

DOI: 10.19657/j.geoscience.1000-8527.2020.030

南祁连盆地木里坳陷油气来源分析： 基于 DK-9 孔岩心样品热模拟实验

唐世琪¹, 卢振权², 程斌³, 廖泽文³, 刘晖², 王婷², 范东稳², 张富贵¹

(1. 中国地质科学院地球物理地球化学勘查研究所, 河北廊坊 065000; 2. 中国地质调查局油气资源调查中心, 北京 100083;
3. 中国科学院广州地球化学研究所有机地球化学国家重点实验室, 广东广州 510640)

摘要: 南祁连盆地木里坳陷部署的多个天然气水合物钻孔钻遇不同程度的水合物与油气显示伴生现象, 指示该地区具有良好的油气勘探前景, 有必要对已发现油气显示进行来源分析。由于水合物钻孔深度有限, 针对 DK-9 孔 4 组油气显示样品, 在开展现有烃源岩油源对比基础上, 选取中侏罗统、上三叠统各 5 组代表性低熟烃源岩样品进行热模拟实验, 模拟深部烃源岩生、排烃过程, 将新生烃类再次与油气显示进行对比, 进一步探究油气显示来源。结果显示, 油气显示可分为两类(I 和 II), 第 I 类油气显示遭受生物降解作用, 成熟度稍高, 第 II 类油气显示成熟度稍低; 现有烃源岩主要分为三种类型(I—III), 分别对应深度 163.30~207.42 m、207.42~348.50 m、357.90~586.50 m。结合常规油源对比、热模拟实验与地质条件分析, 最终推测第 I 类油气显示主要与第 I 类烃源岩同源; 第 II 类油气显示主要与第 II 类烃源岩同源, 此外可能还有第 III 类烃源岩或更深层烃源岩的贡献, 即其母质来源既与中侏罗统烃源岩有关又与上三叠统烃源岩有关。

关键词: 油气显示; 来源; 热模拟; 木里坳陷; 南祁连盆地

中图分类号: P618.1; TE132.2 **文献标志码:** A **文章编号:** 1000-8527(2021)04-1078-10

Source Analysis of Oil and Gas Indication in Muli Depression of South Qilian Basin: A Thermal Simulation Case Study of DK-9 Core

TANG Shiqi¹, LU Zhenquan², CHENG Bin³, LIAO Zewen³, LIU Hui²,
WANG Ting², FAN Dongwen², ZHANG Fugui¹

(1. Institute of Geophysical & Geochemical Exploration, Chinese Academy of Geological Sciences, Langfang, Hebei 065000, China;
2. Oil and Gas Survey, China Geological Survey, Beijing 100083, China; 3. State Key Laboratory of Organic Geochemistry,
Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou, Guangdong 510640, China)

Abstract: Multiple gas hydrate boreholes in the Muli Depression (South Qilian Basin) have encountered varying coexistence of hydrates and oil-gas, indicating good potential for oil and gas exploration. It is thus necessary to perform source analysis on the discovered oil and gas indications. In this study, four groups of oil and gas samples from borehole DK-9 were studied. Due to the limited drilling depth, on the basis of oil source compari-

收稿日期: 2019-11-08; 改回日期: 2020-04-22; 责任编辑: 潘令枝。

基金项目: 国家自然科学基金项目(41073040); 中国地质调查局天然气水合物勘查与试采国家专项项目(GZHL20110310, GZHL20110311)。

作者简介: 唐世琪, 女, 硕士, 1991 年出生, 石油地质专业, 主要从事油气地球化学研究工作。Email: 642191779@qq.com。

通信作者: 卢振权, 男, 研究员, 1972 年出生, 矿物学、岩石学、矿床学专业, 从事天然气水合物地质地球化学勘查等研究。Email: luzhq@vip.sina.com。

引用格式: 唐世琪, 卢振权, 程斌, 等. 南祁连盆地木里坳陷油气来源分析: 基于 DK-9 孔岩心样品热模拟实验 [J]. 现代地质, 2021, 35(4): 1078-1087. DOI: 10.19657/j.geoscience.1000-8527.2020.030.

TANG Shiqi, LU Zhenquan, CHENG Bin, et al. Source Analysis of Oil and Gas Indication in Muli Depression of South Qilian Basin: A Thermal Simulation Case Study of DK-9 Core [J]. Geoscience, 2021, 35(4): 1078-1087. DOI: 10.19657/j.geoscience.1000-8527.2020.030.

son of existing source rocks, thermal simulation was conducted on five representative lowly-mature source rocks (Middle Jurassic and Upper Triassic) to constrain the hydrocarbon generation process. The results were then compared with the oil and gas to further constrain their source. The results reveal that the oil and gas indications can be divided into two types: (I) those with biodegradation and are slightly more mature, and (II) those that are slightly less mature. The source rocks comprise mainly three types, corresponding to 163.30 – 207.42 m, 207.42 – 348.50 m, and 357.90 – 586.50 m depths, respectively. Considering also the conventional oil source comparison, the thermal simulation and the geological condition analysis, it is concluded that type I oil and gas is mainly homologous with type I source rocks. Type II oil and gas may have had the same origin as type II source rocks, and may also be contributed by type III source rocks and/or deeper source rocks, i. e., its parent material is related to both the Middle Jurassic and the Upper Triassic source rocks.

Key words: oil and gas indication; source; thermal simulation; Muli Depression; South Qilian Basin

0 引言

南祁连盆地木里坳陷是我国首个冻土区天然气水合物主要勘探区^[1-2]。2013年,中国地质调查局在木里坳陷聚乎更煤矿区三露天井田部署的DK-9孔中除钻遇天然气水合物层外,还钻获厚层状含油层^[3],含油层产于362.79~370.58 m砂岩中,岩心表面呈灰褐-浅褐色,表现出大面积油浸、油染现象^[4]。这是南祁连盆地首次钻获的含油层,且研究区DK8-19、DK10-16、DK10-17、DK10-18、DK11-14、DK12-13和DK13-11等多个水合物钻孔中普遍存在着不同程度的水合物与油气显示伴生现象^[5-12],这预示着南祁连盆地具有良好的油气勘探前景,有可能为国家油气安全提供新的后备选择^[13],因此有必要对已发现的油气显示进行来源分析,为该区下一步油气调查提供依据。

现有的研究主要围绕该区域的天然气水合物开展,已有的生烃潜力研究显示,南祁连盆地主要发育4套烃源岩,分别为侏罗系泥页岩、上三叠统尕勒得寺组泥岩、下二叠统草地沟组灰岩以及石炭系泥(灰)岩^[14-15]。4套烃源岩整体有机质丰度较高,有机质类型以II₂型和III型为主,有机质演化程度整体上处于成熟-过成熟阶段,部分处于未成熟阶段,生烃潜力较好^[16-23]。前人曾对木里坳陷内DK-2、DK-3孔含天然气水合物层段岩心进行热模拟实验研究,推测天然气水合物气源来自深部泥岩或油页岩^[24-26],但针对油源的研究仍然较少^[27],亟须开展常规油气显示来源的相关研究。

本次研究的DK-9为水合物钻孔,深度有限,

终孔深度仅为593.07 m,无法获取深部烃源岩样品信息,为进一步探究所钻获的油气显示来源,选用浅部低熟烃源岩热模拟生烃的方法来进行油源分析,以期研究区下一步油气勘探提供依据。

1 区域地质概况

DK-9天然气水合物钻孔位于南祁连盆地木里坳陷聚乎更矿区三露天井田内(图1),研究区海拔4026~4128 m,冻土厚度一般为60~95 m,最深接近120 m^[28-29],钻探揭示第四系、中侏罗统和部分上三叠统。中侏罗统由上而下包含江仓组(对应区域上的享堂组)和木里组(对应区域上的窑街组)^[30-31]。江仓组(J_{2j})为湖泊-辫状河三角洲沉积,按岩性可分为上、下两段,上段以暗色油页岩、泥岩为主,不含煤;下段以深灰色泥岩、粉砂岩和灰色细砂岩为主,含多个薄煤层。木里组(J_{2m})为沼泽-辫状河沉积,分为上、下两个岩性段,上段是主要的含煤层段,发育本区主要可采煤层,岩性以深灰色泥岩、粉砂岩和灰色细砂岩、中砂岩为主;下段以灰白-灰色粉、细、中粗砂岩为主,底部砾岩发育。上三叠统以黑色粉砂岩、泥岩及薄煤层为主,与上覆中侏罗统呈低角度不整合接触。

2 样品采集与分析

本次共采集DK-9孔26组烃源岩样品及4组油气显示样品,样品采集信息见表1。对烃源岩样品进行镜质体反射率测定、岩石热解分析、索氏抽提、饱和烃组分数谱质谱分析以及全油碳同位素分析。对油气显示样品进行索氏抽提、饱和烃组分数谱质谱分析以及全油碳同位素

分析。

根据测试结果选择有机质丰度高、类型好、成熟度低且具有代表性的烃源岩样品开展热模拟实验，其中，中侏罗统共选取5个样品，均为泥岩样品；上三叠统共选取5个样品，其中4个泥岩样品，1个煤样(表2)。考虑深度间隔，另选

了TOC为0.45%的一个泥岩样品(DK9-M-44)，属于差烃源岩。

热模拟实验采用封闭体系下的恒温加热法，压力状态为真空。具体实验步骤如下：(1)泥岩样品研磨至60目，煤样研磨至直径2~3mm，将样品分别进行索氏抽提(二氯甲烷72h)，保留残

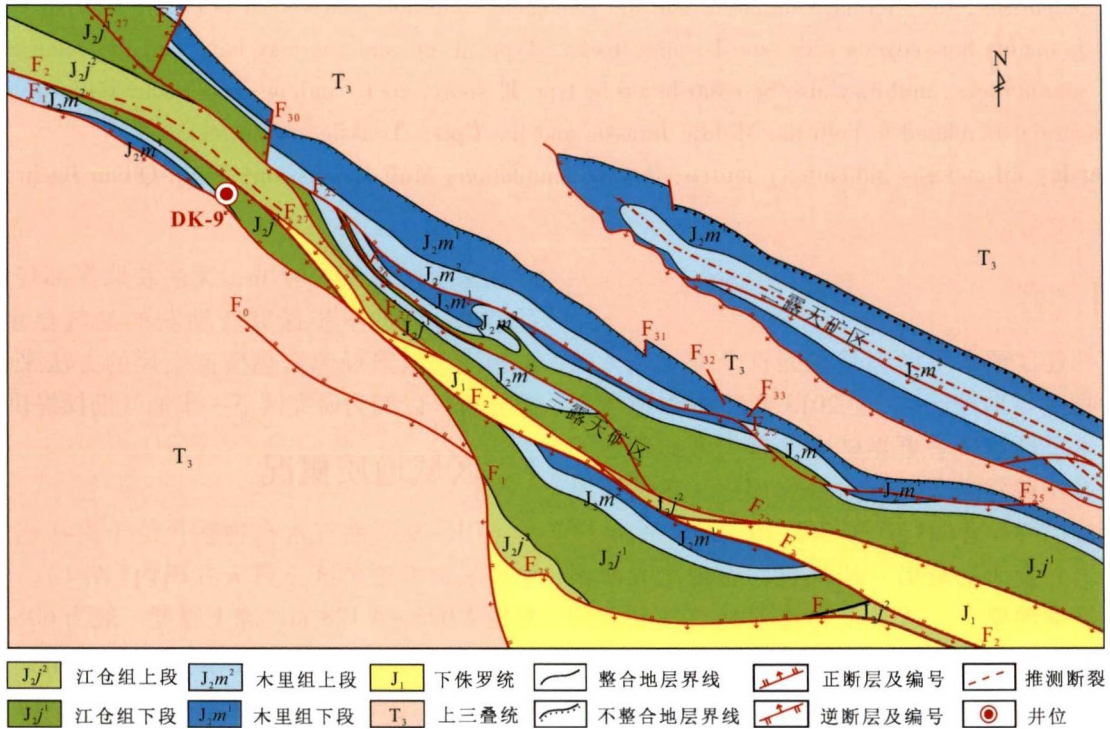


图1 研究区区域地质简图与DK-9钻孔位置

Fig. 1 Regional geologic sketch map and location of borehole DK-9

表1 DK-9 钻孔样品信息

Table 1 Sample information from borehole DK-9

样品类型	样品编号	深度/m	层位	岩性及描述	烃源岩类别	样品类型	样品编号	深度/m	层位	岩性及描述	烃源岩类别
烃源岩	DK9-M-008	163.30	中侏罗统	灰黑色泥岩	I	烃源岩	DK9-M-36	335.70	中侏罗统	灰黑色泥岩	II
	DK9-M-10	172.10	中侏罗统	灰黑色泥岩	I		DK9-M-39	348.50	中侏罗统	灰黑色泥岩	II
	DK9-M-12	190.00	中侏罗统	灰黑色泥岩	I		DK9-M-41	357.90	中侏罗统	灰黑色泥岩	III
	DK9-M-14	199.74	中侏罗统	深灰色泥岩	I		DK9-M-42	375.80	中侏罗统	灰黑色泥岩	III
	DK9-M-16	207.42	中侏罗统	灰黑色泥岩	I		DK9-M-43	382.70	中侏罗统	灰黑色泥岩	III
	DK9-M-18	227.30	中侏罗统	深灰色泥岩	II		DK9-M-44	405.40	中侏罗统	灰黑色泥岩	III
	DK9-M-21	250.20	中侏罗统	深灰色泥岩	II		DK9-M-48	441.00	中侏罗统	灰黑色泥岩	III
	DK9-M-23	260.40	中侏罗统	深灰色泥岩	II		DK9-M-51	476.40	中侏罗统	灰黑色泥岩	III
	DK9-M-26	273.20	中侏罗统	灰黑色泥岩	II		DK9-M-53	536.50	上三叠统	灰黑色泥岩	III
	DK9-M-29	285.80	中侏罗统	深灰-灰黑色泥岩	II		DK9-M-006	543.50	上三叠统	灰黑色泥岩	III
	DK9-M-31	294.60	中侏罗统	灰黑色泥岩	II		DK9-M-54	558.70	上三叠统	灰黑色泥岩	III
	DK9-M-33	303.72	中侏罗统	灰黑色泥岩	II		DK9-M-55	584.00	上三叠统	灰黑色含粉砂泥岩	III
	DK9-M-34	326.90	中侏罗统	深灰-灰黑色泥岩	II		DK9-C-008	586.50	上三叠统	煤	III
	油气显示	DK9-O-01	160.51	中侏罗统	砂岩，褐色油浸			油气显示	DK9-O-18	360.93	中侏罗统
	DK9-O-09	237.15	中侏罗统	砂岩，褐色油浸			DK9-O-19	366.90	中侏罗统	砂岩，大面积油浸	

表2 热模拟实验样品基本特征

Table 2 Characteristics of the samples for the thermal simulation

样品编号	深度/m	层位	岩性	TOC/%	R_o /%
DK9-M-16	207.42		泥岩	2.96	0.83
DK9-M-26	273.20		泥岩	4.23	0.68
DK9-M-41	357.90	中侏罗统	泥岩	18.15	0.62
DK9-M-44	405.40		泥岩	0.45	0.66
DK9-M-51	476.40		泥岩	1.50	0.62
DK9-M-53	536.50		泥岩	3.33	0.61
DK9-M-006	543.50		泥岩	2.16	0.64
DK9-M-54	558.70	上三叠统	泥岩	0.85	0.68
DK9-M-55	584.00		泥岩	2.89	0.69
DK9-C-008	586.50		煤	42.21	0.65

渣, 烘干备用。(2) 称取第一步的残渣样品 0.5 ~ 5 g(样品重量随温度升高而减少), 装入玻璃管中, 然后真空封闭。(3) 在选取 DK9-M-53 样品做过不同温度的模拟试验后, 最终设定 5 个温度点, 将同一模拟温度的 10 组样品放于马弗炉中, 首先加热到设定温度, 然后恒温一定时间(300 °C、350 °C、390 °C 恒温 72 h, 410 °C、460 °C 恒温 48 h), 恒温时间结束后, 使样品自然冷却。(4) 将样品取出, 再次进行索氏抽提, 获取其在不同温度点下生成的液态烃, 对液态烃进行族组分分离(硅胶: 氧化铝 = 2: 1), 对其中的饱和烃组

分进行色谱质谱分析。

色谱质谱分析采用 Thermo Fisher 公司的 DSQ II 与 Trace GC Ultra 联用系统。色谱条件: HP-1MS 色谱柱(60 m × 0.32 mm × 0.25 μm), 载气为氦气, 恒流: 1.2 mL/min。质谱条件: EI 模式, 离子源 70 eV, 离子源温度 260 °C, 质量扫描范围为 50 ~ 650 道尔顿。升温程序: 起始温度 80 °C, 保留 4 min; 然后以 4 °C/min 升温至 295 °C(保留 30 min)。以上测试均在中国科学院广州地球化学研究所有机地球化学国家重点实验室完成。

3 结果与讨论

3.1 油气显示特征

3.1.1 饱和烃特征

在 4 组油气显示样品的饱和烃色谱图(图 2(a))中, 正构烷烃均呈单峰型分布, 碳数相对较高, 主峰碳在 nC_{20} — nC_{23} 之间, 可能反映了油气显示母质有高等植物的输入。其中 DK9-O-01 与后三组(DK9-O-9、DK9-O-18、DK9-O-19)有较大的差异, 主要表现在: DK9-O-01 饱和烃 TIC 谱图呈明显的“鼓包”状, 但具相对较完整的正构烷烃分布, 表明 DK9-O-01 号油气显示遭受到一定的生物降解作用, 之后又经历过后期的原油充注^[27]; 正构烷烃的碳数范围为 nC_{16} — nC_{31} , Pr/Ph 比值为 1.42(表 3)。后三组油

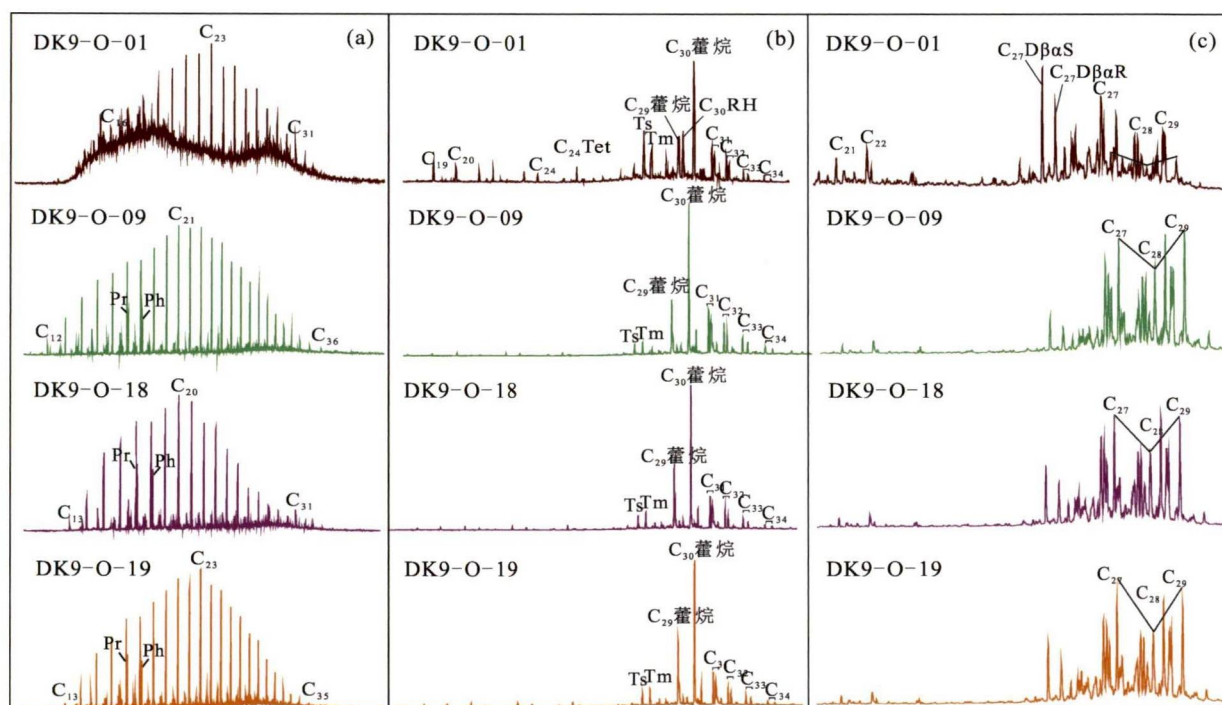


图2 DK-9 孔油气显示正构烷烃(a)、藿烷(b)和甾烷(c)特征

Fig. 2 Characteristics of N-alkanes (a), terpane (b) and sterane (c) of the oil and gas indications from borehole DK-9

表3 DK-9孔油气显示的部分生物标志化合物参数

Table 3 Major biomarker compound parameters of oil and gas indications from borehole DK-9

样号	Pr/Ph	Ts/ (Ts + Tm)	C ₃₀ RH/ C ₂₉ (H + Ts)	C ₂₉ (H + Ts)/ C ₃₀ H	C ₂₇ D/ C ₂₇₋₂₉ -St	C ₂₇ ααR/ C ₂₇ -St	C ₂₈ ααR/ C ₂₈ -St	C ₂₉ ααR/ C ₂₉ -St	C ₂₉ -S/ (S + R)	C ₂₉ -ββ/ (αα + ββ)
DK9-O-01	1.42	0.52	0.51	0.78	0.32	0.10	0.06	0.13	0.60	0.63
DK9-O-09	0.92	0.44	0.09	0.46	0.05	0.29	0.30	0.31	0.45	0.40
DK9-O-18	1.06	0.42	0.08	0.58	0.09	0.28	0.29	0.28	0.50	0.41
DK9-O-19	1.11	0.41	0.07	0.60	0.09	0.27	0.30	0.29	0.49	0.40

注: C₃₀RH/C₂₉(H + Ts), C₃₀重排藿烷/(C₂₉降藿烷 + C₂₉Ts); C₂₉(H + Ts)/C₃₀H, (C₂₉降藿烷 + C₂₉Ts)/C₃₀藿烷; C₂₇D/C₂₇₋₂₉-St, C₂₇重排甾烷/C₂₇-C₂₉规则甾烷; C₂₇ααR/C₂₇-St, C₂₇ααR/C₂₇规则甾烷; C₂₈ααR/C₂₈-St, C₂₈ααR/C₂₈规则甾烷; C₂₉ααR/C₂₉-St, C₂₉ααR/C₂₉规则甾烷; C₂₉-S/(S + R), ααC₂₉规则甾烷-20S/(20S + 20R)。下同。

气显示未遭受生物降解作用的改造, 正构烷烃碳数范围主要在 nC₁₂—nC₃₆之间, Pr/Ph 比值在 0.92 ~ 1.11 之间。

3.1.2 萜烷特征

在萜烷分布特征图(图 2(b))上, 4 组油气显示均以五环萜烷为主, 以 C₃₀藿烷为主峰。4 组样品抽提物中均检测到 17α(H) - 15α - 甲基 - 重排藿烷(C₃₀RH)和 18α(H) - 17α - 甲基 - 30 - 降新藿烷(C₂₉Ts), 其中, 新藿烷与 C₂₉降藿烷共溢出。不同的是, DK9-O-01 抽提物萜烷中三环、四环萜烷有一定的分布, 主要为 C₁₉—C₂₄三环萜烷和 C₂₄四环萜烷; DK9-O-01 中 C₃₀RH/C₂₉(H + Ts) 比值为 0.51, 而在另外三组油气显示中介于 0.07 ~ 0.09 之间; DK9-O-01 中 Ts/(Ts + Tm) 比值也较后三组油气显示高(表 3)。

有研究^[32-34]认为, C₃₀RH 重排藿烷和新藿烷(C₂₉Ts)的形成与黏土矿物的催化作用有关, 陆相原油、陆相烃源岩和煤中常检测到 C₃₀RH 重排藿烷, 因此其被作为一种可能的陆源生物标志化合物^[35-36]。结合油气显示样品抽提物正构烷烃呈高碳数分布特征, 推测油气显示母质有陆源高等植物输入, 同时母质生成的烃类受到黏土矿物的影响。DK9-O-01 中 C₃₀R/C₂₉(H + Ts) 比值明显大于其他三组样品, 可能是受到生源、岩性和岩石组成、沉积或成岩环境(氧化还原性)和热成熟度等因素的影响^[37]。

在成熟度方面, Ts/(Ts + Tm)、C₃₀RH/C₂₉Ts、三环萜烷/17α(H) - 藿烷比值在一定程度上均可以反映沉积有机质的成熟度状况^[34]。虽然 Ts、C₂₉Ts 和 C₃₀RH 重排藿烷可能受到黏土矿物的影响, 但总体上这三个参数在 DK9-O-01 中的比值最大, 另外三组则差别不大, 推测 DK9-O-01 样品油气显示的成熟度略高, 另外三组油气显示

成熟度状况基本一致。

3.1.3 甾烷特征

在甾烷的分布特征方面, 4 组油气显示规则甾烷基本呈现“V”形或不对称的“V”形分布(图 2(c)), 均检测到重排甾烷, 主要以 13β, 17α - C₂₇重排甾烷的 20S 和 20R 两种构型为主, 其中 20S 构型的相对浓度大于 20R 构型。但是 DK9-O-01 号样品在甾烷分布特征上与另外三组样品的差异也比较明显, 主要表现在: DK9-O-01 中 C₂₇重排甾烷的相对含量高于另外三组; DK9-O-01 样品中 C₂₇—C₂₉规则甾烷的 ααα 构型的相对浓度明显低于另外三组; DK9-O-01 号样品中 C₂₉-ββ/(αα + ββ)规则甾烷比值为 0.63, 而在另外三组中介于 0.40 ~ 0.41 之间(表 3)。

重排甾烷主要是成岩作用早期阶段由甾醇形成的甾烯, 在黏土矿物酸性催化作用下发生碳骨架重排转变而来^[38], 氧化或酸性环境可以有效促进重排甾烯的形成^[39-40], C₂₇重排甾烷的检测再次表明了母岩生烃过程中黏土矿物的催化效应。C₂₉规则甾烷 ββ/(αα + ββ)和 αααC₂₉规则甾烷的 20S/(20S + 20R) 比值可以作为成熟度参数指标^[34], αααC₂₉规则甾烷的 20S/(20S + 20R) 比值为 0.50, 代表了甾烷异构化参数的平衡值^[41], 本次 4 组油气显示样品基本上高于 0.50, 说明 4 组油气显示均为成熟原油, DK9-O-01 油气显示成熟度略高于后三组油气显示, 与上文推测一致。

综上所述, DK-9 孔 4 组油气显示样品的母质存在高等植物输入, 沉积于富含黏土矿物的氧化 - 亚氧化条件, 且均为成熟原油。受到生物降解作用和黏土矿物不同催化程度的影响, 油气显示明显分为两种类型, 第 I 类为 DK9-O-01 组油气显示, 这类油气显示在遭受生物降解作用, 后期又有油气的充注。第 II 类油气显示为 DK9-O-

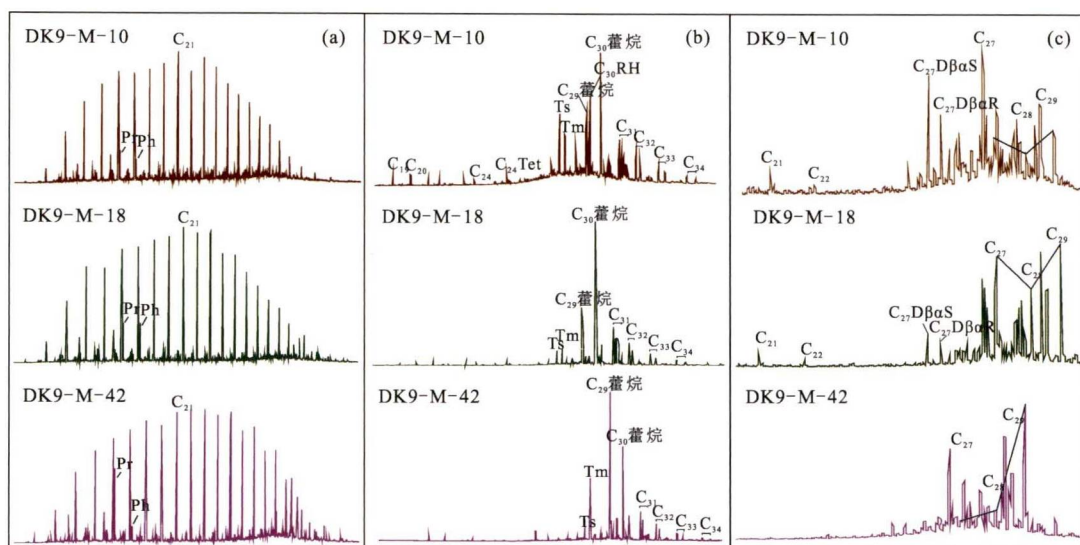


图3 DK-9孔烃源岩样品正构烷烃(a)、萜烷(b)、甾烷(c)特征

Fig. 3 Characteristics of N-alkanes (a), terpane (b) and sterane (c) of hydrocarbon source rocks in borehole DK-9

09、DK9-O-18、DK9-O-19三组,这类油气显示没有遭受生物降解的改造,成熟度稍低于第I类。

3.2 烃源岩油源对比

根据现有26个烃源岩样品抽提物的生物标志物特征,大致上可以将本次烃源岩样品分为三类。

第I类:深度为163.30~207.42 m,编号为DK9-M-008—DK9-M-16;第II类:深度为207.42~348.50 m,编号为DK9-M-18—DK9-M-39;第III类:深度为357.90~586.50 m,编号为DK9-M-41—DK9-C-008。三类源岩差异主要表现在正构烷烃碳数范围和主峰碳、Ts/(Ts+Tm)比值、五环萜烷形态、重排甾烷相对含量、规则甾烷分布模式等方面的不同(图3,以DK9-M-10、DK9-M-18和DK9-M-42为例)。

烃源岩样品抽提物全油碳同位素值整体在约210 m和350 m处存在两处转折点(图4),同样对应上述三种烃源岩类型。从正构烷烃、萜烷和甾烷特征以及全油碳同位素来看,DK9-O-01号油气显示与第I类烃源岩相似;DK9-O-09、DK9-O-18、DK9-O-19三组油气显示与第II类烃源岩更相似(与第III类烃源岩相比)。初步推断第I类油气显示与第I类烃源岩同源,第II类油气显示可能主要与第II类烃源岩同源,此外可能还有第III类烃源岩或更深层烃源岩的贡献。

3.3 热模拟实验油源对比

热模拟实验主要是通过增加温度来补偿漫长的地质时间,实验室模拟条件必然不能完全复制

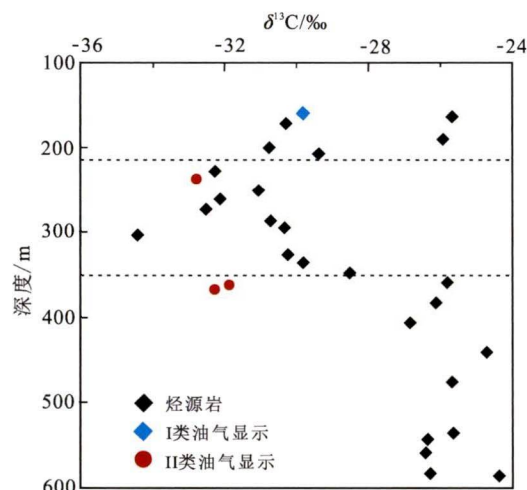


图4 DK-9孔烃源岩与油气显示全油碳同位素与深度关系图

Fig. 4 Depth vs. total oil carbon isotope plot of the hydrocarbon source rocks and oil/gas indications in borehole DK-9

自然地质条件下的生烃过程,但是无论什么条件下,干酪根大分子骨架上键合的生物标志化合物都会随着干酪根降解程度的增加而不断被释放出来,且不同沉积环境的有机质有着与之相匹配的特殊生物标志化合物,例如C₃₀RH重排萜烷、新萜烷(C₂₉Ts)、重排甾烷等,利用这些具有专属性(如母质、沉积环境、矿物组成等)的生物标志物来开展油源对比是一种新的尝试,也是对传统油源对比的补充。

3.3.1 中侏罗统样品

由于热模拟样品在温度逐渐升高的过程中,饱

和烃异构化严重,故暂不对其饱和烃特征进行对比。

中侏罗统5组泥岩样品热模拟结果显示,样品在不同温度下的萘烷特征(图5(a),以DK9-M-26样品为例)表现为,样品300~350℃之间萘烷特征变化不大,主要表现为T_m含量较高,原因可能是其与C₃₀四环三萘烷共析出;C₂₉藿烷含量一般高于C₃₀藿烷,且新藿烷与C₂₉藿烷共溢出现象不明显。在350~390℃之间,萘烷特征发生突变,可见在390℃温度点下,T_m向T_s转化;C₂₉藿烷含量低于C₃₀藿烷,且开始出现新藿烷与C₂₉藿烷共溢出现象。在之后的410~460℃之间,萘烷特征基本保持不变。

样品在不同温度点下甾烷特征同样显示(图5(b)),在300~350℃之间样品甾烷特征变化不大,主要表现为C₂₇重排甾烷含量较少,C₂₉规则甾烷略占优势。同样,在350~390℃之间,甾烷特征发生突变,在390℃温度点下,C₂₇重排甾烷含量明显增大,C₂₇与C₂₈规则甾烷相对含量增加,规则甾烷基本呈“V”形分布。在之后的410~460℃之间,萘烷特征基本保持不变。

对中侏罗统样品在5个温度点下生成液态烃的饱和烃色谱质谱分析结果显示,其萘烷和甾烷

特征在300~350℃之间变化不大,均在350~390℃之间发生突变,且在之后的390~460℃之间趋于稳定。将5组样品在不同温度点下的生物标志化合物参数与油气显示样品进行对比(图6),结果显示,自390℃起,第Ⅱ类油气显示各项生物标志化合物参数开始与热模拟样品生物标志物参数吻合。由此推断,中侏罗统样品在390℃以上产出的液态烃类与第Ⅱ类油气显示相当。

3.3.2 上三叠统样品

上三叠统4组泥岩、1组煤岩样品热模拟结果显示,样品在不同温度点下萘烷特征(图7(a),以DK9-M-55样品为例)表现为,样品300~390℃之间萘烷特征变化不大,主要表现为T_m含量较高,C₂₉藿烷含量大多高于C₃₀藿烷,且未见新藿烷与C₂₉藿烷共溢出现象。在390~410℃之间,萘烷特征发生突变,在410℃温度点下,T_s与T_m含量趋于平均,C₂₉藿烷含量低于C₃₀藿烷,开始出现新藿烷与C₂₉藿烷共溢出现象。且在410~460℃温度段内,萘烷特征基本保持不变。

样品在不同温度点下甾烷特征同样显示(图7(b)),在300~390℃之间样品甾烷特征变化不大,主要表现为C₂₇重排甾烷基本不可见或含量较少,C₂₉规则甾烷明显占优势。同样,在390~410

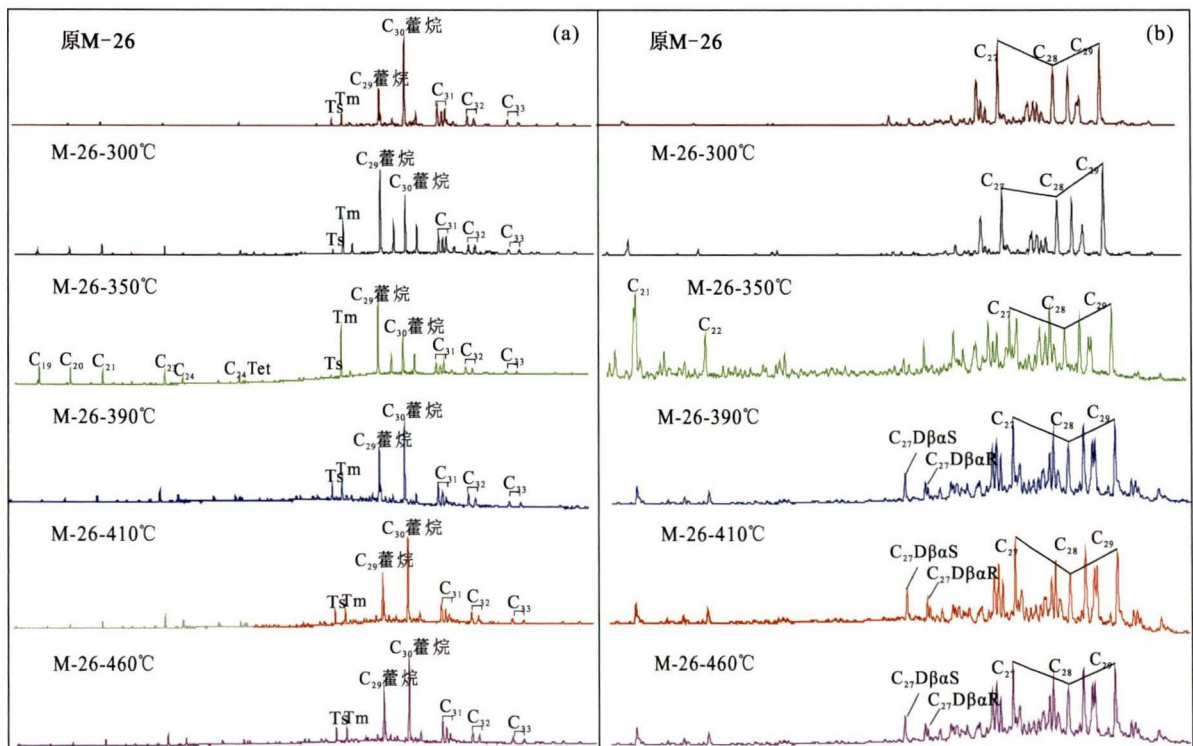


图5 DK-9孔中侏罗统样品在不同温度点下萘烷(a)与甾烷(b)特征

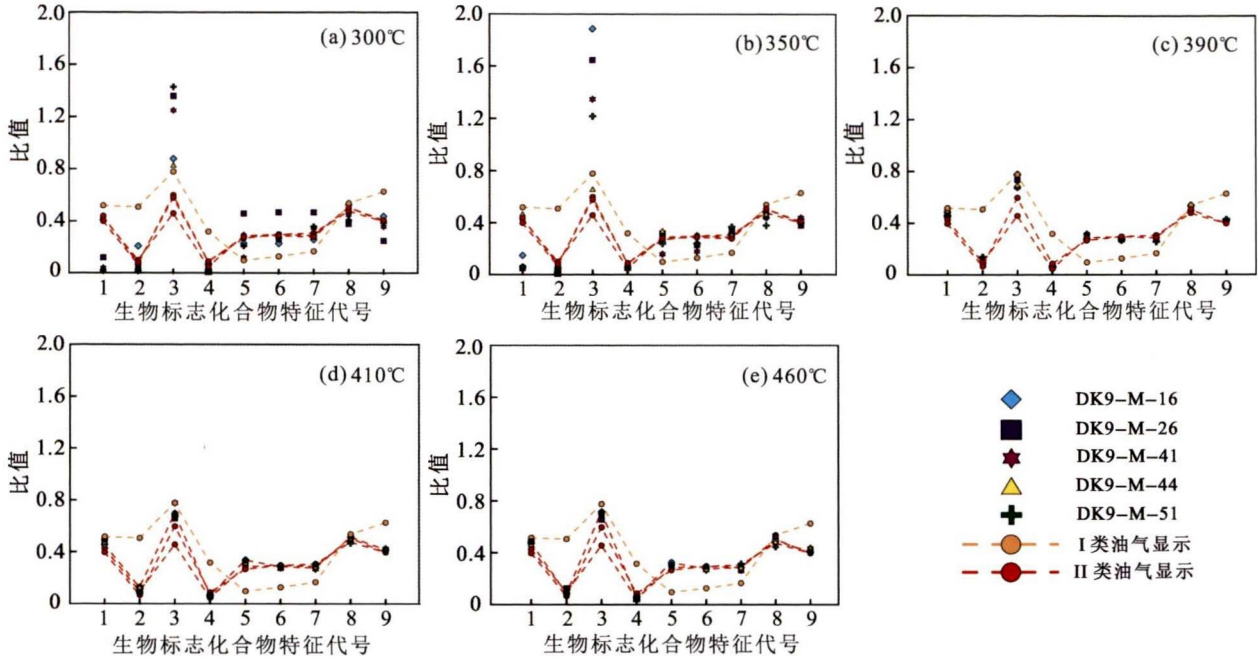


图6 不同温度点下DK-9孔中侏罗统样品与油气显示生标特征对比图

Fig. 6 Comparison between biomarker compound characteristics of Middle Jurassic samples and oil/gas indications of borehole DK-9 under different temperatures

1. $Ts / (Ts + Tm)$; 2. $C_{30}RH / C_{29} (H + Ts)$; 3. $C_{29} (H + Ts) / C_{30}H$; 4. $C_{27}D / C_{27} - St$; 5. $C_{27}\alpha\alpha R / C_{27} - St$; 6. $C_{28}\alpha\alpha R / C_{28} - St$; 7. $C_{29}\alpha\alpha R / C_{29} - St$; 8. $C_{29} - S / (S + R)$; 9. $C_{29} - \beta\beta / (\alpha\alpha + \beta\beta)$

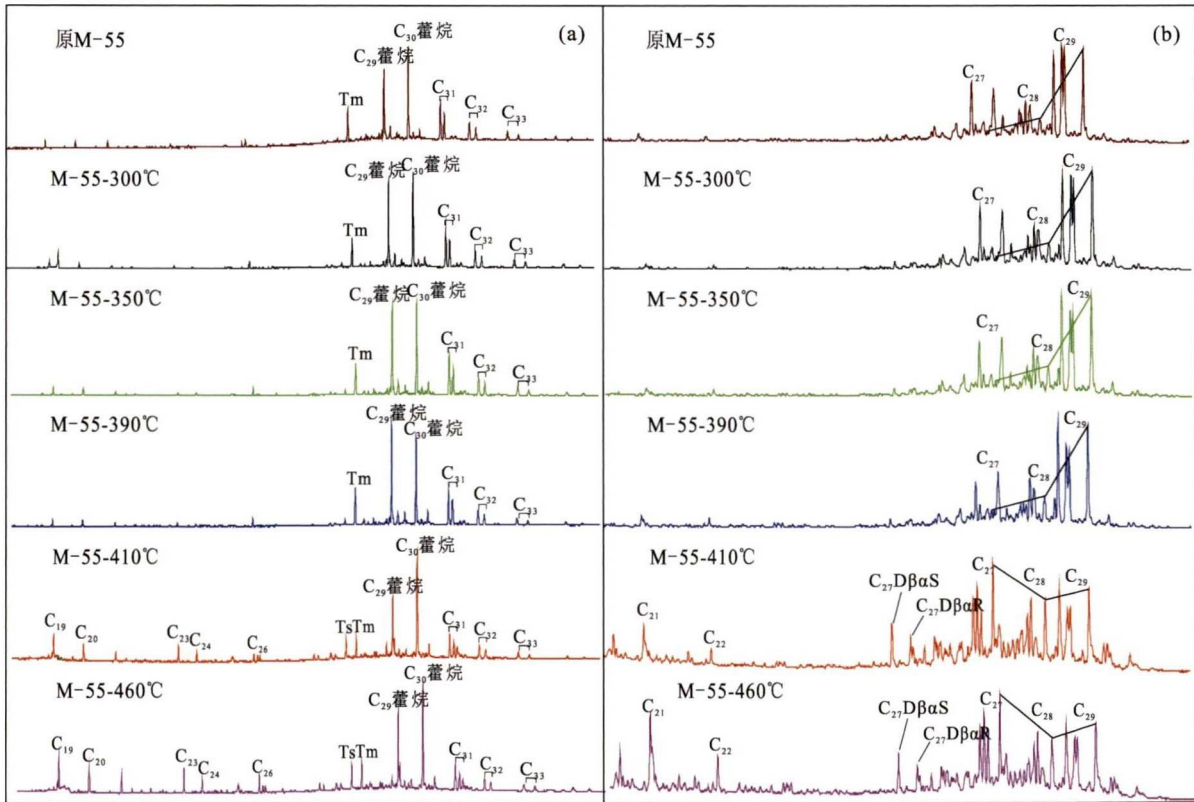


图7 DK-9孔上三叠统试验样品在不同温度点下萜烷(a)与甾烷(b)特征

Fig. 7 Characteristics of terpane (a) and sterane (b) of the Upper Triassic samples from borehole DK-9 under different temperatures

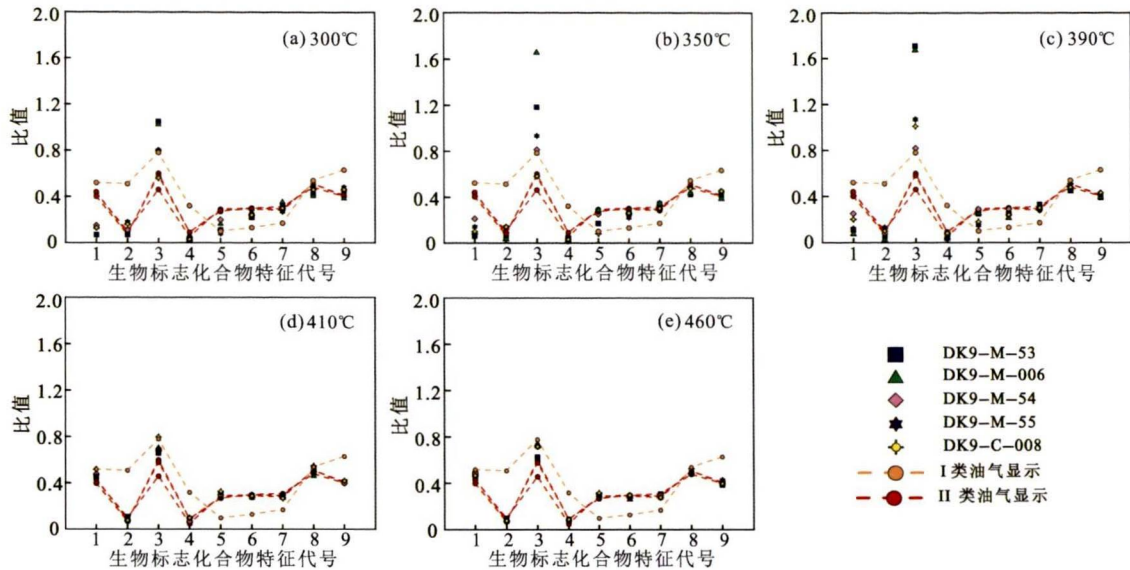


图8 不同温度下DK-9孔上三叠统样品与油气显示生标特征对比图

Fig. 8 Comparison between biomarker compound characteristics of the Upper Triassic samples and oil/gas indications the borehole DK-9 under different temperatures

1. $T_s / (T_s + T_m)$; 2. $C_{30}RH / C_{29}(H + Ts)$; 3. $C_{29}(H + Ts) / C_{30}H$; 4. $C_{27}D / C_{27-29} - St$; 5. $C_{27}\alpha\alpha R / C_{27} - St$; 6. $C_{28}\alpha\alpha R / C_{28} - St$; 7. $C_{29}\alpha\alpha R / C_{29} - St$; 8. $C_{29} - S / (S + R)$; 9. $C_{29} - \beta\beta / (\alpha\alpha + \beta\beta)$

℃之间, 甾烷特征发生突变。在410℃温度点下, C_{27} 重排甾烷含量明显增大, C_{27} 与 C_{28} 规则甾烷相对含量增加, 规则甾烷基本呈“V”形分布。在410~460℃温度段内, 甾烷特征基本保持不变。

上三叠统样品在5个温度点下生成液态烃的饱和烃色谱质谱分析结果显示, 其萘烷和甾烷特征在300~390℃之间变化不大, 在390~410℃之间均发生突变, 且在410~460℃之间趋于稳定。将5组上三叠统样品在不同温度点下生物标志化合物参数与油气显示样品进行对比(图8), 结果显示, 自410℃起, 第II类油气显示各项生物标志化合物参数开始与上三叠统样品热模拟生物标志物参数吻合。由此推断, 上三叠统样品在410℃以上产生的液态烃类与第II类油气显示相当。以上实验结果说明, 第II类油气显示的母质来源既与中侏罗统烃源岩有关, 又与上三叠统烃源岩有关。

4 结论

(1) DK-9孔4组油气显示样品可分为两种类型, 第I类油气显示遭受生物降解作用, 成熟度稍高; 第II类油气显示没有遭受生物降解的改造, 成熟度稍低于第I类。

(2) 抽提物有机地球化学特征显示DK-9孔烃源岩样品可分为三种类型, 第I类对应深度

163.30~207.42 m, 第II类对应深度207.42~348.50 m, 第III类对应深度357.90~586.50 m。

(3) 常规油源对比和烃源岩热模拟实验对比结果显示, 第I类油气显示主要与第I类烃源岩同源, 第II类油气显示主要与第II类烃源岩同源, 此外可能还有第III类烃源岩或更深层烃源岩的贡献, 即其母质来源既与中侏罗统烃源岩有关又与上三叠统烃源岩有关。

参考文献:

- [1] 祝有海, 张永勤, 文怀军. 祁连山冻土区天然气水合物科学钻探工程概况 [J]. 地质通报, 2011, 30(12): 1816-1822.
- [2] 文怀军, 卢振权, 李永红, 等. 青海木里三露天井田天然气水合物调查研究新进展 [J]. 现代地质, 2015, 29(5): 983-994.
- [3] LU Z Q, ZHAI G Y, ZUO Y H, et al. The geological process for gas hydrate formation in the Qilian Mountain Permafrost [J]. Petroleum Science and Technology, 2019, 37(13): 1566-1581.
- [4] LU Z Q, ZHAI G Y, ZHU Y H, et al. New discovery of the permafrost gas hydrate accumulation in Qilian Mountain, China [J]. China Geology, 2018, 1(2): 306-307.
- [5] 卢振权, 祝有海, 刘晖, 等. 祁连山冻土区含天然气水合物层段的油气显示现象 [J]. 现代地质, 2013, 27(1): 231-238.
- [6] 卢振权, 唐世琪, 王伟超, 等. 青海木里三露天冻土天然气水合物气源性质研究 [J]. 现代地质, 2015, 29(5): 995-1001.
- [7] 王伟超, 卢振权, 李永红, 等. 青海木里三露天天然气水合

- 物分布与储层特征研究 [J]. 现代地质, 2015, 29(5): 1035-1046.
- [8] 李永红, 王伟超, 卢振权, 等. 青海木里三露天地区天然气水合物资源量初步评价 [J]. 现代地质, 2015, 29(5): 1251-1260.
- [9] 唐世琪, 卢振权, 王伟超, 等. 青海木里三露天冻土区天然气水合物钻孔岩心顶空气组成及指示意义 [J]. 现代地质, 2015, 29(5): 1201-1213.
- [10] 唐世琪, 卢振权, 饶竹, 等. 祁连山冻土区天然气水合物岩心顶空气组分与同位素的指示意义——以DK-9孔为例 [J]. 地质通报, 2015, 34(5): 961-971.
- [11] 卢振权, 翟刚毅, 文怀军, 等. 青海木里三露天冻土区天然气水合物形成与分布地质控制因素 [J]. 现代地质, 2015, 29(5): 1002-1013.
- [12] 卢振权, 李永红, 王伟超, 等. 青海木里三露天冻土天然气水合物成藏模式研究 [J]. 现代地质, 2015, 29(5): 1014-1023.
- [13] 吴初国, 何贤杰, 盛昌明, 等. 能源安全综合评价方法探讨 [J]. 自然资源学报, 2011, 26(6): 964-970.
- [14] 符俊辉, 周立发. 南祁连盆地石炭—侏罗纪地层区划及石油地质特征 [J]. 西北地质科学, 1998, 19(2): 47-54.
- [15] 符俊辉, 周立发. 南祁连盆地三叠纪地层及石油地质特征 [J]. 西北地质科学, 2000, 21(2): 64-72.
- [16] 郝爱胜, 李剑, 王东良, 等. 南祁连盆地石炭系与上三叠统杂勒得寺组烃源岩地球化学特征 [J]. 非常规油气, 2016, 3(1): 7-13.
- [17] 唐世琪, 卢振权, 王伟超, 等. 青海木里三露天天然气水合物气源岩有机地球化学特征 [J]. 现代地质, 2015, 29(5): 1205-1213.
- [18] 任拥军, 纪友亮. 南祁连盆地石炭系可能烃源岩的甾萜烷地球化学特征及意义 [J]. 石油实验地质, 2000, 22(4): 341-345.
- [19] 谢其锋, 周立发, 蔡元峰, 等. 南祁连盆地二叠系海相烃源岩地球化学特征及其对物源属性和古环境的约束 [J]. 地质学报, 2015, 89(7): 1288-1301.
- [20] 谢其锋, 周立发, 马国福, 等. 南祁连盆地三叠系烃源岩有机地球化学特征 [J]. 北京大学学报(自然科学版), 2011, 47(6): 1034-1040.
- [21] 程青松, 龚建明, 张敏, 等. 祁连山冻土区烃源岩地球化学特征及天然气水合物气源分析 [J]. 海洋地质与第四纪地质, 2016, 36(5): 139-147.
- [22] 张家政, 祝有海, 黄霞, 等. 南祁连盆地木里冻土区天然气水合物烃源岩特征及评价 [J]. 地质通报, 2017, 36(4): 634-643.
- [23] 龚文强, 张永生, 宋天锐, 等. 南祁连盆地木里坳陷侏罗系烃源岩生烃潜力评价 [J]. 石油天然气学报, 2013, 35(3): 177-179.
- [24] LU Z Q, XUE X H, LIAO Z W, et al. Source rocks for gases from gas hydrate and their burial depth in the Qilian Mountain Permafrost, Qinghai: Results from thermal stimulation [J]. Energy & Fuels, 2013, 27(12): 7233-7244.
- [25] 翟刚毅, 卢振权, 卢海龙, 等. 祁连山冻土区天然气水合物成矿系统 [J]. 矿物岩石, 2014, 34(4): 79-92.
- [26] 薛小花, 卢振权, 廖泽文, 等. 祁连山冻土区含天然气水合物层段岩心热模拟实验研究 [J]. 现代地质, 2013, 27(2): 413-423.
- [27] CHENG B, XU J B, LU Z Q, et al. Hydrocarbon source for oil and gas indication associated with gas hydrate and its significance in the Qilian Mountain permafrost, Qinghai, Northwest China [J]. Marine and Petroleum Geology, 2018, 89(1): 202-215.
- [28] 卢振权, 祝有海, 张永勤, 等. 青海省祁连山冻土区天然气水合物基本地质特征 [J]. 矿床地质, 2010, 29(1): 182-191.
- [29] 周幼吾, 郭东信, 邱国庆, 等. 中国冻土 [M]. 北京: 科学出版社, 2000.
- [30] 张雪亭, 杨生德. 青海省板块构造研究——1:100万青海省大地构造图说明书 [M]. 北京: 地质出版社, 2007.
- [31] 青海省地质矿产局. 青海省岩石地层 [M]. 武汉: 中国地质大学出版社, 1997.
- [32] MOLDOWAN J M, FAGO F J, CARLSON R M K, et al. Rearranged hopanes in sediments and petroleum [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1991, 55: 3333-3353.
- [33] TELNAES N, ISAKSEN G H, FARRIMOND P. Unusual triterpane distributions in lacustrine oils [J]. Organic Geochemistry, 1992, 18(6): 785-789.
- [34] PETERS K E, MOLDOWAN J M. The Biomarker Guide: Interpreting Molecular Fossils in Petroleum and Ancient Sediments [M]. New Jersey: Prentice Hall, Englewood Cliffs, 1993.
- [35] PHILIP R P, GILBERT T D. Biomarker distribution in oils predominantly derived from terrigenous source material [M] // LEYTHAEUSER D, RULLKOTTER J. Advances in Organic Geochemistry. Oxford: Pergamon Press, 1986: 73-84.
- [36] OBERMAJER M, OSADETZ K G, FOWLER M G, et al. Delineating compositional variabilities among crude oils from central Montana, USA, using light hydrocarbon and biomarker characteristics [J]. Organic Geochemistry, 2002, 33: 1343-1359.
- [37] 张文正, 杨华, 侯林慧, 等. 鄂尔多斯盆地延长组不同烃源岩 $17\alpha(H)$ -重排藿烷的分布及其地质意义 [J]. 中国科学: 地球科学, 2009, 52(7): 965-974.
- [38] DE LEEUW J M, COX H C, VAN GRASS G, et al. Limited double bond isomerisation and selective hydrogenation of steranes during early diagenesis [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1989, 53: 903-909.
- [39] MOLDOWAN J M, SUNDARARAMAN P, SCHOELL M. Sensitivity of biomarker properties to depositional environment and/or source input in the lower Toarcian of S. W. Germany [J]. Organic Geochemistry, 1986, 10: 915-926.
- [40] BRINCAT D, ABBOTT G D. Some aspects of the molecular biogeochemistry of laminated and massive rocks from the Naples Beach Section (Santa Barbara - Ventura Basin) [M] // ISAACS C M, RULLKOTTER J. The Monterey Formation: From Rocks to Molecules. Columbia: Columbia University Press, 2001: 140-149.
- [41] 张水昌, 梁狄刚, 张宝民, 等. 塔里木盆地海相油气的生成 [M]. 北京: 石油工业出版社, 2004.