

原油裂解对油包裹体均一温度和捕获压力的影响及其地质意义

平宏伟¹, 陈红汉¹, Régis Thiéry², 张 晖¹, 李培军¹, 吴 楠³

1. 中国地质大学构造与油气资源教育部重点实验室, 湖北武汉 430074

2. 帕斯卡大学岩浆与火山实验室, 法国克莱蒙费朗 63000

3. 长江大学地球科学学院, 湖北武汉 430100

摘要: 通过原油裂解动力学和石油包裹体热动力学模拟方法系统阐述了地质条件下原油裂解过程对油包裹体均一温度及捕获压力的影响。结果表明: 初始裂解阶段($T_R < 13\%$, $T < 160\text{ }^\circ\text{C}$), 油包裹体均一温度随原油裂解呈增大趋势, 捕获压力呈减小趋势; 随着裂解程度增大($T_R < 24\%$, $T < 190\text{ }^\circ\text{C}$), 油包裹体均一温度随原油裂解呈减小趋势, 捕获压力呈增大趋势, 但此阶段油包裹体均一温度仍高于初始捕获时均一温度, 捕获压力仍小于初始捕获压力; 此后, 随着原油裂解程度不断增大, 油包裹体均一温度持续减小甚至到负值, 捕获压力则持续增大甚至超过静岩压力。封闭条件下低程度的原油裂解($T < 160\text{ }^\circ\text{C}$, $T_R < 13\%$)只会形成常压或者低压; 而较高级别的原油裂解($T_R > 40\%$)才会形成超压, 甚至超过上覆静岩压力($T_R > 70\%$)。深部原油裂解气勘探中要特别注意地层温度位于 $160\sim 190\text{ }^\circ\text{C}$ 范围内的常压到低压油气藏, 而地层温度高于 $190\text{ }^\circ\text{C}$ 原油裂解气勘探应以找超压-超高压油气藏为主。

关键词: 流体; 包裹体; 荧光; 成熟度; 均一温度; 捕获压力; 超压; 原油裂解; 热动力学。

中图分类号: TE122.1

文章编号: 1000-2383(2014)05-0587-13

收稿日期: 2013-12-21

Effects of Oil Cracking on Homogenization Temperature and Trapping Pressure of Oil Inclusion and Its Geological Significance

Ping Hongwei¹, Chen Honghan¹, Régis Thiéry², Zhang Hui¹, Li Peijun¹, Wu Nan³

1. Key Laboratory of Tectonics and Petroleum Resources of Ministry of Education, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China

2. Université Blaise Pascal, Laboratoire Magmas et Volcans, BP 10448, F-63000, Clermont-Ferrand, France

3. School of Geosciences, Yangtze University, Wuhan 430100, China

Abstract: This paper systematically elaborates the effects of oil cracking on homogenization temperature and trapping pressure of oil inclusion using crude oil crack kinetic and petroleum inclusion thermodynamics modeling. The results demonstrate that homogenization temperature shows a trend of increase and the trapping pressure shows a trend of decrease at the initial stage of oil cracking ($T_R < 13\%$, $T < 160\text{ }^\circ\text{C}$); with the progressing of oil cracking ($T_R < 24\%$, $T < 190\text{ }^\circ\text{C}$), homogenization temperature shows a trend of decrease and the trapping pressure shows a trend of increase, however, the homogenization temperature still exceeds the initial homogenization temperature and the trapping pressure is still below the initial trapping pressure at this stage of oil cracking. After that, the homogenization temperature continues to decrease or even turns negative values in some severe oil cracking processes; at the same time, trapping pressure continues to increase or exceed litho static pressure. In addition, oil cracking only results in normal pressure or under pressure during the initial stage of oil cracking ($T_R < 13\%$, $T < 160\text{ }^\circ\text{C}$), while oil cracking will lead to overpressure ($T_R > 40\%$) or even exceeding litho static pressure ($T_R > 70\%$) during the high level of oil cracking. Therefore, deeply buried reservoirs with pressure systems from under pressure to normal pressure should be paid more attention especially when formation temperature ranges from $160\text{ }^\circ\text{C}$ to $190\text{ }^\circ\text{C}$, and oil cracking gas exploration should be focused on the reservoirs with overpressure or ultrahigh pressure when for-

基金项目: 国家重点基础研究发展计划(No.2012CB214804); 国家自然科学基金资助项目(No.41202088); 湖北省教育厅优秀中青年人才科研项目(No.Q20121201)。

作者简介: 平宏伟(1982-), 男, 博士, 主要从事含烃流体地质研究。E-mail: howping@qq.com

mation temperature is over 190 °C.

Key words: fluid; inclusion; homogenization temperature; trapping pressure; overpressure; oil cracking; thermodynamics.

综合利用油包裹体均一温度(Th_{oil})、室温下(20 °C)其气泡充填度(F_v)以及与其共生的盐水包裹体均一温度(Th_{aqui})等参数对油气充注压力、温度和组分史(PTx)进行热动力学模拟分析已经成为一种追踪古油气运移与聚集动态过程的有效方法(Aplin *et al.*, 1999; Thiéry *et al.*, 2002; Munz *et al.*, 2004; Bourdet *et al.*, 2010; Ping *et al.*, 2011; 平宏伟等, 2012)。油气充注 PTx 史重构是否准确不仅依赖于石油包裹体热动力学模拟方法本身, 如组分模型及模拟参数选择等(Ping *et al.*, 2011; 平宏伟等, 2013), 还取决于热动力学模拟输入参数(如 Th_{oil} 、 F_v 和 Th_{aqui} 等)能否准确反映其捕获时条件, 即包裹体必须是均一相态捕获的、捕获后包裹体体积以及组分均未发生变化(Roedder, 1984)。

Okubo(2005)首先讨论了原油裂解对油包裹体均一温度的影响, 认为当油包裹体捕获后经历地层温度超过 120 °C 左右, 包裹体油就会发生裂解; 随着埋深或温度增加, 包裹体油裂解程度也增加, Th_{oil} 逐渐减小, 而和与其共生的同期盐水包裹体均一温度(Th_{aqui})差值逐渐增大。赵艳军和陈红汉(2008)与 Chen *et al.*(2009)也对中国多个含油气盆地大量油包裹体均一温度和与其共生的同期盐水包裹体均一温度差值的绝对值($\Delta Th = Th_{aqui} - Th_{oil}$)统计分析发现了与 Okubo(2005)类似的变化关系。然而, 油包裹体均一温度受其捕获温度、捕获压力及油包裹体组分等多因素共同控制(平宏伟和陈红汉, 2011)。随着原油裂解进行, 包裹体内油组分、体积和内部压力都将发生变化, 包裹体内压变化将不再遵循捕获时的等容线, 从而对油包裹体均一温度进行修正, 其修正过程则取决于包裹体内温度、压力及组分的共同变化。油包裹体均一温度改变无疑会对石油包裹体热动力学模拟古压力结果产生影响。若原油裂解导致油包裹体均一温度增大, 那么石油包裹体热动力学模拟的捕获压力将偏小, 反之捕获压力将偏大。

总之, 弄清原油裂解对油包裹体均一温度及内压的影响对运用流体包裹体约束深层油气成藏过程具有重要意义。然而, 实验手段并不能很好地解释原油裂解过程对油包裹体均一温度的影响, 原因在于原油裂解实验温度(一般大于 300 °C)远远高于地下原油裂解温度(一般 120~250 °C)。因此, 本文将运用原油裂解动力学模拟和石油包裹体热动力学模拟相

结合的方法, 系统讨论包裹体油裂解过程对油包裹体均一温度以及捕获压力的影响, 从而为深层油气充注史重塑提供可供参考的理论基础。

1 研究方法 with 流程

1.1 原油裂解动力学模拟

原油裂解过程是在热力及时间条件下原油组分按照自身的稳定性发生破坏、重新组合的过程。总体上, 随着原油裂解程度加大原油轻组分增加、重组分减小, 最终完全裂解成甲烷和焦沥青。原油裂解动力学模拟方法可以定量评价原油在地史演化过程中裂解程度, 其理论基础就是将原油裂解过程用 n 个等效平行的动力学反应来描述。近些年来随着有机地球化学分析技术的不断增强, 多组分原油裂解动力学模型得到了广泛应用(Ungerer *et al.*, 1988; Tsuzuki *et al.*, 1999; Behar *et al.*, 2008)。

本文不仅根据原油裂解动力学定量预测包裹体油裂解过程中的组分变化, 还要计算油包裹体内压(P)和体积(V)变化, 因此要求原油裂解模型中组分划分得越细越好。本文的原油裂解组分模型为: CO_2 (非烃气体)、 C_1 (烃气)、 C_2 (烃气)、 C_{3-5} (烃气)、 C_{6-13} SAT (轻饱和烃)、 C_{6-13} ARO (轻芳香烃)、 C_{14+} SAT (重饱和烃)、 C_{14+} ARO C (重稠环芳香烃)、 C_{14+} ARO U (重不稳定芳香烃)、 C_{16+} NSO (非烃组分)、Precoke (焦沥青前身) 和 Coke (焦沥青) 等 12 个组分类别。其中, 假定二氧化碳、甲烷和焦沥青不发生裂解, 那么以上 12 个组分裂解过程可以用 9 个平行的一级动力学反应来描述, 化学反应速率常数(K_{ij})遵循 Arrhenius 方程:

$$K_{ij} = A_{ij} \exp\left(\frac{-E_{ij}}{RT}\right), \quad (1)$$

式中: A_{ij} 、 E_{ij} 、 R 和 T 分别代表频率因子(指前因子)、活化能、气体常数和反应温度。

一旦原油裂解动力学模型得到限定, 即可根据各组分反应的动力学参数, 如活化能(E)、频率因子(F)及化学计量系数等, 并结合初始原油组分和热演化史, 就可以计算不同热演化条件下原油裂解过程中的组分变化。通常原油裂解动力学参数是根据一系列的原油裂解实验来确定的, 通过将实验过程中原油组分含量与假定的裂解模型计算的组分含量

进行拟合,从而对动力学参数(活化能、频率因子和化学计量系数)进行优化,最终获得与实验结果较一致的动力学参数.但由于目前还没有原油裂解实验同时获取上述原油裂解 12 个模型组分中 9 个化学反应的动力学参数,因此本文所需的裂解模型及动力学参数均引自文献,其中 C₂ 烃类裂解参数数据 Kuo and Eric Michael(1994),其他烃类组分裂解参数数据 Vandenbroucke *et al.*(1999).

1.2 石油包裹体热动力学模拟

正如前述,包裹体油裂解过程对其均一温度的影响难以用实验来直接验证,而油包裹体均一温度又与其 P-T 条件密切相关.而石油包裹体热动力学模拟方法可以计算油包裹体内组分、压力及地层温度共同变化条件下其均一温度的变化.油包裹体均一温度的物理意义可从图 1 得到阐述.图 1 中直线 AB 代表给定组分的原油从 A 点的温度和压力条件捕获经过等容变化达到泡点 B 点;B 点对应的温度代表 A 点捕获的油包裹体的均一温度.理论上,只要知道油组分及油包裹体捕获时的温度和压力,那么油包裹体的均一温度就是唯一确定的(平宏伟和陈红汉,2011).

根据图 1,油包裹体均一温度的计算是否准确必须要满足 3 个条件:(1)准确获取油包裹体的组分;(2)精确计算已知油组分的 P-T 相图;(3)根据油包裹体捕获温度和压力准确求取等容线.原油裂

解过程中组分变化可根据上述原油裂解动力学模拟来获取,利用 Peng-Robinson 流体热动力学状态方程计算 P-T 相图(Peng and Robinson, 1976).原油裂解过程产生不溶于液态烃类的固体焦沥青(Coke)及焦沥青前身(Precoke)会导致包裹体内液相体积和内压发生变化,因此在获取油包裹体等容线时首先要确定原油裂解后包裹体内压的变化.包裹体内压确定过程如下:

假设油包裹体捕获时摩尔体积为 V,捕获压力为 P_i,摩尔数为 m;原油裂解过程中时间为 t 时包裹体内压为 P,包裹体内液态原油和固体沥青(焦沥青和焦沥青前身)体积分别为 V_{ot}和 V_{ct},原油摩尔数为 m_t,摩尔体积为 V_{mt},焦沥青质量为 M_t,焦沥青密度为 ρ_t.同时假设整个原油裂解过程中包裹体体积始终未发生变化,则有:

$$mV = V_{ot} + V_{ct}, \tag{2}$$

$$V_{ot} = m_t V_{mt}, \tag{3}$$

$$V_{ct} = M_t / \rho_t, \tag{4}$$

式(2)~式(4)中 m、m_t、M_t 和 ρ_t 受原油裂解动力学控制且均为已知量;V_{mt} 受原油组分、包裹体内温度和压力共同控制.由于 P 为待求量,可采用迭代计算方法获取原油裂解过程中包裹体内压变化.先赋一初值 P_i,计算此时包裹体内液相摩尔体积 V_{mt},如果不满足式(2)则改变 P 值,直到满足式(2)时为止,则此时的 P 即包裹体油裂解后内压.

一旦油包裹体组分和内压确定了就可以计算油包裹体 P-T 相图、均一温度、等容线以及气泡充填度(F_v)等参数(图 1).获取原油裂解过程中油包裹体均一温度变化后就可以根据裂解后原油组分、原油裂解后油包裹体均一温度以及初始捕获温度重构油包裹体捕获压力(图 1),从而分析原油裂解过程对油包裹体捕获压力计算精度的影响.

1.3 假设条件及计算流程

由于原油裂解过程非常复杂,未知变量众多,为了简化起见,利用石油包裹体热动力学模拟方法计算原油裂解过程油包裹体均一温度需要满足一定的前提条件:(1)原油裂解过程中包裹体体积未发生变化;(2)原油裂解过程中固体沥青的密度为定值;(3)原油裂解过程不受包裹体内压力影响;(4)液态原油与固体沥青相互溶解度忽略不计;(5)固体沥青不影响液态原油的 PVT 相行为.

在上述限定的前提条件下即可计算原油裂解过程中油包裹体均一温度.整个计算过程主要分为 3 步:(1)将油包裹体最初捕获组分组合成原油裂解模

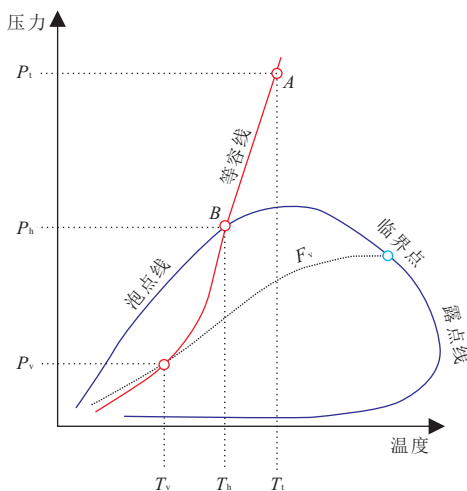


图 1 典型的石油流体 P-T 相

Fig.1 Typical P-T phase diagram of a petroleum fluid
注:气/液不混溶线由泡点线和露点线组成,临界点位于泡点线和露点线的交点.油包裹体 P-T 路径通过等容线来表示,其中 3 个比较重要的点是油包裹体捕获点(P_i, T_i)、均一化点(P_b, T_b)和室温下测定的气泡充填度 P-T 位置点(P_v, T_v)

表 1 用于原油裂解过程模拟的初始油包裹体组分数据

Table 1 The initial composition contents of oil inclusions used for oil cracking process modeling

组分	分子量 (g/mol)	油包裹体 A		油包裹体 B	
		摩尔分数 (mol%)	质量分数 (wt%)	摩尔分数 (mol%)	质量分数 (wt%)
C ₁	16.00	34.732 3	5.247	47.900 2	9.638 1
C ₂	30.07	6.502 4	1.846	7.943 4	3.003 8
C ₃	44.10	6.128 2	2.552	6.031 8	3.345 2
iC ₄	58.12	1.370 2	0.752	1.232 2	0.900 6
nC ₄	58.12	3.069 0	1.684	2.760 0	2.017 3
iC ₅	72.15	2.079 7	1.417	1.724 7	1.564 9
nC ₅	72.15	3.338 5	2.274	2.768 5	2.512 0
C ₆	84.00	3.609 1	2.862	2.612 5	2.759 7
C ₇	96.00	3.889 8	3.526	2.815 7	3.399 3
C ₈	107.00	3.579 2	3.616	2.543 3	3.422 2
C ₉	121.00	3.308 1	3.779	2.313 1	3.519 8
C ₁₀	134.00	3.066 4	3.879	2.114 0	3.562 4
C ₁₁	147.00	2.026 2	2.812	1.379 3	2.549 7
C ₁₂	161.00	1.864 1	2.834	1.268 9	2.569 2
C ₁₃	175.00	1.714 9	2.834	1.167 4	2.569 2
C ₁₄₊	311.95	19.721 9	58.087	13.425 1	52.666 7

型组分,组合过程遵循质量守恒原则,最终获得原油裂解模型组分中各组分重量和摩尔百分含量;(2)结合油包裹体捕获后的地层热演化史,利用原油裂解动力学模拟方法模拟油包裹体各组分随时间和温度的变化,从而获取各阶段各组分的重量百分含量和摩尔百分含量。(3)根据获得的油包裹体各组分摩尔含量计算原油裂解各阶段油包裹体内压,进而利用石油包裹体热动力学模拟方法获取原油裂解过程中油包裹体均一温度、气泡和沥青充填度以及捕获压力等。

由于原油裂解是发生在地史时期,因此原油裂解的初始组分可以通过流体包裹体测试结果限定。本文中原油裂解初始组分选择东营凹陷北带丰深 1 井和丰深 2 井早期捕获的黄色荧光低成熟油包裹体(包裹体 A)和蓝白色荧光高成熟油包裹体(包裹体 B)(表 1)(平宏伟等,2012)。为了研究不同程度热演化史对原油裂解过程的影响,本文中热史分别选择东营凹陷北带深层丰深 1 井 4 500 m 和丰深 2 井 5 755 m 2 个深度热演化史来约束原油裂解过程(图 2),热史模拟结果是利用 IES 软件获取,模拟结果经过今地温和镜质体反射率共同校正。表 2 为将表 1 中单个组分组合成原油裂解组分模型中 12 个组分类别,其中 C₆₋₁₃、C₁₄₊ 组分中饱和烃、芳烃和 NSO 含量是根据东营凹陷北带原油中平均饱和烃/芳香烃质量比(2.50)、饱和烃/NSO 质量比

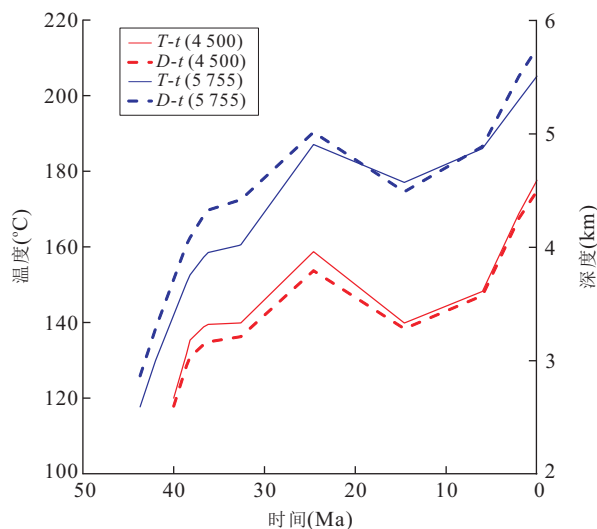


图 2 东营凹陷地层温度和埋藏深度随时间演化史

Fig.2 The evolutionary history of formation temperature with burial depth in Dongying depression

注:现今埋深为 4 500 m(丰深 1 井)和 5 755 m(丰深 2 井)

(2.32)计算得来。表 3 为用于状态方程计算油包裹体 P - T 相图及等容线的各组分临界参数(Hantschel and Kauerauf,2009)。最后,考虑到捕获压力对包裹体内压的影响,设定了常压到超压 3 个压力系数条件下油包裹体的捕获压力。捕获压力、捕获温度、捕获深度和捕获时间等参数见表 4。

2 结果和讨论

2.1 原油裂解过程油包裹体组分变化

原油裂解过程中组分变化是受热力学控制的,主要体现在单个组分的热稳定程度,热稳定性越高的组分越不容易裂解,反之则先裂解。一般来说不同类别组分热稳定性随着其碳数的增大而减少,甲烷热稳定最高,NSO 组分热稳定最差;原油热稳定性还与原油类型有关,黑油的稳定性要低于挥发油,挥发油稳定性要低于凝析油,油气中甲烷气的热稳定性最高;此外,不同热演化史对原油裂解过程中组分变化具有较大影响,原油所经历的热演化程度越高原油裂解程度就越大,组分变化就越明显。由图 3 可知,不同热史条件下(图 2)、不同原油组分(表 2)中 C₁₄₊ NSO 组分最不稳定、最先裂解。初始裂解阶段(图 3c 和图 3d 中裂解时间小于 5 Ma)随着 C₁₄₊ NSO 组分开始裂解,其他组分都相应的增加,表明 C₁₄₊ NSO 组分裂解产物主要为饱和烃、芳香烃、焦沥青以及气态烃类(Behar et al.,1992;Horsfield et al.,1992)。随后 C₁₄₊ ARO 组

表2 表1中油包裹体组分组合后各组分含量

Table 2 Composition contents of grouped compositions of oil inclusion in Table 1

组分	油包裹体 A			油包裹体 B		
	摩尔分数 (mol%)	分子量 (g/mol)	质量分数 (wt.%)	摩尔分数 (mol%)	分子量 (g/mol)	质量分数 (wt.%)
CO ₂	0	44.000 0	0	0	44.000 0	0
C ₁	34.732 3	16.000 0	5.246 8	47.900 2	16.000 0	9.638 1
C ₂	6.502 4	30.070 0	1.846 1	7.943 4	30.070 0	3.003 8
C ₃₋₅	15.985 6	57.500 0	8.678 5	14.517 2	56.637 2	10.339 9
C ₆₋₁₃ SAT	16.344 8	121.000 0	18.672 8	11.430 9	121.000 0	17.394 0
C ₆₋₁₃ ARO	6.713 0	117.845 3	7.469 1	4.783 3	115.664 3	6.957 6
C ₁₄₊ SAT	11.230 6	299.180 0	31.723 4	7.644 9	299.180 0	28.763 3
C ₁₄₊ ARO C	0	—	0	0	—	0
C ₁₄₊ ARO U	4.492 3	299.180 0	12.689 4	3.058 0	299.180 0	11.505 3
C ₁₄₊ NSO	3.999 0	362.157 9	13.673 9	2.722 2	362.157 9	12.398 0
Precoke	0	—	0	0	—	0
Coke	0	—	0	0	—	0

表3 油包裹体 P-T 计算需要的各组分临界参数

Table 3 Critical parameters of compositions in Table 2 for oil inclusion P-T calculation

组分	临界温度 T _c (K)	临界压力 P _c (MPa)	偏心因子 ω
CO ₂	304.19	7.382	0.227 6
C ₁	190.56	4.599	0.011 5
C ₂	305.32	4.872	0.099 5
C ₃₋₅	430.72	3.599	0.200 8
C ₆₋₁₃ SAT	587.96	2.518	0.400 3
C ₆₋₁₃ ARO	618.13	3.703	0.307 7
C ₁₄₊ SAT	813.82	1.442	0.779 7
C ₁₄₊ ARO	813.82	1.442	0.779 7
C ₁₄₊ NSO	810.40	1.009	1.019 0

分开始裂解,由于 C₁₄₊ SAT 组分稳定性要高于 C₁₄₊ ARO 组分,因此在低热应力(<180 °C)条件下 C₁₄₊ 组分中主要以 C₁₄₊ SAT 组分为主,缺少 C₁₄₊ NSO、C₁₄₊ ARO 组分,同时饱和烃与芳香烃比值逐渐增大.这种组分变化趋势与前人研究结果一致(McNeil and BeMent, 1996; Vandenbroucke *et al.*, 1999; Behar *et al.*, 2008).

随着热应力的持续增加, C₁₄₊ SAT、C₆₋₁₃ SAT、C₆₋₁₃ ARO 乃至 C₃₋₅ 烃类都发生了裂解.另外,固体焦沥青在较低热应力条件下就开始形成(图 3)并且持续增加,这与原油裂解实验结果一致(Hill *et al.*, 2003).可见,当地层温度<180 °C左右,原油中主要以 C₁₄₊ 以上组分裂解为主,如 C₁₄₊ NSO 组分逐渐减小直至消失,同时形成一定量的不溶于有机组分的焦沥青;当地层温度较高时(180 ~ 210 °C),原油中不仅 C₁₄₊ 以上组分甚至 C₃₋₅ 组分也开始发生裂解,形成大量的固体焦沥青和 C₁₋₅ 气态

烃,液态烃类主要以 C₆₋₁₃ ARO 组分为主.对比图 3a~图 3d 可知,相同热演化史不同类型原油裂解过程中重组分含量高的原油裂解要快些,原油裂解引起的组分变化程度比较轻组分含量多的原油来得高些.

2.2 原油裂解对油包裹体均一温度变化的主要控制因素

前人研究结果表明:一旦油包裹体组分确定,油包裹体均一温度主要取决于油包裹体的捕获温度和压力(平宏伟和陈红汉, 2011).然而,对于油包裹体内的原油裂解过程,不仅原油裂解过程中油包裹体组分发生变化,而且产生的不溶于液态烃类的焦沥青导致包裹体内原油占据的体积也发生了变化.液态烃类占据体积大小主要取决于产生的固体焦沥青体积的大小,而固体焦沥青体积大小除了取决于其生成的绝对量外,还与焦沥青密度有关.一般而言,焦沥青的密度随着热演化程度增大而增大,一般介于 1.0 ~ 1.2 g/cm³ 之间(Jacob, 1989; 张子枢, 1988).由于还没有焦沥青密度随热演化程度变化的详细数据,因此,本文分别考虑焦沥青密度为 1.0 g/cm³、1.1 g/cm³ 和 1.2 g/cm³ 3 种情况来讨论原油裂解过程对包裹体均一温度的影响.同时,考虑到初始捕获压力对油包裹体均一温度也有影响,因此本文分别设定捕获压力系数为 1.00、1.25 和 1.50 这 3 种情况下原油裂解过程对油包裹体均一温度的影响.

图 4 为油包裹体 A(表 2)分别在不同捕获压力(捕获温度均为 120 °C)、不同焦沥青密度条件下油包裹体均一温度变化图(捕获条件见表 4).由图 5 可看出,在图 2 现今地层埋深 4 500 m 热演化过程中

表 4 假设的不同埋深地层分别捕获油包裹体 A 和油包裹体 B 两种油包裹体的初始捕获温度及压力

Table 4 Assumed initial trapping temperature and pressure of oil inclusion A and B trapped at different depths

今埋藏深度 D (m)	捕获温度 T_1 ($^{\circ}\text{C}$)	捕获时间 t (Ma)	捕获深度 H (m)	捕获压力系数 P_c		
				(1.00) P_{11} (MPa)	(1.25) P_{12} (MPa)	(1.50) P_{13} (MPa)
4 500 m	120.0	40.0	2 600.0	26.78	33.48	40.17
5 755 m	117.7	43.7	2 867.0	29.53	36.91	—

注:捕获时间和捕获深度是据今埋藏深度和图 2 中热演化史确定; P_{11} 、 P_{12} 、 P_{13} 为捕获压力。

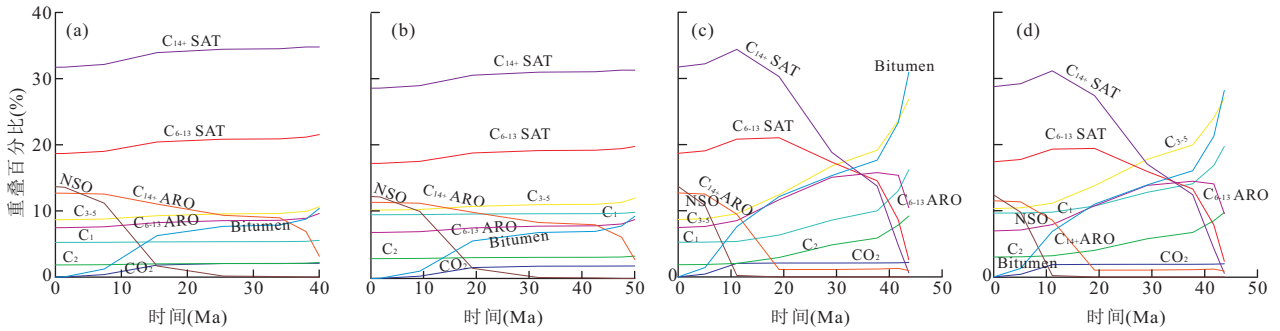


图 3 原油裂解过程油包裹体组分随时间变化

Fig.3 The composition variations of oil inclusion with the time during cracking

注:a 和 b 代表今埋深为 4 500 m 深度热演化史条件下油包裹体组分演变;c 和 d 代表今埋深为 5 755 m 深度热演化史下油包裹体组分演变;a 和 c 原油裂解初始组分为油包裹体 A;b 和 d 原油裂解初始组分为油包裹体 B

(最大地层温度小于 $180\text{ }^{\circ}\text{C}$),油包裹体初始捕获压力及焦沥青密度对原油裂解过程中油包裹体均一温度的影响,随着原油裂解过程的进行,油包裹体均一温度不是减小(Okubo,2005),相反,而是持续增大,最大均一温度变化接近 $40\text{ }^{\circ}\text{C}$ (图 4i).油包裹体初始捕获压力越高,原油裂解过程对油包裹体均一温度影响越大,如图 4a、图 4d 和图 4g 中焦沥青密度不变情况下,初始捕获压力系数由 1.0 增大为 1.5 时整个原油裂解过程中油包裹体均一温度变化由 $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 左右增大到 $30\text{ }^{\circ}\text{C}$ 左右;焦沥青密度越大,原油裂解过程对油包裹体均一温度影响也越大,如图 5a、图 5b 和图 5c 中初始捕获压力不变情况下,焦沥青密度由 1.0 增大为 1.2 时整个原油裂解过程中油包裹体均一温度变化由 $20\text{ }^{\circ}\text{C}$ 左右增大到 $30\text{ }^{\circ}\text{C}$ 左右。

图 5 为油质较轻的包裹体 B 捕获后原油裂解过程对其均一温度影响图.由图 5 可见,不同捕获压力及焦沥青密度条件下原油裂解过程中油包裹体均一温度变化范围为 $10\sim 20\text{ }^{\circ}\text{C}$ (图 6a,图 6i),只相当于同样捕获条件下油包裹体 A 裂解过程中均一温度变化范围的一半(图 4).可见,初始捕获的原油组分对原油裂解过程油包裹体均一温度变化也有较大影响,油包裹体组分越轻、成熟度越高则原油裂解过程对其均一温度影响比组分较重的、成熟度较低的

油包裹体来得小些。

原油裂解会导致油包裹体均一温度增大的主要原因在于低程度原油裂解组分主要为 C_{14+} NSO 和 C_{14+} ARO(图 3a),气态烃类生成量较少,伴随不断形成的固体焦沥青一方面消耗了液态烃类的质量,另一方面减小了液态烃所占据的体积.然而,由于焦沥青的密度要远高于液态烃类的密度,液态烃类质量减少的速度要高于液态烃类所占体积的减小速度,因此随着原油裂解进行,液态原油密度减少,即图 4 和图 5 中油包裹体等容线向右偏移,从而导致油包裹体均一温度变大.此外,在低程度原油裂解过程中,虽然原油组分变化对其 P - T 相图几乎没有影响(图 4 和图 5 中泡点线几乎重合),但对等容线变化具有较大影响,从而影响其均一温度变化.由此可见,Okubo(2005)认为 Shin-Kumoid SK-1D 井 4 040~4 810 m 范围内检测到的油包裹体均一温度随着深度增加持续减少($73\sim 33\text{ }^{\circ}\text{C}$)的趋势很可能不是由原油裂解引起,而是反映了油包裹体捕获时的古压力特征(平宏伟和陈红汉,2011).由于 Shin-Kumoid SK-1D 井 4 040~4 810 m 对应温度范围为 $135\sim 165\text{ }^{\circ}\text{C}$,根据本文研究在此温度范围内原油裂解过程会导致油包裹体均一温度逐渐增大。

2.3 原油裂解对油包裹体内压及捕获压力影响

为了进一步分析和对比原油裂解过程对油包裹

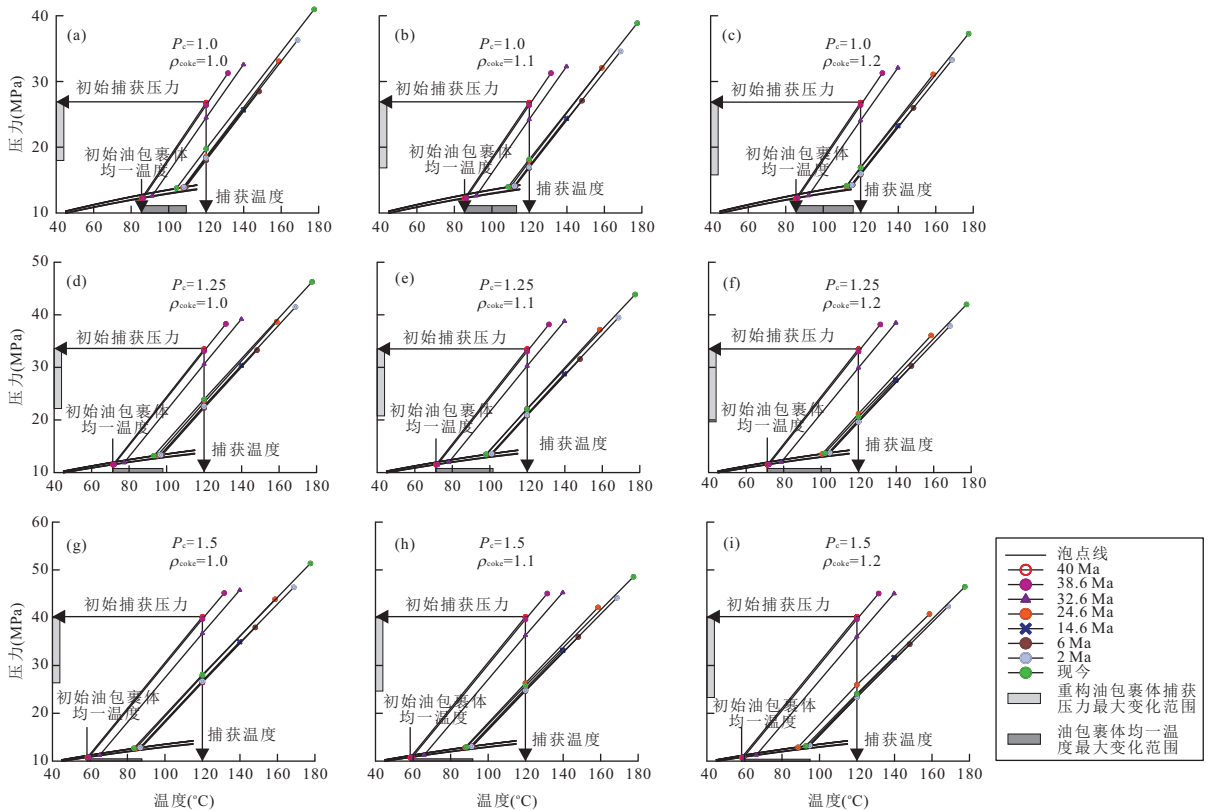


图 4 不同捕获压力和不同焦沥青密度条件下油包裹体 A(表 2)均一温度及内压随地层温度变化(油包裹体捕获后加热历史为今埋深 4 500 m 热演化史,捕获温度、深度及时间等见表 4)

Fig.4 The homogenization temperature and interior pressure variations of oil inclusion A (Table 2) with increasing of formation temperature under different trapping pressure and different coke density

体各个参数的影响,除了油包裹体均一温度(Th_{oil})、包裹体内压(P_i)和捕获压力(P_t)等参数外,我们还定义了油包裹体捕获温度与油包裹体均一温度差值($T_t - Th_{oil}$),油包裹体裂解后气泡充填度(F_v -油包裹体)以及原油裂解过程中焦沥青固体充填度(F_v -焦沥青).其中, F_v -油包裹体为室温下($20\text{ }^\circ\text{C}$)液态烃类中气泡体积占气、液态烃类总体积百分比, F_v -焦沥青为焦沥青体积占整个包裹体体积百分比.此外,为了简单起见,我们设定焦沥青的密度为其密度范围中值(1.1 g/cm^3),计算不同的初始捕获条件(表 4)以及不同类型油包裹体(表 2)在不同热演化史条件(图 2)油包裹体各个参数的变化,计算结果如图 6~图 9 所示.油包裹体 A 和油包裹体 B(表 2)分别在给定地层温度(表 4)捕获的包裹体,其均一温度大小取决于捕获压力,捕获压力越高其均一温度越小(如图 6a、图 6d 和图 6g).因此,油包裹体均一温度在某种程度上可以指示捕获时地层是否发育超压(Burruss, 2003; Pironon and Bourdet, 2008).在低程度原油裂解过程中(最大地层温

度小于 $190\text{ }^\circ\text{C}$)(图 8 和图 9),随着原油裂解进行,不管油包裹体组分如何(包裹体 A 和包裹体 B),包裹体均一温度总体上均呈增大趋势,对应 $T_t - Th_{oil}$ 、 P_i 以及 P_t 均呈减小趋势,所不同的是成熟度高的油包裹体较成熟度低的油包裹体受原油裂解影响幅度要小一些(图 6 和图 7).对于相同成熟油包裹体,不同捕获压力条件,原油裂解过程对捕获压力影响有很大差别.初始捕获压力越高则原油裂解过程对捕获压力影响越大,例如,图 6b 中初始捕获压力系数为 1.0,则原油裂解过程中重构的捕获压力最大误差有 10 MPa,而图 6h 初始捕获压力系数为 1.5,其重构的捕获压力最大误差将近 20 MPa,捕获压力绝对误差达 50%.可见,在低程度裂解阶段,原油裂解过程会导致重构的油包裹体捕获压力明显偏小.原油裂解除了对油包裹体均一温度及捕获压力影响外还对油包裹体气泡充填度(F_v -油包裹体)有较大影响.同样在低程度原油裂解阶段,随着原油裂解进行,其 F_v 也是总体呈增大趋势;同时,固体焦沥青充填度(F_v -焦沥青)也呈逐渐增大趋势.从图 6 和图

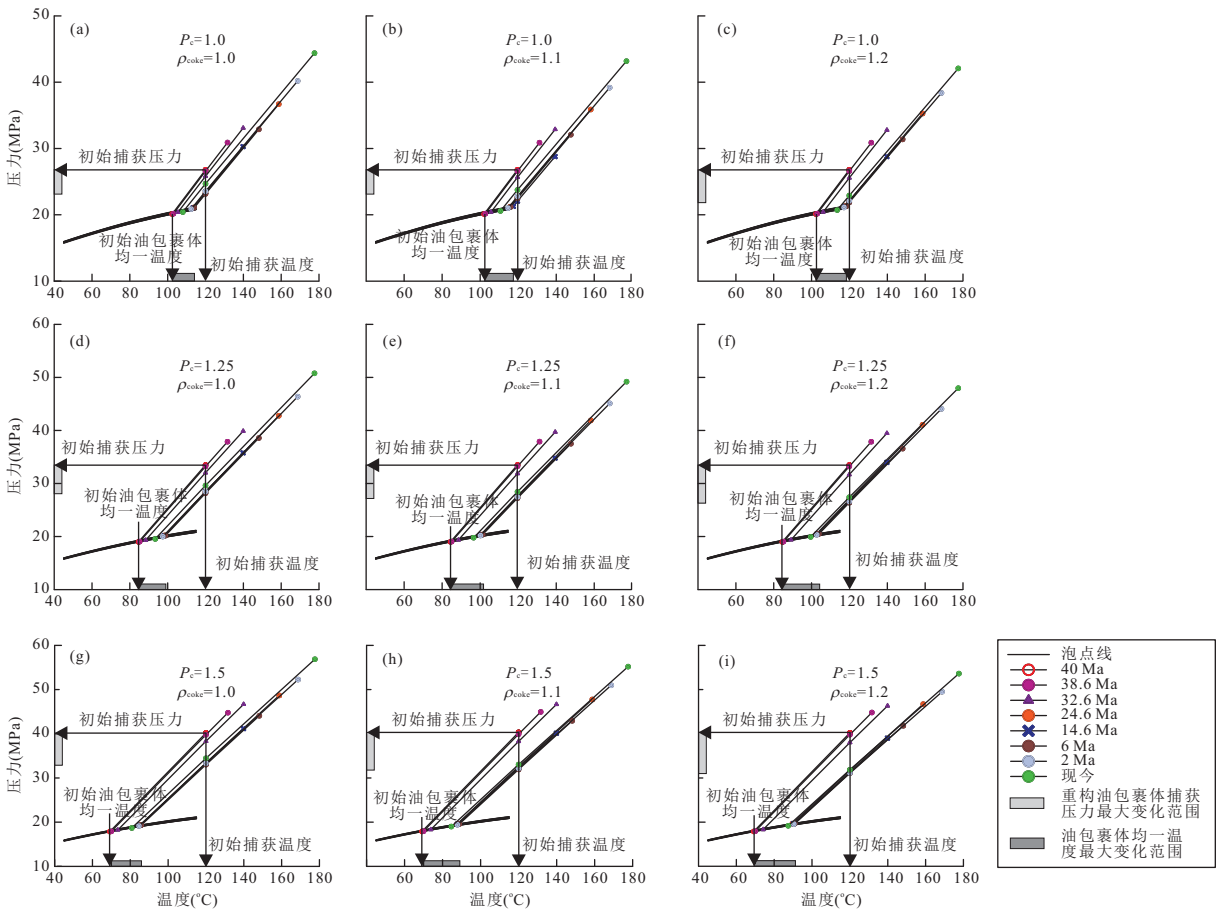


图 5 不同捕获压力和不同焦沥青密度条件下油包裹体 B (表 2) 均一温度及内压随地层温度变化 (油包裹体捕获后加热历史为今埋深 4 500 m 热演化史, 捕获温度、深度及时间等见表 4)

Fig.5 The homogenization temperature and interior pressure variations of oil inclusion B (Table 2) with increasing of the formation temperature under different trapping pressure and different coke density

7 中可以看出,当地层温度大于 140 °C 时原油裂解对油包裹体的均一温度、内压、 F_v -油包裹体、 F_v -焦沥青乃至捕获压力重构影响才开始变得明显.以东营凹陷为例,这个温度对应 3 400 m 深度 (平均地温梯度为 3.5 °C/100 m),那么对于深度大于 3 400 m 地层油包裹体进行显微测温分析时就要考虑原油裂解的影响了.

图 8 和图 9 证明在低程度原油裂解过程中随着原油裂解进行油包裹体均一温度变大,重构的捕获压力减小,然而,油包裹体捕获后经历较高程度裂解过程 (最高地层温度小于 205 °C) 中其均一温度、内压、捕获压力以及气泡充填度等参数都呈三种变化趋势: (1) 油包裹体捕获后直到地层温度达到 160 °C 左右,油包裹体均一温度呈增大趋势,对应 $T_i - Th_{oil}$ 呈减小趋势,重构的油包裹体捕获压力则相应减小,包裹体内压虽然呈增大趋势,但其对应的压力系数却呈减小趋势; (2) 当油包裹体经历地层温度大于 160 °C 以

后直到 190 °C 左右,油包裹体均一温度开始缓慢地减小,对应 $T_i - Th_{oil}$ 逐渐增大,捕获压力又开始逐渐增大到接近初始捕获压力; (3) 在地层温度为 190 ~ 205 °C 范围内,油包裹体均一温度开始急剧减小,包裹体内压快速增加到接近或者超过了静岩压力,而此时重构的捕获压力也远远超过了初始捕获压力,同时伴随着固体焦沥青充填度的持续增加,油包裹体气泡充填度则急剧减小到 0.由此可见,油包裹体只有发生较高级别的原油裂解过程 (地层温度大于 190 °C 左右) 其均一温度才会急剧减小,主要因为超过 190 °C 原油开始快速裂解,轻组分大量增加,包裹体内压急剧增大,从而对油包裹体均一温度进行较大修正.此外,如果考虑超压对原油裂解过程的抑制作用 (Al Darouich *et al.*, 2006),那么油包裹体均一温度急剧减小的门限温度可能还要更高.

2.4 油包裹体原油裂解程度识别及其地质意义

因此,将不同油包裹体组分、不同热演化史、不

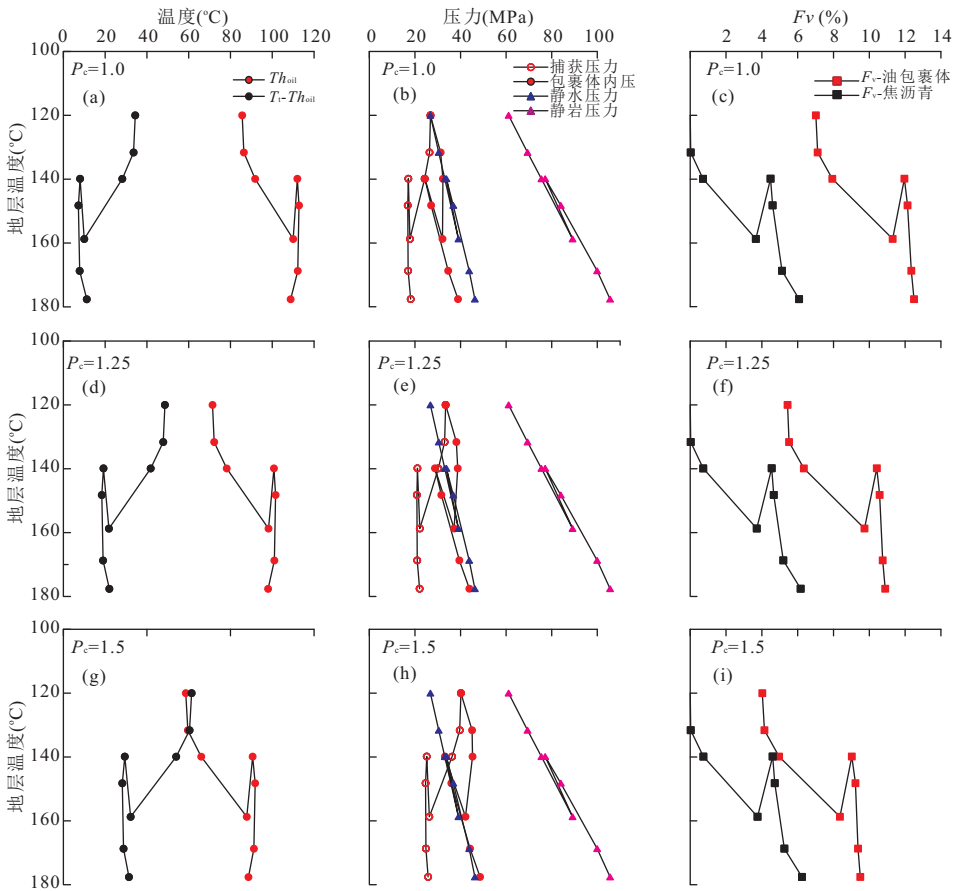


图 6 不同捕获压力条件下油包裹体 A(表 2)均一温度、内压、气泡充填度以及固体焦沥青体积比随地层温度变化(油包裹体捕获后加热历史为今埋深 4 500 m 热演化史,捕获温度、深度及时间等见表 4)

Fig.6 Variation of oil inclusion A (Table 2) homogenization temperature, interior pressure, bubble filling degree and volume percent of solid coke with increasing of formation temperature under different trapping pressures

同捕获压力条件下原油裂解过程转化率变化与油包裹体均一温度变化作交会图(图 10)发现,油包裹体均一温度变化的拐点主要受原油裂解程度控制,原油转化率小于 13%时(160 °C),原油裂解导致油包裹体均一温度增大,当原油转化率大于 13%后,原油裂解导致油包裹体均一温度减小(图 10).但由于早期原油裂解对油包裹体均一温度增大的影响,在转化率介于 13%~24%范围内(160~190 °C)时,虽然油包裹体均一温度在减小,但总体其均一温度依然大于捕获时油包裹体均一温度.当原油裂解转化率大于 24%时,油包裹体均一温度也可能大于其初始捕获时均一温度,这主要取决于其捕获时条件(捕获压力和组分)(图 10).另外,由于原油裂解过程中不断产生固体焦沥青,其占包裹体体积比(F_v -焦沥青)随着原油裂解进行持续增加, F_v -焦沥青大小主要与油包裹体初始捕获组分及热演化史有关,而与其初始捕获时的压力条件关系不大(图 11).也就是说,油包裹体组分和热演化史确定前提下,油包裹体

内 F_v -焦沥青与 T_R 呈单调正相关关系,因此,通过油包裹体 F_v -焦沥青可以指示油包裹体内原油裂解程度.反过来,再利用图 10 中 T_R 与 ΔTh 关系可以推测原油裂解过程对油包裹体均一温度进行多大的修正.此外,气侵也可以形成固体沥青,这种沥青也可以与油藏中烃类流体一起被成岩矿物捕获成流体包裹体.气侵型含沥青油包裹体在同一个流体包裹体群组(FIA)中沥青含量变化较大,从无沥青油包裹体到富沥青油包裹体可能均有分布,而原油裂解形成的含沥青油包裹体沥青含量在同一个流体包裹体群组(FIA)比较一致.

弄清原油裂解对油包裹体均一温度的影响对深层油气勘探具有重要的地质意义.首先,明确了油包裹体在高温条件下的适用范围.当地层温度超过 140 °C 以后,应用油包裹体来重构油气充注压力时,要小心,例如,油包裹体经历最高地层温度在小于 190 °C 范围,重构的古压力很可能偏小,而油包裹体经历最高地层温度大于 190 °C 范围,重构的古压力

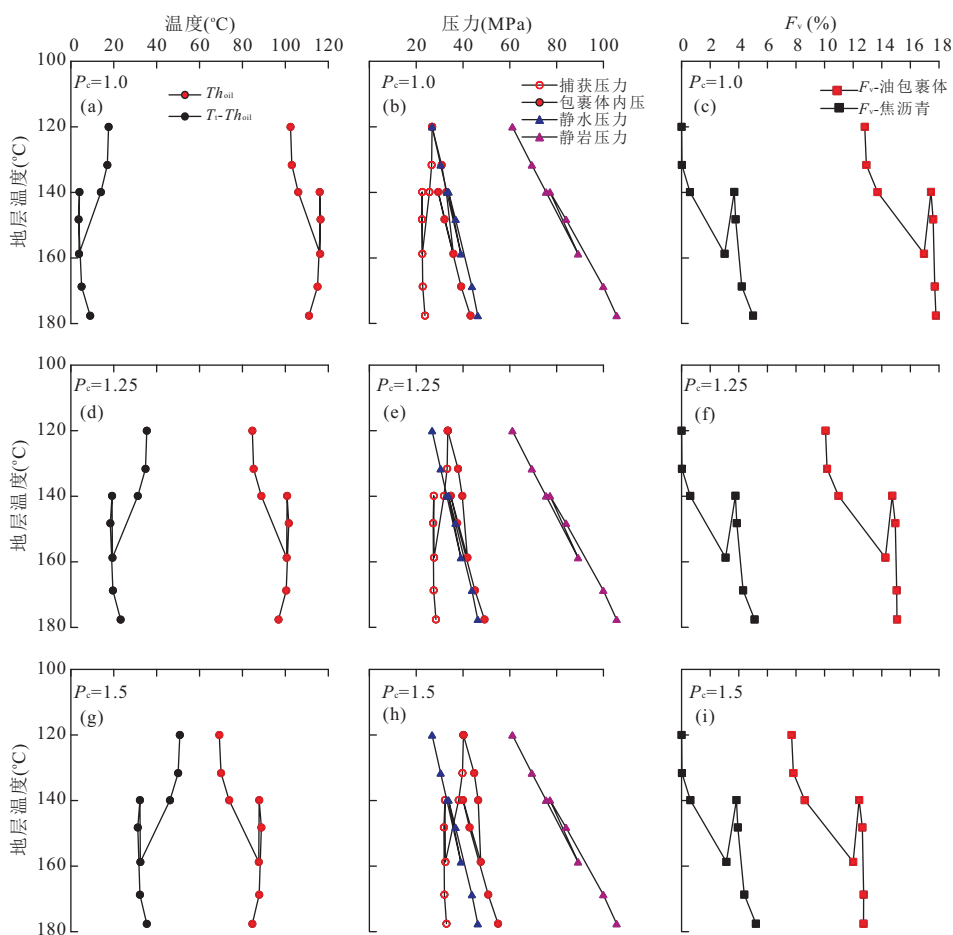


图 7 不同捕获压力条件下油包裹体 B(表 2)均一温度、内压、气泡充填度以及固体焦沥青体积比随地层温度变化(油包裹体捕获后加热历史为今埋深 4 500 m 热演化史,捕获温度、深度及时间等见表 4)

Fig.7 Variation of oil inclusion B (Table 2) homogenization temperature, interior pressure, bubble filling degree and volume percent of solid coke with increasing of formation temperature under different trapping pressures

很可能偏大,古压力变化与油包裹体均一温度变化成反比;其次,油包裹体内黑色固体沥青是判别油包裹体是否发生原油裂解的有效标志.一个流体包裹体群组(FIA)中油包裹体内原油裂解形成的固体沥青应该具有一致的体积比.固体沥青体积比越大表明油包裹体内原油裂解程度越高,而一旦发现大量固体沥青与单一液相共存的单个包裹体(不发荧光或者荧光很弱)则表明油包裹体经历了严重的原油裂解过程,油气勘探应转向以寻找古油藏二次裂解所形成的原油裂解气为主;最后,从原油裂解过程中包裹体内压变化可以得出,封闭条件下低程度裂解阶段不会形成超压反而可能形成正常压力或者低压(小于静水压力),而只有在较高程度原油裂解阶段才会形成强超压.因此,在深部油气勘探中特别是地层温度位于 160~190 °C 范围时,原油裂解气勘探应该注意常压到低压油气藏,而在高于 190 °C 地层油气勘探以找超压—超高压油气藏为主.

3 结论

(1)最初捕获的油包裹体组分、初始捕获温度和压力、包裹体捕获后经历的热史以及原油裂解产物固体焦沥青密度等多种因素控制原油裂解对油包裹体捕获后均一温度变化的影响.

(2)随着原油裂解进行,油包裹体均一温度先增大后减小,此拐点出现在 160 °C 附近,此时包裹体油 C_{6+} 以上组分转化率为 13% 左右,即转化率低于 13% 时,原油裂解导致油包裹体均一温度增大,超过 13% 时,油包裹体均一温度开始减小.当原油裂解转化率低于 24% 时,油包裹体均一温度虽然正在减小,但其减小幅度依然小于其早期增大的幅度,因此此时油包裹体均一温度相对于其初始捕获温度依然是增大的.利用油包裹体均一温度重构的古压力则主要随油包裹体均一温度变化而变化,油包裹体均

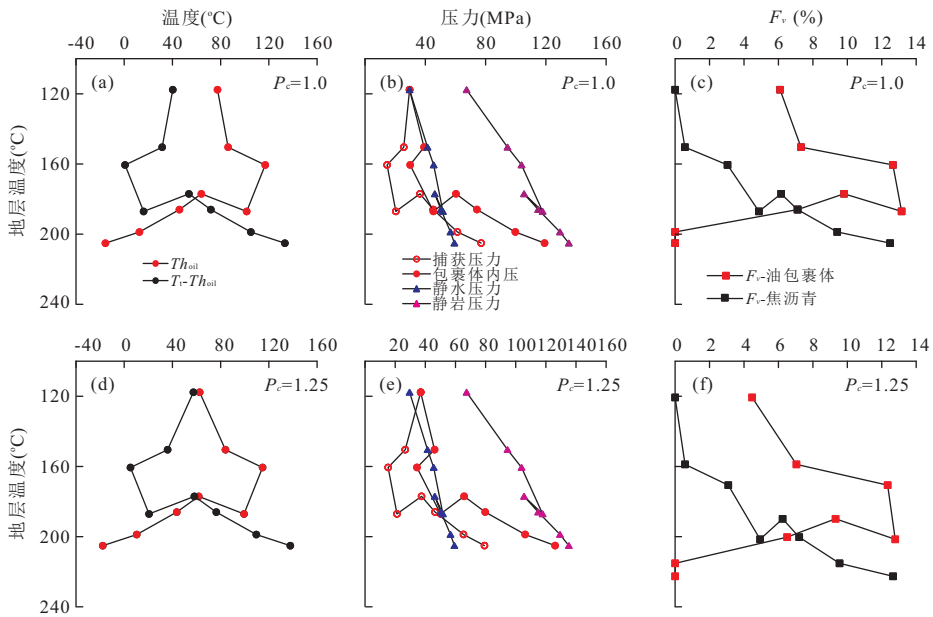


图 8 不同捕获压力条件下油包裹体 A(表 2)均一温度、内压、气泡充填度以及固体焦沥青体积比随地层温度变化(油包裹体捕获后加热历史为今埋深 5 755 m 热演化史,捕获温度、深度及时间等见表 4)

Fig.8 Variation of oil inclusion A (Table 2) homogenization temperature, interior pressure, bubble filling degree and volume percent of solid coke with increasing of formation temperature under different trapping pressure

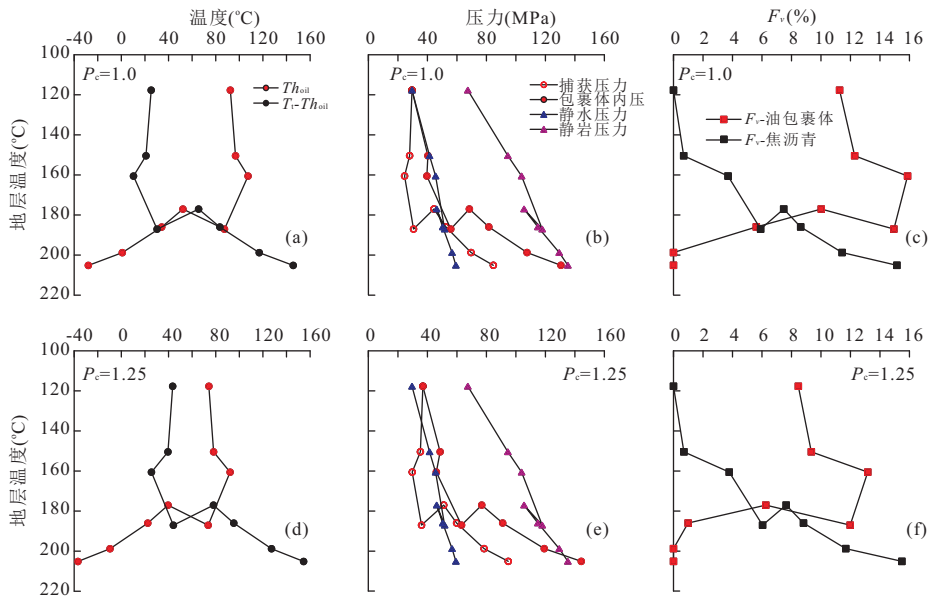


图 9 不同捕获压力条件下油包裹体 B(表 2)均一温度、内压、气泡充填度以及固体焦沥青体积比随地层温度变化(油包裹体捕获后加热历史为今埋深 5 755 m 热演化史,捕获温度、深度及时间等见表 4)

Fig.9 Variation of oil inclusion B (Table 2) homogenization temperature, interior pressure, bubble filling degree and volume percent of solid coke with increasing of formation temperature under different trapping pressure

一温度增大恢复的古压力就变小,反之则变大.总体上说,在原油裂解转化率小于 24% (<190 °C) 范围内,油包裹体均一温度大于其初始捕获时均一温度而捕获压力则小于其初始捕获压力.

(3) 利用油包裹体内焦沥青占整个包裹体体积

比可以确定油包裹体内原油裂解程度,再结合油包裹体组分可以定量判别原油裂解对油包裹体均一温度的影响程度,从而为原油裂解条件下油包裹体捕获压力重构的精度提供校正依据.

(4) 根据油包裹体原油裂解过程内压变化认为,

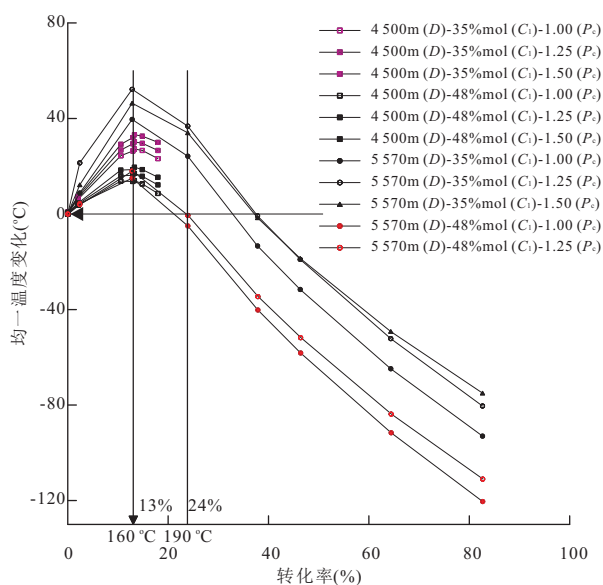


图 10 原油裂解转化率 (T_R) 与油包裹体均一温度变化 (ΔTh) 关系

Fig.10 Relationship between transformation rate (T_R) of oil cracking and homogenization temperature variation of oil inclusion (ΔTh)

注: 图例中 D 代表油包裹体捕获后经历了今埋深为 D 的热演化史, C_1 代表油包裹体捕获时甲烷摩尔含量, P_c 代表捕获时压力系数

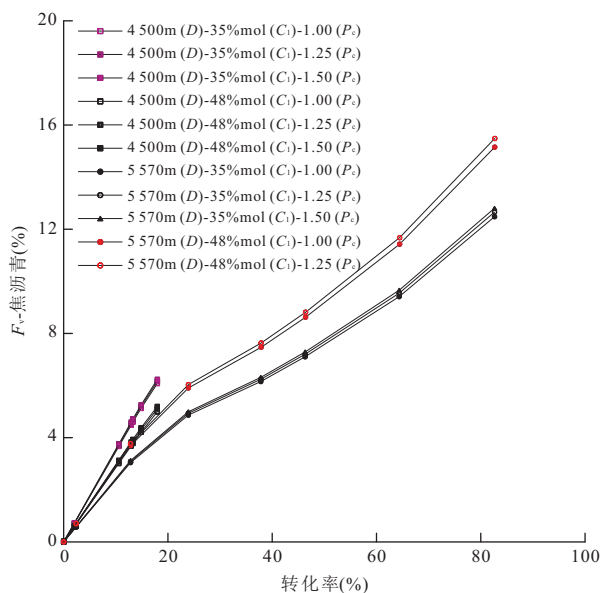


图 11 原油裂解转化率 (T_R) 与固体焦沥青体积比 (F_v -焦沥青) 关系

Fig.11 Relationship between transformation rate (T_R) of oil cracking and volume percent of solid coke (F_v -coke)

注: 图例中 D 代表油包裹体捕获后经历了今埋深为 D 的热演化史, C_1 代表油包裹体捕获时甲烷摩尔含量, P_c 代表捕获时压力系数; T_R 为初始 C_{6+} 液态烃类组分质量减去裂解过程中 C_{6+} 液态烃类组分质量的差值占初始 C_{6+} 液态烃类组分质量的百分含量

在封闭条件下低程度的原油裂解(例如,当地层温度小于 $160\text{ }^\circ\text{C}$, 转化率小于 13%)不会导致储层形成超压,相反会导致压力系数减小形成低压到常压;而较高程度的原油裂解(转化率大于 40%)才会导致地层压力急剧增大,甚至超过上覆静岩压力(转化率大于 70%)。

References

- Al Darouich, T., Behar, F., Largeau, C., 2006. Pressure Effect on the Thermal Cracking of the Light Aromatic Fraction of Safaniya Crude Oil-Implications for Deep Prospects. *Organic Geochemistry*, 37 (9): 1155 - 1169. doi: 10.1016/j.orggeochem.2006.04.004
- Aplin, A.C., Macleod, G., Larter, S.R. et al., 1999. Combined Use of Confocal Laser Scanning Microscopy and PVT Simulation for Estimating the Composition and Physical Properties of Petroleum in Fluid Inclusions. *Marine and Petroleum Geology*, 16 (2): 97 - 110. doi: 10.1016/S0264-8172(98)00079-8
- Behar, F., Kressmann, S., Rudkiewicz, J.L., et al., 1992. Experimental Simulation in a Confined System and Kinetic Modelling of Kerogen and Oil Cracking. *Organic Geochemistry*, 19 (1-3): 173 - 189. doi: 10.1016/0146-6380(92)90035-V
- Behar, F., Lorant, F., Mazeas, L., 2008. Elaboration of a New Compositional Kinetic Schema for Oil Cracking. *Organic Geochemistry*, 39 (6): 764 - 782. doi: 10.1016/j.orggeochem.2008.03.007
- Bourdet, J., Pironon, J., Levresse, G., et al., 2010. Petroleum Accumulation and Leakage in a Deeply Buried Carbonate Reservoir, Nispero Field (Mexico). *Marine and Petroleum Geology*, 27(1): 126 - 142. doi: 10.1016/j.marpetgeo.2009.07.003
- Burruss, R.C., 2003. Petroleum Fluid Inclusions, an Introduction. In: Samson, I., Anderson, A., Marshall, D., eds., *Fluid Inclusions: Analysis and Interpretation*. Mineral. Assoc. Can., Toronto, 159 - 174.
- Chen, H., Ping, H., Zhao, Y., 2009. Effects of Oil Inclusion Homogenization Temperatures and Their Geological Meanings. *Journal of Geochemical Exploration*, 101 (1): 25. doi: 10.1016/j.gexplo.2008.12.071
- Hantschel, T., Kauerauf, A.I., 2009. *Fundamentals of Basin and Petroleum Systems Modeling*. Springer, Berlin.
- Hill, R.J., Tang, Y., Kaplan, I.R., 2003. Insights into Oil Cracking Based on Laboratory Experiments. *Organic Geochemistry*, 34 (12): 1651 - 1672. doi: 10.1016/S0146-6380(03)00173-6
- Horsfield, B., Schenk, H.J., Mills, N. et al., 1992. An Investigation

- of the In-Reservoir Conversion of Oil to Gas; Compositional and Kinetic Findings from Closed-System Programmed-Temperature Pyrolysis. *Organic Geochemistry*, 19(1-3): 191-204. doi: 10.1016/0146-6380(92)90036-W
- Jacob, H., 1989. Classification, Structure, Genesis and Practical Importance of Natural Solid Oil Bitumen ("Migrabitumen"). *International Journal of Coal Geology*, 11(1): 65-79. doi: 10.1016/0166-5162(89)90113-4
- Kuo, L. C., Eric Michael, G., 1994. A Multicomponent Oil-Cracking Kinetics Model for Modeling Preservation and Composition of Reservoired Oils. *Organic Geochemistry*, 21(8-9): 911-925. doi: 10.1016/0146-6380(94)90050-7
- McNeil, R. I., BeMent, W. O., 1996. Thermal Stability of Hydrocarbons; Laboratory Criteria and Field Examples. *Energy & Fuels*, 10(1): 60-67. doi: 10.1021/ef9501399
- Munz, I. A., Wangen, M., Girard, J. P., et al., 2004. Pressure-Temperature-Time-Composition (P-T-t-X) Constraints of Multiple Petroleum Charges in the Hild Field, Norwegian North Sea. *Marine and Petroleum Geology*, 21(8): 1043-1060. doi: 10.1016/j.marpetgeo.2004.05.006
- Okubo, S., 2005. Effects of Thermal Cracking of Hydrocarbons on the Homogenization Temperature of Fluid Inclusions from the Niigata Oil and Gas Fields, Japan. *Applied Geochemistry*, 20(2): 255-260. doi: 10.1016/j.apgeochem.2004.09.001
- Peng, D., Robinson, D., 1976. A New Two-Constant Equation of State. *Industrial & Engineering Chemistry Research Fundamentals*, 15(1): 59-64. doi: 10.1021/i160057a011
- Ping, H. W., Chen, H. H., 2011. Main Controlling Factors on Oil Inclusion Homogenization Temperatures and Their Geological Significance. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 36(1): 131-138 (in Chinese with English abstract).
- Ping, H. W., Chen, H. H., Song, G. Q., et al., 2012. Accumulation History of the Deeply Buried Condensate Reservoir in Minfeng Sag of the Northern Dongying Depression and Its Exploration Significance. *Acta Petrolei Sinica*, 33(6): 970-977 (in Chinese with English abstract).
- Ping, H. W., Chen, H. H., Thiéry, R., 2013. Improvement on Paleopressure Prediction Using Petroleum Inclusions Thermodynamic Modeling: Saturation Pressure Prediction and Volume Calibration. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 38(1): 143-155 (in Chinese with English abstract).
- Ping, H. W., Thiéry, R., Chen, H. H., 2011. Thermodynamic Modelling of Petroleum Inclusions: The Prediction of the Saturation Pressure of Crude Oils. *Geofluids*, 11(3): 328-340. doi: 10.1111/j.1468-8123.2011.00343.x
- Pironon, J., Bourdet, J., 2008. Petroleum and Aqueous Inclusions from Deeply Buried Reservoirs; Experimental Simulations and Consequences for Overpressure Estimates. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72(20): 4916-4928. doi: 10.1016/j.gca.2008.07.019
- Roedder, E., 1984. Fluid Inclusions: Reviews in Mineralogy. Mineralogical Society of America, Washington, 646.
- Thiéry, R., Pironon, J., Walgenwitz, F., et al., 2002. Individual Characterization of Petroleum Fluid Inclusions (Composition and P-T Trapping Conditions) by Microthermometry and Confocal Laser Scanning Microscopy: Inferences from Applied Thermodynamics of Oils. *Marine and Petroleum Geology*, 19(7): 847-859. doi: 10.1016/S0264-8172(02)00110-1
- Tsuzuki, N., Takeda, N., Suzuki, M., et al., 1999. The Kinetic Modeling of Oil Cracking by Hydrothermal Pyrolysis Experiments. *International Journal of Coal Geology*, 39(1-3): 227-250. doi: 10.1016/S0166-5162(98)00047-0
- Ungerer, P., Behar, F., Villalba, M., et al., 1988. Kinetic Modelling of Oil Cracking. *Organic Geochemistry*, 13(4-6): 857-868. doi: 10.1016/0146-6380(88)90238-0
- Vandenbroucke, M., Behar, F., Rudkiewicz, J. L., 1999. Kinetic Modelling of Petroleum Formation and Cracking; Implications from the High Pressure/High Temperature Elgin Field (UK, North Sea). *Organic Geochemistry*, 30(9): 1105-1125. doi: 10.1016/S0146-6380(99)00089-3
- Zhang, Z. S., 1988. Pyrobitumen and Measurement of Its Reflectivity. *Xinjiang Petroleum Geology*, 9(2): 24-29 (in Chinese).
- Zhao, Y. J., Chen, H. H., 2008. The Relationship between Fluorescence Colors of Oil Inclusions and Their Maturities. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 33(1): 91-96 (in Chinese with English abstract).

附中文参考文献

- 平宏伟, 陈红汉, 2011. 影响油包裹体均一温度的主要因素及其地质涵义. *地球科学——中国地质大学学报*, 36(1): 131-138.
- 平宏伟, 陈红汉, Thiéry, R., 2013. 石油包裹体热动力学模拟古压力改进: 饱和和压力预测和体积校正. *地球科学——中国地质大学学报*, 38(1): 143-155.
- 平宏伟, 陈红汉, 宋国奇, 等, 2012. 东营凹陷北带民丰洼陷深部凝析油藏成藏史及其勘探意义. *石油学报*, 33(6): 970-977.
- 张子枢, 1988. 焦沥青及其反射率的测定. *新疆石油地质*, 9(2): 24-29.
- 赵艳军, 陈红汉, 2008. 油包裹体荧光颜色及其成熟度关系. *地球科学——中国地质大学学报*, 33(1): 91-96.

《地球科学学刊》(英文版)2014 年 6 月第 25 卷第 3 期要目预告

- Permian-Triassic Conodonts from Dajiang (Guizhou, South China) and Their Implication for the Age of Microbialite Deposition in the Aftermath of the End-Permian Mass Extinction
 *Haishui Jiang, Xulong Lai, Yadong Sun, Paul B Wignall, Jianbo Liu and Chunbo Yan*
- Boron Isotopic Fractionation and Trace Element Incorporation in Various Species of Modern Corals in Sanya Bay, South China Sea *Haizhen Wei, Shaoyong Jiang, Yingkai Xiao and N Gary Hemming*
- Petrogenesis of Granites from the Utla Area of Gadoon, North-West Pakistan;
 Implications from Petrography and Geochemistry *Muhammad Sajid, Mohammad Arif and M Tahir Shah*
- Geochemistry of Rare Earth Elements (REE) in the Weathered Crusts from the Granitic Rocks in Sulawesi Island, Indonesia *Adi Maulana, Kotaro Yonezu and Koichiro Watanabe*
- Zircon SHRIMP U-Pb Dating, Geochemical Characteristics and Tectonic Significance of Granitic Gneisses in Amdo, Tibet
 *Lu Lu, Zhenhan Wu, Zhen Zhao, Daogong Hu and Peisheng Ye*
- Distribution and Geochemical Characteristics of Fluids in Ordovician Marine Carbonate Reservoirs of the Tahe Oilfield
 *Mei Li, Zhanghua Lou, Rong Zhu, Aimin Jin and Ying Ye*
- Formation of a Hydrothermal Kaolinite Deposit from Rhyolitic Tuff in Jiangxi, China
 *Ye Yuan, Guanghai Shi, Mengchu Yang, Yinuo Wu, Zhaochong Zhang, Anjie Huang and Jiajing Zhang*
- Sedimentary Characteristics and Model of Gravity Flow Depositional System for the First Member of Upper Miocene Huangliu Formation in Dongfang Area, Yinggehai Basin, Northwestern South China Sea
 *Ming Sun, Hua Wang, Jihua Liao, Huajun Gan, Jun Xiao, Jinfeng Ren and Shu'e Zhao*
- Numerical Approach for Thermal History Modelling in Multi-Episodic Rifting Basins
 *Bo Kang, Xinong Xie and Tao Cui*
- Lithological Discrimination of the Mafic-Ultramafic Complex, Huitongshan, Beishan, China: Using ASTER Data
 *Lei Liu, Jun Zhou, Dong Jiang, Dafang Zhuang and Lamin R Mansaray*
- A New Method of Multi-Scale Geologic Modeling and Display
 *Yongliang Bai, Zhan Liu, Lanfa Liu, Roger Mason and Huangbing Hu*
- Representation and Organization for Spatial Data in LBS *Yanhui Wang and Yue Li*
- Development and Application of a Regional Land Subsidence Model for the Plain of Tianjin
 *Yali Cui, Chen Su, Jingli Shao, Yabin Wang and Xiaoyuan Cao*
- Evolution of Groundwater Major Components in the Hebei Plain: Evidences from 30-year Monitoring Data
 *Yanhong Zhan, Huaming Guo, Yu Wang, Ruimin Li, Chuntang Hou, Jingli Shao and Yali Cui*
- Applicability of Artificial Recharge of Groundwater in the Yongding River Alluvial Fan in Beijing through Numerical Simulation *Qichen Hao, Jingli Shao, Yali Cui and Zhenhua Xie*
- Combined Use of Multivariate Statistical Analysis and Hydrochemical Analysis for Groundwater Quality Evolution: A Case Study in North Chain Plain *Rong Ma, Jiansheng Shi, Jichao Liu and Chunlei Gui*
- Mechanics of Aquitard Drainage by Aquifer-System Compaction and Its Implications for Water-Management in the North China Plain *Chen Su, Zongyu Chen, Jiang Chen, Yuhong Fei, Jingsheng Chen and Baoqian Duan*
- Sustainability of Intensively Exploited Aquifer Systems in the North China Plain: Insights from Multiple Environmental Tracers *Aina Su, Zongyu Chen, Jun Liu and Wen Wei*
- Response of Groundwater to Climate Change under Extreme Climate Conditions in North China Plain
 *Ying Zhang, Jincui Wang, Jihong Jing and Jichao Sun*