

文章编号:1001—6112(2008)06—0394—05

十万大山盆地古油藏沥青地球化学特征及来源

贺训云¹,钟宁宁^{2,3},陈建平^{3,4},王飞宇²

(1. 中国石油 杭州石油地质研究院,杭州 310023;2. 中国石油大学,北京 102249;

3. 中国石油天然气集团公司 油气地球化学重点实验室,北京 100083;4. 中国石油勘探开发研究院,北京 100083;)

摘要:根据沥青产状、族组成、饱和烃色谱、生物标志化合物、碳同位素以及沥青热演化程度等,对广西十万大山盆地北缘的老虎山古油藏、上屯古油藏二叠系灰岩中固体沥青的地球化学特征进行了系统分析,并结合有关烃源岩地球化学特征及油气成藏研究成果对其来源和成因进行了探讨。结果表明,古油藏沥青抽提物含量低,族组成中芳烃和非烃含量高,饱和烃含量低,芳烃含量最高可达 58.60%。饱和烃气相色谱分析表明,沥青具还原环境、以低等水生生源为主的母质来源及较高的热演化程度。沥青稳定碳同位素为-27.8‰~-28.7‰,反映其生烃母质以低等生源为主。沥青中的甾、萜烷含量很低,且以低分子量化合物占绝对优势,其中甾烷系列中具很高的孕甾烷含量,萜烷则以三环萜烷为主,反映其高热演化特征。沥青几乎不含芳香甾烷,与本区上二叠统泥质烃源岩特征相似;沥青反射率为 1.9%~2.5%,结合本区生烃成藏演化史分析结果,反映其经历过 230℃高温。最后结合相关烃源岩地球化学特征及有关油气成藏信息,综合认为古油藏沥青与上二叠统泥质烃源岩有较好的亲缘关系,是古油藏早期原油高温裂解的产物之一,即焦沥青。

关键词:古油藏;储层沥青;地球化学特征;沥青来源;沥青成因;十万大山盆地

中图分类号:TE122.11 **文献标识码:**A

GEOCHEMICAL CHARACTERISTICS AND SOURCE OF PALEO- RESERVOIR SOLID BITUMEN IN SHIWANDASHAN BASIN

He Xunyun¹, Zhong Ningning^{2,3}, Chen Jianping^{3,4}, Wang Feiyu²

(1. Hangzhou Research Institute of Petroleum Geology , PetroChina, Hangzhou , Zhejiang 310023, China;

2. China University of Petroleum, Beijing 102249, China; 3. Key Laboratory of Petroleum Geochemistry , CNPC,

Beijing 100083, China; 4. Research Institute of Petroleum Exploration & Development , PetroChina, Beijing 100083, China)

Abstract: Systematic geochemical analysis such as bitumen occurrence, group composition of dissolved organic matter, saturated hydrocarbon chromatography, biomarker compounds, carbon isotope and bitumen thermal maturation is applied to the solid bitumen of Laohushan and Shangtun paleo-reservoirs from Permian limestones in Shiwandashan Basin of Guangxi Province, China. And combined with geochemical characters of hydrocarbon source rocks and reservoir-forming mechanism, the source and genesis of above two solid bitumen has been discussed. The results show that the content of dissolved organic matter and saturated hydrocarbon is very poor and the content of aromatic hydrocarbon (the highest being 58.60%) and nonhydrocarbon is rich. The gas chromatogram analysis of saturated hydrocarbon show that bitumen is from reduction environment originating from lower grade aquatic geology with higher thermal evolution degree. The stable carbon isotope of bitumen is -27.8‰~-28.7‰, reflecting that the main source of input of source rock is lower aquatic biology. The lower content of sterane and terpane (dominated by low molecular compounds), higher content of pregnane in sterane series and tricyclic terpane predominated in terpane indicate that the bitumen was characterised by high evolution. Like the argillaceous source rock of Permian , there is nearly no aromatic sterane in bitumen. The reflectance of bitumen is 1.9%~2.5%, and the equivalent vitrinite reflectance is 1.6%~2.0%, associated with the results of reservoiring and evolution history, it shows that the bitumen experienced 230℃ temperature. Finally combined with relative geochemical characters of hydrocarbon and certain

收稿日期:2008—02—20;修订日期:2009—06—01。

作者简介:贺训云(1975—),男,工程师,主要从事油气地质综合研究。E-mail:hexunyun@sina.com。

基金项目:中国石油化工集团公司科技部项目“广西十万大山盆地生烃、成藏研究”资助。

information of reservoir-forming, it is considered that the paleo-reservoir bitumen has closer genetic relationship with Upper Permian argillaceous source rock, and it is one of the final pyrolysis products of crude oil in paleo-reservoir, (that is pyrobitumen).

Key words: paleo-reservoir ; reservoir bitumen ; geochemical characteristics ; bitumen source ; bitumen genesis; aromatic sterane ; Shiwandashan Basin

在我国南方海相碳酸盐岩地层中,分布着众多的天然沥青,这些沥青蕴含着丰富的油气地质和地球化学信息,根据其蕴含的信息,可广泛进行油气源、油气成藏演化过程及分布规律^[1~5]等的研究。这些研究已在我国南方海相碳酸盐岩油气勘探中取得许多重要成果和认识^[4~14]。

广西十万大山盆地是我国南方海相油气勘探前景较好的盆地之一,盆地边缘的露头剖面以及古油藏中产出众多的固体沥青。对这些沥青的地球化学特征进行分析,并探讨其来源及成因,可明确其油气来源及油气成藏演化过程等,从而为探索盆地油气成藏演化规律提供有关信息。

1 研究区地质概况

十万大山盆地位于广西壮族自治区西南部(图 1),呈北东—南西走向,向西南延入越南境内称为安州盆地,安州盆地已发现油气田。十万大山盆地长约 240 km,宽 25~60 km,面积 $1.16\times10^4\text{km}^2$,处于扬子与华夏两板块的交接处^[15]。现今盆地南东深,北西浅,是一个晚海西—印支燕山期由于云开地块和扬子地块之间的钦州残余海盆关闭造山而形成的前陆盆地^[16,17]。

盆地的沉积盖层由上古生界至侏罗系地层组成,期间经历了 3 次盆山转换过程:泥盆纪—早二叠世,盆地新生与被动大陆边缘拉张裂谷;晚二叠世—中三叠世,盆地构造性质转换与前陆盆地沉积;晚三叠世至侏罗纪的晚期,前陆磨拉石沉积^[18]。自晚白垩世以来,盆地各地普遍经历了抬升剥蚀过程^[19]。盆地北部火山岩发育,南部印支期酸性侵

入岩广泛分布。
盆地沥青及油气显示活跃,晚古生代及早三叠世海相地层是现阶段油气勘探的主要目的层。

2 沥青地球化学特征

十万大山盆地边缘的沥青显示,主要分布于泥盆系至三叠系。本次研究沥青样品采自盆地北缘亭亮老虎山古油藏和柳桥上屯古油藏(图 1),固体沥青呈团块状产出于中二叠统茅口组(P_2m)灰岩晶洞、裂隙中,边缘平直,颜色深黑,不染手,致密坚硬,贝壳状断口,经爆破方取得样品。

2.1 可溶有机质及族组成

有机溶剂抽提及族组成分析表明,古油藏沥青样品的氯仿沥青“A”含量均很低,为 0.004 8%~0.030 5%,表明其不易被常规有机溶剂抽提;饱和烃含量较低,芳烃、非烃及沥青质含量较高(表 1),饱芳比低,总体反映具高热演化特征。此外,高芳烃含量以及低饱芳烃比可能暗示沥青经受高温裂解并发生较强芳构化作用^[20],可能为储层原油高温裂解的最终产物之一——焦沥青^[21]。

2.2 饱和烃色谱特征

古油藏沥青的饱和烃色谱分析表明,其正构烷烃碳数分布为高碳数部分缺损单峰型(图 2),表明

表 1 十万大山盆地古油藏沥青族组成

Table 1 Group composition of paleo-reservoirs bitumen in the Shiwandashan Basin

位置	样品	层位	饱和烃, %	芳烃, %	非烃, %	沥青质, %
老虎山	沥青	P_2m	18.83	32.30	30.91	17.96
上屯	沥青	P_2m	8.36	58.60	7.89	25.15

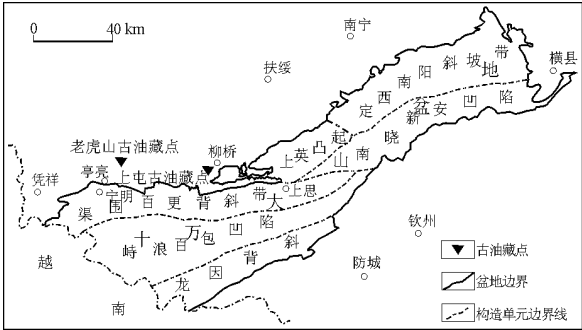


图 1 十万大山盆地位置

Fig.1 Location of the Shiwandashan Basin

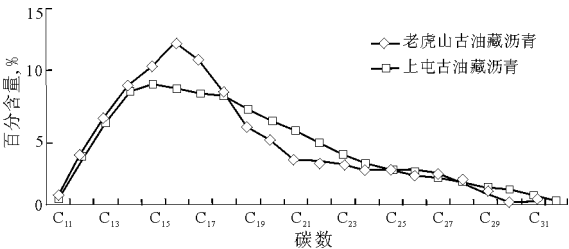


图 2 十万大山盆地古油藏沥青正构烷烃碳数分布

Fig.2 Distribution of *n*-alkane of bitumen in the Shiwandashan Basin

表 2 十万大山盆地古油藏沥青饱和和炔色谱特征参数

Table 2 Chromatogram parameters of saturated hydrocarbon of paleo-bitumen in the Shiwandashan Basin										
位置	样品	层位	主峰碳	C_{21}^-/C_{22}^+	$(C_{21}+C_{22})/(C_{28}+C_{29})$	Pr/Ph	Pr/ nC_{17}	Pr/ nC_{18}	CPI	OEP
老虎山	沥青	P_2m	nC_{16}	3.91	2.48	1.03	0.37	0.46	1.12	0.94
上屯	沥青	P_2m	nC_{15}	3.04	3.40	1.64	0.15	0.09	1.04	1.00

可能其发生过热裂解;主峰碳碳数较低,为 nC_{15} 和 nC_{16} (表 2), C_{21}^-/C_{22}^+ 为 3.04~3.91,Pr/Ph 为 1.03~1.64,OEP 为 0.94~1.00。上述特征总体表明沥青具有高的成熟度及源自还原环境的以低等水生有机母质为主的生源特征。

2.3 稳定碳同位素特征

稳定碳同位素值具明确的生源意义,可反映母质来源,受热演化影响较小,是表征烃类母质来源的一个有效参数。分析结果表明,老虎山古油藏和上屯古油藏沥青样品的稳定碳同位素分别为-27.8‰~-28.7‰,值较轻,表明中二叠统古油藏沥青具以低等水生母质为主的有机生源。

2.4 生物标志物特征

生物标志物亦具有明确的生源意义,可反映烃类相应母质的原始生源组成、沉积环境和成熟度等,并具指相和断代意义。分析结果表明,古油藏固体沥青的甾、萜烷含量均很低,且以低分子量化合物占绝对优势(图 3),其中甾烷系列中具很高的孕甾烷含量,萜烷则以三环萜烷为主,均反映沥青经历很高的热演化过程。另外,古油藏沥青芳香甾烷分析结果表明,沥青中几乎不含芳香甾烷(图 4)。

2.5 沥青热演化特征

沥青反射率测定结果表明,老虎山古油藏和上屯古油藏固体沥青的反射率为1.9%~2.5%,根

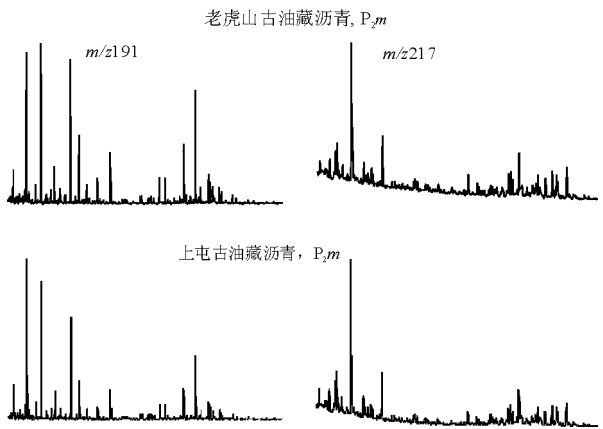


图 3 十万大山盆地古油藏沥青甾、萜烷分布
Fig. 3 Distribution of sterane and terpane of paleo-reservoir bitumen in the Shiwandashan Basin

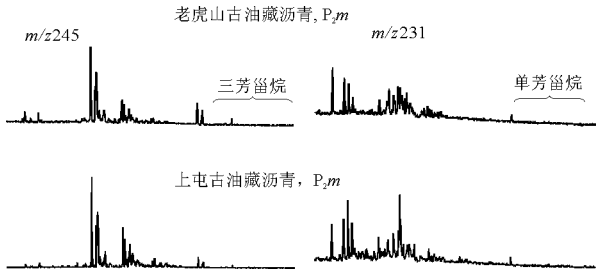


图 4 十万大山盆地古油藏沥青芳香甾烷分布
Fig. 4 Distribution of aromatic sterane of paleo-reservoir bitumen in the Shiwandashan Basin

据文献[11]换算成等效镜质体反射率为 1.6%~2.0%。高的沥青反射率表明沥青为类晶质沥青[6]。此外,根据沥青反射率值与经受温度的相关性分析以及生烃成藏演化模拟结果,均表明沥青经历过 230℃高温。古油藏包裹体分析表明,不存在液态烃和油包裹体,仅有气体包裹体和盐水包裹体。上述特征均反映古油藏沥青经历高温热演化。

3 沥青来源及成因

3.1 来源探讨

3.1.1 盆地烃源岩特征

十万大山盆地共发育 3 套主要的烃源岩,即下泥盆统、上二叠统和下三叠统。以有机碳下限值 0.4%^[22,23]对 10 口浅井及万参 1 井烃源岩进行有效性分析,结果表明,3 套烃源岩层系中有效的烃源岩为泥质岩,而非纯碳酸盐岩,绝大多数碳酸盐岩样品有机碳含量均低于 0.4%。对有机碳含量大于 0.4%的泥质烃源岩进行统计分析,结果表明,下三叠统烃源岩有机质丰度最高,有机碳含量平均达 0.77%,最高达 2.27%;其次为下泥盆统,有机碳含量平均为 0.68%,最高达 1.72%;再次为上二叠统,有机碳含量平均为 0.56%,最高达 1.20%。藻类是有机碳的主要生物先质^[24]。

烃源岩干酪根碳同位素分析表明,盆地地下泥盆统烃源岩干酪根 $\delta^{13}C$ 值为-31.2‰~-28.6‰,平均-29.7‰;上二叠统烃源岩干酪根 $\delta^{13}C$ 值为-29.0‰~-24.8‰,平均-26.9‰;下三叠统烃源岩干酪根 $\delta^{13}C$ 值为-28.5‰~-24.6‰,平均

—27.4‰。表明下泥盆统烃源岩有机质类型最好,其次为下三叠统,再次为上二叠统。下三叠统与上二叠统烃源岩干酪根碳同位素值稍重,与其发育环境中的宏观底栖藻类有关,上二叠统烃源岩含有相对更丰富的底栖藻类^[24]。

镜质体反射率测试结果表明,下泥盆统烃源岩镜质体反射率为2.54%~3.15%(11个样品),平均2.81%,皆处于过成熟阶段;上二叠统烃源岩镜质体反射率为1.86%~2.76%(9个样品),平均2.26%,总体处于高、过成熟阶段;下三叠统烃源岩镜质体反射率为1.26%~1.91%(16个样品),平均1.49%,总体处于高成熟阶段。

3.1.2 饱和烃色谱特征对比

由于受高过成熟演化的影响,烃源岩饱和烃色谱的一些参数值趋同,无法区别其生源、成熟度、沉积环境等方面的差异,因此无法用于精细油源对比。沥青和烃源岩的饱和烃色谱参数均表现为以还原环境的低等水生母质来源为主、成熟演化高的总体特征。

但烃源岩主峰碳数稍有差异,其中下泥盆统烃源岩绝大多数为 nC_{16} 、 nC_{17} ,而上二叠统烃源岩以 nC_{16} 、 nC_{17} 为主,有少量 nC_{25} ,下三叠统烃源岩以 nC_{16} 、 nC_{17} 为主,有少量为 nC_{25} 和 nC_{23} ,表明不同层位烃源岩有机生源的差异,这与干酪根碳同位素分析结果一致。

3.1.3 稳定碳同位素值

大量分析资料表明,正常原油的碳同位素值比相应源岩干酪根碳同位素值轻1‰~2‰,而固体沥青的碳同位素值要比其原始原油的重2‰~3‰^[25],因而固体沥青的碳同位素值要高出烃源岩干酪根碳同位素值1‰~2‰^[20]。

古油藏沥青样品 $\delta^{13}C$ 值为-27.8‰~-28.7‰,与下泥盆统和上三叠统烃源岩干酪根的 $\delta^{13}C$ 值接近,而上二叠统烃源岩干酪根 $\delta^{13}C$ 值平均为-26.9‰,由文献[20]可知,古油藏沥青可能与上二叠统烃源岩更具较好亲缘关系。

3.1.4 生物标志物对比

由于热演化程度普遍很高,甾、萜烷分布特征趋向同一,无法作为有效对比指标。但是,不同时代、岩性的烃源岩和沥青在芳香甾烷的含量及分布特征上表现出一定差异,因此可作为高过成熟地区油源对比的有效指标^[26]。

分析结果表明,沥青中几乎不含芳香甾烷(图4)。下泥盆统泥质烃源岩中普遍含有较丰富的芳香甾烷,下三叠统灰岩中也含有较丰富的芳香甾

烷,但上二叠统、下三叠统泥岩中普遍不含或少含芳香甾烷,因此可能表明沥青与上二叠统、下三叠统泥岩有较好亲缘关系。

3.1.5 沥青反射率

古油藏固体沥青反射率值为1.9%~2.5%,其相应镜质体反射率值为1.6%~2.0%。

根据沥青和烃源岩镜质体反射率相关关系分析,下泥盆统烃源岩成熟度比沥青明显偏高,下三叠统烃源岩成熟度则偏低,上二叠统烃源岩镜质体反射率与沥青较接近。有机质成熟度^[27]表明,十万大山盆地大部分三叠系烃源岩仍处在凝析油、湿气演化阶段;二叠系烃源岩主体处于干气演化阶段;石炭系和泥盆系烃源岩均处于干气阶段。

此外,根据盆地生烃史分析,下泥盆统烃源岩生油高峰在晚二叠世末,早三叠世初达到过成熟阶段;上二叠统烃源岩生油高峰在晚三叠世末,早白垩世达到过成熟阶段;下三叠统源岩生油窗在晚侏罗世,在晚白垩世进入过成熟阶段;晚白垩世强烈抬升剥蚀。

综上所述,综合表明十万大山盆地老虎山古油藏沥青和上屯古油藏沥青主要与上二叠统泥质烃源岩有较好亲缘关系。

3.2 成因分析

根据盆地生埋藏史研究结果,下泥盆统烃源岩生油高峰在晚二叠世末,早三叠世初达到过成熟阶段;上二叠统烃源岩生油高峰在晚三叠世末,早白垩世达到过成熟阶段,而且二叠系地层在早白垩世埋深最高达8 000 m,地温达240℃,晚白垩世强烈抬升。此外,万参1井热史研究表明,中三叠世发生热事件,有中酸性火山喷发,占地温梯度可达52℃/km,盆地周缘广布的印支期岩浆岩就是这些热事件的结果;万参1井盐水包裹体均一化温度分析结果表明,下侏罗统地层达到的最高古地温为150~170℃,上泥盆统地层达到的最高古地温为220~230℃。沥青反射率实测结果进一步证实上述结果,古油藏固体沥青反射率值为1.9%~2.5%,其等效镜质体反射率值为1.6%~2.0%,根据沥青反射率与经受温度的相关性关系,表明古油藏经历过230℃高温,与盆地模拟结果一致。根据原油发生裂解的温度条件,可知如此高的温度足以使早期油藏中的原油发生大量裂解^[21]。

综上所述,古油藏后期深埋以及印支期热事件均可对早期的古油藏产生严重破坏,导致古油藏中早期原油经受高温热蚀变而演化成焦沥青和甲烷^[21]。据研究,后生储层沥青由原油经热变质作

用形成,其形成成熟度范围 R_o 介于 1.40%~2.00%^[28,29]。总之,根据沥青产状及其相关地球化学分析结果,综合表明老虎山古油藏沥青和上屯古油藏沥青均为古油藏中的原油高温裂解产物,即焦沥青。

4 结 论

1) 十万大山盆地老虎山古油藏和上屯古油藏固体沥青可溶有机质含量很低,芳烃、非烃含量较高,饱和烃含量较低;饱和烃色谱表明其主峰碳数较低,为 nC_{16} 和 nC_{15} ,其 C_{21}^-/C_{22}^+ 分别为 3.91 和 3.04,其 Pr/Ph 分别为 1.03 和 1.64, OEP 分别为 0.94 和 1.00;沥青碳同位素分别为 -27.8‰ 和 -28.7‰;甾、萜烷含量低,分别以低分子量的孕甾烷和三环萜烷为主,几乎不含芳香甾烷;沥青反射率为 1.9%~2.5%,其等效镜质体反射率值为 1.6%~2.0%。

2) 古油藏固体沥青与上二叠统泥质烃源岩有较好的亲缘关系。

3) 古油藏固体沥青是古油藏早期原油高温裂解的产物,即焦沥青,并在后期抬升暴露。

参考文献:

1 肖贤明,刘德汉,傅家谟. 沥青反射率作为烃源岩成熟度指标的意义[J]. 沉积学报, 1991,9(S1):138~146

2 肖贤明,刘德汉,傅家谟等. 应用沥青反射率推算油气生成与运移的地质时间[J]. 科学通报, 2000,45(19):2123~2127

3 崔会英,张 莉. 四川盆地威远—资阳地区震旦系储层沥青特征及意义[J]. 石油实验地质,2008,30(5):489~493

4 王建宝,肖贤明,郭汝泰. 四川盆地早古生代地层中沥青的成因及其生气潜力研究[J]. 天然气工业,2003,23(5):127~129

5 赵孟军,张水昌,赵 陵等. 南盘江盆地油气成藏过程及天然气勘探前景分析[J]. 地质论评,2006,52(5): 642~649

6 赵孟军,张水昌,赵 陵等. 南盘江盆地古油藏沥青地球化学特征及成因[J]. 地质学报,2006,80(6):893~902

7 赵孟军,张水昌,赵 陵等. 南盘江盆地古油藏沥青、天然气的地球化学特征及成因[J]. 中国科学 D 辑:地球科学, 2007, 37(2): 167~177

8 饶 丹,秦建中. 川西北广元地区海相层系油苗和沥青来源分析[J]. 石油实验地质,2008,30(6):596~599,605

9 高志农,胡华中. 高压对天然沥青结构组成演变的影响[J]. 沉积学报,2002,20(3):499~504

10 李艳霞,钟宁宁. 川东石炭系气藏中固体沥青形成机理探讨[J]. 石油实验地质,2007,29(4):402~404

11 刘德汉,史继扬. 高演化碳酸盐烃源岩非常规评价方法探讨[J]. 石油勘探与开发,1994,21(3):113~115

12 杨永才,张枝焕,常象春等. 塔里木盆地 YN2 井储层沥青的地球化学特征及成因分析[J]. 矿物岩石, 2006,26(2):92~96

13 秦胜飞,潘文庆,韩剑发等. 储层沥青与有机包裹体生物标志物分析方法[J]. 石油实验地质,2007,29(3):315~318

14 张 渠,腾格尔,张志荣等. 凯里—麻江地区油苗与固体沥青的油源分析[J]. 地质学报,2007,81(8):1118~1124

15 徐汉林,杨以宁,沈 扬等. 广西十万大山盆地构造特征新认识[J]. 地质科学,2001, 36 (3):359~363

16 郑俊章,陈焕疆. 十万大山盆地演化的动力学[J]. 地学前缘, 1995,2(3~4):245~247

17 周明辉,麻建明,郑 冰. 滇黔桂海相油气成藏条件及勘探潜力分析[J]. 石油实验地质,2005,27(4):333~337

18 尹福光,许效松,万 方. 广西十万大山盆地演化过程及油气资源响应[J]. 沉积与特提斯地质,2002, 22(3):31~35

19 周祖翼,郭彤楼,许长海等. 广西十万大山盆地中生代地层的裂变径迹研究及其地质意义[J]. 地质学报, 2005,79 (3): 395~401

20 蔡勋育,朱扬明,黄仁春. 普光气田沥青地球化学特征及成因[J]. 石油与天然气地质,2006,27(3): 340~347

21 赵孟军,张水昌,刘丰忠. 油藏演化的两个极端过程[J]. 石油勘探与开发,2003,30(5):21~23

22 梁狄刚,张水昌,张宝民等. 从塔里木盆地看中国海相生油问题[J]. 地学前缘,2000 ,7 (4):534~547

23 张水昌,梁狄刚,张大江等. 关于古生界烃源岩有机质丰度的评价标准[J]. 石油勘探与开发,2002,29 (2):8~12

24 何中发,边立曾,陈建平等. 十万大山盆地晚二叠世、早三叠世烃源岩中铁元素丰度与有机碳丰度相关关系[J]. 石油勘探与开发,2004,31(1): 45~47

25 Machel H G, Krouse H R , Sassen R. Products and distinguishing criteria of bacterial and thermochemical sulfate reduction [J]. Applied Geochemistry, 1995, 10 (4) : 373~389

26 梁狄刚,陈建平. 中国南方高、过成熟区海相油源对比问题[J]. 石油勘探与开发,2005 ,32 (2) :8~14

27 刘长伟,王飞宇,王忠辉等. 十万大山盆地烃源岩有机成熟度评价[J]. 石油勘探与开发,2002,29(6):8~10

28 Stasiuk L D. The origin of probitumens in Upper Devonian Ladue Formation gas reservoir, Alberta , Canada : an optical and EDS study of oil to gas transformation[J]. Marine and Petroleum Geology ,1997,14(7/ 8) :915~929

29 刘德汉,史继扬. 碳酸盐岩高演化有机质的地球化学特征及油气非常规评价方法[J]. 天然气工业,1994,14 (增刊) :62~67

(编辑 李凤丽)