

海相高演化烃源岩总有机碳恢复系数研究

秦建中, 郑伦举, 腾格尔

中国石化勘探开发研究院无锡实验地质研究所, 江苏无锡 214151

摘要: 在 5 000 余块海相烃源岩样品筛选结果的基础上, 根据 90 余块不同类型未成熟—成熟烃源岩的加水热压模拟实验结果, 并与自然演化剖面相结合, 对烃源岩有机质的变化规律及其恢复系数进行研究。海相优质烃源岩在未成熟—低成熟阶段($R_o < 0.8\%$) TOC (total organic carbon) 变化不明显, 在成熟阶段中晚期 TOC_{残余} 随成熟度增加逐渐降低, 到高成熟—过成熟阶段变化又不明显。高成熟—过成熟优质烃源岩 TOC_{原始} 一般 I 型最高降低 40%, 恢复系数 1.68; II₁ 型最高降低 32%, 恢复系数 1.48; II₂ 型最高降低 24%, 恢复系数 1.32。低有机质烃源岩(一般指 $0.3\% < TOC < 1\%$) 随 TOC 变低, 降低幅度和恢复系数均逐渐变小, 当 $0.3\% < TOC < 0.5\%$ 时, TOC_{原始} 恢复系数约 1.2, 当 $TOC < 0.3\%$ 时, TOC_{原始} 恢复系数接近 1, 可以不进行恢复。固体沥青和高有机质页岩($TOC > 30\%$) TOC_{原始} 高成熟—过成熟阶段也不需要进行恢复。海相烃源岩($0.3\% < TOC < 30\%$) 自然剖面生烃潜力的减少和模拟生排烃量的增加与 TOC_{残余} 的减少相吻合。

关键词: 海相; 烃源岩; 高演化; 总有机碳; 恢复系数。

中图分类号: P618.13

文章编号: 1000-2383(2007)06-0853-08

收稿日期: 2007-08-22

Study on the Restitution Coefficient of Original Total Organic Carbon for High Mature Marine Hydrocarbon Source Rocks

QIN Jian-zhong, ZHENG Lun-ju, Tenger

Wuxi Research Institute of Petroleum Geology, RIPED, SINOPEC, Wuxi 214151, China

Abstract On the basis of the results of hydrolysis simulations for about 90 different types immature to mature source rocks selected from about 5 000 marine source rocks in China, and accompanied by the investigation on the natural thermal evolution profiles, it was suggested that, the content of total organic carbon (TOC) of excellent marine source rocks does not change obviously at immature stage $R_o < 0.8\%$, or at high-post mature stage $R_o > 1.3\%$, and the residual TOC content decreases gradually with the maturity increase during the immature to low mature stage. The maximum of the decrease of the residual TOC content for sapropel (I), II₁ and II₂ type kerogen from excellent source rocks is usually 40%, 32% and 24%, and the TOC restitution coefficient is 1.68, 1.48, 1.32 respectively. Both the amplitude and the restitution coefficient of TOC decrease gradually with the decrease of TOC content for the source rocks with low organic matter abundance ($0.3\% < TOC < 1.0\%$), and the TOC restitution coefficient is 1.20 when $0.3\% < TOC < 0.5\%$, and close to 1.0 when $TOC < 0.3\%$. The TOC content of solid bitumen and shale with high organic matter abundance ($TOC > 30\%$) also required no restitution at high mature stage. The decrease of $S_1 + S_2$ of marine source rocks ($0.3\% < TOC < 30\%$) and the increase of the hydrocarbon quantity generated and expelled in laboratory simulation are consistent with the decrease of the residual TOC content observed in natural thermal evolution profiles.

Key words: marine; hydrocarbon source rock; high-post mature; TOC; restitution coefficient.

基金项目: 国家重点基础研究发展 973 计划项目(No. 2005CB422102); 中国石油化工股份有限公司海相油气勘探前瞻性项目(No. G0800-06-ZS-319)。

作者简介: 秦建中(1957—), 男, 教授级高级工程师, 主要从事油气地球化学与石油地质勘探研究工作。

E-mail: qjz@mail.wuxisu.com; jianqin@163.com

烃源岩在生油门限前未大量生烃、排烃时的有机质含量(有机碳、生烃潜量等)称为原始有机质丰度,而通常我们所测得的是烃源岩生排烃后的残余有机质含量.根据干酪根生烃理论,热降解生烃反应主要发生在深成作用阶段.随着烃源岩埋藏深度的不断增加,经受的地温越来越高,当达到生油门限温度时,干酪根开始热降解大量生排烃(Tissot and Welte, 1978; Jones, 1984; 徐思煌等, 1996; 秦建中等, 2005a, 2005b).由于油气的排出,有机质含量应不断降低.对高成熟—过成熟烃源岩来说,若用残余总有机碳含量($TOC_{残余}$)进行烃源岩评价或预测油气资源量,可能就会失真,进行有机质丰度的恢复是必要的(郝石生, 1984; 金强, 1989; 秦建中等, 2005a, 2005b).但是,是否所有海相高成熟—过成熟烃源岩 $TOC_{残余}$ 均需要进行恢复或根本不需要进行原始 TOC 和原始生烃潜量($S_1 + S_2$)的恢复仍存在着较大的争议(梁狄刚, 2000).

本文在前期青藏高原羌塘盆地侏罗—三叠系、措勤盆地白垩系、南方中三叠统一寒武系、冀北中上元古界等 5 000 余块海相烃源岩样品研究和评价的基础上(赵政璋等, 2000; 郭彤楼和田海芹, 2002; 秦建中, 2006a, 2006b, 2006c), 筛选出了 90 余块未成熟—成熟、不同有机质含量的各类烃源岩样品, 根据热压加水生排烃模拟实验结果(秦建中等, 2002; 2005a, 2005b, 2006), 并与冀北地区中上元古界及羌塘盆地中生界等自然演化剖面相结合, 认为海相烃源岩总有机碳含量($30\% > TOC_{残余} > 0.3\%$) 在成熟阶段中晚期($R_o \approx 0.7\% \sim 1.35\%$) 随成熟度的增加明显减少, 高成熟—过成熟烃源岩原始 TOC 和原始 $S_1 + S_2$ 确实需要进行恢复, 这也是多数地球化学学者所认可的(郝石生, 1984; 金强, 1989; 秦建中等, 2005a, 2005b).

1 海相腐泥型烃源岩

1.1 未成熟海相 I 型优质含钙页岩

海相未成熟 I 型优质含钙页岩(羌塘盆地侏罗系上统 G_{161} 为代表)是唯一的一个海相未成熟样品, 其热压加水生排烃模拟实验过程中烃源岩 $TOC_{残余}$ 、生烃潜力和生排烃量随成熟度(R_o 或 T_{max}) 的变化特征(图 1a、1c)如下:

(1) 未成熟—低成熟阶段, 相当于 $R_o < 0.75\%$, 模拟温度 $< 275\text{ }^\circ\text{C}$, $T_{max} < 445\text{ }^\circ\text{C}$. 这一时期烃源岩

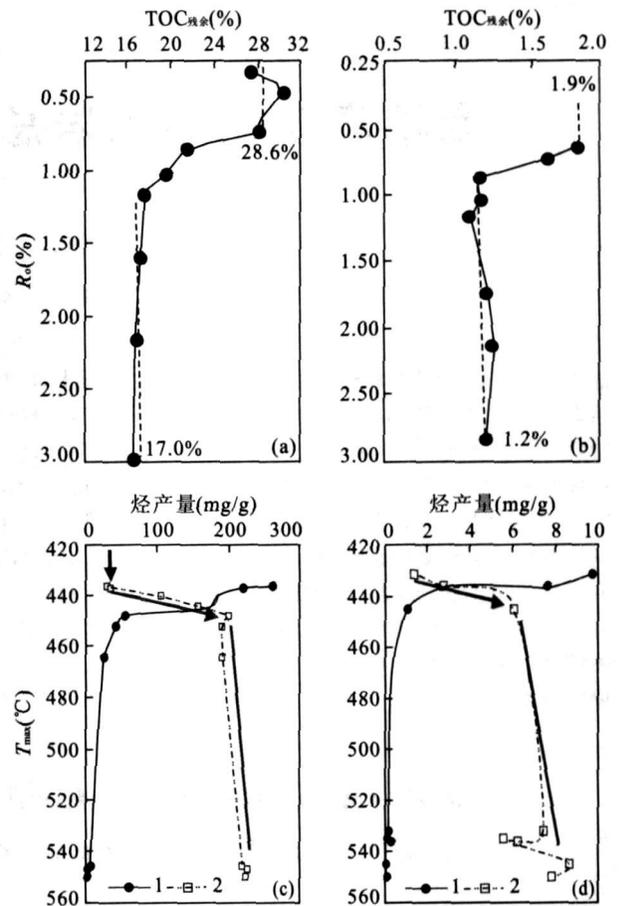


图 1 海相 I 型烃源岩 $TOC_{残余}$ 、生烃潜力和生排烃量随成熟度(R_o 或 T_{max}) 的变化规律

Fig. 1 The variation of the residual TOC , $S_1 + S_2$ and quantity of generated and expelled hydrocarbons for marine type I source rocks with the maturity (R_o or T_{max})

a 和 c 为富烃含钙页岩, 碳酸盐含量 24%, TOC 降低 40.6%, 恢复系数 1.68; b 和 d 为富烃灰岩, 碳酸盐含量 79%, TOC 降低 36.8%, 恢复系数 1.58; 1. 生烃潜量 $S_1 + S_2$, kg/t ; 2. 模拟生排烃量, kg/t

尚未开始大量生排油或处于未熟—低熟稠油阶段, 排出产物主要为非烃+沥青质, 排油量相对 TOC 尚微不足道, 其 TOC 值随成熟度的增加变化不大, 平均为 28.6%, 变化在 27.4%~30.5% 之间. 此阶段热解生烃潜量从 262.5 kg/t 降到 176.7 kg/t , 模拟生排油量从 29.2 kg/t 增加到 156.4 kg/t , 排出油并未使 TOC 减少多少, 也可能还与岩石体积的变化(相对缩小, 密度相对增大等)有关.

(2) 成熟阶段中晚期: 相当于 $R_o \approx 0.75\% \sim 1.35\%$, $T_{max} \approx 445 \sim 470\text{ }^\circ\text{C}$, 模拟温度变化在 275~375 $^\circ\text{C}$ 之间, 这一时期是干酪根大量热降解生成油

气并排出的阶段.其 $TOC_{残余}$ 随成熟度的增加明显减小, TOC 从 $R_o \leq 0.75\%$ 的 $28.6\% \pm$ 减少到 $R_o \geq 1.35\%$ 的 $17\% \pm$, $TOC_{原始}$ 约降低了 40.6% (图 1a); 此外, 本时期热解生烃潜量从 175 kg/t 降到 25 kg/t 土, 而模拟生排油气量从 156 kg/t 增加到 200 kg/t 土(图 1c), 排出产物主要是轻质油和气, 相对容易排出烃源岩, 这时岩石体积变化已经很小, 它们使岩石中的 $TOC_{残余}$ 明显减少. 即 $TOC_{残余}$ 明显减少、热解生烃潜量明显减少、模拟生排轻质油 and 气的量明显增加及岩石体积变化很小是相辅相成的.

(3) 高成熟—过成熟阶段: $R_o > 1.35\%$, $T_{max} > 470^\circ\text{C}$, 模拟温度 $> 375^\circ\text{C}$. 此阶段主要产物为天然气, 它是干酪根热降解及早期生成的液态产物再次大量裂解形成的. 其 $TOC_{残余}$ 随成熟度的增加变化不明显, 平均在 $17\% \pm$, 变化在 $16.5\% \sim 17.2\%$ 之间(图 1a). 相对应的热解生烃潜量均已经很低, 平均只有 3 kg/t 土, 而模拟生排油气量均在 222 kg/t 土(图 1c), 排出的气体产物也相对容易排出烃源岩, 尽管这时岩石体积变化已经很小, 但是有机质的聚合反应可能使 $TOC_{残余}$ 并未出现减少, 有的样品反而出现略有增加的趋势.

海相未成熟优质含钙页岩 $TOC_{残余}$ 及生排烃量随成熟度的增加出现三段式的变化规律: 未成熟—低成熟阶段 ($R_o < 0.75\%$) 和高成熟—过成熟阶段 ($R_o > 1.35\%$) 的不变段和成熟阶段中晚期 ($R_o \approx 0.75\% \sim 1.35\%$) 的降低段. 未成熟—低成熟阶段的不变段是未开始大量排油气之前的 $TOC_{原始}$ 值. 成熟阶段中晚期的降低段则是干酪根大量热降解生成并排出油气时期 $TOC_{残余}$ 的变化(减小)值, $TOC_{原始}$ 在高成熟—过成熟阶段约降低了 40.6% . 高成熟—过成熟阶段的不变段是大量排油气之后的 $TOC_{残余}$ 值, 此阶段 $TOC_{残余}$ 最高恢复系数为 $1.68 \pm$.

1.2 成熟海相优质灰岩

羌塘盆地侏罗系上统海相灰岩(碳酸盐含量 78.9%)原始模拟样品已经成熟, $R_o = 0.95\%$. 其烃源岩 $TOC_{残余}$ 及生排烃量随成熟度的变化特征与未成熟 I 型优质含钙页岩略有不同, 缺失未成熟—低成熟阶段的不变段, 而成熟阶段中晚期的降低段和高成熟—过成熟阶段的不变段基本上相同(图 1b、1d).

(1) 成熟阶段中晚期也是海相成熟灰岩干酪根大量热降解生成油气并排出的阶段. 其 $TOC_{残余}$ 随成熟度的增加明显减小, 灰岩 $TOC_{残余}$ 从 $R_o \leq 0.95\%$ 的 $1.9\% \pm$ 减少到 $R_o \geq 1.3\%$ 的 $1.2\% \pm$, 降低了约 36.8% , 高成熟—过成熟阶段恢复系数应 > 1.58 (图 1b). 其热解生烃潜量也从 10 kg/t 降到 1 kg/t 土, 而模拟生排油气量则从 1.4 kg/t 增加到 6 kg/t 土(图 1d), 它们使烃源岩 $TOC_{残余}$ 明显减少.

(2) 高成熟—过成熟阶段主要产物为凝析油气和干气, 它是干酪根热降解及早期生成的液态产物再次大量裂解形成的. 其 $TOC_{残余}$ 随成熟度的增加变化不明显, 反而出现增加的趋势, $TOC_{残余}$ 平均在 1.2% 左右, 变化在 $1.1\% \sim 1.27\%$ 之间(图 1b). 相对应的热解生烃潜量均已经很低, 平均只有 0.17 kg/t 土, 而模拟生排油气量均在 7 kg/t 土(图 1d), 排出产物主要是气.

由于成熟灰岩模拟样品原始 R_o 已经达到 0.95% , 按未成熟 I 型优质含钙页岩的成熟阶段中晚期 ($0.75\% < R_o < 1.35\%$) 降低段推算, $TOC_{原始}$ 应从 $R_o < 0.75\%$ 开始算起. 因此, 高成熟—过成熟优质灰岩 $TOC_{原始}$ 恢复系数应大于 1.58 . 若参照未成熟 I 型优质含钙页岩的模式推算, 高成熟—过成熟 I 型优质灰岩 $TOC_{残余}$ 若恢复到未成熟—低成熟阶段的 $TOC_{原始}$, 恢复系数也应为 $1.68 \pm$.

2 海相偏腐泥型 (II_1) 烃源岩

2.1 高演化海相优质灰岩

2.1 高演化海相优质灰岩

羌塘盆地侏罗系上统海相 II_1 型优质泥灰岩和灰岩原始模拟样品 $R_o = 0.95\%$, 其 $TOC_{残余}$ 随成熟度的变化特征(图 2a、2b)与 I 型优质灰岩相似(图 1b), 在成熟阶段中晚期优质泥灰岩 $TOC_{残余}$ 从 $R_o \leq 0.95\%$ 的 2% 左右减少到 $R_o \geq 1.3\%$ 的 1.36% 左右, 降低了 32.7% , 高成熟—过成熟阶段的恢复系数应为 1.48 . 优质灰岩 $TOC_{残余}$ 从 $R_o \leq 0.95\%$ 的 1.85% 左右减少到 $R_o \geq 1.3\%$ 的 1.25% 左右, 降低了 32.4% , 高成熟—过成熟阶段的恢复系数也为 1.48 , 比相同成熟度的 I 型优质灰岩均低一些, 主要是干酪根类型和生排烃量差异所致.

措勤盆地白垩系海相 II_1 型低有机质灰岩原始模拟样品(秦建中等, 2005a, 2005b) $TOC_{残余} = 0.36\%$, $R_o = 0.90\%$. 其 $TOC_{残余}$ 随成熟度的变化特征与相同干酪根类型的优质泥灰岩和优质灰岩相似(图 2a、b、c), 在成熟阶段中晚期灰岩 $TOC_{残余}$ 从 $R_o \leq 0.9\%$ 的 0.36% 左右减少到 $R_o \geq 1.3\%$ 的 0.25% 左右, 降低了 30.6% , 高成熟—过成熟阶段的恢复

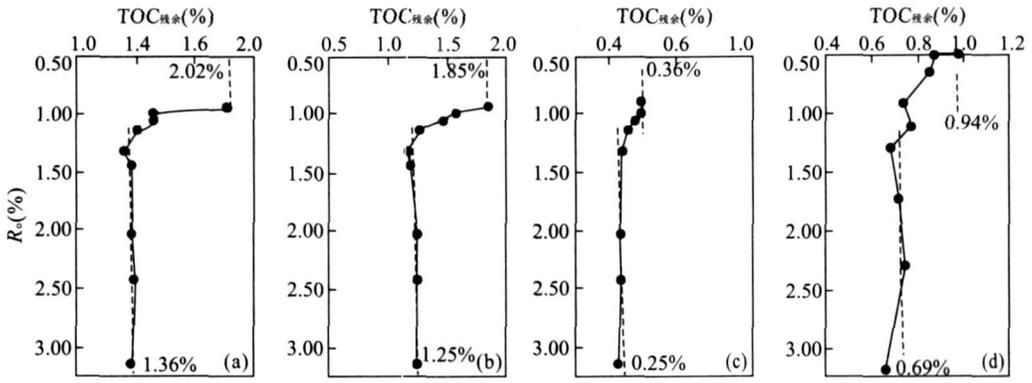


图 2 海相 II₁ 型烃源岩 TOC_{残余} 随成熟度 (R_o) 的变化曲线

Fig. 2 The variation of the residual TOC of marine II₁ source rocks with the maturity (R_o)

a. 泥灰岩, 碳酸盐含量=60%, 原始样品 TOC 降低 32.7%, 恢复系数最高为 1.48; b. 灰岩, 碳酸盐含量=76%, 原始样品 TOC 降低 32.4%, 恢复系数最高为 1.48; c. 灰岩(低有机质丰度), 碳酸盐含量=85%, 原始样品 TOC 降低 30.6%, 恢复系数最高为 1.44; d. 泥岩, 碳酸盐含量<1%, 原始样品 TOC 降低 27%, 恢复系数最高为 1.36

系数应为 1.44, 相同成熟度的 II₁ 型优质泥灰岩及灰岩低一些, 主要是生排烃量相对较低所致。

2.2 高演化海相 II₁ 型泥岩

海相 II₁ 型泥岩(碳酸盐含量<1%)原始模拟样品采自云南禄劝泥盆系, $R_o=0.45\%$, 尚处于低成熟阶段。热压模拟实验表明: 在 $R_o<0.75\%$ 低成熟阶段, 其 TOC_{残余} 随成熟度的增加变化不大, 平均在 0.86%, 变化在 0.83%~0.94% 之间。在成熟阶段中晚期, 其 TOC_{残余} 随成熟度的增加明显减小, TOC_{残余} 从 0.94% 减少到 $R_o\geq 1.35\%$ 的 0.69%±, 降低了约 27%, 此阶段恢复系数应为 1.36(图 2d)。高成熟—过成熟阶段泥岩 TOC_{残余} 随成熟度的增加变化不明显, 某些点反而出现增加的趋势。恢复系数比相同干酪根类型的优质灰岩要低, 主要是(1)泥岩 TOC 相对较低(<1%), 当 TOC<2% 尤其是<1% 时, 热解生烃潜量和模拟生排油气量及 TOC_{原始} 降低幅度逐渐变小; (2)这是由于相同演化条件下泥岩吸附烃能力高于灰岩, 生排能力相对较低的缘故。

2.3 海相 II₁ 型优质烃源岩的自然演化剖面

根据海相烃源岩自然剖面来研究有机质丰度随成熟度的变化, 关键是在相同层段找到沉积环境、干酪根类型以及岩性相似、成熟度不同的海相烃源岩。下面我们选取了华北中上元古界下马岭组、洪水庄组页岩、铁岭组碳酸盐岩及羌塘盆地安多 114 道班侏罗系灰岩的自然剖面(赵政璋等, 2000; 秦建中等, 2005a, 2005b), 它们的有机质丰度随成熟度变化与上述海相未成熟—低成熟烃源岩加水热压模拟实验

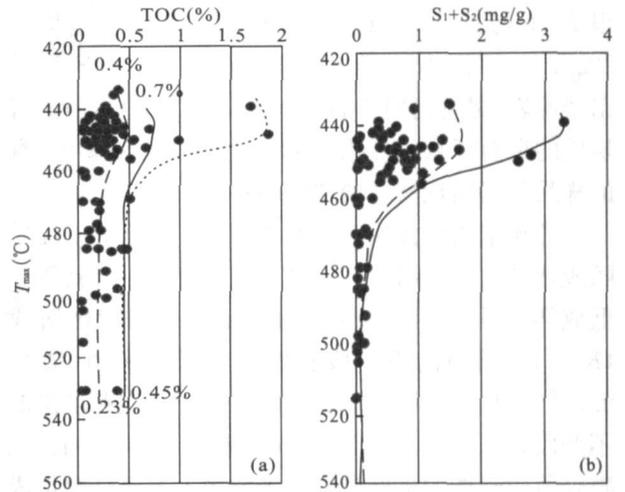


图 3 华北北部中—上元古界铁岭组海相灰岩有机质丰度随成熟度的演化趋势

Fig. 3 The variation of the organic matter abundance of limestone in Tieling Formation, Middle-Upper Proterozoic, north of North China

a. TOC_{残余}, 在成熟阶段中晚期降低约 36%, 恢复系数约为 1.55;
b. 生烃潜量

所得到的实验结果基本上一致。

(1)华北北部中—上元古界铁岭组碳酸盐岩属局限海台地相, 沉积环境为潮坪和潮下带, 以碳酸盐岩沉积为主, 古气候温暖潮湿, 浅海生物十分繁盛, 原始沉积有机质比较丰富, 以白云岩、灰岩为主, 厚度一般在 100~300 m, 夹有少量薄层状页岩。纵向

上,其 $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 和生烃潜量随成熟度的增加在成熟阶段中晚期 ($T_{\text{max}} \approx 440 \sim 460 \text{ } ^\circ\text{C}$) 也出现明显降低,前者一般降低约 36%,最高恢复系数为 1.55 (图 3a);后者降低相对更明显 (图 3b). 这比相同干酪根类型碳酸盐岩热压模拟实验 $\text{TOC}_{\text{原始}}$ 最高恢复系数为 1.48 略高一些,原因可能是①:中—上元古界铁岭组碳酸盐岩干酪根类型相对好一些,接近腐泥型 ($\text{II}_1 - \text{I}$ 型);②模拟样品原始成熟度相对高一些. 实际上,其 $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 平面上变化趋势也与生烃潜量成正比,与有机质成熟度呈反比 (秦建中等, 2005a, 2005b).

(2) 华北北部中—上元古界下马岭组页岩和洪水庄组页岩为一套闭塞的陆表海沉积,以潮下泻湖或潮间泻湖、还原或弱还原环境内形成的黑色页岩为主,富含有机质,残留有机质以藻类为主,属 $\text{I} \sim \text{II}_1$ 型干酪根,同时,也存在含沥青的藻叠层白云岩. 下马岭组页岩和洪水庄组页岩在冀北地区沉积环境相似,洪水庄组页岩厚度一般 40~100 m 之间,下马岭组页岩厚度一般在 50~170 m 之间. 纵向上,其 $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 和生烃潜量随成熟度的增加在成熟阶段中晚期 ($T_{\text{max}} \approx 440 \sim 460 \text{ } ^\circ\text{C}$) 均出现明显降低,前者平均值一般降低约 56.6%,恢复系数最高可达 2.3. 后者降低更明显. 这比相同干酪根类型页岩热压模拟实验 $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 最高恢复系数 (1.48~1.68) 还高一些,主要原因可能是华北北部中—上元古界海相页岩演化剖面取样不均或沉积相变化造成的. 实际上,下马岭组页岩和洪水庄组页岩在冀北平面上 $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 变化较大,变化趋势与生烃潜量成正比,与有机质成熟度成反比 (秦建中等, 2005a, 2005b).

(3) 青藏高原羌塘盆地安多 114 道班侏罗系上统索瓦组为一套开阔台地凹陷相的优质灰岩、泥灰岩沉积,岩性相似,厚度约 700 m,地层沿河流出露较好. 有机质中宏体藻类发育,并有较多的浮游藻类和孔虫等,陆源高等植物亦较多,有机质类型以 II_1 型为主. 其 $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 随深度或成熟度的增加在成熟阶段中晚期明显降低,一般降低 68%,恢复系数最高可达 3.15,远高于相同干酪根类型烃源岩热压模拟实验的恢复系数,可能是安多 114 道班侏罗系上统索瓦组剖面下部灰岩中泥质含量及原始 TOC 相对低一些的缘故 (赵政璋等, 2000; 秦建中, 2005a, 2005b).

因此,海相 4 个不同类型烃源岩有机质丰度的自然演化剖面均表明,优质烃源岩 $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 随成熟

度增加在成熟阶段中晚期 (相当于 $R_o \approx 0.85\% \sim 1.3\%$ 、 $T_{\text{max}} \approx 430 \sim 460 \text{ } ^\circ\text{C}$) 出现明显降低,而且降低百分比均明显大于相同沉积环境、相同干酪根类型以及相同岩性的热压模拟实验结果.

3 海相偏腐植型 (II_2) 烃源岩

3.1 高演化富有机质页岩

海相 II_2 型富有机质含钙页岩及钙质页岩原始模拟样品来自羌塘盆地比洛错侏罗系,富有机质页岩原始模拟样品来自冀北中上元古界下马岭组,它们均处于低成熟阶段. 热压模拟实验结果表明:在低成熟阶段,其 $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 随成熟度的增加变化不大,如富有机质页岩 TOC 平均在 7.58%,变化在 7.55%~7.63% 之间 (图 4c). 在成熟阶段中晚期, $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 随成熟度的增加明显减小,富有机质含钙页岩 TOC 从 5.2% 减少到 3.95% \pm ,降低了 24%;富有机质钙质页岩 $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 从 13.3% 减少到 10.2% \pm ,降低了 23.4%;富有机质页岩 $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 从 7.55% 减少到 5.70% \pm ,降低了 24%. 而在高成熟—过成熟阶段, $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 随成熟度的增加变化也不明显,富有机质含钙页岩 $\text{TOC}_{\text{原始}}$ 恢复系数为 1.32;富有机质钙质页岩 $\text{TOC}_{\text{原始}}$ 恢复系数为 1.30;富有机质页岩 $\text{TOC}_{\text{原始}}$ 恢复系数为 1.32 (图 4a—4c). 这就是说,高演化富有机质页岩 $\text{TOC}_{\text{原始}}$ 恢复系数均在 1.32 左右.

此外,从它们的热压模拟实验结果也可以看出,随着海相 II_2 型富有机质页岩中碳酸盐含量的增加,高成熟—过成熟阶段 $\text{TOC}_{\text{原始}}$ 恢复系数并无明显变化. 看来,相同类型的优质烃源岩碳酸盐含量对 $\text{TOC}_{\text{原始}}$ 恢复系数影响并不明显.

3.2 高演化海相烃源岩 $\text{TOC}_{\text{原始}}$ 恢复系数随有机质含量降低而变小

选自羌塘比洛错侏罗系、云南茂山泥盆系、冀北元古界、羌塘安多 114 道班侏罗系、措勤白垩系和云南桑龙潭泥盆系的海相 II_2 型富有机质钙质泥岩 (图 4d)、含钙泥岩 (图 4e)、泥岩 (图 4f)、富有机质灰岩 (图 4g)、泥灰岩 (图 4h) 和灰岩 (图 4i) 原始模拟样品均处于低成熟—成熟阶段 (图 4d—4i). 其海相 II_2 型烃源岩 $\text{TOC}_{\text{残余}}$ 随成熟度的变化特征与 $\text{I} - \text{II}_1$ 型烃源岩相似,在成熟阶段中晚期均随成熟度增加而减小,但是减小幅度明显变小,主要表现为:(1) 无论是泥岩还是灰岩随 TOC 变低,高成熟—过成熟

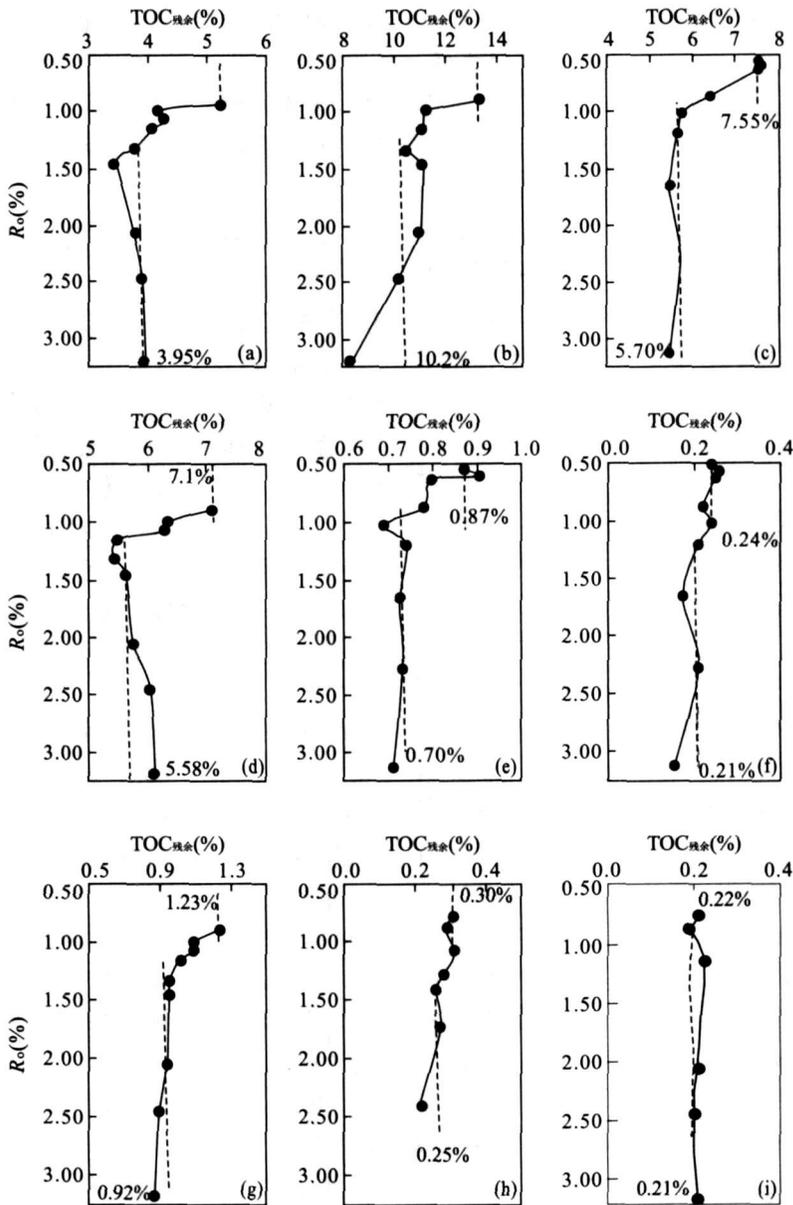


图 4 海相 II 型不同类型烃源岩 TOC_{残余} 随成熟度 (R_o) 的变化趋势

Fig. 4 The content variations of the residual TOC of marine type II in different lithologic source rocks with maturity (R_o)
 a. 含钙页岩, TOC 降低 24%, 恢复系数 1.32; b. 钙质页岩, TOC 降低 23.4%, 恢复系数 1.30; c. 页岩, TOC 降低 24%, 恢复系数 1.32; d. 钙质泥岩, TOC 降低 21.4%, 恢复系数 1.27; e. 泥岩, TOC 降低 20%, 恢复系数 1.24; f. 含钙泥岩, TOC 降低 12.5%, 恢复系数 1.14; g. 灰岩, TOC 降低 25.2%, 恢复系数 1.34; h. 泥灰岩, TOC 降低 16.7%, 恢复系数 1.2; i. 灰岩, TOC 降低 4.55%, 恢复系数 1.05

阶段 TOC_{残余} 减小幅度和恢复系数明显变小。在 TOC < 0.3% 时, TOC_{原始} 恢复系数接近 1。例如, 在成熟阶段中晚期富有机质钙质泥岩 TOC = 7.1%, 降低了 21.4%, 恢复系数 1.27; 泥岩 TOC = 0.87%, 降低了 20%, 恢复系数 1.24; 而含钙泥岩 TOC = 0.24%, 只降低了 12.5%, 恢复系数 1.14。富有机质灰岩 TOC = 1.23%, 降低 25.2%, 恢复系数 1.34; 泥灰岩 TOC = 0.30%, 降低 16.7%, 恢复系数 1.2; 而灰岩 TOC = 0.22%, 只降低 4.55%, 恢复系数 1.05, 接近于 1。

(2) 当海相灰岩、泥灰岩或页岩 TOC > 1% (尤其是 > 2%) 时, 优质烃源岩随有机质丰度 (TOC) 变

低, TOC 减小幅度或恢复系数变化不明显, 主要受海相优质烃源岩干酪根类型的控制. 从 I 型 → II₁ 型 → II₂ 型 TOC_{原始} 恢复系数约由 1.68 → 1.48 → 1.32 (图 1—图 4).

3.3 高演化海相固体沥青和高有机质页岩 TOC 不需要恢复

来自羌塘侏罗系海相固体沥青和云南茂山泥盆系海相高有机质页岩原始模拟样品成熟度较低 ($R_o = 0.33\% \pm$, $R_o = 0.46\% \pm$), TOC 含量很高 (70.24% 和 35.6%). 其 TOC_{残余} 随成熟度的变化不同于海相优质烃源岩 (图 1—图 5).

(1) 固体沥青 TOC_{残余} 随成熟度的增加首先出现略有降低的趋势 (约相当于在 $R_o \approx 0.3\% \sim 1.3\%$), 最高降低量不超过 12%, 然后出现略有增加的趋势 (约相当于在 $R_o > 1.3\%$), 最高增加量可达 7%. 总的来看, 固体沥青在热演化过程的各成熟阶段 TOC_{残余} 变化不大, 在高成熟—过成熟阶段的 TOC_{残余} 与低成熟—成熟阶段相比降低并不明显 (图 5a). 主要原因是: ① 固体沥青的生排油量相对较低, 只相当于 II₂ 型干酪根; ② 固体沥青在高成熟—过成熟阶段的聚合作用; ③ 样品有机质体积百分含量降低已大于 50%.

(2) 高有机质页岩 TOC_{残余} 随成熟度的增加首先出现降低的趋势 (约相当于在 $R_o \approx 0.4\% \sim$

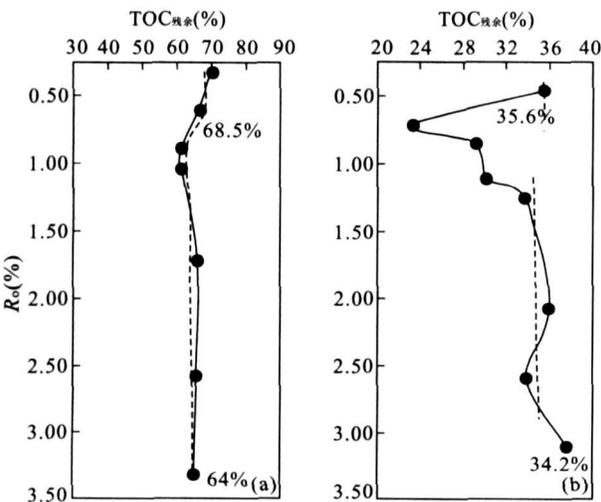


图 5 固体沥青和高有机质页岩 TOC_{残余} 随成熟度 (R_o) 的变化

Fig. 5 The variation of TOC content for solid bitumen and organic shale with the maturity (R_o)

a. 固体沥青 TOC 仅降低 6%, 恢复系数 < 1.07; b. 高有机质页岩 TOC 仅降低 4%, 恢复系数 < 1.05

1.3%), 最高降低量一般不超过 18%, 然后出现增加的趋势 (约相当于在 $R_o > 1.3\%$). 其主要因素为: ① 样品有机质体积含量变化已大于 50%, 在低成熟—成熟阶段排出的原油并没使有机质体积降低多少. ② 高温时的碳聚合作用和芳构化作用. 因此, 高成熟—过成熟 TOC > 30% 的页岩 TOC_{原始} 也不需要恢复 (图 5b).

4 结论

(1) 海相优质烃源岩在未成熟—低成熟阶段 ($R_o < 0.8\%$) TOC 变化不明显, 在成熟阶段中晚期 TOC_{残余} 随成熟度的增加逐渐降低, 一般最高 I 型降低 40%, II₁ 型 32%, II₂ 型 24%. 在高成熟—过成熟阶段 TOC_{残余} 随成熟度变化也不明显, 但是相对未成熟—低成熟阶段明显降低, 需要进行原始 TOC 的恢复, I 型 TOC_{原始} 恢复系数一般约为 1.68, II₁ 型 1.48, II₂ 型 1.32.

(2) 低有机质烃源岩 (一般指 $0.3\% < TOC < 1\%$) 随 TOC 值变低, 在高成熟—过成熟阶段, 其 TOC_{残余} 降低幅度和恢复系数逐渐变小, II₂ 型灰岩 ($0.3\% < TOC < 0.5\%$) 一般约降低 17%, TOC_{原始} 恢复系数约 1.2. 当烃源岩 TOC < 0.3% 时, TOC_{残余} 随成熟度的增加变化不明显, 高成熟—过成熟阶段 TOC_{原始} 恢复系数接近 1, 可以不进行恢复.

(3) 固体沥青和高有机质页岩 ($TOC > 30\%$, 低演化时为油页岩) TOC_{残余} 在热演化过程的各成熟阶段变化不大, 高成熟—过成熟阶段也不需要恢复.

(4) 海相烃源岩 ($0.3\% < TOC < 30\%$) 自然剖面有机质丰度的演化规律与加水热压模拟实验结果基本一致, 其生烃潜量的减少和模拟生排烃量的增加与 TOC_{残余} 的减少相吻合.

References

Guo, T. L., Tian, H. Q., 2002. Several geological issues about Mesozoic-Palaeozoic oil and gas prospecting in southern China and the way of how to deal with. *Oil & Gas Geology*, 23(3): 244—247 (in Chinese with English abstract).

Hao, S. S., 1984. Richness of organic matter and its evolutionary characteristics in carbonate source rocks. *Petroleum Geology and Experiment*, 6(1): 67—71 (in Chinese)

- with English abstract).
- Jin, Q., 1989. The restoration of initial organic carbon in source rocks. *Journal of the University of Petroleum*, 13(5): 1—8 (in Chinese with English abstract).
- Jones, R. W., 1984. Comparison of carbonate and shale source rocks. In: Palacas, J. G., ed., *Petroleum geochemistry and source rock potential of carbonate rocks. AAPG Studies in Geology*, 18, 163—180.
- Liang, D. G., 2000. Understanding on marine stratum oil generation in China based on Tarim basin. *Marine Oil and Gas Geology*, 5(1—2): 83 (in Chinese).
- Qin, J. Z., 2006a. Depositional environment of the marine hydrocarbon source rocks in the Qiangtang basin, Qinghai-Tibet Plateau. *Petroleum Geology & Experiment*, 28(1): 8—14 (in Chinese with English abstract).
- Qin, J. Z., 2006b. Distributions of the main Mesozoic hydrocarbon source rocks in the Qiangtang Basin of the Qinghai-Tibet Plateau. *Petroleum Geology & Experiment*, 28(2): 134—141 (in Chinese with English abstract).
- Qin, J. Z., 2006c. Study on organic matter's maturation and hydrocarbon generating history in the Qiangtang Basin. *Petroleum Geology & Experiment*, 28(4): 350—358 (in Chinese with English abstract).
- Qin, J. Z., Jin, J. C., Liu, B. Q., 2005a. Thermal evolution pattern of organic matter abundance in various marine source rocks. *Oil & Gas Geology*, 26(2): 177—184 (in Chinese with English abstract).
- Qin, J. Z., et al., 2005b. *Source rocks in China*. Science Press, Beijing (in Chinese).
- Qin, J. Z., Liu, B. Q., Zheng, L. J., et al., 2006. Study on capability of hydrocarbon generation and expulsion from marine carbonate source rocks. *Oil & Gas Geology*, 27(3): 348—355 (in Chinese with English abstract).
- Qin, J. Z., Liu, J. W., Liu, B. Q., et al., 2002. Hydrocarbon yield and geochemical parameters affected by heating time and added water amount in the simulation test. *Petroleum Geology & Experiment*, 24(2): 152—157 (in Chinese with English abstract).
- Tissot, B. P., Welte, D. H., 1978. *Petroleum formation and occurrence*. Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, New York, 1—362.
- Xu, S. H., Mei, L. F., Deng, S. X., 1996. Simulation of hydrocarbon generation and expulsion history in Lunpola basin of Xizang (Tibet). *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 21(2): 179—183 (in Chinese with English abstract).
- Zhao, Z. Z., Qin, J. Z., Xu, H. X., et al., 2000. Oil and gas generation for marine source rocks in Qinghai-Tibet Plateau. Science Press, Beijing, 1—634 (in Chinese).

附中文参考文献

- 郭彤楼, 田海芹, 2002. 南方中—古生界油气勘探的若干地质问题及对策. *石油与天然气地质*, 23(3): 244—247.
- 郝石生, 1984. 对碳酸盐生油岩的有机质丰度及其演化特征的讨论. *石油实验地质*, 6(1): 67—71.
- 金强, 1989. 生油岩原始有机碳恢复方法的探讨. *石油大学学报*, 13(5): 1—8.
- 梁狄刚, 2000. 从塔里木盆地看中国海相地层生油问题. *海相油气地质*, 5(1—2): 83.
- 秦建中, 2006a. 青藏高原羌塘盆地海相烃源层的沉积形成环境. *石油实验地质*, 28(1): 8—14.
- 秦建中, 2006b. 青藏高原羌塘盆地中生界主要烃源层分布特征. *石油实验地质*, 28(2): 134—141.
- 秦建中, 2006c. 羌塘盆地有机质热演化与成烃史研究. *石油实验地质*, 28(4): 350—358.
- 秦建中, 金聚畅, 刘宝泉, 2005a. 海相不同类型烃源岩有机质丰度热演化规律. *石油与天然气地质*, 26(2): 177—184.
- 秦建中, 等, 2005b. *中国烃源岩*. 北京: 科学出版社.
- 秦建中, 刘宝泉, 郑伦举, 等, 2006. 海相碳酸盐岩烃源岩生排烃能力研究. *石油与天然气地质*, 27(3): 348—355.
- 秦建中, 刘井旺, 刘宝泉, 等, 2002. 加温时间、加水量对模拟实验油气产率及地化参数的影响. *石油实验地质*, 24(2): 152—157.
- 徐思煌, 梅廉夫, 邓四新, 1996. 西藏伦坡拉盆地烃源岩排烃史模拟. *地球科学——中国地质大学学报*, 21(2): 179—183.
- 赵政璋, 秦建中, 许怀先, 等, 2000. 青藏高原海相烃源岩的油气生成. 北京: 科学出版社, 1—634.