

下扬子区海相古生界高成熟烃源岩评价指标的优选

赵青芳^{1,2}, 王建强^{1,2}, 陈建文^{1,2}, 赵有道³, 董贺平^{1,2}, 张银国^{1,2}, 梁杰^{1,2}

ZHAO Qingfang^{1,2}, WANG Jianqiang^{1,2}, CHEN Jianwen^{1,2}, ZHAO Youdao³, DONG Heping^{1,2},
ZHANG Yinguo^{1,2}, LIANG Jie^{1,2}

1. 中国地质调查局青岛海洋地质研究所, 山东 青岛 266071;

2. 海洋国家实验室海洋矿产资源评价与探测技术功能实验室, 山东 青岛 266071;

3. 青海油田公司采油五厂, 青海 海西州 816499

1. Qingdao Institute of Marine Geology, CGS, Qingdao 266071, Shandong, China;

2. Laboratory for Marine Mineral Resource, Qingdao National Laboratory for Marine Science and Technology, Qingdao 266071, Shandong, China;

3. PetroChina Qinghai Oilfield Company Five Oil Production Factory, Haixizhou 816499, Qinghai, China

摘要:以下扬子区陆域2口地质浅钻及南黄海科学钻探CSDP-2井的古生界烃源岩样品为研究对象,采用有机岩石学和有机地球化学研究方法,对下扬子区海相古生界烃源岩有机质丰度、类型及成熟度的测试指标进行厘定,判识烃源岩评价指标参数的有效性,从而建立一套适合该区热演化程度高,达到高-过成熟烃源岩的评价指标体系。综合分析认为,基于常规烃源岩评价指标(氯仿沥青“A”,热解生烃潜量(S_1+S_2)、氢指数(HI)和常规生标参数等)已失效的情况下,可采用总有机碳含量、有机显微组分和干酪根碳同位素特征、“沥青反射率”和金刚烷参数分别作为下扬子区古生界烃源岩有机质丰度、类型和成熟度判识的优选组合指标,进而为下扬子区海域延伸部分南黄海盆地的海相古生界高成熟烃源岩的评价、指标参数的选择提供重要的参考和指导。

关键词:评价指标;海相烃源岩;高成熟;南黄海盆地;下扬子区

中图分类号:P534.4;P618.130.2⁺7 **文献标志码:**A **文章编号:**1671-2552(2021)02/03-0330-11

Zhao Q F, Wang J Q, Chen J W, Zhao Y D, Dong H P, Zhang Y G, Liang J. Optimization of evaluation index of Paleozoic high mature marine source rock in the Lower Yangze region. *Geological Bulletin of China*, 2021, 40(2/3): 330-340

Abstract: With organic petrology and organic geochemistry as the method, based on the analysis of the Palaeozoic hydrocarbon source rock samples from two shallow drillings in the Lower Yangtze and well CSDP-2 in the south Yellow Sea, the organic matter abundance, type and maturity test of marine Paleozoic hydrocarbon source rocks in the Lower Yangtze area are determined to judge the validity of the hydrocarbon source rock evaluation parameters and to finally establish an assessment indicator system suitable for the high thermal evolution and matured hydrocarbon source rock area. Comprehensive analysis suggests that due to failure of the conventional source rock evaluation indexes (such as chloroform bitumen “A”, pyrolysis hydrocarbon generation potential and hydrogen index), the content of organic carbon, organic micro-components and kerogen carbon isotopic composition, “bitumen reflectance” and double adamantane can be respectively used as effective indicator index of organic matter abundance, type and maturity of Paleozoic marine

收稿日期:2020-04-30; **修订日期:**2020-12-25

资助项目:国家自然科学基金项目《南黄海崂山隆起中南部海底渗漏烃类源区示踪与运移路径重建》(批准号:41776075)、国家海洋地质专项(编号:DD20160147、DD20160152、DD20190818)、山东省基金项目《南黄海盆地崂山隆起海底烃类渗漏成因及其三维模型构建》(编号:ZR2019BD067)、山东省自然科学基金面上项目《南黄海盆地崂山隆起石炭系油气保存条件的主控因素分析》(编号:ZR2020MD071)、国家自然科学基金项目《南黄海崂山隆起二叠系储层油气成藏破坏与流体演化过程还原研究》(批准号:42076220)

作者简介:赵青芳(1980-),女,硕士,高级工程师,从事海洋油气地球化学方面的研究。E-mail:zqingfang@mail.cgs.gov.cn

通信作者:王建强(1985-),男,博士,高级工程师,从事盆地分析及油气地质方面的研究。E-mail:wangjianqiang163@163.com

source rock in the Lower Yangtze region. The research results can provide important reference and guiding for the evaluation of Paleozoic highly mature hydrocarbon source rocks and the selection of index parameters in the South Yellow Sea Basin known as the marine extension of the Lower Yangtze area.

Key words: evaluation parameter; marine source; high mature; South Yellow Sea Basin; Lower Yangtze region

烃源岩是油气生成的物质基础,也是含油气系统的重要组成要素之一。烃源岩的评价对油气勘探开发工作具有重要的指导意义。烃源岩评价不仅是油气地球化学的重要研究部分,还是油气成因分类和评价、预测油气资源的主要内容之一。目前,许多学者^[1-6]对于下扬子区古生界的各套烃源岩给出了定性的结论,具体指出了有机质丰度的高、较高等级别;有机质类型为腐殖型、腐泥型、混合型;有机质成熟度的分布范围及所达到的热演化阶段,如未成熟、成熟、过成熟等阶段。然而,针对烃源岩有机质丰度、类型及成熟度的评价指标参数和有效性,并未进行详细论述,给下扬子区海相古生界烃源岩在海域和陆域上的横向对比带来了一定的困难。南黄海盆地是下扬子板块的海域延伸部分(图 1),也是其主体^[7]。目前在南黄海盆地中,仅有 5 口探井钻遇了古生代地层,因而选择合适的

指标参数对于南黄海盆地海相古生界高成熟烃源岩的准确评价尤为重要。

随着石油勘探理论的深入和研究方法的日新月异,对烃源岩的评价方法也日渐增多,由单一指标参数到多元化的应用^[8-9],各指标参数间进行了互相佐证和有益补充,彰显出对烃源岩有机质丰度、类型和成熟度判识的论据更加充分且有效。然而,目前对于高-过成熟烃源岩评价指标的选择具有一定难度。一是有机质热演化程度高,常规的烃源岩评价测试指标多已失效;二是对于研究区下古生界缺乏陆源高等植物的有机质,利用显微镜观测有机质显微组分——镜质体测定烃源岩的成熟度并不现实。因而,需对下扬子区(含海域延伸部分)古生界高成熟烃源岩的评价指标进行重新厘定。

上、下扬子区古生界普遍存在 3 套区域性的烃源岩(图 2),分别为下寒武统幕府山组(牛蹄塘组/

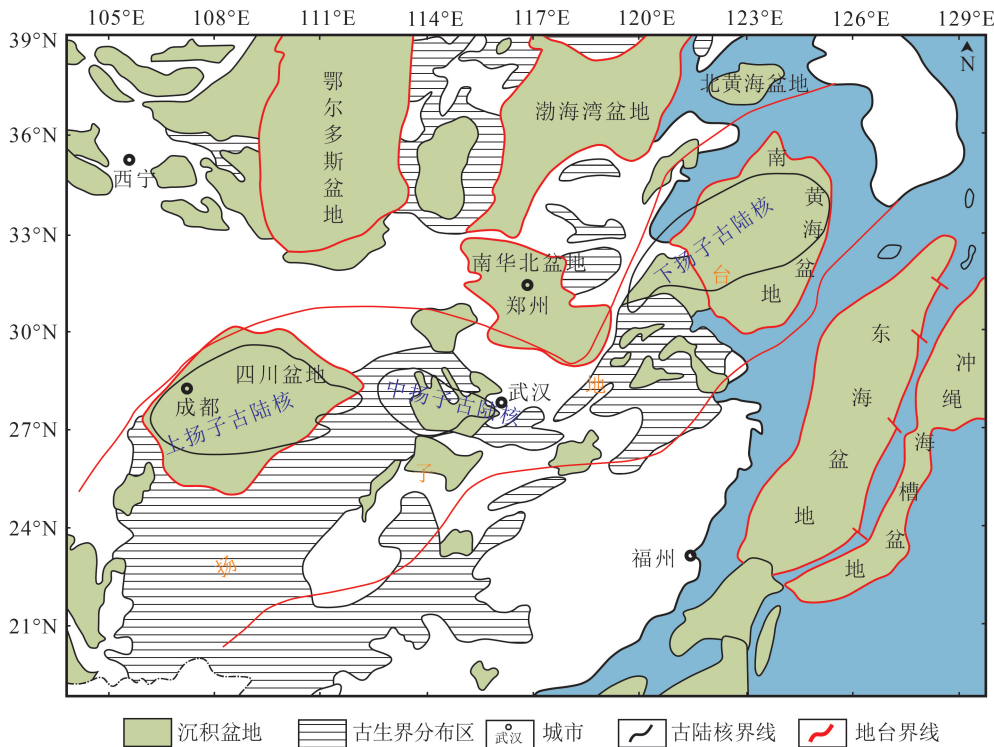


图 1 南黄海盆地构造位置(据参考文献[7]修改)

Fig. 1 Tectonic map of the South Yellow Sea Basin

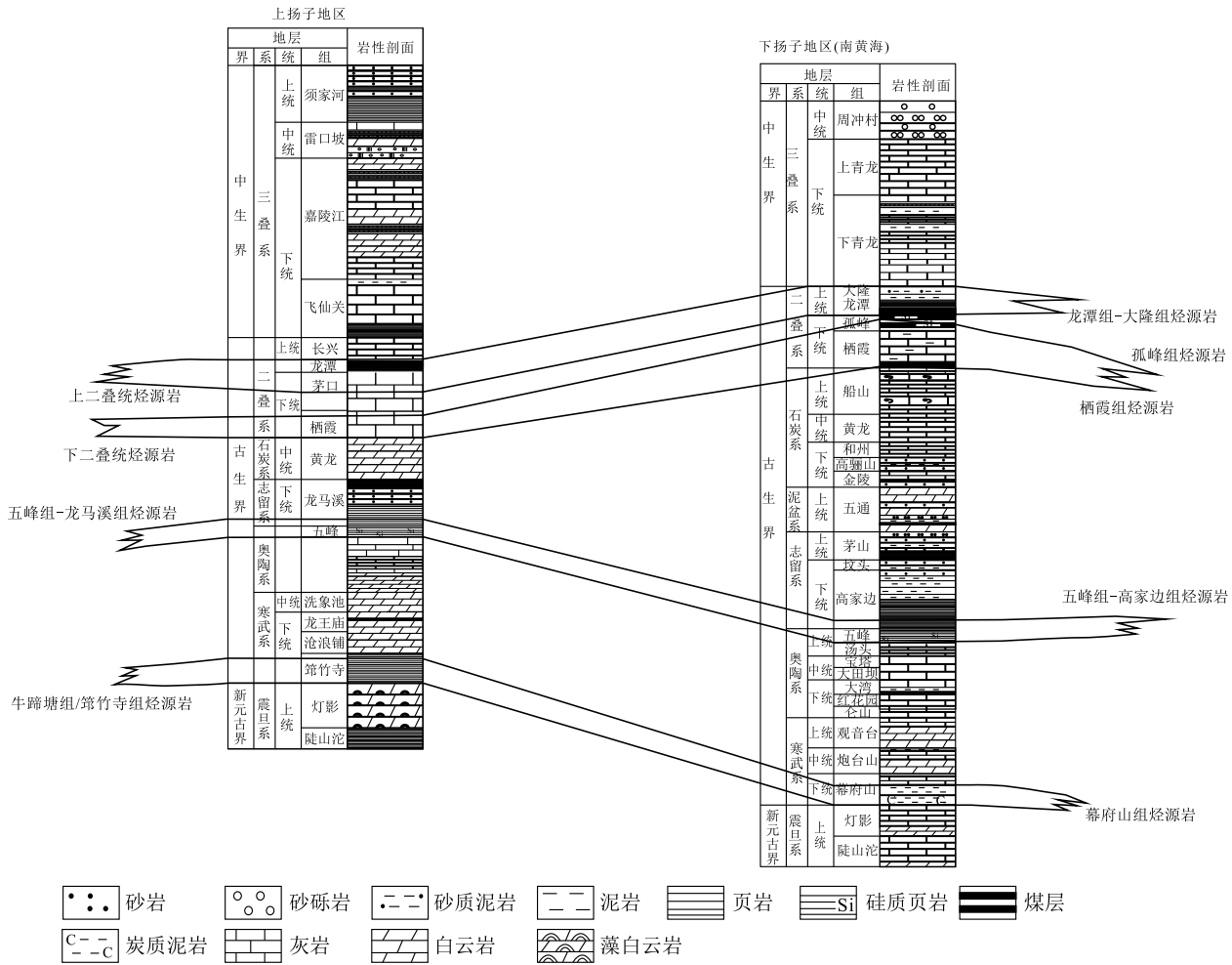


图 2 扬子地区海相烃源岩发育状况示意图

Fig. 2 Schematic diagram of marine source rocks in Yangtze region

筓竹寺组)、上奥陶统五峰组一下志留统高家边组(五峰组—龙马溪组)、上二叠统龙潭组—大隆组和下二叠统孤峰组—栖霞组(茅口组/栖霞组),基于近 2 年来开展的下扬子区陆域野外地质考察工作,在苏、皖开展了 2 口地质浅钻,分别获得了下寒武统幕府山组和下志留统高家边组烃源岩的岩心样品,并采集了南黄海盆地钻遇地层最深的科学钻探 CSDP-2 井下三叠统青龙组—高家边组顶部的岩心样品。本文通过对古生界 3 套烃源岩进行多项指标的有机地球化学和有机岩石学的分析测试,针对各项测试结果,进行综合分析和测试指标的优选,由此建立了下扬子区海相古生界烃源岩评价指标体系,对南黄海盆地海相高成熟烃源岩的评价具有重要的指导意义,为进一步的油气勘探工作提供了数据支撑。

1 烃源岩样品采集

通过地震资料解释、野外露头剖面及钻井揭示得知,上、下扬子区中—古生界普遍存在 3 套区域性的烃源岩,分别为下寒武统幕府山组、上奥陶统五峰组一下志留统高家边组和上二叠统一下二叠统烃源岩。为了获取一套完整的海相古生界烃源岩样品,经下扬子陆域的野外地质勘察发现,下扬子区下寒武统幕府山组暗色泥岩分布较广(图 3-a),野外露头中见黑色页岩(图 3-b);安徽滁州全椒地区出露下寒武统硅质泥岩(图 3-c),局部含炭质泥岩;下志留统高家边组露头见厚层灰色、黑色页岩(图 3-d)。

因露头样品经历了强烈的风化和淋滤作用,难以保存烃源岩原始有机质,需要新鲜且未被淋滤风化过的样品。对研究区目的层进行选址,分别在

苏、皖开展了一口地质浅钻,获取了下扬子区下古生界的2套海相烃源岩样品,分别为XY1井下寒武统幕府山组灰色页岩、黑色炭质页岩夹石煤层的岩心样品5块和CH1井上奥陶统五峰组一下志留统高家边组灰色泥岩、灰黑色—黑色泥页岩、黑色炭质泥岩的岩心样品5块。

目前,科学钻探CSDP-2井为南黄海盆地钻遇地层最深的探井,同时也是全球海洋科钻全取心最深的井^[10],该井钻遇下古生界下志留统高家边组,未钻穿。上二叠统龙潭组主要由黑色泥岩、黑色煤层、灰色粉—细砂岩组成,见丰富的炭质植物碎屑和水平层理;上二叠统大隆组岩性整体为上部灰绿色泥岩,下部灰黑色泥岩、泥质粉砂岩夹页岩和角砾岩,可见大量植物碎屑及菊石、腹足类化石;下二叠统栖霞组主体为灰色—灰黑色钙质泥岩(图4)。通过现场岩心观察,采集了上二叠统大隆组、龙潭组和下二叠统栖霞组颜色较深的岩心样品进行分析研究。

2 分析测试

岩心样品经清洗泥浆或挑样后,进行了72 h有机质的索氏抽提和干酪根镜检样品的制备等准备工作,然后开展有机地球化学和有机岩石学的各项指标测定,测试实验项目包括总有机碳含量(TOC)、岩石热解分析、氯仿沥青“A”、有机显微组分、成熟度 R_o 、饱和烃和芳烃色谱-质谱的定量分析及干酪根碳同位素,实验分析测试由长江大学地球化学实验室进行。

2.1 总有机碳含量(TOC)

将样品研磨200目以下,加酸去除碳酸盐等无机碳成分,再用50℃的烘箱进行烘干称重。随后对经前处理的样品粉末进行总有机碳含量分析,使用碳硫分析仪CS230PCHC进行测定。

2.2 岩石热解分析

首先把粉碎的样品(80~100目)称量100 mg放入热解坩埚内,采用升温程序:由室温升温至90℃和300℃,恒温2 min,分别检测气态烃 S_0 峰和液态烃 S_1 峰;然后以25℃/min的升温速率增温至600℃,检测热解烃 S_2 峰,并记录最高峰所对应的温度(T_{max});随后样品在氧化炉内以600℃条件燃烧5 min,由检测器鉴定 S_4 峰。

2.3 氯仿沥青“A”含量

采用索氏抽提法提取烃源岩样品中的有机质。

把滤纸包好的样品装入抽提器样品室中,底瓶中加入提纯的三氯甲烷和数块用于脱硫的铜片,在小于或等于70℃的水温中加热、抽提72 h,经旋转蒸馏后恒重。

2.4 有机显微组分及成熟度 R_o 值

首先将不少于5 g的烃源岩样品粉碎至1~2 mm,用粘结剂制做光片,磨料、抛光,将待测光片置于载物台上进行鉴定测试。显微组分测定按照点距将全片进行定量统计,成熟度 R_o 检测点至少20个以上,使用显微光度计MPV-SP进行烃源岩显微组分和成熟度 R_o 的测定。

2.5 饱和烃、芳烃色谱-质谱(GC-MS)分析测试

使用美国Agilent公司生产的6890GC/5975MSD台式质谱仪对饱和烃及芳烃馏分中的生物标志进行分离鉴定。色谱柱为HP-5ms(30 m×0.25 mm×0.25 μm)。升温程序:升温50℃,恒温1 min;再从50℃以20℃/min的速率升至100℃,然后以3℃/min的速率升至315℃,恒温17 min;进样器温度为300℃,采用脉冲部分进样模式。载气为氦气,流速为1 mL/min。质谱为EI电离方式,电子能力为70 eV。以全扫描/多离子的方式采集数据。

2.6 干酪根碳同位素测试

干酪根稳定碳同位素使用的仪器为Ginnigan MAT-252,运用Flash EA-ConFlo.-irmMSD方法测定。反应炉温度为980℃,色谱柱温度为50℃,载气流量为300 mL/min,吹扫气流量为200 mL/min,注氧量为175 L/min。

3 结果

3.1 有机碳含量分布特征

有机碳含量指岩石中有机质的碳含量与岩石总重量的相对比值。下扬子区3套海相古生界烃源岩岩心样品的TOC实测结果(表1)显示:XY1井下寒武统幕府山组(e_1m)烃源岩TOC分布区间为1.04%~3.35%,平均值1.97%;CH1井上奥陶统五峰组一下志留统高家边组(O_3w-S_1g)烃源岩TOC含量分布范围为0.66%~3.19%,平均值1.53%;CSDP-2井上二叠统龙潭组(P_2l)海相烃源岩有机碳含量分布于1.11%~1.39%之间,平均值1.24%。从表1数据可以看出,3套海相烃源岩的有机碳含量基本大于1%,表现出好—很好的烃源岩特征,有机质丰度高,具有较高的生烃潜力。

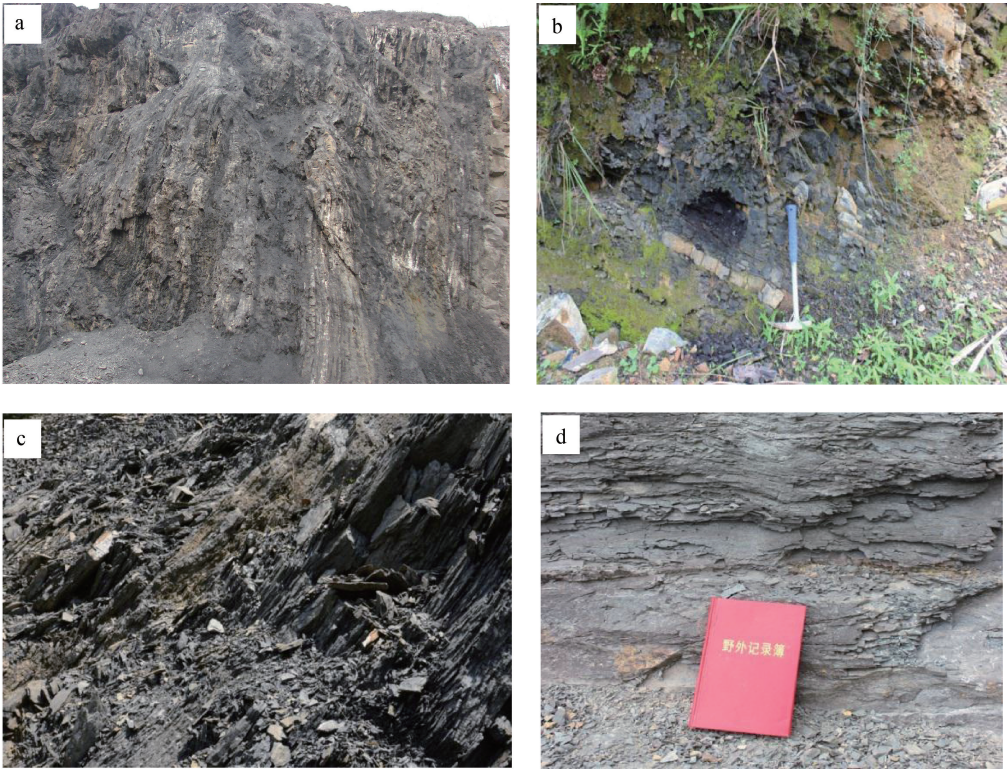


图 3 下扬子区古生界烃源岩典型露头照片

Fig. 3 Typical photos of outcropped Paleozoic source rocks in the Lower Yangtze region

a—南京地区下寒武统幕府山组炭质泥岩;b—浙江江山新塘坞—碓边剖面下寒武统底部硅质岩和深灰色—黑色页岩互层;
c—安徽滁州全椒地区下寒武统幕府山组硅质页岩;d—巢湖狮子口高家边组灰黑色泥页岩

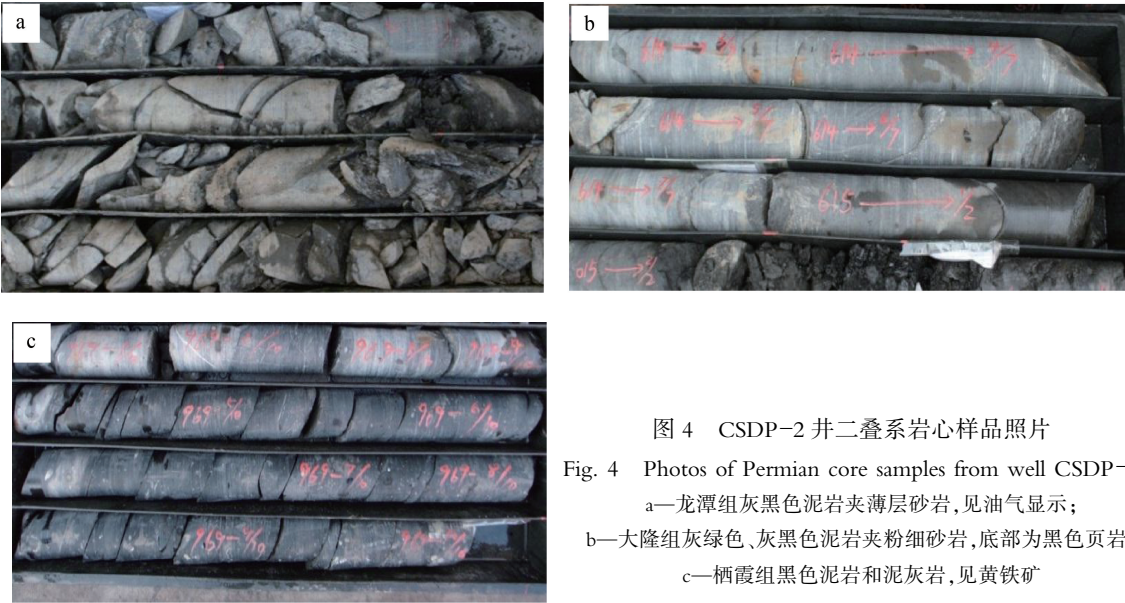


图 4 CSDP-2 井二叠系岩心样品照片

Fig. 4 Photos of Permian core samples from well CSDP-2

a—龙潭组灰黑色泥岩夹薄层砂岩,见油气显示;
b—大隆组灰绿色、灰黑色泥岩夹粉细砂岩,底部为黑色页岩;
c—栖霞组黑色泥岩和泥灰岩,见黄铁矿

表 1 下扬子区古生界烃源岩有机地球化学特征
Table 1 Organic geochemical characteristics of Paleozoic source rocks in the Lower Yangtze region

井号	地层	样品 编号	有机碳 /%	生烃潜 力/%	最高热 解温度 /℃	氯仿沥青“A” /‰
XY1 井	Є ₁ m	YJ1	1.04	0.05	456	0.011
	Є ₁ m	YJ2	1.44	0.02	480	0.010
	Є ₁ m	YJ3	1.53	0.09	424	0.010
	Є ₁ m	YJ4	2.49	0.04	535	0.012
	Є ₁ m	YJ5	3.35	0.15	505	0.024
CH1 井	O ₃ w—S ₁ g	YJ6	1.04	0.11	586	0.0141
	O ₃ w—S ₁ g	YJ7	1.67	0.03	363	0.0148
	O ₃ w—S ₁ g	YJ8	0.66	0.05	361	0.0136
	O ₃ w—S ₁ g	YJ9	3.19	0.08	582	0.0104
	O ₃ w—S ₁ g	YJ10	1.11	0.11	457	0.0108
CSDP-2 井	P ₂ l	YJ11	1.21	0.23	482	0.342
	P ₂ l	YJ12	1.39	0.39	480	0.075
	P ₂ l	YJ13	1.13	0.04	496	0.055

注:Є₁ m—下寒武统幕府山组;O₃ w—S₁ g—上奥陶统五峰组—下志留统高家边组;P₂ l—上二叠统龙潭组

3.2 岩石热解参数特征

岩石热解参数是评价烃源岩有机质丰度、成熟度的一项重要指标之一。可应用生烃潜力参数(S_1+S_2)进行烃源岩有机质丰度的评价,用 T_{max} 判识有机质的热演化程度等。如表 1 所示,XY1 井下寒武统幕府山组烃源岩热解生烃潜力(S_1+S_2)分布于 0.02%~0.15%之间,平均值 0.04%; T_{max} 分布范围为 424~535℃,平均值 480℃。CH1 井上奥陶统五峰组—下志留统高家边组烃源岩 S_1+S_2 分布范围为 0.03%~0.11%,平均值 0.08%; T_{max} 分布范围为 361~586℃,平均值 469.8℃。CSDP-2 井上二叠统

龙潭组海相烃源岩热解生烃潜能为 0.04%~0.39%,平均值 0.22%; T_{max} 分布范围为 480~496℃,平均值 486℃。下扬子区海相古生界烃源岩生烃潜力(S_1+S_2)分布范围在 0.02%~0.39%之间,均小于 0.5%,有机质丰度低,单从样品测试的热解数据参数看,样品为非有效烃源岩。烃源岩辅助性热成熟度指标 T_{max} 结果显示,幕府山组和五峰组—高家边组 2 套烃源岩最高热解峰温变化范围跨度大(360~590℃),有机质热演化程度由未成熟—过成熟范围均有分布,这与实际地质背景和样品成熟度实测结果不相符。

3.3 氯仿沥青“A”及其饱和烃甾烷生标参数特征

采用索氏抽提法提取烃源岩样品中的有机质氯仿沥青“A”的含量,测试结果如表 1 所示,氯仿沥青“A”的大小可以作为判识生油岩有机质丰度的指标之一。XY1 井下寒武统幕府山组烃源岩氯仿沥青“A”含量为 0.01‰~0.024‰;CH1 井上奥陶统五峰组—下志留统高家边组烃源岩氯仿沥青“A”含量分布范围为 0.01‰~0.015‰;CSDP-2 井上二叠统龙潭组海相烃源岩氯仿沥青“A”含量分布于 0.05‰~0.34‰之间。氯仿沥青“A”的含量整体小于 0.1‰,部分分布于 0.1‰~0.6‰之间,未达到烃源岩的下限值,仅从氯仿沥青“A”的含量看,样品为非—差的烃源岩。

XY1 井下寒武统幕府山组和 CH1 井上奥陶统五峰组—下志留统高家边组 2 套烃源岩甾烷、萘烷生物标志物特征相似(图 5), C_{19-29} 三环萘烷系列呈现以 C_{23} 为主峰的近正态分布, C_{30} 藿烷占优势, C_{31-35} 升藿烷含量呈阶梯状降低; C_{27} 、 C_{28} 和 $C_{29}\alpha\alpha\alpha 20R$ 甾烷构成“反 L”型。2 套烃源岩甾烷参数 $C_{29}-20S/(20S+20R)$ 分布范围分别为 0.47~0.50 和 0.42~0.43; $C_{29}-\beta\beta/(\alpha\alpha+\beta\beta)$ 变化范围分别为

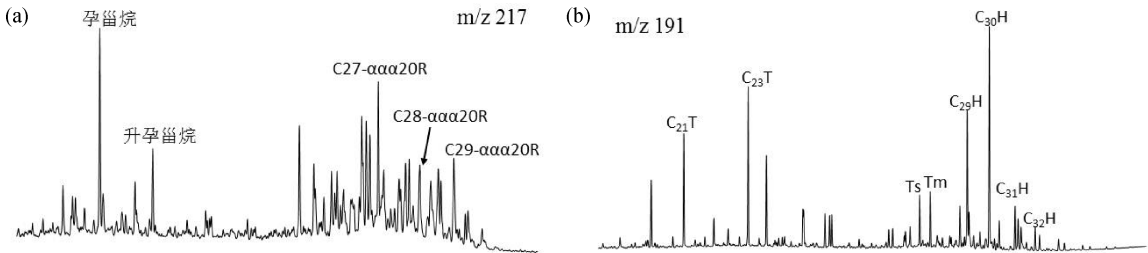


图 5 XY1 井寒武系烃源岩甾烷(a)和萘烷(b)分布特征

Fig. 5 Sterane(a) and terpane(b) distribution of Cambrian source rock in well XY1
 $C_{21}T$ 、 $C_{23}T$ —三环萘烷; $C_{29}H$ ~ $C_{32}H$ —藿烷系列; $C_{27-29}\alpha\alpha\alpha 20R$ — C_{27-29} 的 20R 构型甾烷

0.42~0.48 和 0.36~0.37。由此可以看出,这 2 套海相烃源岩的 2 项甾烷热成熟度生标参数 $C_{29}-20S/(20S+20R)$ 和 $C_{29}-\beta\beta/(\alpha\alpha+\beta\beta)$ 变化范围均在 0.36~0.5 之间,未达到成熟的平衡终点,并出现了“倒转”现象。另外,这 2 套烃源岩的 C_{32} 藿烷 $22S/(22S+22R)$ 的分布区间均为 0.57~0.6,接近于 0.6,达到了热演化的平衡终点。

3.4 干酪根碳同位素特征及岩石显微组分特征

对采集的 3 套海相烃源岩进行干酪根制备,测定碳同位素值。实验测试结果显示,XY1 井下寒武统幕府山组、CH1 井上奥陶统五峰组—下志留统高家边组和 CSDP-2 井上二叠统龙潭组海相烃源岩的干酪根碳同位素分布范围分别为 $-29.4\text{‰} \sim -30.5\text{‰}$; $-26.1\text{‰} \sim -27.3\text{‰}$ 和 $-23.6\text{‰} \sim -24.1\text{‰}$,由此可见,随着地层年代变新,出现干酪根碳同位素逐渐变重的特点,这与高等植物随地质历史演化不断出现的特征吻合。

有机质显微组分的分析结果表明,XY1 井寒武系幕府山组烃源岩和 CH1 井五峰组—高家边组烃源岩样品有机质显微组分的组成特征相似,腐泥组含量分别为 77.42%~93.92% 和 69.35%~92.06%,表现为高腐泥组、低镜质组和惰质组的组成特征(图 6),在一定程度上指示幕府山组和五峰组—高家边组烃源岩为以 I-II 型(腐泥型-混合型)为主的有机质类型。

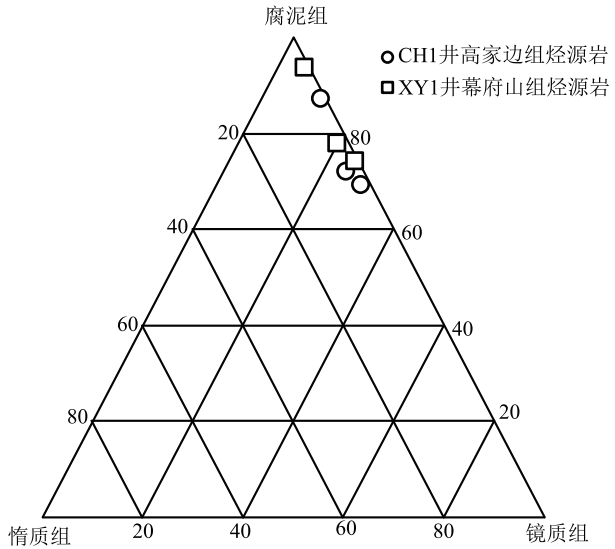


图 6 下扬子区古生界烃源岩有机显微组分特征
Fig. 6 Organic micro-components of Palaeozoic source rocks in the Lower Yangtze region

4 讨论

4.1 有机质丰度测试指标

有机质丰度是烃源岩评价最基础的指标之一,是烃源岩生烃的物质基础。其决定着烃源岩是否能够生烃,以及能够生成烃类物质的多少。目前,烃源岩中有机碳含量(TOC)、总烃含量(HC)和热解生烃潜力(S_1+S_2)、氯仿沥青“A”含量等是烃源岩有机质丰度判识的常用指标。本次对采集的下扬子区海域和陆域海相古生界岩心样品进行了常规的岩石热解、总有机碳和氯仿沥青“A”的分析测试,具体数据详见表 1。仅从有机碳单指标分析,其有机碳百分含量属于好-很好的烃源岩。然而,参照 Peters 等^[11]提出的烃源岩生成石油潜力的地球化学指标评价表及中国海相烃源岩有机质丰度评价标准^[12],下扬子区古生界烃源岩无论从热解生烃潜力,还是从氯仿沥青“A”和总烃评价指标看,均属于非烃源岩,与其对应的 TOC 值极不匹配。出现这种互为对立的现象,主要原因是下扬子区古生界烃源岩的热演化程度较高,达到高成熟阶段,尤其是底部的烃源岩层段,有机质成熟度甚至达到过成熟演化阶段,生烃作用已经造成烃源岩中有机质大量生烃并发生了排烃的运移过程,因而可热解、抽提的烃类物质表现出低值特征。

据此,在有机质热演化程度较高时,常规的评价有机质丰度的指标均已失效(如氯仿沥青“A”、生烃潜力、总烃 HC 等),而有机碳成为了下扬子区海相古生界烃源岩有机质丰度判识的有效指标。然而由于岩性不同,有机碳的划分标准也不相同。Gehman^[13]认为,碳酸盐岩烃源岩有机碳含量低但烃转化率高;Demaison^[14]认为,碳酸盐岩有机质丰度的不足可以由其巨大的体积弥补。因此,碳酸盐岩作为烃源岩的有机碳含量下限应该比泥岩低。

对于高-过成熟海相烃源岩的有效评价指标(TOC)含量,考虑到勘探评价实际应用的可操作性,海相烃源岩的评价标准需要与国际接轨,碳酸盐类烃源岩的标准要与泥质岩类接轨,故统一采用 $TOC=0.5\%$ 作为商业性烃源岩有机质丰度的下限值(表 2),且不进行成熟度的恢复^[15]。

表 2 下扬子区烃源岩总有机碳 (TOC) 含量分级标准^[9]

Table 2 Criteria for total organic carbon (TOC) of source rocks in the Lower Yangtze region

	%					
评价的岩类	非	差	中	好	很好	极好
古生界海相烃源岩	<0.5	0.5~1.0	1.0~2.0	2.0~3.0	3.0~5.0	>5.0

4.2 有机质类型测试指标

有机质类型是决定烃源岩生成油气类型的重要因素,常规的测试指标有干酪根元素分析、岩石热解分析(Rock-eval)、氯仿沥青“A”等,然而对于高-过成熟烃源岩有机质类型的判识,这些常规的指标均已失效。从 XY1 井寒武系幕府山组岩石热解最高峰温($T_{\max}$)与氢指数(HI)、降解率(D)关系图(图 7)可以看出,烃源岩样品大部分落于Ⅲ型区域。然而,由于 XY1 井幕府山组烃源岩成熟度过高,造成氢指数异常低和最高峰温($T_{\max}$)的不准确。

烃源岩随着热演化程度的增加,各类有机显微组分的演化结果趋于一致,但不同组分其光学性质仍存在不小的差异^[16],因此可用有机岩石学对高成熟烃源岩有机质类型进行划分。根据显微镜鉴定统计的结果,并通过下列加权公式计算出样品的类型指数值(TI),可确定干酪根类型:

$$TI=a+0.5b-0.75c-d$$

式中, a,b,c,d 分别代表腐泥组、壳质组、镜质组及惰质组的百分含量。

$TI\geq 80$ 为Ⅰ型干酪根(腐泥型), $40\leq TI<80$ 为Ⅱ₁型干酪根(腐植-腐泥型), $0\leq TI<40$ 为Ⅱ₂型干酪根(腐泥-腐植型), $TI<0$ 为Ⅲ型干酪根(腐植

型)。由图 8 可以看出,幕府山组和高家边组烃源岩的类型指数(TI)分布于 80 左右,为腐泥型或腐植-腐泥型,有机质类型划分基本与有机显微组分三角图(图 6)划分的结果一致。

干酪根碳同位素也是有机质类型判识和油源对比的重要指标之一。梁狄刚^[17]提出 $\delta^{13}C=-26\text{‰}$ 和 $\delta^{13}C=-29\text{‰}$ 作为区分Ⅲ、Ⅱ和Ⅰ型干酪根的 2 个指标界限值。采集于下古生界 XY1 井幕府山组和 CH1 井高家边组烃源岩样品的干酪根碳同位素基本都小于 -26‰ ,指示有机质来源以Ⅰ型和Ⅱ型为主;南黄海盆地 CSDP-2 井二叠系烃源岩干酪根碳同位素较重,以Ⅲ型干酪根为主(图 8)。

从生物演化进程看,泥盆纪之前尚未出现陆生植物,下古生界烃源岩中的有机质应主要来源于海洋低等生物,有机质类型为腐泥型。中下扬子区下寒武统烃源岩在欠补偿、较深水、还原-强还原环境下沉积的黑色页岩相有机质类型以腐泥型为主,物质来源以藻类型和以被囊、海绵为主的Ⅰ和Ⅱ₁型有机质组成^[2]。下扬子陆域钻遇高家边组的钻井资料显示,该套烃源岩岩性以黄绿色-深色的泥页岩为主,底部为富含笔石段的黑色泥页岩^[18],有机质类型为Ⅰ-Ⅱ₁型^[1,19]。

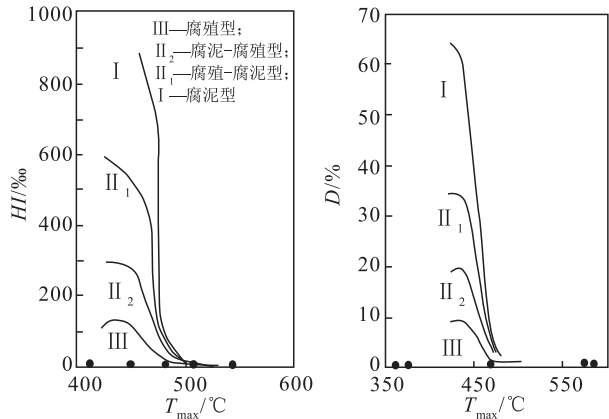


图 7 XY1 井幕府山组烃源岩 $T_{\max}$ 与 HI 和 D 关系图

Fig. 7 Diagrams of HI & D versus $T_{\max}$ of the Mufushan Formation source rock in well XY1

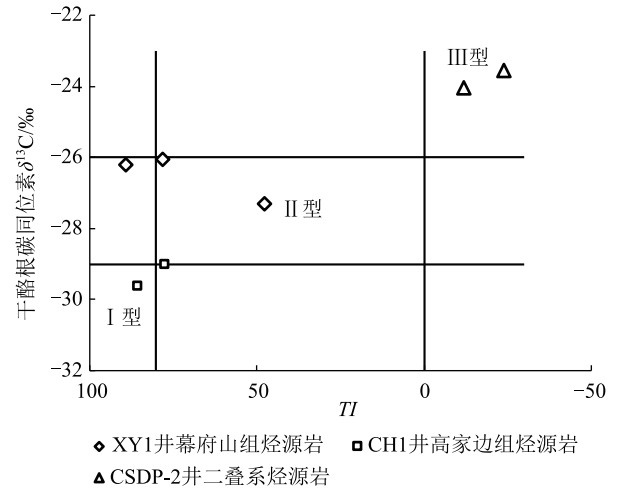


图 8 下扬子区古生界烃源岩 TI 和 $\delta^{13}C_{\text{干}}$ 交会图

Fig. 8 Diagram of TI and $\delta^{13}C$ of Palaeozoic source rocks in the Lower Yangtze region

根据干酪根碳同位素测试结果分析的有机质类型与区域地质背景特征相符,与古生界烃源岩物质来源、生物组合呈现出很好的吻合性,表明应用干酪根碳同位素方法判识有机质类型具有较好的有效性和实用性,对南黄海下古生界烃源岩母质来源的指标选择具有重要的参考意义。

4.3 有机质成熟度测试指标

有机质成熟度是衡量烃源岩在地层埋藏过程中生烃有效性及产物相态的重要指标,通常可用国际上公认的镜质体反射率(R_o)进行烃源岩热演化程度的标定。 R_o 起初是煤岩学中煤阶演化程度的标定参数,后应用于石油地质中,作为烃源岩成熟度和划分有机质热演化阶段的指标参数^[20]。一般认为, R_o 达 0.5% 进入生烃门限, R_o 值为 0.6%~1.3% 时为成熟阶段,1.3%~2.0% 为高成熟阶段, R_o 大于 2.0% 时,则达到过成熟演化阶段。其中, R_o 值为 2%~3% 时,处于过高成熟-过成熟早期阶段,3%~4% 则属于过成熟晚期阶段,已进入干气大量生成阶段。

目前检测烃源岩有机质成熟度的常用参数有镜质体反射率(R_o)、岩石热解峰温(T_{max})、显微组分反射率(沥青反射率、海相镜质体反射率、微粒体反射率和动物壳屑体反射率)^[21-22]、孢粉和干酪根颜色、牙形石色变指数(CAI)等^[23]。对于下古生界缺乏真正的高等植物木质纤维素,并以低等水生生物和藻类为主的烃源岩,无法进行镜质体反射率的检测,因此不能采用镜质体反射率作为成熟度的标尺。然而,在海相烃源岩中存在大量的、分布广范的沥青,国内外不少学者进行了沥青反射率(R_b)和镜质体反射率(R_o)关系的研究,并得出了以 Jacob^[24]、丰国秀等^[25]和刘德汉等^[26]为代表的 3 种比较有影响的关系式,沥青反射率成为最普遍、常用的烃源岩成熟度指标^[22, 27]。本文采用沥青反射率作为下扬子区下古生界富含沥青、缺乏镜质体的海相烃源岩成熟度的标尺,并以 Jacob^[24]建立的关系式为准,关系式如下:

$$R_o = 0.618R_b + 0.4$$

式中, R_o 为镜质体反射率; R_b 为沥青反射率。

经有机岩石学显微光度计检测,科学钻探 CSDP-2 井龙潭组烃源岩镜质体反射率分布于 1.31%~1.64% 之间,表明该套烃源岩有机质热演化程度较高,达到高成熟的湿气、凝析油生成阶段。

XY1 井下寒武统幕府山组烃源岩沥青反射率分布于 4.91%~5.38% 之间,根据 Jacob^[24]建立的公式换算得到该地层烃源岩的等效镜质体反射率为 3.43%~3.72%,有机质热演化程度达过成熟晚期阶段,以生气干气阶段为主。与该套地层对应的上扬子区下寒武统牛蹄塘组/筇竹寺组烃源岩成熟度分布区间为 2.0%~5.8%^[28-29],表明上、下扬子区该套烃源岩热演化程度相似,都达到过成熟阶段的后期。

CH1 井上奥陶统五峰组一下志留统高家边组烃源岩沥青反射率分布于 1.67%~1.91% 之间,其等效镜质体反射率介于 1.48%~1.53% 之间,热演化程度达高成熟阶段,进入大量湿气和凝析油生成阶段。下扬子区南京一句容地区五峰组—高家边组烃源岩镜质体反射率为 1.5%~2.6%,其有机质热演化程度较高,都达到了高成熟-过成熟阶段,CH1 井该套烃源岩热演化程度与区域背景值相似^[1, 30],表明沥青反射率可作为下扬子区下古生界烃源岩成熟度的有效指标参数。

4.4 生物标志物特征

生物标志化合物可以作为有机质沉积环境和热演化程度的辅助指标,有机质在地层埋藏过程中,随着时间和温度效应而发生了各种变化,并逐渐向热稳定性能好的化合物转化,从而达到异构化的平衡终点值。因此,分子异构化成熟度参数都有各自适用的范围,例如 R_o 为 0.8~0.9 时, C_{29} 甾烷 $20S/(20S+20R)$ 和 $\beta\beta/(\beta\beta+\alpha\alpha)$ 分别达到平衡值 0.5 和 0.7 左右; C_{32} 藿烷 $22S/(22S+22R)$ 的平衡值在 0.6 左右,其所对应的成熟度 R_o 为 0.6 左右^[31]。赵文等^[23]、陈中红等^[32]认为, C_{29} 甾烷 $\beta\beta/(\beta\beta+\alpha\alpha)$ 、 $Ts/(Ts+Tm)$ 可作为 $R_o < 1.2$ 的烃源岩和原油的成熟度标尺,成熟度参数适用范围更宽泛,表现出随着成熟度的不断增加,成熟度参数比值呈现不断增大趋势^[24, 32]。

由此可见,常规的甾、藿烷成熟度生标参数适用范围较局限(R_o 一般 $\leq 1.3\%$),而对于下扬子区下古生界烃源岩热演化程度高,普遍达到高成熟-过成熟阶段的有机质,以上常规的甾、藿烷生物标志化合物的分布与组成出现了趋同或“倒转”现象。如 XY1 井幕府山组烃源岩和 CH1 井五峰组—高家边组烃源岩的 C_{29} 甾烷 $20S/(20S+20R)$ 和 $\beta\beta/(\beta\beta+\alpha\alpha)$ 成熟度参数变化范围在 0.36~0.5 之间,

均未达到热演化的平衡终点,有悖于实际的地质情况,同时也与实测的沥青反射率矛盾。又如 XY1 井和 CH1 井海相古生界高成熟烃源岩岩心样品的 C_{32} 藿烷生标参数 $22S/(22S+22R)$ 分布范围在 0.57~0.6 之间,基本在 0.6 左右,表现出该参数的趋同性。因此,用上述常规的甾、萜烷参数作为表征高-过成熟阶段的烃源岩成熟度的参数时基本已失效。需要另辟途径,寻找新的生物标志化合物,用抗生物降解能力和热稳定性能更强的化合物进行热演化程度参数的标定。实验发现,金刚烷为具有类似金刚石结构的一类刚性聚合环状烃类化合物,并被认为是多环烃类在高温热力作用下经强 Lewis 酸催化剂聚和反应的产物,同时金刚烷类化合物性质极其稳定,一旦形成,不易受到热降解及生物降解的破坏。

Wingertw^[33] 报道了用 MID/GC/MS 方法检测到原油中的金刚烷类化合物。国内赵红等^[34] 在临界成熟的烃源岩样品中用 MID/GC/MS 方法检测到金刚烷化合物,系列可达三金刚烷系列。目前,国内外学者主要用单金刚烷和双金刚烷化合物对原油及烃源岩成熟度进行评价。本文采用极性差异不大、热稳定性存在差异的 1-甲基双金刚烷、3-甲基双金刚烷和 4-甲基双金刚烷(图 9)进行下扬子区古生界烃源岩成熟度方面的讨论。

4-甲基双金刚烷的热稳定性能优于 1-甲基双金刚烷和 3-甲基双金刚烷,因而双金刚烷指数 $MDI(4-MD/(1-MD+3-MD+4-MD))$ 可作为有机质成熟度的参数^[35],随着热力的增加,该比值表现出逐渐增大的趋势。本文建立了 CH1 井上奥

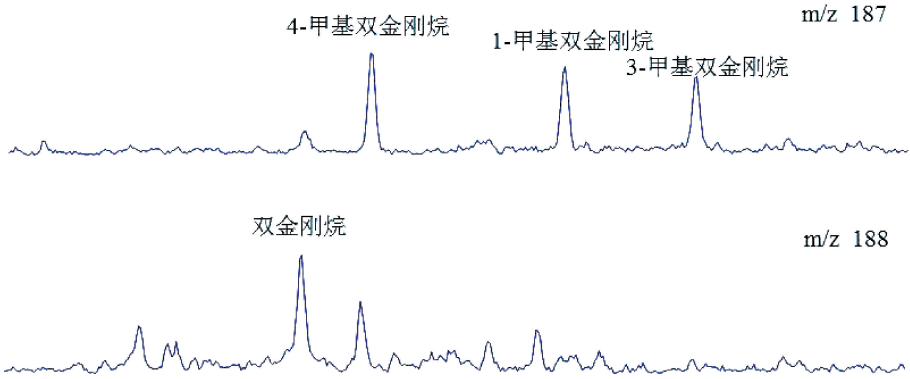


图 9 双金刚烷 m/z187 和 m/z188 质量色谱图

Fig. 9 Diagram of m/z 187 and m/z 188 mass-chromatogram of double adamantine

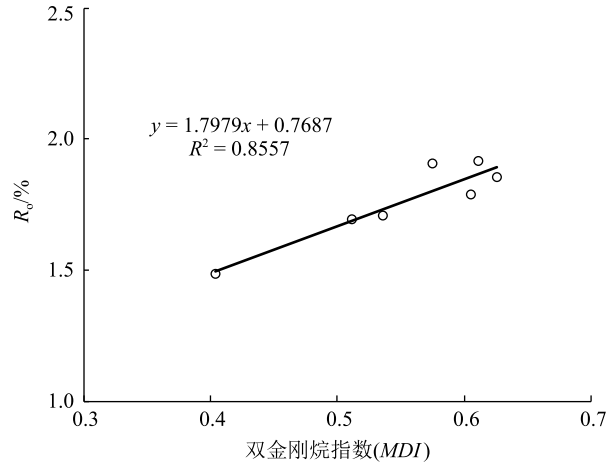


图 10 CH1 井双金刚烷指数与镜质体反射率的关系

Fig. 10 Reflectivity of vitrinite versus double adamantine index of well CH1

陶统五峰组一下志留统高家边组烃源岩双金刚烷指数 (MDI) 与热成熟度 (R_v) 之间的关系(图 10),从图中可以看出双金刚烷指数与镜质体反射率呈线性正相关关系,相关系数达 0.86。南黄海科学钻探井 CSDP-2 井 MDI 也表现出同样的特征,与区域背景值吻合。由此认为,金刚烷指数可作为下扬子区高成熟烃源岩有机质成熟度半定量判断的有效指标之一,受热作用影响小、适用范围更广。

5 结 论

(1)有机质热演化程度较高时,生烃潜力、氯仿沥青“A”、总烃等常规评价有机质丰度的指标均已失效,有机碳成为了下扬子区古生界高-过成熟烃

源岩有机质丰度判识的有效指标。

(2) 根据有机质显微组分光学性质的差异, 可应用有机显微组分及干酪根碳同位素综合判识下扬子区古生界烃源岩的有机质类型, 避免因有机质热演化程度高, H、O 元素及氯仿沥青“A”等含量降低导致误判有机质类型“降级”的问题, 对南黄海盆地古生界烃源岩母质来源的参数指标的优选具有重要的指导意义。

(3) 下扬子区多处见有油气显示, 可用“沥青反射率”和特殊生物标志物(如金刚烷)作为高成熟烃源岩热演化程度的判识指标, 双金刚烷在南黄海盆地海相古生界烃源岩评价中具有较好的应用效果。

致谢:感谢长江大学张敏教授的指导, 感谢审稿专家提出的宝贵意见。

参考文献

- [1] 贾东, 胡文瑄, 姚素平, 等. 江苏省下志留统黑色页岩浅井钻探及其页岩气潜力分析[J]. 高校地质学报, 2016, 22(1): 127-137.
- [2] 高林, 周雁. 中下扬子区海相中—古生界烃源岩评价与潜力分析[J]. 油气地质与采收率, 2009, 16(3): 30-33.
- [3] 蔡峰. 南黄海水域与下扬子地区海相中—古生界地层对比及烃源岩评价[J]. 海洋地质动态, 2007, 23(6): 1-6.
- [4] 史全党, 林小云, 刘建. 南黄海水域中—古生界海相烃源岩特征及生烃分析[J]. 石油天然气学报, 2008, 30(5): 197-199.
- [5] 李浩月, 刘倩茹, 雪林福. 苏北盆地中—古生界海相烃源岩发育规律及其意义[J]. 世界地质, 2014, 33(1): 178-189.
- [6] 胡芬. 南黄海盆地海相中、古生界油气资源潜力研究[J]. 海洋石油, 2010, 30(3): 1-8.
- [7] 陈建文, 龚建明, 李刚, 等. 南黄海盆地海相中—古生界油气资源潜力巨大[J]. 海洋地质前沿, 2016, 32(1): 1-7.
- [8] 曹寅, 钱志浩, 张渠. 烃源岩评价分析项目的优化组合[J]. 海相油气地质, 2008, 13(3): 55-62.
- [9] 程定胜. 烃源岩有机质成熟度评价方法综述[J]. 新疆石油地质, 1998, 19(5): 428-432.
- [10] 蔡来星, 王姣, 郭兴伟, 等. 基于 CSDP-2 井分析南黄海中部隆起中—古生界沉积相及烃源岩特征[J]. 吉林大学学报(地球科学版), 2017, 47(4): 1030-1046.
- [11] Peters K E, Cassa M R. Applied source rock geochemistry [C]// Magoon L B, Dow W G. The petroleum system — from source to trap. AAPG Memoir, 1994, (60): 93-120.
- [12] 张水昌, 梁狄刚, 张大江. 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.
- [13] Gehman H M. Organic matter in limestone [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1962, 26: 885-897.
- [14] Demaison G, Huizinga B J. Genetic classification of petroleum systems[J]. AAPG Bulletin, 1991, 75: 1626-1643.
- [15] 梁狄刚, 郭彤楼, 陈建平, 等. 中国南方海相生烃成藏研究的若干新进展(一)——南方四套区域性海相烃源岩的分布[J]. 海相油气地质, 2008, 13(2): 1-16.
- [16] 张林, 魏国齐, 韩龙, 等. 四川盆地震旦系一下古生界高过成熟烃源岩评价[J]. 石油实验地质, 2008, 30(3): 286-291.
- [17] 梁狄刚. 中国南方海相生烃成藏研究的若干新进展(二)南方四套区域性海相烃源岩的地球化学特征[J]. 海相油气地质, 2009, 14(1): 1-15.
- [18] 龚建明, 陈建文, 孙晶, 等. 下扬子高家边组烃源岩展布及其对南黄海盆地的启示[J]. 海洋地质动态, 2016, 32(1): 43-47.
- [19] 张琴, 王红岩, 拜文华, 等. 南海相志留系页岩有机质类型恢复研究[J]. 断块油气田, 2013, 20(2): 154-156.
- [20] 刘经纬, 尹文庆, 孙晓然, 等. 镜质体反射率 R_o 与热解峰温 T_{max} 的关系——以南堡凹陷中深层烃源岩为例[J]. 中国石油和化工标准与质量, 2018, (10): 92-93.
- [21] 肖贤明, 吴治君, 刘德汉, 等. 早古生代海相烃源岩成熟度的有机岩石学评价方法[J]. 沉积学报, 1995, 13(2): 112-119.
- [22] 王飞宇, 何萍, 程顶胜, 等. 下古生界高—过成熟烃源岩有机成熟度评价[J]. 天然气地球科学, 1994, 5(6): 1-14.
- [23] 赵文, 郭小文, 何生. 生物标志化合物成熟度参数有效性——以伊通盆地烃源岩为例[J]. 西安石油大学学报(自然科学版), 2016, 31(6): 23-31.
- [24] Jacob H 著, 宋家荣译. 运移沥青[J]. 天然气勘探与开发, 1986, 3: 81-87.
- [25] 丰国秀, 陈盛吉. 岩石中沥青反射率与镜质体反射率之间的关系[J]. 天然气工业, 1988, 8(8): 21-25.
- [26] 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.
- [27] 谢增业, 李志生, 国建英, 等. 烃源岩和储层中沥青形成演化实验模拟及其意义[J]. 天然气地球科学, 2016, 27(8): 1489-1499.
- [28] 魏全超, 朱冬梅, 黄文明. 川东南下寒武统牛蹄塘组烃源岩特征及有限性分析[J]. 四川地质学报, 2012, 32(1): 69-73.
- [29] 冷颀, 邓晓航, 王玮, 等. 四川盆地震旦系—寒武系烃源岩特征与评价[J]. 石油化工应用, 2013, 32(10): 45-47.
- [30] 张涛, 尹宏伟, 贾东, 等. 下扬子地区高家边组底部黑色页岩与北美 Marcellus 页岩地质特征对比[J]. 高校地质学报, 2016, 22(1): 152-158.
- [31] Peters K E, Moldowan J M. The biomarker guide: in terpreting molecular fossils in petroleum and ancient sediments [C]// Englewood Cliffs. New Jersey: Prentice Hall Inc, 1993: 25-65.
- [32] 陈中红, 查明, 金强. 典型断陷湖盆 C_{27} 三降藿烷参数演化及其控制因素: 以东营凹陷古近系为例[J]. 沉积学报, 2010, 28(3): 636-641.
- [33] Wingert W S. GC-MS analysis of diamondoid hydrocarbons in Smackover petroleum[J]. Fuel, 1992, 71(1): 37-43.
- [34] 赵红, 王占生, 朱俊章. 用 MID/GC/MS 检测原油和烃源岩提取物中金刚烷类化合物及其地质意义探索[J]. 质谱学报, 1994, 15(4): 43-48.
- [35] 曾凡刚, 程克明. 下古生界海相碳酸盐岩干酪根成熟度研究方法[J]. 地学前缘, 2000, 7(增刊): 249-255.