

doi:10.3799/dqkx.2011.054

# 烃源岩非均质性对有机质生烃动力学参数影响及评价

王 民<sup>1,2,3</sup>, 卢双舫<sup>1,2</sup>, 薛海涛<sup>1,2</sup>, 吴朝东<sup>3</sup>, 王雪飞<sup>1</sup>

1. 东北石油大学地球科学学院, 黑龙江大庆 163318

2. 东北石油大学油气藏形成机理与资源评价省重点实验室, 黑龙江大庆 163318

3. 北京大学地球与空间科学学院, 北京 100871

**摘要:** 烃源岩的非均质性、动力学模型中频率因子的不确定性、热模拟实验条件(开放/封闭程度、加水与否、升温速率)以及热模拟实验的再现性都将影响有机质成烃动力学模型参数,进而影响油气资源潜力评价结果的可信度。对此,从多个盆地不同类型有机质样品(18块)的开放体系(Rock-Eval)热模拟实验入手,选取 SFF 模型和 MFF 模型来描述不同类型有机质样品成烃动力学特征,对比地质外推结果的差异性。其中采用 SFF 模型低估了具有较低和较高活化能有机质的生烃潜力(反应分数),而采用 MFF 模型可以避免这一问题,同时频率因子随活化能的升高而升高,能有效解决频率因子不确定性的问题。同时采用算术平均法和依据  $S_2$  加权平均法对不同类型样品的动力学参数求取平均动力学参数,并以  $3.3\text{ }^\circ\text{C}/\text{Ma}$  的升温速率进行外推,对比分析了不同类型有机质外推结果的差异性。最后,通过对两种模型依据  $S_2$  加权平均法获得的动力学参数在松辽盆地黑鱼泡凹陷实际应用表明,应用 MFF 模型计算得出的生烃门限深度为  $1700\text{ m}$ ,与前人研究结论一致,表明采用 MFF 模型和  $S_2$  加权平均法获得的动力学参数进行资源评价具有较高可信度。

**关键词:** 动力学模型;模拟实验;频率因子;有机质类型;非均质性;石油地质。

**中图分类号:** P618.130.2

**文章编号:** 1000-2383(2011)03-0530-11

**收稿日期:** 2010-11-12

## The Influence and Appraisal of Source Rock Heterogeneity on Kinetic Parameters of Hydrocarbon Generation from Organic Matter

WANG Min<sup>1,2,3</sup>, LU Shuang-fang<sup>1,2</sup>, XUE Hai-tao<sup>1,2</sup>, WU Chao-dong<sup>3</sup>, WANG Xue-fei<sup>1</sup>

1. Earth Sciences Institute, Northeast Petroleum University, Daqing 163318, China

2. Key Laboratory of Mechanism of Hydrocarbon Reservoirs and Resource Assessment, Northeast Petroleum University, Daqing 163318, China

3. Earth and Space Sciences Institute, Peking University, Beijing 100871, China

**Abstract:** The heterogeneity of source rock, the uncertainty of frequency factor and the simulation experiment conditions (such as being open or closed, adding water or not, heating rates and the reproducibility) all affect the kinetic parameters of hydrocarbon generation from organic matter, which in turn, affect the reliability of appraised hydrocarbon potential. To this point, eighteen organic matter (OM) samples were pyrolyzed by using the Rock-Eval equipment, and parallel first-order reaction models including the model with a single frequency factor and a discrete distribution of activation energies (SFF model) and the model with multiple frequency factors and a discrete distribution of activation energies (MFF model) are adopted to analyze kinetic characteristics of hydrocarbon generation of all samples and to contrast the results difference of geological extrapolation. The comparison and analysis shows that the MFF model can avoid miscalculating the hydrocarbon generation potential (reaction ratio) in the low and high evolution stages, which appears in SFF model. For comparing the discrepancy of hydrocarbon generation from different type of kerogens, the arithmetic mean and weighted mean methods with pyrolysis parameter  $S_2$  are employed to get averaged kinetic parameters, and then averaged kinetic parameters are extrapolated with a heating rate of  $3.3\text{ }^\circ\text{C}/\text{Ma}$ . At last, the application of two kind kinetic models with the kinetic parameters of the weighted mean methods in Heiyupao Sag of Songliao basin shows that if taking the hydrocarbon transformation ratio of  $10\%$  as the onset of the hydrocarbon genera-

**基金项目:** 国家自然科学基金项目(No. 40972101); 国家重点基础研究发展计划项目(No. 2009CB219306); “国家油气重大专项”项目(Nos. 2008ZX05007-001, 2008ZX05004-003); “构造与油气资源”教育部重点实验室开放课题(No. TPR-2010-23).

**作者简介:** 王民(1981-), 男, 博士, 主要从事油气地球化学和成藏研究. E-mail: quickking@163.com

tion threshold, the threshold depth of hydrocarbon generation is about 1 700 m, which is consistent with the appraisalment result by using other geochemical parameters. Therefore, it is recommended that the kinetic method with the MFF model and the weighted mean kinetic parameters is used to appraise the hydrocarbon resource potential.

**Key words:** kinetic model; simulation experiment; frequency factor; type of organic matter; heterogeneity; petroleum geology.

沉积盆地中有机质生烃过程可视为热力作用下的化学反应过程(大分子有机质热裂解为小分子的过程),可以用化学动力学方程来定量、动态描述(Tissot *et al.*, 1987; Quigley and Mackenzie, 1988; 卢双舫, 1996). 自从 20 世纪 70 年代 Tissot 等人将有机质成烃动力学应用到油气资源评价中以来,经历了起步、迅猛发展、再认识阶段. 其中 20 世纪 90 年代之前其特点主要是模型的建立和动力学参数的求取(黄第藩等, 1984; Tissot and Welte, 1984; 金强等, 1986; Ungerer and Pelet, 1987; Burnham *et al.*, 1988; Quigley and Mackenzie, 1988; Ungerer, 1990); 20 世纪 90 年代主要是有机质成油、成气及油成气机理、特征描述以及在资源评价中的广泛应用(Schaefer *et al.*, 1990; Behar *et al.*, 1992; Braun and Burnham, 1992; Burnham *et al.*, 1995; 卢双舫等, 1995; Pepper and Corvit, 1995; 卢双舫, 1996); 近十年以来则主要是单个化合物成烃动力学(分子级别)研究以及动力学参数的不确定性对地质应用结果影响的研究(Schenk and Dieckmann, 2004; Dieckmann, 2005; Dieckmann and Keym, 2006; Peters *et al.*, 2006; Behar *et al.*, 2008).

有机质成烃动力学法评价油气资源量的具体做法是首先在可控的温度和时间条件下以不同的升温速率对有机质进行热模拟生烃实验,获得成生烃量或转化率与温度关系数据,进一步用来标定有机质成烃的动力学参数,然后结合研究区埋藏史、热史资料进行生烃史、生烃量评价. 在这一过程中许多学者往往采用典型样品的生烃动力学参数或者采用商业软件(Petromod, Temis, Basinmod 等)提供的动力学参数进行资源评价,而忽略了所选样品/参数能否代表研究区烃源岩的整齐性质,甚至忽略了获取动力学参数所进行的热模拟实验条件(如实验的开放/封闭程度、是否加水、分析样品是否抽提、粉碎等)(Jarvie, 1991; Schenk and Horsfield, 1993; Lu *et al.*, 2007). 显然这一做法忽略了烃源岩的非均质性,忽略了干酪根结构的非均质性,因此采用典型样品的动力学参数进行全区资源评价不合适. 国外学者近几年逐渐意识到这一点,如 Peters *et al.* (2006)通过 29 块海相 II 型有机质生烃分析,选用 SFF 模型,以 1 K/Ma 的地质升温速

率进行外推,得到最易生烃和最难生烃样品成烃转化率达到 50% 时对应的地质温度差值 30 °C,对英国侏罗系 42 块 I、II 型有机质露头样品进行分析,用 1 K/Ma 的地质升温速率进行外推,得到最易生烃和最难生烃样品成烃转化率达到 50% 时对应的地质温度差值达 23 °C. Keym *et al.* (2006)通过对 16 块 II、III 型有机质样品的生烃分析,采用 SFF 模型,以 3.3 K/Ma 的地质升温速率进行外推,得到样品最大生烃速率时对应的地质温度( $T_{max}$ )差值可达 26 °C (144 ~ 170 °C). Schenk and Dieckmann (2004)通过对文献报道数据分析认为热模拟实验升温速率也影响模型的动力学参数,其中热模拟实验的升温速率越快得到活化能越低,指前因子越大. 除了上述烃源岩非均质性因素外,热模拟实验的精度/再现性、实验体系的开放/封闭程度以及生烃动力学参数中的指前因子不确定性都会影响动力学模型参数及其应用结果(王民, 2009 年第五届油气成藏机理与油气资源评价国际学术研讨会)(Dieckmann, 2005).

上述因素中烃源岩的非均质性对动力学参数的影响属于地质方面因素,热模拟实验可信度及实验开放/封闭程度对动力学参数的影响属于实验方面因素而指前因子不确定性对动力学参数的影响则属于动力学模型方面因素. 本文采用 SFF 模型(具有相同频率因子和一个离散分布的平行一级反应模型)和 MFF 模型(具有不同频率因子和一个离散分布的平行一级反应模型)对不同有机质类型烃源岩样品进行生烃动力学特征对比研究,探索解决烃源岩非均质性及指前因子的不确定性对动力学模型参数及其地质应用结果的影响,为后期应用生烃动力学方法评价资源量提供参考.

## 1 样品、实验、结果分析

### 1.1 样品选取

本次研究共选取了 18 块烃源岩样品,取自我国松辽盆地、渤海湾盆地、吐哈盆地及海拉尔盆地. 表 1 给出了各样品名称、层位、盆地、岩性及地化参数等信息.

表 1 样品地化参数

Table 1 Geochemical parameters in the studied samples

样品	层位	岩性	$R_o$ (%)	TOC(%)	$T_{max}$ (°C)	HI(mg HC/g TOC)	OI(mg CO <sub>2</sub> /g TOC)	S <sub>2</sub> (mg/g)	类型	盆地
松辽煤	营城组	煤样	0.5	73.39	427	217	3.00	159.28	Ⅲ	
鱼 17	q <sub>m1</sub>	灰黑色泥岩	0.83	3.92	443	689	56.00	27.02	I	
金 87	q <sub>m1</sub>	泥岩	0.88	2.34	444	604	43.00	8.99	I	
鱼 20	q <sub>m1</sub>	泥岩	0.85	1.64	445	548	97.00	20.59	I	松
金 88	q <sub>m1</sub>	灰黑色泥岩	0.9	2.98	451	691	23.00	14.14	I	辽
任 10	n <sub>1</sub>	灰黑色泥岩	0.46	4.17	427	1 048	25.72	37.42	I	盆
杜 410	q <sub>m23</sub>	灰黑色泥岩	0.5	5.59	433	1 052	8.00	26.12	I	地
盛 1	q <sub>m1</sub>	灰黑色泥岩	0.41	3.77	440	1 139	9.00	11.15	I	
杜 402	q <sub>m1</sub>	灰黑色泥岩	0.7	1.36	440	920	55.51	12.53	I	
和 2	k <sub>1</sub> n <sub>1</sub>	泥岩	0.68	4.25	439	177	—	4.61	Ⅲ	海拉尔
和 3	k <sub>1</sub> d <sub>1</sub>	煤	0.48	4.66	435	115	—	5.37	Ⅲ	盆地
阳 27	E <sub>s4</sub> <sup>±</sup>	泥岩	1.23	1.36	427	477	143.00	6.49	Ⅱ	渤
官 107	E <sub>s4</sub> <sup>±</sup>	灰色页岩	—	2.24	432	453	60.00	10.15	Ⅱ	海
钟参 1-2	n. d.	暗色泥岩	—	1.87	434	238	196.00	4.45	Ⅲ	湾
镇参 1	E <sub>s4</sub> <sup>±</sup>	深灰色泥岩	0.26	4.64	387	541	131.00	25.09	Ⅱ	盆
大 43	E <sub>s3</sub> <sup>±</sup>	灰质油页岩	0.9	8.34	429	585	22.00	48.78	Ⅱ	地
汶 ZK16	E <sub>s4</sub> <sup>±</sup>	油页岩	0.41	3.24	407	567	127.00	18.36	Ⅱ	
艾试 1	—	泥岩	0.33	10.52	420	79	17.00	8.35	Ⅲ	吐哈盆地

## 1.2 实验

采用 Rock-Eval-Ⅱ 型热解仪,进样量 100 mg,升温速率 25 °C/min,进行  $T_{max}$ 、HI、OI 等分析.有机质成烃热模拟实验采用 Rock-Eval-Ⅱ 型热解仪(开放体系),泥岩样品进样量 100 mg,煤岩样品进样量 30 mg,在不同升温速率条件下(10 °C/min、20 °C/min、30 °C/min、40 °C/min、50 °C/min),将样品从 200 °C 加热升温至 600 °C,实时记录产物量.在进行有机质成烃热模拟实验前所有样品被粉碎至 100 目,并抽提.

## 1.3 实验结果

样品成熟度范围为 0.33%~1.23%,TOC 范围从 1.36%~73.39%,HI 值从 79~1 139 mg HC/g TOC(表 1).其中 I 型有机质样品共计 8 块,全部取自松辽盆地;Ⅱ型有机质样品 5 块,全部取自渤海湾盆地;Ⅲ型有机质样品 5 块.

## 2 模型及标定结果

### 2.1 模型

众多学者开展了有机质成烃动力学模型及其应用方面研究,报道的描述有机质成烃的化学动力学模型有:(1)总包反应(Allred, 1966;黄第藩等, 1984;王剑秋等, 1984);(2)串联反应(Friedman, 1963;金强等, 1986;Klomp and Wright, 1990;Dieckmann, 2005);(3)平行反应(Pitt, 1962; Tissot and

Welte, 1984; Burnham *et al.*, 1988; Quigley and Mackenzie, 1988; Ungerer, 1990; Burnham *et al.*, 1995);(4)连串反应(Behar *et al.*, 1992, 2008)等多种反应速率模型,并且每一种模型又可分为若干亚型.例如,平行反应又可以分为无限个平行反应(Pitt, 1962; Quigley and Mackenzie, 1988)和有限个平行反应(Burnham *et al.*, 1988; Ungerer, 1990; Burnham *et al.*, 1995; 卢双舫, 1996).关于动力学模型的优缺点对比将有另文报道.

本文采用两种动力学模型进行生烃动力学研究,即:具有相同频率因子(一个平均频率因子)和一个离散分布活化能的平行一级反应模型(SFF 模型)及具有不同频率因子和一个离散分布活化能的平行一级反应模型(MFF 模型).设有机质成烃的过程由一系列(NKH 个)平行一级反应组成,每个反应的活化能为  $E_{KH}$ ,频率因子为  $A_{KH}$ (对于 SFF 模型采用相同的频率因子,对于 MFF 模型每个反应对应的频率因子各不相同),并设对应每一反应的干酪根的生烃潜量为  $X_{KH}$ ,  $i=1, 2, \dots, NKH$ .这样由一级反应速率方程式和阿伦尼乌斯公式不难推得 NKH 个平行反应的总生烃量则为:

$$X_{KH} = \sum_{i=1}^{NKH} X_{KH} i = \sum_{i=1}^{NKH} (X_{KH} i_0 (1 - \exp(-\int_{T_0}^T (A_{KH} i / D) \cdot \exp(-E_{KH} i / R / T) dT))), \quad (1)$$

式(1)中,  $D$  为升温速率,  $T$  为绝对温度,  $R$  为气体常

数. 模型标定的基本思路如下: 先由模型计算值和实验值之差的平方和构造目标函数, 由化学动力学参数的物理意义构造约束条件, 再由目标函数和约束条件构造惩罚函数, 化有约束极值问题的求解为无约束极值问题的求解, 最后用变尺度优化算法来求解极小点, 达到标定模型的目的. 具体的动力学参数标定方法见文献(卢双舫, 1996).

### 2.2 标定结果

图 1 给出了采用 SFF 模型和 MFF 模型计算的成烃转化率与 Rock-Eval 热解得到的实验转化率数据对比图, 可以看出, 两种模型具有很高的拟合程度(200~600 °C, 每隔 5 °C 取一个点做标定), 实验转化率和模型计算转化率之间很好的吻合初步表明建立的化学动力学模型具有可靠性. 由于篇幅关系本文仅给出了镇参 1 井样品转化率实验值和模型计算值对比图, 其他样品的实验值和模型计算值相关系数都在 0.99 以上.

图 2 和图 3 为 3 种不同有机质类型烃源岩样品的 SFF 模型和 MFF 模型活化能参数分布图. 从 SFF 模型的活化能参数分布图来看(图 3、图 4 的第 1 列和第 3 列) I 型有机质的活化能分布以单个占绝对优势的活化能分布为主; III 型有机质活化能分布范围较宽, 且优势活化能明显; II 型活化能分布介于之间. 不同样品的 MFF 模型活化能参数分布不易对比, 而不同样品 SFF 模型活化能参数分布容易对比, 这是以往许多学者采用 SFF 模型进行生烃动力学研究的原因之一. 从原理上来说, 平行反应中的每个反应应该对应不同频率因子, 对于所有平行反应采用相同的频率因子(一个平均频率因子), 则会低估具有较低活化能和较高活化能有机质的生烃潜力(反应分数), 在活化能分布图上表现为由 SFF 模

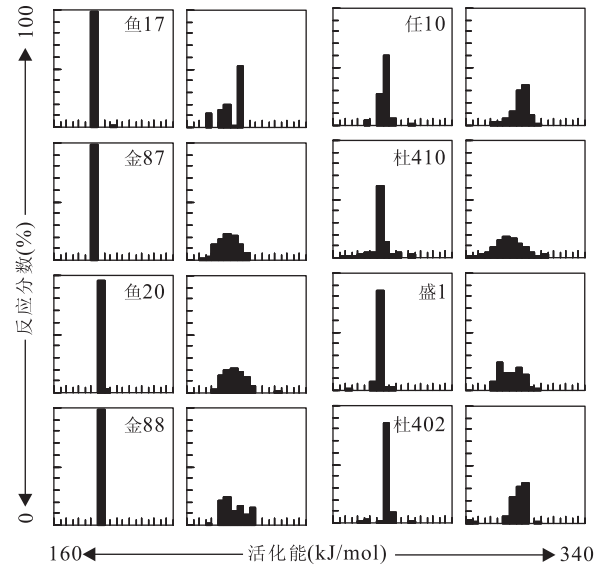


图 2 I 型有机质 SFF 模型和 MFF 模型活化能参数分布  
Fig. 2 Activation energies distributions for type I kerogen of different models

横坐标表示活化能分布区间, 分布区间为 160~340 kJ/mol, 步长为 10 kJ/mol; 纵坐标表示反应分数. 图中第一列和第三列为 SFF 模型标定的活化能分布图, 第二列及第四列为 MFF 模型标定的活化能分布图

型活化能参数分布相对集中, 而 MFF 模型活化能参数分布相对分散. 对此 Dieckmann(2005)则认为采用一个平均的频率因子将会高估具有较低活化能部分有机质的化学键的热稳定性而低估具有较高活化能部分的有机质的化学键的热稳定性.

### 3 地质外推与讨论

由实验室热模拟数据标定的平行一级反应动力学模型可以通过调整升温速率很方便地外推到地质

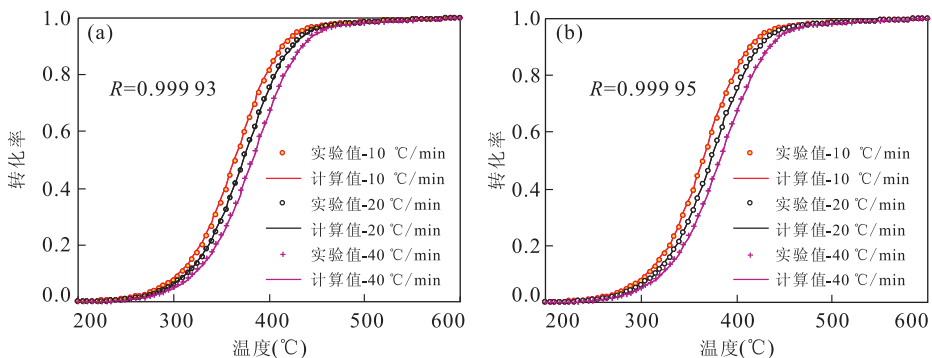


图 1 Rock-Eval 热解样品(镇参 1 井)实验转化率和动力学模型计算转化率对比  
Fig. 1 Experiment TR vs. kinetic model calculated TR for Zhencan 1 well source rock  
a. SFF 模型; b. MFF 模型; R. 计算值和实测值相关系数

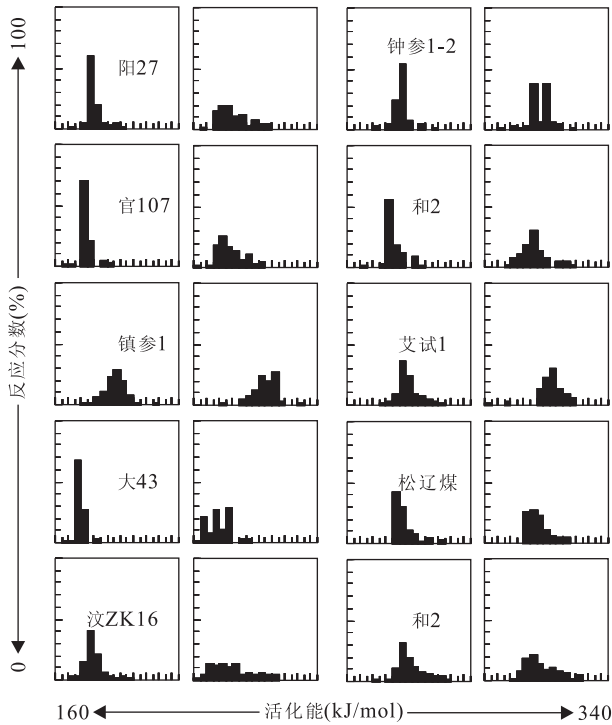


图 3 II型、III型有机质 SFF 模型和 MFF 模型活化能参数分布

Fig. 3 Activation energies distributions for type II and III kerogen of different models

坐标轴含义与图 3 坐标轴含义相同;图中第一列和第二列为II型有机质的活化能分布图,第三列及第四列为III型有机质的活化能分布图

时间—温度下,获得成烃转化率与温度的关系。为了方便对比不同样品及不同模型地质外推结果的差异,通常选用线性升温速率,即假定一个升温速率,这样可以避免其他地质上不确定因素的影响。一般认为沉积盆地平均升温速率在 3~5 K/Ma 之间,本次为了方便与文献报道结果对比,选用 3.3 K/Ma 的升温速率进行地质外推。

### 3.1 不同类型有机质动力学参数地质外推结果对比

图 4 和图 5 给出了两种模型地质外推得到的 3 种类型有机质成烃转化率与温度关系。从 SFF 模型与 MFF 模型相比看出,尤其是 I 型有机质和 II 型有机质(图 4,图 5 左图),在低演化阶段应用 MFF 模型时,有机质已经开始转化生烃,而在高温时应用 MFF 模型有机质生烃转化率相对 SFF 模型应用结果较低。对此现象,Dieckmann(2005)认为应用 SFF 模型将会高估具有较低活化能部分有机质的化学键的热稳定性而低估了具有较高活化能部分的有机质的化学键的热稳定性。实际上应用 SFF 模型则是低估了具有较低和较高活化能部分有机质的生烃潜力(反应分数),也就是说采用单一平均频率因子代替

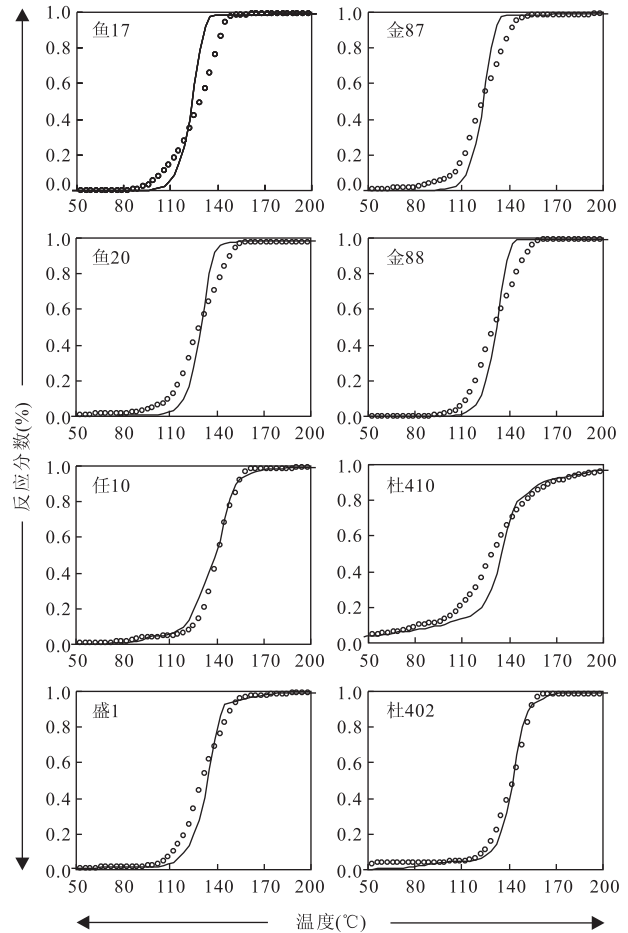


图 4 两种模型地质外推结果(I型有机质样品的动力学参数)

Fig. 4 Extrapolation results of two models (type I kerogen) 地质升温速率 3.3 K/Ma, X 轴范围从 50~200 °C, 间隔为 30 °C; 实线表示 SFF 模型应用结果,空心圆点表示 MFF 模型应用结果. 横坐标表示地质温度(°C),纵坐标表示有机质成烃转化率

所有反应的频率因子将会影响动力学模型参数中的反应分数。对于 III 型有机质,应用 SFF 模型和 MFF 模型外推结果则比较相近,几乎没有出现上述现象(图 5 右图),这与 III 型有机质样品活化能参数分布范围较宽,且每个活化能参数对应的频率因子相差不大,与 SFF 模型标定得到的平均频率因子相近有关(图 6c)。与 III 型有机质不同, I 型和 II 型有机质 SFF 模型和 MFF 模型的频率因子差别较大(图 6a 和图 6b)。

Dieckmann(2005)认为应用“串联模型”(Dieckmann 称为扩展的动力学模型)可以解决采用单一平均频率因子的平行反应模型带来的问题,然而从动力学理论的角度来看,并不存在串联这种反应,从实质上来看,串联反应则是分段的总包反应。“串联模型”除了上述缺点外,也不适合在较高演化阶段应用(Schenk and Dieckmann, 2004; Dieckmann,

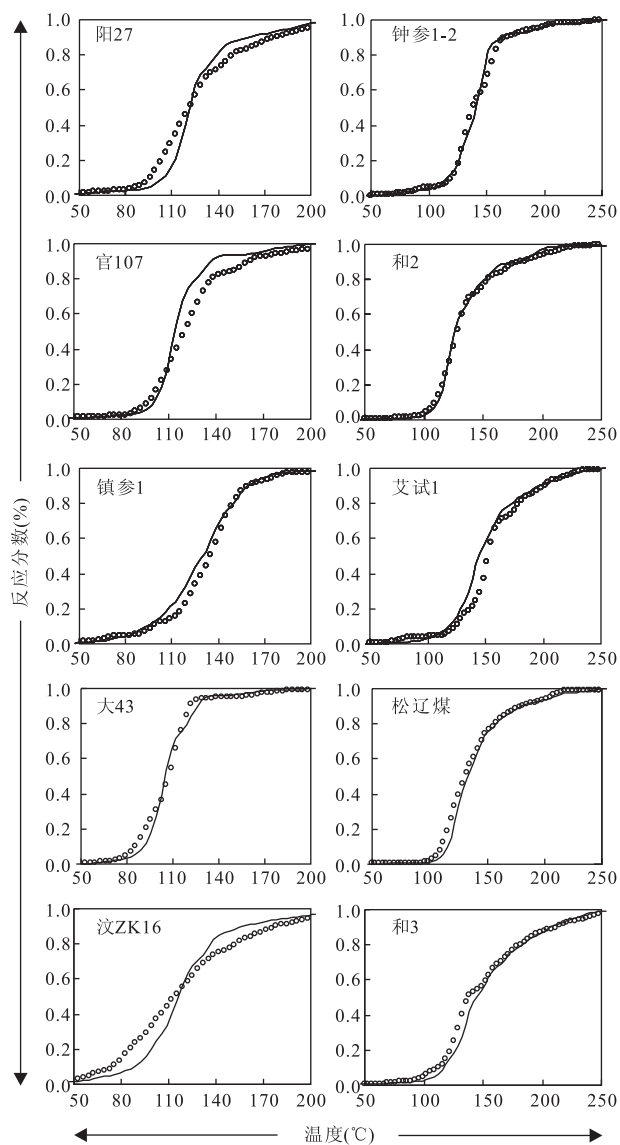


图5 两种模型地质外推结果(左图为II型有机质,右图为III型有机质,图例同图4)

Fig. 5 Extrapolation results of two models

2005). 因此,认为具有可靠基础的 MFF 模型可以有效解决动力学参数中采用单一频率因子所引起的低估具有较低和较高活化能部分有机质生烃潜力(反应分数)这一问题. 也就是说频率因子的不确定性问题可以通过采用 MFF 模型来有效解决,以往学者很少采用此模型一方面是因为商业的有机质成烃动力学参数优化工具不能实现 MFF 模型参数求取,如 Kinetics05,另一方面原因是采用 SFF 模型可以方便对不同类型有机质成烃动力学参数进行对比.

### 3.2 烃源岩非均质性对成烃转化率的影响

对于 I 型湖相有机质,取自同一盆地,但是不同样品开始大量生烃对应的地质温度并不相同(图 7a-s 和图 7a-m),在 3.3 K/Ma 的地质升温速率情况

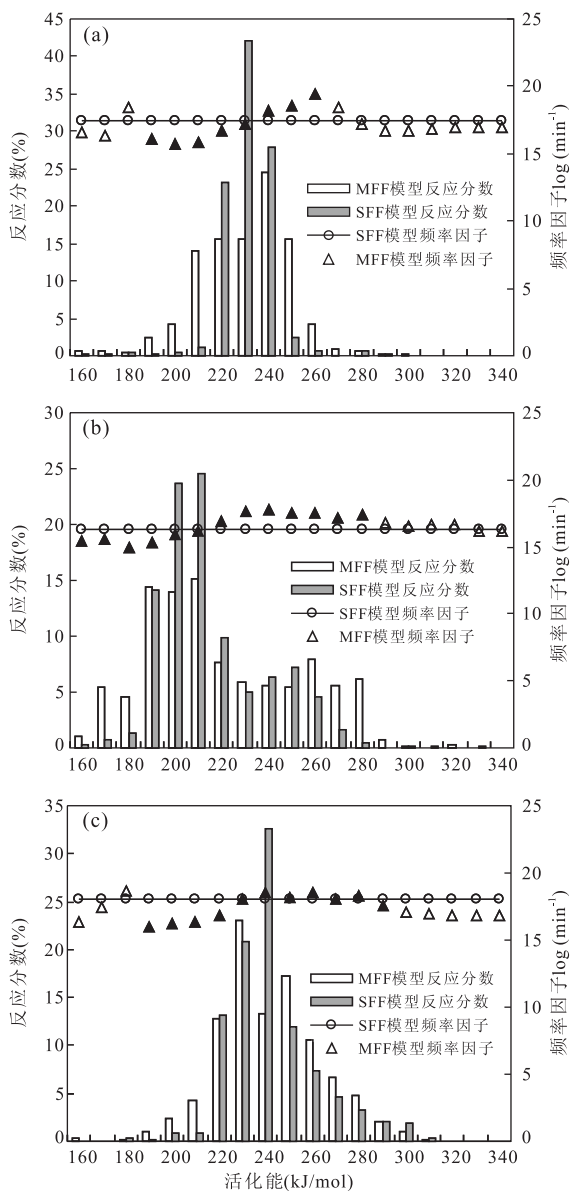


图6 不同有机质类型烃源岩样品两种模型动力学参数算术平均对比

Fig. 6 Comparison of the distribution of averaged activation energies of two models for different type organic matters

a. I 型有机质样品; b. II 型有机质样品; c. III 型有机质样品, 实心三角则表示对应反应分数大于 1% 的频率因子

下,对于 SFF 模型大量生烃开始温度范围在 100~130 °C 左右(对应的转化率为 10%),对于 MFF 模型大量生烃开始温度范围在 85~125 °C 左右. 对于 II 型湖相有机质, SFF 模型大量生烃开始温度范围在 85~105 °C 左右(对应的转化率为 10%), MFF 模型大量生烃开始温度范围在 75~100 °C 左右. 对于 III 型有机质, SFF 模型大量生烃开始温度范围在 110~118 °C 左右(对应的转化率为 10%), MFF 模型大量生烃开始温度范围在 109~125 °C 左右. 这些

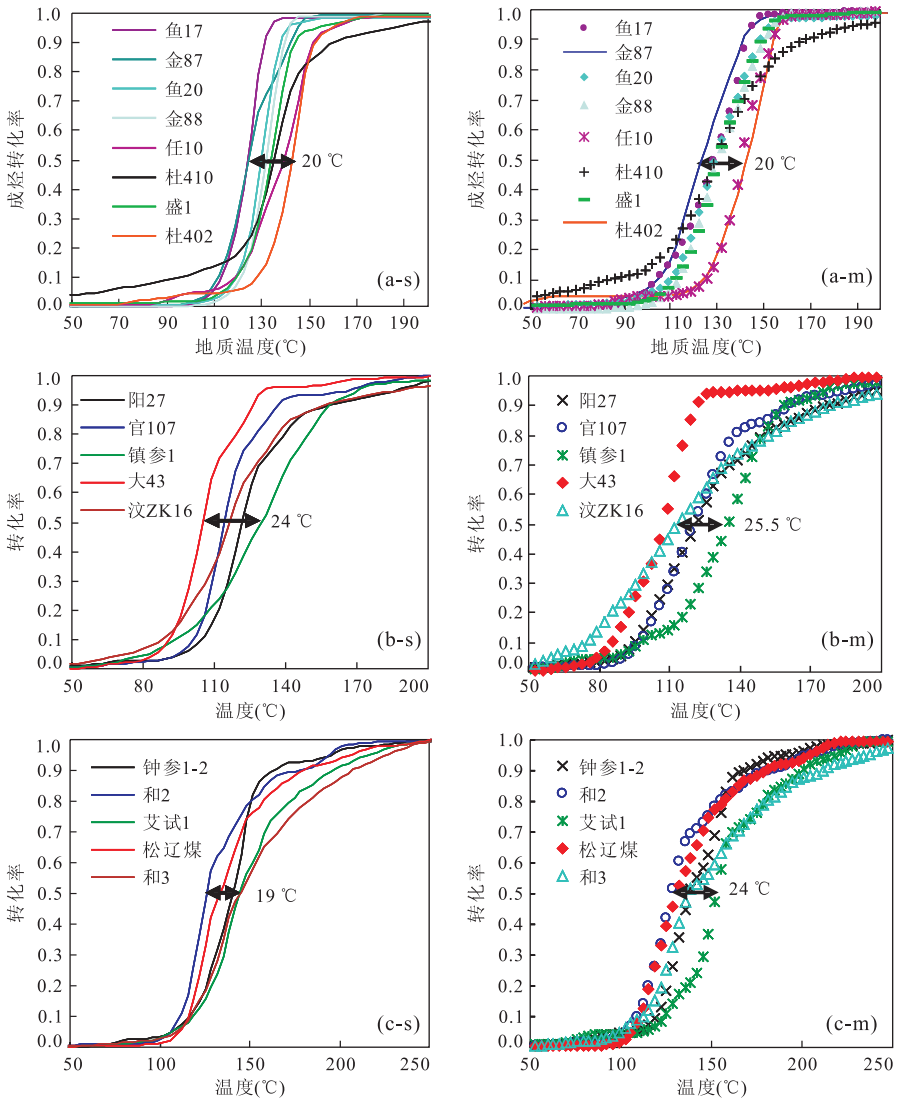


图 7 两种模型外推结果对比

Fig. 7 Comparison of extrapolation results of two models

地质升温速率 3.3 K/Ma; a. I 型有机质样品; b. II 型有机质样品; c. III 型有机质样品; s 表示 SFM 模型计算结果; m 表示 MFM 模型计算结果

均表明了源岩的非均质性. 3 种类型有机质最易生烃和最难生烃样品成烃转化率达到 50% 时对应的地质温度的差值可达 19~25.5 °C, 假如盆地地温梯度 30 °C/km, 则对应深度差值约 600~800 m.

以上均表明烃源岩的非均质性影响采用生烃动力学法评价油气资源量的可靠性, 同时也说明采用典型样品的生烃动力学参数进行烃源岩生烃动力学研究具有一定的风险. 对此 Petres *et al.* (2006) 建议采用多个样品的平均动力学参数进行应用, 而采用标准差进行风险分析或者对不同区块进行单独采样评价分析. Dieckmann and Keym (2006) 则通过对不同样品热模拟产率进行叠加后的产率曲线进行生烃动力学分析, 得出一组动力学参数, 进一步结合地质升温条件进行地质外推 (Dieckmann and Keym,

2006). 同时在不同类型有机质成烃特征对比中发现“优势活化能”与  $S_2$  有较好的相关性 (Wang *et al.*, 2011). 因此, 本文分别对各样品 SFM 模型和 MFM 模型的动力学参数采用算术平均和依据  $S_2$  加权平均两种方法来获取平均动力学参数.

图 8 给出了两种动力学模型两种平均活化能分布, 应用两种平均方法得出的活化能分布有一定差别. 图 9 给出了应用两种平均方法得到动力学参数地质外推结果.

两种平均法获得的动力学参数地质外推结果显示, 3 种类型有机质同一模型两种平均法获得动力学参数外推结果在较低和较高温度时相差不大 (图 9a~图 9c), 主要与具有较低和较高活化能有机质的反应分数较小而且差别不大有关 (图 8). 在主要

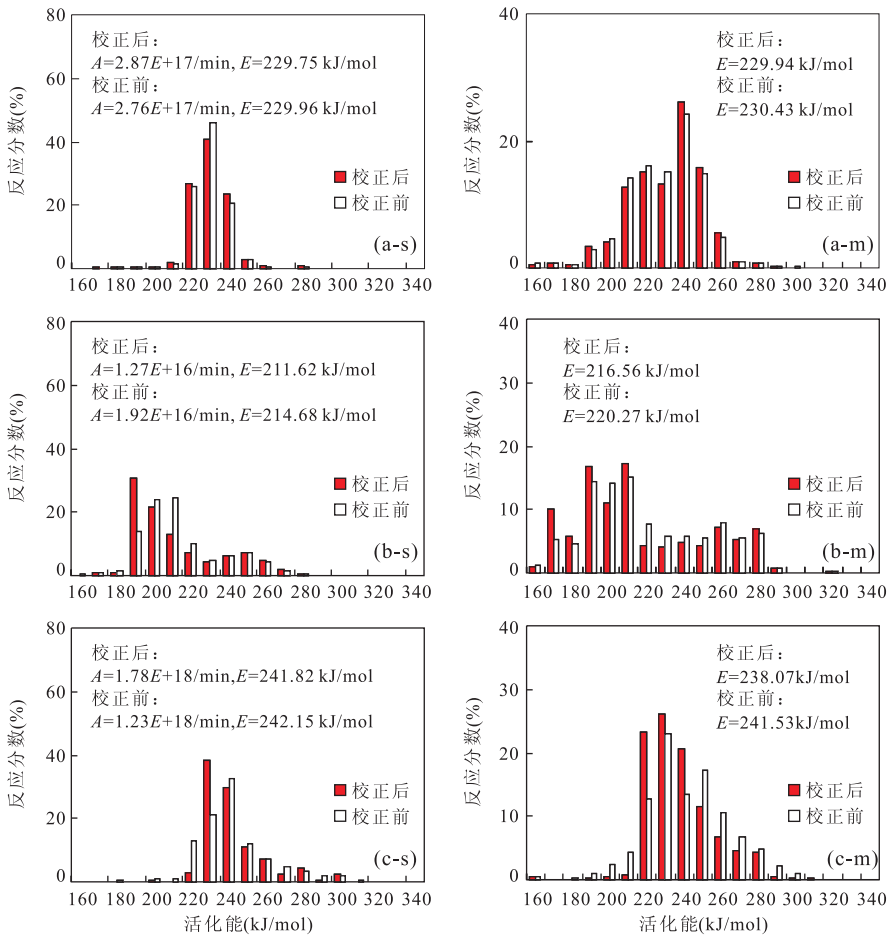


图 8 两种平均方法得到的活化能分布对比

Fig. 8 Comparison of the distribution of averaged activation energies of two models

a. 表示 I 型有机质; b. 表示 II 型有机质; c. 表示 III 型有机质; s. SFF 模型; m. MFF 模型; 校正前指采用算术平均法; 校正后指采用  $S_2$  加权平均法

生烃阶段, II 型和 III 型有机质同一模型两种平均方法获得动力学参数外推结果差别较大(图 9b, 图 9c), I 型有机质差别较小(图 9a), 主要与 I 型有机质活化能分布相对集中且反应分数相差较小有关(图 8a-s, 图 8a-m). 对于 II 型有机质, 在温度达到  $100\text{ }^\circ\text{C}$  时, SFF 模型得到的动力学参数外推成烃转化率相差 10% (SFF 模型校正后转化率对应为 0.46, SFF 模型校正前转化率对应为 0.36). MFF 模型得到的动力学参数外推成烃转化率相差 7% (MFF 模型校正后转化率对应为 0.40, MFF 模型校正前转化率对应为 0.33)(图 9b). MFF 模型与 SFF 模型相比, 对于 I 型和 II 型有机质, 在低演化阶段, 应用前者模型已有烃类生成, 在中后期演化阶段, 相同热力学条件下(时间与温度), 前者模型计算转化率要低于后者模型计算转化率. 对于 III 型有机质, 这种差异并不明显, 主要原因在于 III 型有机质两种动力学模型获得的频率因子相差不大(图 6c).

图 10 给出了采用  $S_2$  平均动力学参数两种模型(SFF 模型和 MFF 模型)在松辽盆地北部黑鱼泡凹陷进行应用得到的生烃剖面(I 型有机质). MFF 模型与 SFF 模型应用结果相比, 在较低埋深时已有部分烃类生成, 这是与应用 SFF 模型低估具有较低活化能的有机质的生烃潜力(反应分数)有关. 如果以转化率 10% 为界限, 划定生烃门限, 则应用 MFF 模型得出的结论是 1 700 m, 而应用 SFF 模型得出的结论是 1 900 m, 两者相差 200 m. 卢双舫等(2009)通过松辽盆地北部地区主要生烃凹陷和主要生烃源岩层的地化指标( $S_1/\text{TOC}$ ,  $S_1/(S_1 + S_2)$ )、氯仿沥青“A”/TOC、总烃/TOC)及成熟度指标( $R_o$ )与深度关系的大量统计分析得出, 松辽盆地北部黑鱼泡凹陷的生烃门限为 1 700 m. 应用结果和地质实例均佐证了采用 MFF 模型和  $S_2$  平均动力学参数进行生烃动力学评价具有较好可信度.



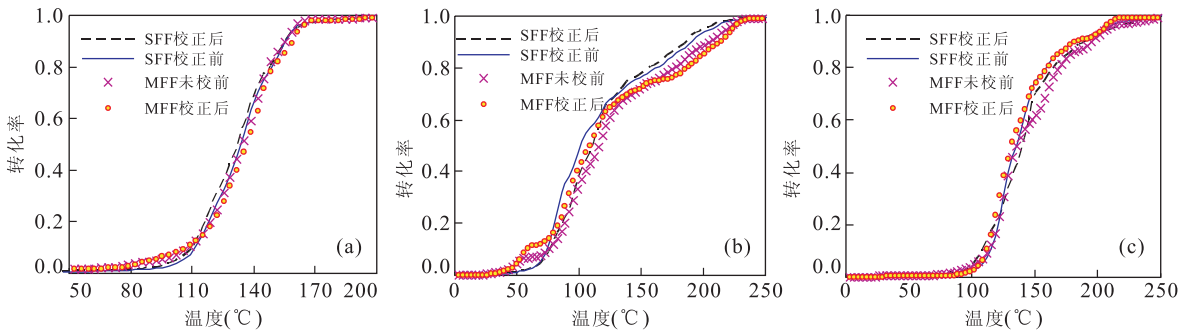


图 9 两种模型两种平均动力学参数地质外推转化率—温度关系

Fig. 9 TR vs. geological temperature by extrapolation of the averaged kinetic parameters with two models

地质升温速率 3.3 K/Ma; a. 表示 I 型有机质; b. 表示 II 型有机质; c. 表示 III 型有机质; 校正前指采用算术平均法获得的动力学参数外推结果, 校正后指采用  $S_2$  加权平均法获得的动力学参数外推结果

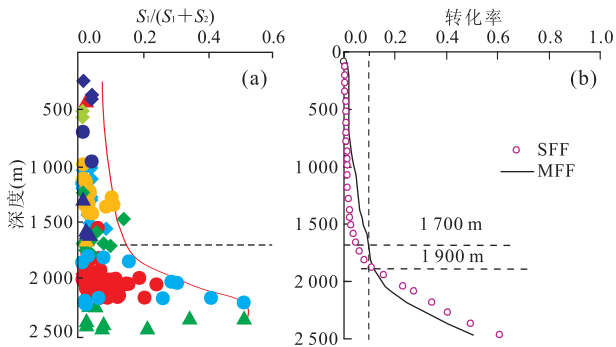


图 10 松辽盆地黑鱼泡凹陷生烃剖面 (a. 应用地化参数得出的剖面, 据卢双舫等, 2009 修改; b. 应用两种模型  $S_2$  平均动力学参数计算得出的剖面)

Fig. 10 Hydrocarbon generation profile in the Heiyupao sag in Songliao basin

## 4 结论

通过对 18 块不同类型有机质烃源岩样品的生烃动力学热模拟实验, 采用 MFF 模型和 SFF 模型进行动力学对比分析表明, 采用 MFF 模型可以避免采用 SFF 模型出现的低估具有较低和较高活化能有机质的生烃潜力(反应分数)这一问题, 同时频率因子随活化能的升高而升高, 能有效的解决频率因子不确定性的问题。

选择的样品动力学参数在 3.3 K/Ma 地质升温速率外推时, 最易生烃和最难生烃样品生烃转化率达到 50% 时地质温度差异在 20 °C 左右, 表明烃源岩非均质性对采用生烃动力学法评价资源量有一定的影响。

对所有样品动力学参数采用算术平均和依据  $S_2$  加权平均得到的动力学参数外推表明, MFF 模型与 SFF 模型相比, 在低演化阶段, 应用前者模型

结果已有烃类生成, 在中后期演化阶段, 相同热力学条件下(时间与温度), 前者模型计算转化率要低于后者模型计算转化率。在主要生烃阶段, 对于 I 型有机质两种平均方法获得的动力学参数外推结果差别不大, 而对于 II 型及 III 型有机质, 两种平均方法获得的动力学参数外推结果差别显著, 采用  $S_2$  加权平均法获得的动力学参数外推得到的成烃转化率明显高于采用算术平均法得到动力学参数外推结果。

通过对两种模型依据  $S_2$  加权平均法获得的动力学参数在松辽盆地黑鱼泡凹陷实际应用表明, 以成烃转化率 10% 为界限, 划定生烃门限, 则应用 MFF 模型得出的结论是 1700 m, 与前人研究结论一致。这更加坚定了采用 MFF 模型和  $S_2$  加权平均法获得的动力学参数进行资源评价具有较高可信度的信心。

建议采用 MFF 模型对研究区多个烃源岩样品进行生烃动力学分析, 并结合烃源岩其他地化参数来提高生烃动力学评价资源量的可信度。

## References

- Allred, V. D., 1966. Kinetics of oil shale pyrolysis. *Chemical Engineering Progress*, (62): 55—60.
- Behar, F., Lorant, F., Lewan, M., 2008. Role of NSO compounds during primary cracking of a Type II kerogen and a Type III lignite. *Organic Geochemistry*, (39): 1—22. doi:10.1016/j.orggeochem.2007.10.007
- Behar, F. S., Kressmann, J. L., Rudkiewicz, et al., 1992. Experimental simulation in a confined system and kinetic modelling of kerogen and oil cracking. *Organic Geochemistry*, (19): 173—189. doi:10.1016/0146-6380(92)90035-V
- Braun, R. L., Burnham, A. K., 1992. PMOD: a flexible model

- of oil and gas generation, cracking, and expulsion. *Organic Geochemistry*, 19(1-3): 161-172. doi: 10. 1016/0146-6380(92)90034-U
- Burnham, A. K. , Braun, R. L. , Samou, A. M. , 1988. Further comparison of methods for measuring kerogen pyrolysis rates and fitting kinetic parameters. *Organic Geochemistry*, 13(4-6): 839-845. doi: 10. 1016/0146-6380(88)90236-7
- Burnham, A. K. , Schmidt, J. , Braun, R. L. , 1995. A test of the parallel reaction model using kinetic measurements on hydrous pyrolysis residues. *Organic Geochemistry*, 23(10): 931-939. doi: 10. 1016/0146-6380(95)00069-0
- Dieckmann, V. , 2005. Modelling petroleum formation from heterogeneous source rocks: the influence of frequency factors on activation energy distribution and geological prediction. *Marine and Petroleum Geology*, (22): 375-390. doi: 10. 1016/j. marpetgeo. 2004. 11. 002
- Dieckmann, V. , Keym, M. , 2006. A new approach to bridge the effect of organofacies variations on kinetic modelling and geological extrapolations. *Organic Geochemistry*, (37): 728-739. doi: 10. 1016/j. orggeochem. 2005. 12. 008
- Friedman, H. L. , 1963. Kinetics of thermal degradation of char-forming plastics from thermogravimetry: application to a phenolic plastic. *Journal of Polymer Science (Part C)*, 6: 183-195. doi: 10. 1002/polc. 5070060121
- Huang, D. F. , Li, J. C. , Zhou, Z. H. , et al. , 1984. The evolution and hydrocarbon generating mechanism of terrestrial facies organic matter. Petroleum Industry Press, Beijing, 165-180 (in Chinese).
- Jarvie, D. M. , 1991. Factors affecting rock-eval derived kinetic parameters. *Chemical Geology*, (93): 79-99. doi: 10. 1016/0009-2541(91)90065-Y
- Jin, Q. , Qian, J. L. , Huang, X. H. , 1986. Study on thermal degradation kinetics of source rock kerogen and quantitative estimation of hydrocarbon transformation. *Acta Petrolei Sinica*, 7(3): 11-19 (in Chinese with English abstract).
- Keym, M. , Dieckman, V. , Horsfield, B. , et al. , 2006. Source rock heterogeneity of the Upper Jurassic Draupne Formation, North Viking Graben, and its relevance to petroleum generation studies. *Organic Geochemistry*, (37): 220-243. doi: 10. 1016/0009-2541(91) 90065-Y
- Klomp, U. C. , Wright, P. A. , 1990. A new method for the measurement of kinetic parameters of hydrocarbon generation from source rocks. *Organic Geochemistry*, 116(1-3): 49-60. doi: 10. 1016/0146-6380(90)90025-U
- Lu, S. F. , 1996. Kinetics theory of hydrocarbon generation from organic matter and its application. Petroleum Industry Press, Beijing (in Chinese).
- Lu, S. F. , Li, J. N. , Liu, S. J. , et al. , 2009. Oil generation threshold depth of Songliao basin: revision and its significance. *Petroleum Exploration and Development*, 36(2): 166-173 (in Chinese with English abstract).
- Lu, S. F. , Wang, Z. W. , Huang, D. F. , et al. , 1995. Coal macerals of hydrocarbon generation kinetics. *Science in China (Ser. B)*, 25(1): 101-107 (in Chinese).
- Lu, S. F. , Zhong, N. N. , Xue, H. T. , et al. , 2007. Chemical kinetics study of hydrocarbon regeneration from organic matter in carbonate source rocks and its significance. *Science in China (Ser. D)*, 50(4): 536-543. doi: 10. 1007/s11430-007-2058-5
- Pepper, A. S. , Corvit, P. J. , 1995. Simple kinetic models of petroleum formation: part I, oil and gas generation from kerogen. *Marine and Petroleum Geology*, 12(3): 291-319. doi: 10. 1016/0264-8172(95)98381-E
- Peters, K. E. , Walters, C. C. , Mankiewicz, P. J. , 2006. Evaluation of kinetic uncertainty in numerical models of petroleum generation. *American Association of Petroleum Geologists Bulletin*, 90(3): 387-403. doi: 10. 1306/10140505122
- Pitt, G. J. , 1962. The kinetics of evolution of volatile products from coal. *Fuel*, (41): 267-274.
- Quigley, T. M. , Mackenzie, A. S. , 1988. The temperatures of oil and gas formation in the sub-surface. *Nature*, 333(6173): 549-552. doi: 10. 1038/333549a0
- Schaefer, R. G. , Schenk, H. J. , Hardelauf, H. , et al. , 1990. Determination of gross kinetic parameters for petroleum formation from jurassic source rocks of different maturity levels by means of laboratory experiments. *Organic Geochemistry*, 16(1-3): 115-120. doi: 10. 1016/0146-6380(90)90031-T
- Schenk, H. J. , Dieckmann, V. , 2004. Prediction of petroleum formation: the influence of laboratory heating rates on kinetic parameters and geological extrapolations. *Marine and Petroleum Geology*, 21(1): 79-95. doi: 10. 1016/j. marpetgeo. 2003. 11. 004
- Schenk, H. J. , Horsfield, B. , 1993. Kinetics of petroleum generation by programmed-temperature closed-versus open-system pyrolysis. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 57(3): 623-630. doi: 10. 1016/0016-7037(93)90373-5
- Tissot, B. P. , Pelet, R. , Ungerer, P. , 1987. Thermal history of sedimentary basins, maturation indices, and kinetics of oil and gas generation. *AAPG Bulletin*, 71(12): 1445-1466. doi: 10. 1306/703C80E7-1707-11D7-8645000102C1865D
- Tissot, B. P. , Welte, D. H. , 1984. Petroleum formation and occurrence. Springer-verlag, Berlin.

- Ungerer, P., 1990. State of the art of research in kinetic modelling of oil formation and expulsion. *Organic Geochemistry*, 16(1-3): 1-25. doi: 10. 1016/0146-6380(90)90022-R
- Ungerer, P., Pelet, R., 1987. Extrapolation of the kinetics of oil and gas formation from laboratory experiments to sedimentary basins. *Nature*, 327: 52-54. doi: 10. 1038/327052a0
- Wang, J. Q., Wu, L. Y., Qian, J. L., 1984. Kinetic study of hydrocarbon-forming pyrolysis of source rock by using rock evaluation apparatus. *Journal of China University of Petroleum*, 8(1): 1-9 (in Chinese with English abstract).
- Wang, M., Lu, S. F., Xue, H. T., et al., 2011. Study of hydrocarbon generation kinetic characteristics from different types of organic matter. *Acta Geologica Sinica (English Edition)*, 85 (in press).

### 附中文参考文献

- 黄第藩, 李晋超, 周翥红, 等, 1984. 陆相有机质演化和成烃机理. 北京: 石油工业出版社, 165-180.
- 金强, 钱家麟, 黄醒汉, 1986. 生油岩干酪根热降解动力学研究及其在油气生成量计算中的应用. *石油学报*, 7(3): 11-19.
- 卢双舫, 1996. 有机质成烃动力学理论及其应用. 北京: 石油工业出版社.
- 卢双舫, 李娇娜, 刘绍军, 等, 2009. 松辽盆地生油门限重新厘定及其意义. *石油勘探与开发*, 36(2): 166-173.
- 卢双舫, 王子文, 黄第藩, 等, 1995. 煤岩显微组分的成烃动力学. *中国科学(B辑)*, 25(1): 101-107.
- 王剑秋, 乌立言, 钱家麟, 1984. 应用岩石评价仪进行生油岩热解生烃动力学研究. *华东石油学院学报*, 8(1): 1-9.