and compositions of natural gas, it can be seen that the Suligemiao Permian gas is coalbed gas, and the Jingbian Ordovician gas is gaseous mixture. Average R_o of Suligemiao gas and its source rock is equal to 1.29% ~ 1.39% according to CH_4 isotope values, which is consistent with R_o of the Permian rock. A little of CO_2 content is found in Suligemiao and Jingbian natural gas. In terms of the carbon isotope values, it is believed that inorganic CO_2 exists in well Su5 in Suligemiao and well Lin1, Lin5 in Jingbian. The rest are all organic CO_2 . In combination with hydrocarbon gas and CO_2 , the natural gas in Suligemiao could be divided into coal-formed gas with organic CO_2 and inorganic CO_2 . The maturity of coal-formed gas in Suligemiao reaches middle to high stage and the corresponding R_o is 1.29% ~ 1.39%, which is in line with the maturity in Permian coal.

Key words individual carbon isotope, natural gas, genetic types, Suligemiao