

天然气地球化学

川东北地区飞仙关组古油藏原油裂解型天然气的生成动力学地质模型

王铜山¹, 耿安松², 李霞¹, 徐兆辉¹, 王红军¹, 汪泽成¹

(1. 中国石油勘探开发研究院, 北京 100083; 2. 中国科学院广州地球化学研究所, 广东 广州 510640)

摘要: 天然气组分、碳同位素组成以及气藏储层固体沥青的热变质成因, 都说明飞仙关组古油藏确曾存在并发生了裂解, 天然气主要为原油裂解气。通过高压封闭体系下的原油热裂解模拟实验, 从气态烃组分及产率变化、焦沥青的生成等方面探讨了原油裂解生气特征。结合川东北地区飞仙关组的埋藏史、古地温史、构造演化等地质因素, 将实验结果外推至地质条件下, 建立了古油藏原油裂解生气的动力学地质模型, 指出鲕滩天然气藏的形成经历了古油藏、古气藏和气藏调整定型 3 个演化阶段。通过动力学计算定量恢复了古油藏裂解生气的成藏过程, 揭示出在不同地质年代和地质温度下甲烷(C_1)、总烃类气体(C_{1-5})和焦沥青等原油裂解产物的转化率的变化。取得的动力学地质模型对古油藏原油裂解型天然气的成藏研究具有重要的实用价值。

关键词: 古油藏原油裂解; 鲕滩气藏; 固体沥青; 生烃动力学; 川东北地区

中图分类号: TE132.1

文献标识码: A

文章编号: 1672-1926(2010)06-1014-10

0 引言

我国海相碳酸盐岩埋藏深、时代老、受热历史长、热演化程度高, 其中易形成古油藏或分散烃类的相对富集^[1], 它们在后期的地质条件下极易发生热裂解而形成天然气藏。大量研究表明, 油裂解生气是天然气形成的重要途径之一^[2-4]。原油裂解的本质是液态烃在一定温度下发生裂解并生成气态烃和残渣(固体沥青)的过程, 该过程可用化学动力学方程描述^[5], 生烃动力学模拟实验是其有效的研究手段^[3]。近年来, 基于化学动力学原理的定量模拟实验被应用于原油裂解生气的研究^[3, 6-8], 已经取得了许多有益的认识。那么, 如何将实验结果外推至具体的地质条件下, 定量恢复古油藏原油裂解的动力学过程, 进而探讨天然气的成藏问题, 显得尤为重要和迫切。

川东北地区自 1995 年在渡 1 井飞仙关组鲕滩储层获得工业气流以来, 迄今已发现了铁山坡、渡口河、罗家寨及普光等多个大型飞仙关组鲕滩气藏^[9], 显示出巨大的资源潜力和良好的勘探前景。研究表

明, 鲕滩气藏的形成经历了古油藏阶段, 天然气以古油藏中的原油裂解气为主^[9-11]。气藏储层中不同程度含有的固体沥青是液态烃类运移进入储层后因热裂解作用形成的残留物^[12-13]。那么, 古油藏原油裂解生气、生焦沥青的机理是怎样的? 如何在地质尺度下定量表征古油藏原油裂解生气的动态过程等问题, 都有待深入研究。

本文以川东北地区飞仙关组鲕滩气藏为研究对象, 分析了天然气的油裂解成因, 重点通过原油裂解实验, 模拟古油藏原油裂解生气、生焦沥青的动力学过程, 结合油气地质研究, 定量恢复天然气成藏过程, 建立飞仙关组鲕滩气藏的成藏地质模式, 以期对油裂解型气藏的母源判识、成藏研究、资源评价等提供实验和理论依据。

1 川东北地区飞仙关组鲕滩气藏天然气的成因

从天然气碳同位素特征、组分相关关系以及气

收稿日期: 2010-03-18; 修回日期: 2010-05-29

基金项目: 国家重点基础研究发展计划项目(编号: 2007CB209500); 中国石油勘探开发研究院青年创新基金(编号: QY012201) 联合资助。

作者简介: 王铜山(1976), 男, 河北石家庄人, 博士后, 主要从事天然气地质与油气地球化学研究。E-mail: wts2007@petrochina.com.cn.

藏储层固体沥青成因等 3 个方面,论证了川东北地区飞仙关组鲕滩气藏天然气主要为古油藏原油裂解气。

1.1 天然气碳同位素组成

天然气碳同位素组成与其母质类型及演化程度有密切关系。由于甲烷碳同位素受热演化的影响较大,天然气中乙烷等湿气组分的 $\delta^{13}C$ 值较为稳定,更能够反映母源信息, $\delta^{13}C_2$ 值成为常用的有效指标^[14-15]。戴金星等^[14]提出 $\delta^{13}C_2$ 值大于 -27.5% 为煤成气的判识界限。从表 1 来看,川东北地区飞仙关组鲕滩高含 H_2S 气藏天然气的 $\delta^{13}C$ 值变化范围不大,天然气 $\delta^{13}C_1$ 值在 -29.5% ~ -32.09% 之间,而 $\delta^{13}C_2$ 值大部分介于 -28.5% ~ -33.8% 之间,低于油型气的判识标准(-28%),反映其母质类

油裂解气的 C_1/C_2 值基本不变, C_2/C_3 值逐渐增大。基于此,许多学者^[21-22]用 $Ln(C_1/C_2)$ 值与 $Ln(C_2/C_3)$ 值交会图来区分干酪根裂解和原油裂解这 2 种成因的天然气。据此绘制出川东北地区飞仙关组鲕滩天然气 $Ln(C_1/C_2)$ 值与 $Ln(C_2/C_3)$ 值交会图(图 1)。从图中可以看出,天然气组成的 $Ln(C_1/C_2)$ 值变化不大,在 5.6~7.8 之间,大多分布于 6.0~7.0 之间;而 $Ln(C_2/C_3)$ 值变化很大,在 0.2~3.5 之间。因此,认为川东北地区飞仙关组鲕滩天然气具有原油裂解气特征。

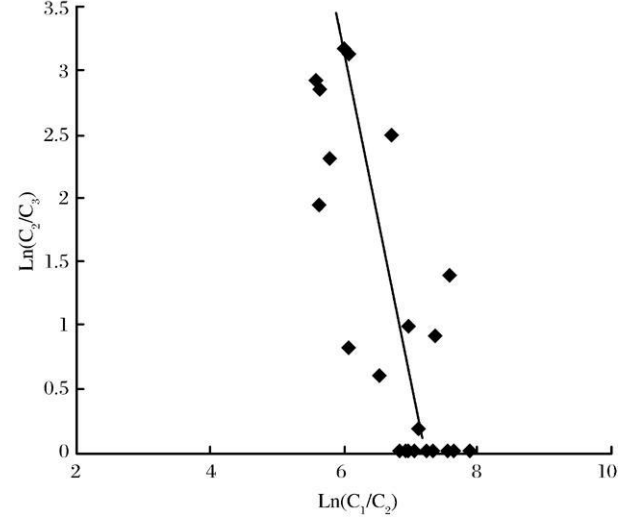


图 1 川东北飞仙关组鲕滩天然气 $Ln(C_1/C_2)$ 值与 $Ln(C_2/C_3)$ 值交会特征

1.3 储层固体沥青的成因

川东北地区飞仙关组鲕滩气藏的天然气组分很干,蕴含的气源及成因信息不多,且由于后期经历了硫酸盐热化学还原反应(TSR)等次生蚀变^[20],气体碳同位素组成变得尤为复杂,仅仅依靠天然气的组分和碳同位素来推断气源及成因等,难以得出肯定的结论。勘探实践和大量的地质录井资料显示,鲕滩储层中不同程度地含有固体沥青。许多学者认为,它是液态烃类运移进入储层后因热裂解作用而形成的残留物。研究发现,储层固体沥青在其光学性质、结构特征等方面都具有明显的热裂解成因^[23]:双反射特征明显,反射率高(R_b 值在 2.0%~4.5% 之间),具有脉状、球粒状以及角片状结构特征,并出现非均质中间相结构,这都说明鲕滩储层在地质历史中曾经受了高温热变质作用,是古油藏确曾存在并发生过原油裂解的重要标志。

表 1 川东北飞仙关组气藏天然气碳同位素组成

| 井号 | 层位 | $\delta^{13}C/\%$ | | | 数据来源 |
|-------|------------------|-------------------|--------|-----------|------|
| | | C_1 | C_2 | C_2-C_1 | |
| 坡 1 | T _{1f} | -30.1 | | | [16] |
| 坡 2 | T _{1f} | -29.5 | | | [17] |
| 渡 6 | T _{1f} | -30.5 | | | [16] |
| 渡 4 | T _{1f} | -29.83 | -32.39 | -2.56 | [16] |
| 罗家 7 | T _{1f} | -30.3 | -29.4 | 0.9 | [17] |
| 黄龙 8 | T _{1f} | -33.6 | | | [17] |
| 七里北 1 | T _{1f} | -30.1 | | | [17] |
| | T _{1f} | -30.89 | -28.49 | 2.4 | |
| | T _{1f} | -30.9 | -28.5 | 2.4 | |
| 普光 2 | T _{1f} | -31 | -28.8 | 2.2 | [18] |
| | T _{1f} | -30.5 | -29.1 | 1.4 | |
| | P _{2ch} | -30.6 | -25.2 | 5.4 | |
| 普光 8 | T _{1f} | -29.6 | -30.6 | -1 | [19] |
| 普光 9 | P _{2ch} | -30 | -31.5 | -1.5 | [17] |
| 龙会 6 | T _{1f} | -29.6 | | | [17] |
| 铁山 11 | T _{1f} | -32.05 | -33.8 | -1.75 | |
| | T _{1f} | -32.09 | -33.7 | -1.61 | |
| 铁山 5 | P _{2ch} | -31.44 | -32.97 | -1.53 | [16] |
| 铁 14 | P _{2ch} | -31.55 | -33.38 | -1.83 | |
| 铁 21 | P _{2ch} | -31.43 | -33.37 | -1.94 | |

型以腐泥型为主,天然气为油型气。但是,由于川东北飞仙关组鲕滩气藏遭受过后期蚀变作用(如 TSR^[20]),直接利用 $\delta^{13}C_2$ 值判识天然气的成因,尚不能得出肯定的结论,还需要结合其他证据或指标。

1.2 天然气组分特征

Behar 等的热模拟实验表明^[6],干酪根初次裂解气的 C_1/C_2 值逐渐增大, C_2/C_3 值基本不变;而原

2 原油裂解生气动力学模拟实验

基于上述认识,进行原油裂解模拟实验并探讨

其生气特征和机理,对川东北地区飞仙关组鲕滩气藏的成藏研究十分必要。

2.1 样品

由于无法取得古油藏裂解前的原油样品,模拟实验只能以现今油藏原油为替代。川东北地区飞仙关组古油藏的形成主要来自上二叠统龙潭组和下志留统龙马溪组海相腐泥型烃源岩的贡献,考虑到塔里木盆地奥陶系油藏原油具有海相环境母质来源,应与川东北地区飞仙关组古油藏原油具有相近的性质。

因此,裂解实验所用的原油样品来自塔里木盆地英买2井奥陶系内幕油藏(5 940~5 953 m)的正常原油,其族组成为:饱和烃 47.3%,芳烃 26.4%,非烃 13%,沥青质 5.9%,饱芳比 1.79。

2.2 实验流程

地质条件下原油的裂解往往发生在一个相对封闭的古油藏中,因此模拟实验采用封闭黄金管的高压釜系统。封闭黄金管的高压釜系统及相应的产物收集、分析测试系统的实验原理、方法及流程,前人^[24-25]已有详细的说明,在此仅简单介绍实验的大致流程和步骤:

实验流程:将适量的原油样品(5~40 mg)在氩气保护下封入黄金管(40mm×4.2mm)中,然后将黄金管放入高压釜。再将高压釜置于程序控温的电炉中,所有高压釜采用压力并联方式,确保高压釜压力维持在50MPa。分别按照20℃/h和2℃/h的升温速率对高压釜加热,从350℃到600℃,依次取出相应的高压釜,冷水淬火到室温为止。实验温度误差小于1℃,压力误差小于5MPa。

气态产物的分析流程:将从高压釜中取出的金管表面洗净,置于固定体积的真空系统中,在封闭条件下用针刺破,气态产物从黄金管中释放出来,该真空系统与Agilent公司生产的6890N型气相色谱仪直接相连,气体通过自动进样系统进入该色谱仪进行成分分析,采用外标法定量。色谱升温程序:起始温度40℃,恒温6min,再以25℃/min的速率升至180℃,恒温4min。

焦沥青的定量:固态焦沥青的过滤采用有机滤膜(0.45μm×25mm),事先称量滤膜的重量,过滤后将滤膜连同焦沥青一起凉干,然后再逐一称量,最终获得固态焦沥青的量。所有的称量操作都在相同的条件下(温度20℃,湿度45%)进行,并使用同一台电子天平(系统误差小于0.003mg),以减少测量误差。

2.3 结果与讨论

2.3.1 烃类气体产率变化特征

烃类气体(C₁—C₅)是原油裂解气的主体,其产率变化是原油裂解生气特征的直接反映。从图2看出,原油在实验温度384℃左右开始裂解,气态烃类开始生成。甲烷产率从开始生成就持续增加,到600℃其产率最高达770mL/g,而乙烷、丙烷及丁烷+戊烷的产率都是先增后减,最终趋近于零,说明在原油裂解过程中存在C₂⁺气态烃的二次裂解。以20℃/h为例,乙烷、丙烷及丁烷+戊烷的最大产率所对应的温度依次降低,分别为528℃、492℃及468℃左右,气态烃的碳数越高越先发生裂解。值得注意的是,烃类总气体(C₁₋₅)的体积产率持续增加,而质量产率在480~492℃开始降低,这是由于C₂⁺气态烃的二次裂解导致烃类气体的碳数组成越来越向低碳数倾斜,使得总体积增加,总质量却降低。升温速率对产物产率变化曲线的形态并无太大影响,只是快速升温比慢速升温的产率曲线相对滞后,这反映了化学反应过程中温度与时间的互补关系^[7]。

2.3.2 焦沥青产率特征

焦沥青伴随原油的裂解而产生,主要是芳香烃类化合物释放氢后发生缩聚而形成。在裂解后期,长链烷烃也会发生芳构化形成焦沥青。随着温度的升高,焦沥青的产率持续增加,最大产率约为429mg/g(图3),焦沥青产率与总气体(C₁₋₅)体积产率的变化几乎是同步持续增加的。

2.3.3 原油裂解生气动力学参数

有机质在地质条件下的热解生烃过程中,时间和温度呈补偿关系,基本遵循化学动力学一级反应^[7]。因此,可以将热模拟实验得到的动力学参数外推到地质条件下,建立动力学模型,对不同地质时间的有机质生烃特征进行预测。本文研究运用动力学软件Kinetics计算动力学参数(活化能和指前因子),其中活化能分布函数为高斯分布,结果见表2,活化能分布范围随着气态烃碳数的增加而变窄,主活化能值则大致表现为C₁>C₂>C₃>C₄₋₅,其中C₁最高,C₂略低于C₁,而C₃和C₄₋₅更低,反映了原油裂解生成不同碳数气态烃的难易程度。

3 古油藏原油裂解的动力学地质模型

鲕滩气藏原油裂解型天然气的生成过程,实质上是古油藏原油在地质尺度下受热发生裂解的过程。在获取地质参数的基础上,结合模拟实验得到的动力学参数,即可建立古油藏原油裂解的动力学

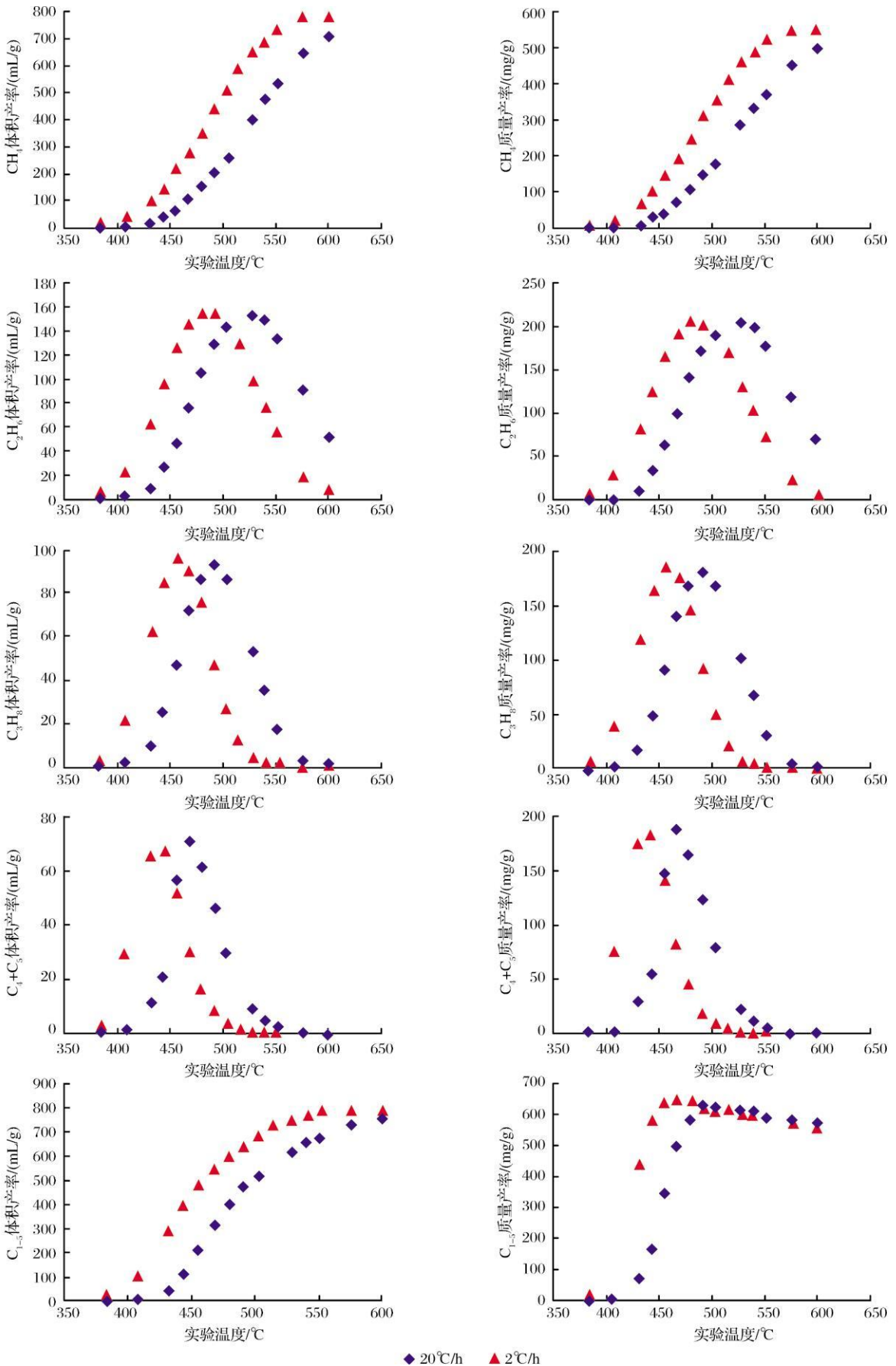


图 2 原油裂解生成烃类气体的体积产率(左)及质量产率(右)变化特征

表2 原油裂解生成气态烃的动力学参数

| 参数 | 甲烷 | 乙烷 | 丙烷 | 丁烷+ 戊烷 | 总烃气(C ₁₋₅) |
|----------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------|
| 指前因子/s ⁻¹ | 6.19 × 10 ¹³ | 2.35 × 10 ¹⁴ | 1.03 × 10 ¹⁵ | 1.12 × 10 ¹⁵ | 1.16 × 10 ¹⁵ |
| 活化能主频/(kJ/mol) | 255.4 | 247.02 | 234.5 | 234.5 | 251.2 |
| 活化能分布/(kJ/mol) | 226.1~ 276.3 | 234.5~ 267.9 | 230.2~ 247.02 | 230.2~ 242.8 | 234.5~ 276.3 |

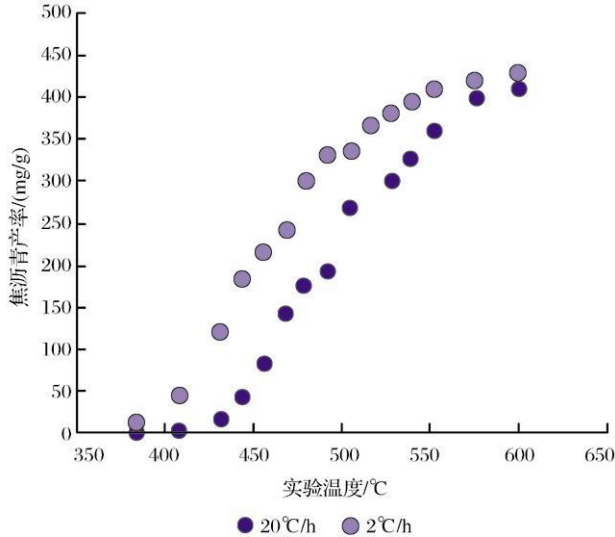


图3 原油裂解生成焦沥青的产率变化

地质模型,恢复鲕滩天然气成藏过程。

3.1 地质参数

生烃动力学研究所需的地质参数,实际上就是有机质的受热历史,即在地质条件下的“升温程序”,埋藏史、古地温史是其决定性因素。由于古油藏原油裂解发生在储层当中,储层的受热史、尤其是烃类进入储层之后的受热史直接影响原油的裂解。飞仙关组在川东北地区经历了大致相同的沉积埋藏史,因此本文采用统一的埋藏史数据和古地温史数据。

(1) 埋藏史。飞仙关组沉积后在晚三叠世因经历印支运动而有过一次规模不是很大的抬升(距今210Ma左右)。到早侏罗世末期,缓慢下沉埋藏至3000m左右(距今约160Ma左右)。到中侏罗世末期,快速深埋至5000多米,后经历燕山运动有轻微抬升。中晚侏罗世之后,地层持续沉降埋深达7000m左右,此时已达最大埋深(距今约75Ma)。白垩纪末期,地层开始发生持续的大规模抬升。经历喜马拉雅运动之后,构造格局基本定型,飞仙关组埋深大约在5000m左右,与现今埋深相当。

(2) 古地温史。根据前人^[26-29]对四川盆地古热史的研究,获取川东北地区飞仙关组在不同地质时期的古地温梯度(表3),并参照相关研究^[29],统一取古地表温度为20℃。然后,根据埋藏史获得不同地质时期的埋深,结合古地温梯度、古地表温度数据,

即可恢复出飞仙关组经历的古地温史(表4),其中飞仙关组埋深采用顶界、底界深度的平均值。

从飞仙关组古地温数据看出:地层埋深增加,地质温度增高;地层抬升,则反之。从初始温度20℃逐渐增高,到中、晚侏罗世,已超过160℃(地层埋深已达5000多米);至白垩纪晚期,升至约230℃,对应于地层最大埋深;而后随地层抬升,最终降至130℃左右。

表3 川东北飞仙关组古地温梯度

| 时代 | T ₁₊₂ | T ₃ -J ₃ | K-E | N-Q |
|----------------|------------------|--------------------------------|------|------|
| 地温梯度/(°C/100m) | 3.20 | 2.97 | 2.80 | 2.72 |

3.2 动力学计算结果

将古地温曲线表示的地质年代—地质温度序列数据(表4)作为地质条件下飞仙关组的升温程序,结合模拟实验得到动力学参数,再运用Kinetics软件进行计算,即可得到原油裂解产物(C₁₋₅、C₁及焦沥青)的转化率、产率随地质年代以及地质温度的变化规律,如图4所示。

表4 动力学计算采用的地质升温数据

| 地质年代 | 220 | 202 | 190 | 180 | 155 | 135 | 127 | 75 | 58 | 49 | 20 | 0 |
|-------|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|-----|
| /Ma | | | | | | | | | | | | |
| 温度/°C | 20 | 60 | 85 | 80 | 95 | 165 | 149 | 228 | 220 | 172 | 140 | 130 |

动力学计算结果显示(图4),在川东北地区飞仙关组的地质升温条件下,原油大约在距今140Ma左右,古地温160℃之后开始裂解,但此时各类产物的转化率、产率都很低。由于飞仙关组的地质温度并不是单调递增的,而是随地层的沉降或抬升而增加或降低的,所以甲烷(C₁)、总烃类气体(C₁₋₅)和焦沥青的转化率、产率的增加并不持续,而表现出阶段性:在地层因抬升而降温的地质时期内,转化率和产率则维持在大致恒定的数值,说明此时原油的裂解几乎停滞;当地层温度增加较快时,转化率、产率急剧增加。相对而言,在整个地质升温过程中,总烃类气体(C₁₋₅)的转化率、产率最大,甲烷(C₁)的最小,焦沥青的介于二者之间。

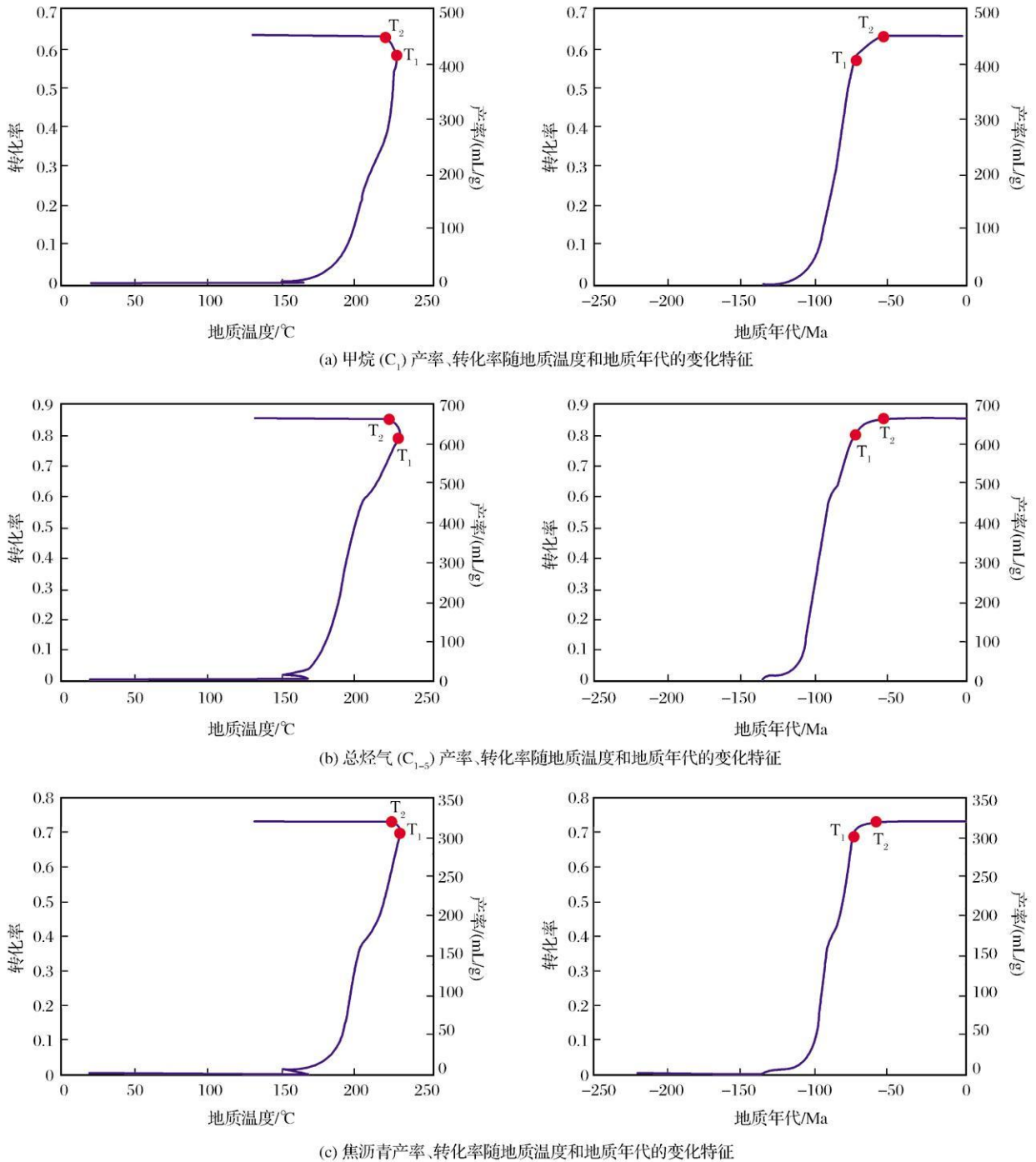


图 4 古油藏原油裂解产物转化率、产率随地质温度和地质年代的变化特征

特别地,在距今 75Ma 左右,飞仙关组埋深和古地温都达到最大(约 228℃),对应于图 4 中的 T_1 点。此时,甲烷(C_1)、总烃类气体(C_{1-5})和焦沥青的转化率分别为 0.58、0.8 和 0.65。而后由于地层抬升,飞仙关组持续降温,但原油裂解产物的转化率和产率并未立即停止增加,而是随地层温度的降低又略微增加了一段时间,直到距今约 58Ma(古地温约 220℃),即对应于图 4 中的 T_2 点,甲烷(C_1)、总烃类气体(C_{1-5})和焦沥青的转化率分别增至约 0.65、

0.85 和 0.7。而后随地温降低,转化率、产率不再增加,一直到现今。说明飞仙关组古油藏原油裂解在距今 58 Ma 左右即已停止裂解,而且裂解并未达到终极产物阶段(甲烷和焦炭)。天然气的生成,尤其甲烷(C_1)的生成还有很大潜力(转化率仅为 0.65),这是因为在裂解后期, C_{2+} 气态烃类或焦沥青还会进一步裂解,对甲烷的生成将有十分可观的贡献。

3.3 原油裂解动力学地质模型及天然气成藏过程
将动力学计算结果与飞仙关组的埋藏史、古地

温史、构造演化以及储集条件等地质条件相结合, 综合分析原油裂解与各种地质要素的时空匹配关系, 建立古油藏原油裂解的动力学地质模型(图 5), 进而恢复鲕滩气藏天然气生成及成藏的动态过程。事

实上, 油气成藏是一个复杂的动态过程, 油气藏是各种成藏地质要素在时间、空间上良好匹配的结果。

川东北地区飞仙关组鲕滩气藏形成的动态过程主要分为 3 个阶段:

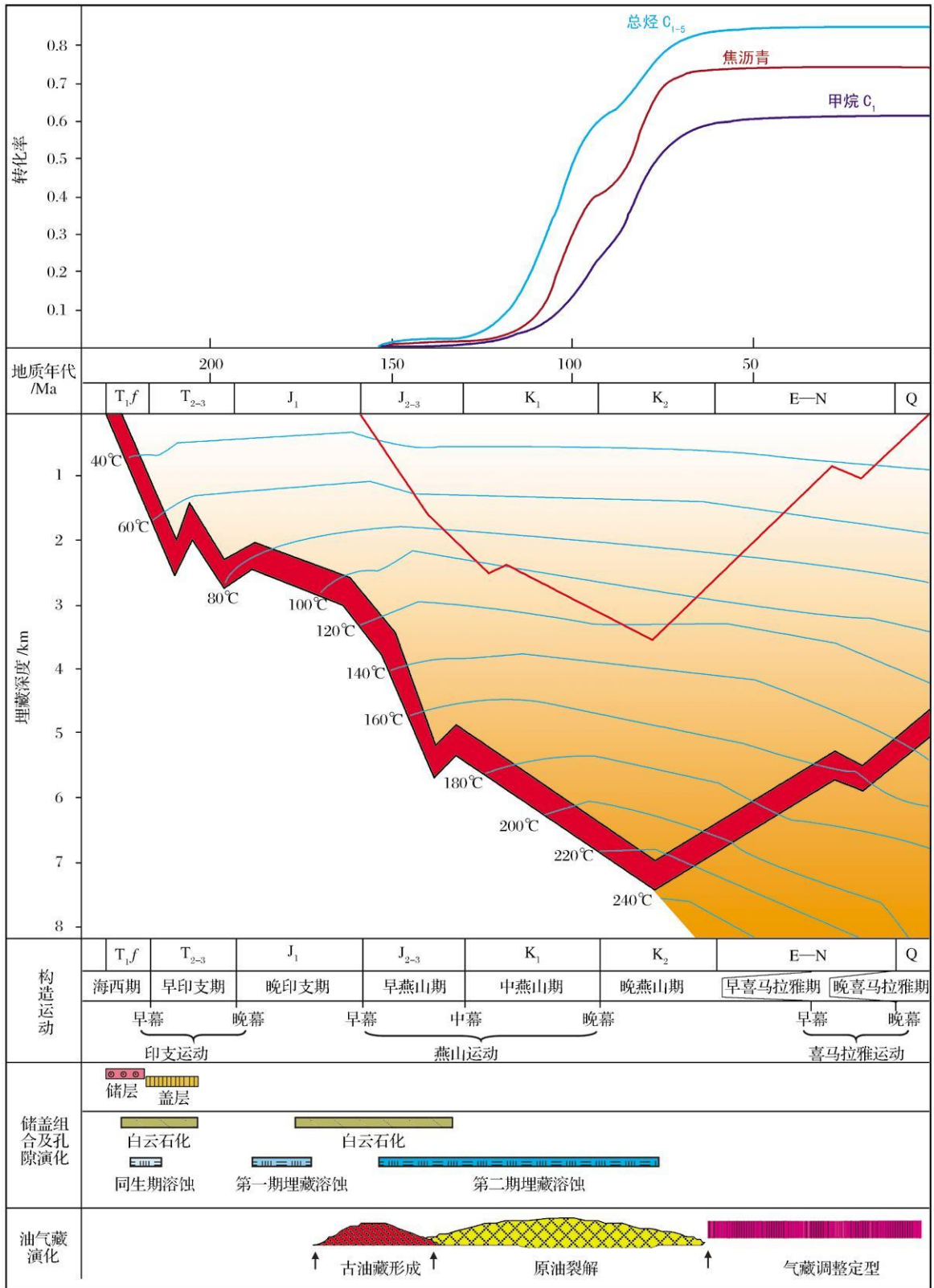


图 5 川东北飞仙关组古油藏原油裂解的动力学地质模型

(1) 古油藏形成阶段。液态烃类在储层中的富集成古油藏,为原油裂解提供基本的物质条件。印支末期—燕山早期($T_3 - J_2$),二叠系烃源岩进入生油窗并于中侏罗世进入生油高峰期。早期构造运动形成的构造裂缝系统、深大断裂以及储层自身的同生期溶蚀孔,共同构成了输导系统,使得源岩生成的大量液态烃向上覆的飞仙关组运移。此时川东北地区经历了早、晚印支运动,飞仙关组有了明显的地层起伏,形成了近NW向的古隆起,而且飞仙关组鲕滩储层经历了白云石化^[30]并叠加了第一期埋藏溶蚀作用,为液态烃的聚集提供了圈闭和储集空间。印支末期,大量液态烃在鲕滩储层发育区的高部位聚集形成古油藏。现今气藏中大量固体沥青的存在,即是曾有液态烃富集的重要证据。

(2) 古气藏阶段。早燕山末期—晚燕山期($J_3 - K_2$),为古油藏原油裂解生气阶段,该阶段是气态烃大量生成并聚集成藏的关键时期(事实上,该阶段后期烃源岩已达湿气—干气阶段,干酪根裂解气对气藏有贡献,但本文重点讨论古油藏原油裂解气)。晚侏罗世早期,由于地温条件已达 160°C ,古油藏原油开始裂解生气,从晚侏罗世至白垩纪末,是原油大量裂解生气的阶段。晚燕山期(白垩纪末),甲烷(C_1)、总烃类气体(C_{1-5})和焦沥青的转化率分别增至约0.65、0.85和0.7,之后由于地温降低古油藏原油裂解停滞。需要说明的是,本文的动力学模型主要在这一阶段。

对应于古油藏原油裂解阶段,川东北地区经历了中燕山运动,在NE—SW和NW—SE 2个方向的挤压应力场作用下,飞仙关组进一步褶皱变形,形成了NE、NW向2组逆断层和背斜,构造圈闭基本形成。该阶段飞仙关组储层经历了第二期埋藏溶蚀作用,早期孔隙被溶蚀扩大,增加了储集空间。而且,烃类参与的TSR(热化学硫酸盐还原反应)作用释放的 H_2S 等酸性气体对碳酸盐岩储层造成强烈的腐蚀^[20],进一步扩大了储集空间,为气态烃提供了运移通道和聚集空间。川东北地区经历了中晚燕山运动之后,古油藏格局基本解体,而原油裂解也因温度降低而停滞,形成了古气藏。由此可以看出,古气藏形成和分布明显受构造和岩性因素的双重控制,属于构造—岩性复合圈闭气藏。

(3) 气藏调整定型阶段。经过喜马拉雅运动,特别是早第三纪末的早喜马拉雅运动之后,川东北地区进一步强烈褶皱,构造格局基本成型,该时期研究区内断裂大量形成,断裂和褶皱连为一体,早期形

成的圈闭和气藏被破坏或改造,气藏(除却损失部分)的分布随之而确定,即是现今圈闭和气藏的分布格局。

纵观古油藏—古气藏—现今气藏的复杂演化史,可以确认的是:①飞仙关组古油藏确曾发生过原油裂解,生成了大量气态烃;②成藏要素的良好匹配使得原油裂解气发生聚集并形成古气藏;③古油藏原油裂解停滞时,气态烃的转化率(尤其是甲烷)较低,还有较大的生气潜力;④受后期喜马拉雅运动的影响,原油裂解气不可避免地遭受损失,但由于良好的圈闭条件,古气藏被改造后,仍然形成了储量丰富的鲕滩气藏。

4 结论

(1) 天然气组分、碳同位素组成以及气藏储层固体沥青的热变质成因,都说明飞仙关组古油藏确曾存在并发生了裂解,天然气主要为原油裂解气。因此,通过高压封闭体系下的热模拟实验,再现了原油在热动力下裂解生成烃类气体、焦沥青的变化规律,实验结果可通过动力学计算外推至实际地质条件下,定量恢复鲕滩天然气的成藏过程:古油藏原油大约在距今140Ma左右开始裂解;在距今75Ma左右,古地温达到最大(约 228°C);后由于地层抬升,地温降低,距今约58Ma(古地温约为 220°C)时原油裂解停止。

(2) 飞仙关组古油藏确曾发生过原油裂解,生成了大量气态烃;成藏要素的良好匹配使得原油裂解气发生聚集并形成古气藏;古油藏原油裂解停滞时,气态烃的转化率(尤其是甲烷)较低,还有较大的生气潜力;受后期喜马拉雅运动的影响,原油裂解气遭受不彻底的破坏,但由于良好的圈闭条件,古气藏被改造调整后仍然形成了储量丰富的鲕滩气藏。

(3) 需要说明的是,该研究只考虑了热动力条件下原油裂解的生气特征,而在实际地质体系中的有机质演化受多种因素影响(如水、矿物质等),天然气生成过程中及成藏后,还会受到硫酸盐热化学反应(TSR)等次生蚀变的改造;模型中未能包括沉积埋藏后期干酪根裂解生气对气藏的贡献。上述更接近实际地质条件的成藏过程恢复还有待今后的深入研究。

致谢:中国石油西南油气田勘探开发研究院王一刚教授和中国科学院广州地球化学研究所孙永革研究员、刘德汉研究员、熊永强研究员等在成文过程中给

予了宝贵的指导与帮助,在此一并深表谢意!

参考文献:

- [1] Zhao Wenzhi, Wang Zhaoyun, He Haiqing, *et al.* Gas generation mechanism of marine source rock in China[J]. Science in China: Series D, Earth Sciences, 2005, 48(4): 441-453. [赵文智, 王兆云, 何海清, 等. 中国海相碳酸盐岩烃源岩生气机理[J]. 中国科学: D 辑, 地球科学, 2005, 35(7): 638-648.]
- [2] Zhao Mengjun, Lu Shuangfang. Natural gas from secondary cracking of crude oil: An important pattern of gas generation[J]. Geology Review, 2000, 46(6): 645-650. [赵孟军, 卢双舫. 原油二次裂解气——天然气重要的生成途径[J]. 地质论评, 2000, 46(6): 645-650.]
- [3] Hill R H, Tang Y, Kaplan I R. Insights into oil cracking based on laboratory experiments[J]. Organic Geochemistry, 2003, 34(12): 1651-1672.
- [4] Zhao Wenzhi, Wang Zhaoyun, Zhang Shuichang, *et al.* Oil cracking: An important way for highly efficient generation of gas from marine source rock kitchen[J]. Chinese Science Bulletin, 2005, 50(22): 2628-2635. [赵文智, 王兆云, 张水昌, 等. 油裂解生气是海相气源灶高效成气的重要途径[J]. 科学通报, 2006, 51(5): 589-595.]
- [5] Guo Liguang, Tian Hui, Jin Yongbin, *et al.* Reaction mechanism, medium influencing factors and identification and evaluation of oil-cracking gas[J]. Geochemica, 2008, 37(5): 499-511. [郭利果, 田辉, 靳永斌, 等. 原油裂解成气反应机理、介质影响因素与判别[J]. 地球化学, 2008, 37(5): 499-511.]
- [6] Behar F, Kressmann S, Rudkiewicz L, *et al.* Experimental simulation in a confined system and kinetic modeling of kerogen and oil cracking[J]. Organic Geochemistry, 1992, 19(1/3): 173-189.
- [7] Vandenbroucke M, Behar F, Rudkiewicz J L. Kinetic modeling of petroleum formation and cracking: Implications from the high pressure/high temperature Elgin field (UK, North Sea)[J]. Organic Geochemistry, 1999, 30(9): 1105-1125.
- [8] Tsuzuki N, Takeda N, Suzuki M. The kinetic modeling of oil cracking by hydrothermal pyrolysis experiments[J]. International Journal of Coal Geology, 1999, 39(1/3): 227-250.
- [9] Wang Yigang, Hong Haitao, Xia Maolong, *et al.* Exploration of reef-bank gas reservoirs surrounding Permian and Triassic troughs in Sichuan basin[J]. Natural Gas Industry, 2008, 28(1): 22-27. [王一刚, 洪海涛, 夏茂龙, 等. 四川盆地二叠、三叠系环海槽礁、滩富气带勘探[J]. 天然气工业, 2008, 28(1): 22-27.]
- [10] Ma Yongsheng. Geochemical characteristics and origin of natural gases from Puguang gas field on eastern Sichuan basin[J]. Natural Gas Geoscience, 2008, 19(1): 1-7. [马永生. 普光气田天然气地球化学特征及气源探讨[J]. 天然气地球科学, 2008, 19(1): 1-7.]
- [11] Zhao Wenzhi, Wang Zecheng, Wang Yigang, *et al.* Formation mechanism of highly effective gas pools in the Feixianguan Formation in the NE Sichuan basin[J]. Geology Review, 2006, 52(5): 708-717. [赵文智, 汪泽成, 王一刚, 等. 四川盆地东北部飞仙关组高效气藏形成机理[J]. 地质论评, 2006, 52(5): 708-717.]
- [12] Xie Zengye, Tian Shicheng, Wei Guoqi, *et al.* The study on bitumen and foregone pool of Feixianguan oolitic in northeast Sichuan basin[J]. Natural Gas Geoscience, 2005, 16(3): 283-288. [谢增业, 田世澄, 魏国齐, 等. 川东飞仙关组储层沥青与古油藏研究[J]. 天然气地球科学, 2005, 16(3): 283-288.]
- [13] Qin Jianzhong, Fu Xiaodong, Liu Xiaozeng. Solid bitumens in the marine carbonate reservoir of gas field in the northeast area of the Sichuan basin[J]. Acta Geologica Sinica, 2007, 81(8): 1066-1071. [秦建中, 付小东, 刘效曾. 四川盆地东北部气田海相碳酸盐岩储层固体沥青研究[J]. 地质学报, 2007, 81(8): 1066-1071.]
- [14] Dai Jinxing, Li Jian, Luo Xia, *et al.* Alkane carbon isotopic composition and gas source in giant gas fields of Ordos basin[J]. Acta Petrolei Sinica, 2005, 26(1): 18-26. [戴金星, 李剑, 罗霞, 等. 鄂尔多斯盆地大气田的烷烃气碳同位素组成特征及其气源对比[J]. 石油学报, 2005, 26(1): 18-26.]
- [15] Song Yan, Xu Yongchang. Origin and identification of natural gases[J]. Petroleum Exploration and Development, 2005, 32(4): 24-29. [宋岩, 徐永昌. 天然气成因类型及其鉴别[J]. 石油勘探与开发, 2005, 32(4): 24-29.]
- [16] Li Jian, Xie Zengye, Dai Jinxing, *et al.* Geochemistry and origin of sour gas accumulations in the northeastern Sichuan basin, SW China[J]. Organic Geochemistry, 2005, 36: 1703-1716.
- [17] Zhang Shuichang, Zhu Guangyou, Chen Jianping, *et al.* A discussion on gas sources of the Feixianguan Formation H₂S-rich giant gas fields in the NE Sichuan basin[J]. Chinese Science Bulletin, 2007, 52(supplement 1): 113-124. [张水昌, 朱光有, 陈建平, 等. 四川盆地川东北部飞仙关组高含硫化氢大型气田群气源探讨[J]. 科学通报, 2007, 52(增刊1): 86-94.]
- [18] Ma Yongsheng, Cai Yuxun, Guo Tonglou. The controlling factors of oil and gas charging and accumulation of Puguang gas field in the Sichuan basin[J]. Chinese Science Bulletin, 2007, 52(supplement 1): 193-200. [马永生, 蔡育勋, 郭彤楼. 四川盆地普光大型气田油气充注与富集成藏的主控因素[J]. 科学通报, 2007, 52(增刊1): 149-155.]
- [19] Dai Jinxing, Yang Chun, Hu Guoyi, *et al.* Coal-formed gas plays a significant role in the natural gas industry of China[J]. Natural Gas Geoscience, 2008, 19(6): 733-740. [戴金星, 杨春, 胡国艺, 等. 煤气是中国天然气工业的主角[J]. 天然气地球科学, 2008, 19(6): 733-740.]
- [20] Zhu Guangyou, Zhang Shuichang, Liang Yingbo, *et al.* Isotopic evidence of TSR origin for natural gas bearing high H₂S contents within the Feixianguan Formation of the northeastern Sichuan basin, southwestern China[J]. Science in China: Series D, Earth Sciences, 2005, 48(11): 1960-1971. [朱光有, 张水昌, 梁英波, 等. 川东北地区飞仙关组高含H₂S天然气TSR成因的同位素证据[J]. 中国科学: D 辑, 地球科学, 2005, 35(11): 1037-1046.]

- [21] Zhao Mengjun, Zeng Fangang, Qin Shengfei, *et al.* Two pyrolysis gas found and proved in Tarim basin[J]. *Natural Gas Industry*, 2001, 21(1): 35-39. [赵孟军, 曾凡刚, 秦胜飞, 等. 塔里木发现和证实两种裂解气[J]. *天然气工业*, 2001, 21(1): 35-39.]
- [22] Chen Shijia, Fu Xiaowen, Ma Lining, *et al.* Genetic identification method of kerogen-cracked gases and oil cracked gases[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2002, 24(4): 364-366. [陈世加, 付晓文, 马力宁, 等. 干酪根裂解气和原油裂解气的成因判识方法[J]. *石油实验地质*, 2002, 24(4): 364-366.]
- [23] Wang Tongshan, Geng Ansong, Sun Yongge, *et al.* Geochemical characteristics of solid bitumen in reservoir and their implication for the origin of natural gas of Feixianguan Formation in northeastern Sichuan basin[J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 2008, 26(2): 341-348. [王铜山, 耿安松, 孙永革, 等. 川东北飞仙关组储层固体沥青地球化学特征及其气源指示意义[J]. *沉积学报*, 2008, 26(2): 341-348.]
- [24] Liu Jinzhong, Tang Yongchun. A case of methane production prediction using kinetic experiment on hydrocarbon generation of kerogen[J]. *Chinese Science Bulletin*, 1998, 43(22): 1908-1912. [刘金钟, 唐永春. 用干酪根生烃动力学方法预测甲烷生成量之一例[J]. *科学通报*, 1998, 43(11): 1987-1191.]
- [25] Xiong Yongqiang, Zhang Haizu, Geng Xinhua, *et al.* Thermal cracking of n-octadecane and its geochemical significance[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2004, 49(supplement 1): 1908-1912. [熊永强, 张海祖, 耿新华, 等. 正十八烷的裂解及其地球化学意义[J]. *科学通报*, 2004, 49(增1): 72-75.]
- [26] Wang Yigang, Yu Xiaofeng, Yang Yu, *et al.* Applications of fluid inclusions in the study of paleo-geotemperature in Sichuan basin[J]. *Earth Science: Journal of China University of Geosciences*, 1998, 23(3): 285-288. [王一刚, 余晓锋, 杨雨, 等. 流体包裹体在建立四川盆地古地温剖面研究中的应用[J]. *地球科学: 中国地质大学学报*, 1998, 23(3): 285-288.]
- [27] Wu Damao, Wu Nailing, Gao Jianjun. Paleo-geotemperature in Sichuan basin and its geological significance[J]. *Acta Petroli Sinica*, 1998, 19(1): 18-23. [伍大茂, 吴乃苓, 郝建军. 四川盆地古地温研究及其地质意义[J]. *石油学报*, 1998, 19(1): 18-23.]
- [28] Qin Jianzhong, Rao Dan, Jiang Hong. Direct index of pale temperature of high mature marine facies carbonate sequences—homogenization temperature of fluid inclusions[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2008, 30(5): 494-498. [秦建中, 饶丹, 蒋宏. 高演化海相碳酸盐岩层系古温标的直接指标——流体包裹体均一温度[J]. *石油实验地质*, 2008, 30(5): 494-498.]
- [29] Zhao Wenzhi, Luo Ping, Chen Gengsheng, *et al.* Origin and reservoir rock characteristics of dolostones in the early Triassic Feixianguan Formation, NE Sichuan basin, China: Significance for future gas exploration[J]. *Journal of Petroleum Geology*, 2005, 28(1): 83-100.
- [30] Wang Yigang, Dou Lirong, Wen Yingchu, *et al.* Origin of H₂S in Triassic Feixianguan Formation gas pools, northeastern Sichuan basin, China[J]. *Geochemica*, 2002, 31(6): 1-7. [王一刚, 窦立荣, 文应初, 等. 四川盆地东北部三叠系飞仙关组高含硫气藏 H₂S 成因研究[J]. *地球化学*, 2002, 31(6): 1-7.]

A kinetic Geological Model of Oil Cracking Gas Formation in Feixianguan Oolitic Oil Reservoir in NE Sichuan Basin

WANG Tongshan¹, GENG Ansong², LI Xia¹, XU Zhao-hui¹, WANG Hong-jun¹, WANG Ze-cheng¹

(1. *Research Institute of Petroleum Exploration and Development, PetroChina, Beijing 100083, China;*

2. *Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China)*

Abstract: It has been proved that the natural gas in Feixianguan reservoir in NE Sichuan basin would be generated from oil cracking in past oil pools, by means of gas geochemistry and organic petrology of solid bitumen in reservoir. Pyrolysis in anhydrous closed system (gold tubes) was subjected to discuss gas generation from oil cracking, including yields of gaseous hydrocarbons and pyrobitumen. In combination with subsidence history, paleo-temperature and Feixianguan tectonics, we extrapolated experimental kinetics parameter to geological conditions and established a kinetic geological model of gas generation of oil cracking in oil reservoir, and then the history of generation, migration and accumulation of oil cracking gas in oolitic reservoir was recurred. The kinetic geological model established in this paper can give an approach to understand the accumulation of oil cracking gas in past oil pools.

Key words: Oil cracking; Oolitic reservoir; Solid bitumen; Kinetics; NE Sichuan basin.