

综述与评述

海相层系多种烃源及其示踪体系研究进展

刘文汇

(中国石化石油勘探开发研究院无锡石油地质研究所, 江苏 无锡 214151)

摘要:近年来我国海相油气勘探不断获得重大突破,不仅向世界展示了中国海相层系油气勘探的巨大潜力,还显示了我国海相油气地质理论不断发展和完善的辉煌成就。其中海相成烃理论的研究,揭示了海相层系烃源类型及其转化的多样性,表明我国海相层系存在多种形式烃源共存且相互转化、连续或叠置生烃过程,普遍存在生烃母质的物质状态转换和生烃过程与贡献的接替,呈现出“多源复合、多阶连续”的天然气形成演化特点;初步建立了多种烃源及其转化过程的示踪与评价指标体系,快速发展了实验地质学及测试技术,现代有机质生烃控制试验、高演化有机质的催化加氢热解研究以及稀有气体组分和同位素定量研究等正在为成烃理论研究和成烃示踪指标体系的完善提供良好的平台和技术。但现有气源示踪指标,不足以解决存在的主要问题,理论基础仍有待完善。针对南方高演化多烃源的客观地质条件,多指标的综合应用和新指标的开发是解决多烃源成烃过程和示踪问题的重要途径,完善和建立海相气源示踪体系,必将为海相油气勘探研究提供理论依据及科学手段。

关键词:海相;多种烃源;成烃转化;示踪体系;进展

中图分类号:TE122.1

文献标识码:A

文章编号:1672-1926(2009)01-0001-07

0 引言

目前全球已在海相层系中发现了360余个大气田,集中分布于西西伯利亚、滨里海、卡拉库姆、扎格罗斯、波斯湾、墨西哥湾和阿尔伯达等盆地。与我国大中型气田比较,这些大气田的区域构造背景简单,油气来源单一,热演化程度较低。例如,在东西伯利亚发现大批震旦系—寒武系大油气田,其中64%的天然气、69%的石油就源于世界上最古老的烃源岩——震旦系(里菲系)黑色泥岩^[1];世界上最大的气田——波斯湾盆地北方—南帕斯气田,天然气主要来自下志留统底部富含有机质的黑色页岩^[2],其在该地区成熟度最高,但目前仍处于湿气阶段(R_o 值为1.35%)^[3]。这些油气田的成烃过程相对简单,基于干酪根晚期成烃理论的常规方法和指标(包

括有机地球化学、稳定同位素等)可以有效识别主力烃源,指导油气勘探。与国外比较,我国海相地层在长期的地质历史发展中,经历了多旋回、多阶段的发展和改造,造成复杂的油气地质背景,成烃时代早、定位时间晚、成藏过程复杂、改造程度大,不同构造背景下的成烃地质条件和成藏控制因素差异巨大,对其形成过程的认识面临着许多世界级的难题。

尽管如此,近年来我国海相油气勘探仍获得重大突破,相继发现了塔河、靖边、普光等大型海相碳酸盐岩层整装油气田,不仅向世界展示了中国海相层系油气勘探的巨大潜力,还显示了我国海相油气地质理论不断发展和完善的辉煌成就。其中,海相成烃理论的发展,尤其是对多种烃源及其转化过程的认识,以及其示踪与评价指标体系的建立,对于大中型油气田的主力烃源的识别、油气资源评价以及

勘探选区、勘探部署提供了有力依据。

1 海相层系烃源类型及其转化的多样性

我国海相层系中尤其在南方扬子地区发育多套烃源岩,时空跨度大,成烃有机质原始生物面貌复杂,岩石类型多,源岩品质变化大,其在多旋回构造运动背景下,经历了多期次油气生成并运聚成藏过程,沉积盆地若持续埋藏,则干酪根连续生烃,现今处于高一过成熟阶段,已过主力生烃期;如若处在深埋一抬升一再深埋构造活动下,则干酪根发生再次生烃或者晚期生烃过程,地层中聚集和分散的原油又普遍发生后期的二次裂解成气,使得这些烃源岩的生气潜力进而转化为以原油、沥青裂解等再生烃源形式为主。显然,在我国这种特殊的沉积构造背景下,有机质的生烃过程不同于持续沉降盆地,目前空间分布的烃源岩并非最终成藏油气的直接来源,而直接来源可能是高过成熟干酪根裂解气、古油藏中原油或分散的可溶有机质的裂解气乃至高演化有机质加氢作用成气。现今海相烃源中除了常规烃源岩以外,还应包括古油藏、沥青等聚集型和分散型可溶有机质,这些残留在烃源岩、储集岩或运移途径岩石中的固体沥青、稠油沥青、运移沥青或可溶有机质可以将海相烃源岩的生气过程延续到更高的演化阶段,成为高一过成熟阶段的主要烃源形式,它们在漫长的地质历史中经历了一个复杂的成烃转化过程,并对该区天然气资源的动态演化和聚集成藏提供了雄厚的物质基础。

传统的生烃母质划分只是按照不溶有机质干酪根的性质划分的,分为Ⅰ型、Ⅱ型和Ⅲ型干酪根,目前这种母质类型划分已经无法满足海相多元烃源生烃过程研究的需要,越来越多的有机地球化学研究者已经认识到这一点。刘文汇等^[4]根据多元成烃母质性质、赋存形式、成因类型和演化程度等将多元烃源(岩)划分为不溶与可溶有机质、聚集型与分散型等。其中,古油藏是聚集型可溶有机质,其热裂解是天然气形成的一种重要形式,在南方海相天然气资源中占有重要位置,主要表现在早期形成的油藏经历深埋裂解过程后再聚集、调整形成现今天然气藏。例如,威远气田主要为古油藏原油裂解气^[5];普光气田及与其相邻的渡口河、罗家寨等气田亦属于原油裂解气^[6-8]。近年来,秦建中等^[9-10]系统研究了不同

类型可溶有机质(沥青)的生烃潜力,证实残留在储集岩或运移途径岩石中的固体沥青、稠油沥青、运移沥青或可溶有机质或水溶气等可溶有机质,当含有可溶有机质的岩石达到一定的含量和热演化程度时,也可以再次生排烃,可以形成新的轻质油气或凝析气藏。海相再生烃源的烃气产率由大到小的顺序为:沥青砂岩、稠油(砂岩、泥岩) > 稠油(碳酸盐岩) > 固体沥青,并认为四川盆地及其周缘震旦系灯影组、上二叠统长兴组一下三叠统飞仙关组等含沥青储层曾是优质再生气源。当然,早期形成的油藏,如果经历抬升剥蚀并遭受氧化过程,则难以转化形成天然气藏,如麻江古油藏。源岩、储层和运移途径岩石中的分散可溶有机质是另一重要的再生烃源^[4],通过模拟实验研究表明,在较高演化阶段作为沉积岩中分散有机质主体的干酪根,其生烃能力逐渐减弱,烃类气体和轻质油(含凝析油)的产生主要源自岩石中的分散可溶有机质和干酪根早期演化过程中已生成烃类的裂解作用。烃源岩在演化早期因干酪根热催化降解作用形成的各种分散可溶有机质是天然气的主要来源。因此,我国海相层系存在多种形式烃源共存且相互转化、连续或叠置生烃过程,尤其在南方海相烃源岩普遍存在生气母质的物质状态转换和生烃过程与贡献的接替,呈现出“多源复合、多阶连续”^[11]的天然气形成演化特点。由于“多源供烃,多期成藏和后期调整”等造成以“裂解、混合”为特色的现今复杂的天然气藏是我国特有的海相天然气藏的普遍特性。

2 现今海相油气源示踪指标体系

如何认识、解决含油气体系统中的成烃问题,尤其多种来源问题,地球化学示踪始终是一个最重要的手段。不同形式的烃源在成烃过程中,其地球化学特征具有一定的继承性,这为气源对比和不同烃源亲缘关系追溯提供了线索和手段。目前常用的气源对比指标主要有稳定同位素、稀有气体同位素、生物标志化合物、轻烃和微量元素等。有关天然气成因识别和气源对比方面,前人已做了大量研究,建立了天然气成因类型多项指标的综合鉴别表和相关图版^[11-12]。有关生物标志物方面,Moldowan 和 Peters 等^[13]的“古代沉积物和石油中分子化石的解释”成果得到广泛应用。干酪根在裂解生烃过程中

固态物质碳同位素组成是基本不变,而油气的碳同位素发生分馏,并与成熟度之间有一定关系^[14-16],故干酪根碳同位素值和沥青的碳同位素值可以作为烃源转化的重要指标。不同沉积环境形成的沥青,具有特定的微量元素组成,而且有机质在生烃过程中将其微量元素遗传给生成的原油(沥青),后者遭受氧化过程中有机组分发生变质,但微量元素分布基本保持原貌,故微量元素能为确定沥青来源及其形成时代提供信息^[17]。基于演化过程的不同,干酪根裂解气与原油裂解气在化学组成和碳、氢同位素组成上都存在一定区别^[18-19],这为二者的识别提供重要依据。稀有气体由于其化学惰性可以为气源对比提供很有用的信息^[20-23]。特别是,刘文汇等^[24]依据稳定同位素的母质继承、热力学分馏和年代积累效应等基本原,建立了天然气稳定同位素、稀有气体同位素和轻烃化合物完整的三元地球化学示踪体系。多种赋承内涵信息的指标之间存在着相当紧密的有机联系,可以相互印证、相互衔接,择需优先、综合应用能最大限度地有效反映天然气来源,母质沉积环境、源岩的演化、天然气运移聚集成藏以及改造过程。天然气形成—成藏过程示踪地球化学体系的建立有助于时间和空间范畴内重塑天然气运聚过程和有效反演复杂的成藏过程。

天然气具有多源、多阶生成和流动性强的特点,在盆地中混源成藏具有普遍性已得到共识。天然气大多是由 2 种以上来源、或同源不同演化阶段天然气混合而成,其中两元混合气最为常见^[4,25]。长期以来,前人在混源气研究方面做了大量工作,提出了许多定性识别的方法。例如,Faber 等^[26]建立了能够识别生物气和热解气混源气的 $C_1/(C_1 + C_2) - \delta^{13}C_1$ 图版;Berner^[27]根据不同成因类型天然气 $\delta^{13}C_1$ 值、 $\delta^{13}C_2$ 值的差别,作出了可以识别混源气的 $\delta^{13}C_1 - \delta^{13}C_2$ 图;戴金星^[12]曾提出利用烷烃碳同位素序列识别混源气的方法。然而,这些方法和指标仍处在混源气的定性识别水平上,尚不能确定端元气类型和混合比例,对天然气成藏有效性评价、气源对比、资源评价等的应用是非常有限的。为了解决成藏研究中的这些关键问题,需要进行混源气的定量研究,即确定端元气类型与混合比例、混源气成藏过程等。Berner^[27]利用天然气生成过程中甲烷、乙烷相对百分含量与碳同位素值和母质 R_o 值的关

系,建立了同源不同阶混源气识别模型,为确定同源不同阶天然气混合比例提供了思路。20 世纪 90 年代,国内外学者开展了一些混源气的定量研究,如阿巴拉契亚盆地天然气藏^[28]、冀中坳陷河西务构造带天然气^[29]和鄂尔多斯盆地中部气田奥陶系风化壳天然气藏^[30]的混源比例计算等。近年来,此类定量研究得到了进一步发展,主要表现在两元以上混源气的定量研究和混源模拟的开展,王顺玉等^[31]利用体积加权建立了三端元气混合比例估算图版;刘文汇等^[32]、金强等^[25,33]利用模拟实验和实测混源气的甲烷、乙烷组分及其碳同位素值等,建立了两元混合天然气的定量计算方法和图版,确定同源不同阶或两源不同阶天然气的混源比例,并实际应用在庫车坳陷克拉 2 气田、鄂尔多斯盆地中部气田的混源气识别、混源比例计算和成藏过程分析中,取得了良好的效果。另外,提到混合气大家都想到来自不同烃源的烃类气体,而很少关注其他来源的非烃气贡献,例如在高温条件下有机质还原硫酸盐生成硫化氢(H_2S)。近年来笔者研究表明,在全球范围内, H_2S 在天然气中普遍存在,含硫天然气分布广泛,但高丰度 $H_2S(2\% \sim 5\%)$ 的分布具有强烈的非均衡性,并且主要分布在世界上重要产油气区和油气最富集区,伴生于大型—特大型油气田,如我国川东北地区普光气田和罗家寨气田、滨里海的阿斯特拉罕气田、卡拉恰卡纳克气田和田吉斯油田以及加拿大西部阿尔伯特盆地平切尔溪气田、卡布南气田和温德富气田等,这些油气田天然气组分中 H_2S 含量一般达 10% 以上,而其来源与另一个主要组分——甲烷不同,主要与早期形成的古油藏在深埋过程还原流体中硫酸根离子有关,并为大型油气田的形成做出了重要贡献。可见,有效识别混源气并揭示其形成机理并非是简单的指标问题,必需结合地质背景。

3 实验地质学和地球化学指标体系的完善

长期以来,在成烃成藏研究中注重于干酪根—原油/沥青—天然气之间的对比分析,而对成烃演化初期(原始沉积有机质,由有机质沉积到干酪根生成阶段)和末期(高演化干酪根、焦沥青)两端的研究甚少。这除了认识上的不足以外,还受到实验技术和研究手段上的局限性限制。实际上,此 2 个阶段正

是整个成烃演化过程的开启和终结,对揭示完整的成烃转化过程及其主控因素的作用是不言而喻的。近年来,环境领域中有有机质微生物改造实验技术和石油化工领域中催化加氢热解技术的开发和应用,为成烃初期和过成熟期的成烃演化试验研究及成烃示踪指标体系的完善提供了良好的平台和技术。

3.1 现代有机质生烃控制试验研究

在沉积成岩过程中,有机质与水体、无机矿物及微生物活动互相交融一起,组成一个庞大而复杂的地质体系,经历一系列生物、化学反应和物理作用后,由生物有机质体变为地质有机质(干酪根),之后随着沉积构造埋藏作用进入通常所说的成烃演化过程。其中,干酪根形成及类型与原始母源及其向干酪根的演化过程息息相关,故国内外学者一直试图通过现代有机质的相关试验研究来恢复干酪根形成过程,进而获取有关油气母源及其成烃早期演化的更多信息。

我国从 20 世纪 80 年代开始开展有关藻类生烃模拟研究,90 年代初以来模拟藻类多样化,如丛粒藻^[34]、颗石藻^[35-36]、盘星藻^[37]、单细胞海藻^[38]、多细胞马尾藻^[39]、海相浮游和底栖藻类^[40]等等。通过这些模拟实验研究,证实了细菌和藻类是最主要成烃母质,具有早期、多期连续生烃和出现多次生烃高峰等生烃演化特点。现代沉积物(包括藻类等生物,以下相同)生烃模拟实验研究主要以藻类为主,而且集中在陆相生油理论研究,如盘星藻的生烃模拟^[38]、淡水浮游藻类的生烃能力及产物特征^[41]。而海相现代沉积物的生烃模拟实验较为薄弱,已有报道的多为单一藻类生烃潜力模拟研究,如颗石藻的生烃模拟^[42]、多细胞马尾藻对低熟油的生烃贡献^[39]、单细胞海藻的生烃过程^[39]、浮游藻类和底栖藻类生烃能力的对比研究^[40]。海相沉积物生烃模拟实验主要存在以下问题:①近年来国内外藻类热模拟产烃研究,主要用新鲜藻体为材料,藻类死亡和沉积过程中发生的水解作用和微生物降解作用没有引起足够重视,尤其现代沉积物如海底沉积物和湖泊淤泥等生烃模拟实验研究滞后;②缺乏对藻类在成熟及高成熟阶段的生烃模拟研究;③现代沉积物生烃模拟产物与古代烃源(岩)生烃产物之间的对比分析还需深化;④藻类爆发及其聚集保存和微生物作用以及不同生物标记化合物之间继承关系研究亟待开展。值得关注的是,有机质离开生物圈、在沉积成岩作用过程中,与水体、无机矿物及频繁的微生物活动互相交融在一起,组成一个庞大而复杂的地质体系。在

经过一系列的化学、生物化学反应和物理作用以后,其原始面貌和化学性质发生了质的变化,并由生物聚合物向形成石油烃类的地质聚合物方向演化,其中可溶有机质部分向未熟—低熟油转化,而不溶部分向干酪根转化。期间,微生物参与和改造是至关重要的。因此,在现代有机质成烃模拟实验中最为关键的问题是“微生物参与及改造”,只有有机质经历类似沉积成岩过程中的喜氧细菌和厌氧细菌改造后再进一步开展成烃模拟实验才是更适合于地质实际。黄第藩等^[43]在陆相未熟—低熟油形成机理研究中开展过类似实验研究,但在海相成烃研究方面相对薄弱。

3.2 高演化有机质的催化加氢热解研究

在成烃末期即高过成熟阶段,干酪根、原油和沥青中可直接获得的分子生物标志物信息很少,均一化作用显著,常规生物标志物作为油源对比指标已经失效,难以在各烃源之间获得足够的生源示踪信息^[43]。在此情况下,目前化工领域中广泛应用的催化加氢热解技术(Catalytic Hydropyrolysis Technology)可能为高过成熟有机质中获取更多的有机地球化学信息提供了一个良好的技术手段,将它引用到高演化烃源及其示踪指标研究是值得探索的领域。催化加氢热解技术能够释放干酪根中共价键结合的生物标志化合物,并应用于源岩有机质生源确定、古沉积环境判识以及油源对比等,提高了高演化情况下油气源对比指标的有效性和精确性^[44-48]。用这一方法提取的生物标志物具提取产率高、分子结构保存完整、实验过程中分子热蚀变效应小和代表性好的特点。大分子中包裹的生物标志物受到大分子保护,较少受到二次作用的影响,常常具有低成熟度特征,故这些生物标志物也具有生源示踪意义。

3.3 稀有气体组分和同位素定量研究

稀有气体同位素作为认识油气来源的一种重要的辅助手段,有其独到之处,它的开发和应用,使得稀有气体同位素作为地球化学的一个分支,在地球的起源、形成、演化以及矿体成因、来源等研究中被广泛应用。稀有气体由于其化学惰性可以为气源对比提供很有用的信息,氦、氩同位素组成是现有比较常用的示踪地球化学指标^[20-21,49-50]。 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 值可以反映稀有气体为壳源或是幔源, $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值与放射性元素 K 的丰度和地质演化时间有关,且为放射性元素 K 的时间函数,因此 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值可以给出源岩时代的信息^[20-23]。稀有气体及其同位素在油气地质领域的应用主要有以下 4 个方面:一是含油气

盆地构造背景演化过程的划分、重塑;二是成藏期次的划分;三是天然气成因判识,尤其是判识有无深部物质的参与;四是气源岩年代的确定研究。

应用 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 值与 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值作为气源对比的设定前提是把源岩—气藏体系中放射性母体、子体产物概略地视为一个封闭的平衡体系来粗略估算源岩的年代。基于天然气中大量的 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值测定和对相应源岩年代的认识,用统计学回归的方法获得 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值与源岩年代经验公式。同时通过分析源岩中稀有气体母体元素 U、Th、K 元素丰度。进行气—源的精细对比,寻找天然气与其生气母质之间的亲缘关系,建立天然气地球化学示踪体系。根据气体地球化学指标在空间的变化,反演天然气的成藏过程。天然气 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 值的作用主要用于判断天然气中是否有幔源挥发份参与,在 $^3\text{He}/^4\text{He}<1\times 10^{-7}$ 的情况可以认为 He 的来源主要与壳源铀、钍的放射性衰变导致 ^4He 的积累相关;在此情况下, $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值主要与源岩的年代积累效应相关, $^3\text{He}/^4\text{He}$ 值也具一定程度的年代积累效应。在气源岩年代相差较大的情况下,可以单独用 He 或 Ar 的比值进行气—源对比,也可以二者为纵横座标将气样分作不同的点群进行气源对比,作为独立于烃气的另一地球化学体系。它们可以与烃气地球化学研究互为映证,达到异曲同工的效应。

需要说明的是,天然气中 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值的源岩时代估计是以大量统计数据为基础,大量实践表明,对于同类源岩的时代估计,氩同位素组成具有明显的优势。但是,天然气中 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值的影响因素较多,其中作为源岩的岩石中放射性母体 K 丰度的影响最大。同时,盆地的构造运动频度、地温梯度、岩浆活动的参与与否等均对 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值有一定影响^[51]。对于不同源岩而言,煤岩与碳酸盐岩之间母体元素 K 丰度的差别异常明显,特别是我国海相层系再生烃源的赋存介质发生明显变化,母体元素丰度和地质时钟的启动时间相应发生变化,因此,仅凭单一的 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值指标,难以对其源岩时代作出严谨准确的判定。尽管利用 $\text{Ar}_{\text{气}}/\text{K}_{\text{岩}}$ 法公式能够对此误差起到有一定校正作用,但这需要大量的不同源岩中母体元素 K 丰度的测试资料。从这一点出发,可以说用单一的天然气中 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值作为源岩时代估计一定要慎重,并要结合地质实际。目前,试图利用在地球化学演化过程中相对稳定,且与轻稀有气体 ^{40}Ar 具有不同母质的其他稀有气体来作为气源追索手段有所探索^[49]。在天然气稀有气体分

析技术方面,国际上的许多先进实验室都在质谱计的前级加装用于检测稀有气体组分含量的四极杆质谱计和主要用于 He、Ne 分离的 20K 低温泵,但主要用于固体样品和无机包裹体的分析。国内外对天然气中稀有气体组分的定量才刚刚开始,做到了一次进样,分步测量样品中稀有气体全部组分含量和其同位素组成的技术方法刚刚建立,而天然气中稀有气体同位素的定量将会为海相层系天然气成藏定量及成藏过程研究提供新的技术支持。

4 结 语

我国海相层系存在多种形式烃源,并存在相互转化,连续或叠置生烃过程,这对海相天然气成藏有着重要贡献。而现有气源示踪指标,不足以解决存在的主要问题,理论基础仍有待完善。针对南方高演化多烃源的客观地质条件,多指标的综合应用和新指标的开发是解决多烃源成烃过程和示踪问题的重要途径,因此完善和建立海相气源示踪体系,必将为海相油气勘探研究提供理论依据及科学手段。

随着一些高新技术的先进分析仪器的问世以及实验测试和标准样品制备技术的不断提高,特别是计算机化的色谱—质谱、高分辨率的核磁共振仪、全二维气相色谱分离技术以及稀有气体组分和同位素定量技术等的应用,使得油气地球化学分析及解释技术已全面走向定量化、多维化发展,给国内外油气勘探领域中共同面临的一个科学难题——混源油气识别提供了更为有效的地球化学证据。

环境领域中有机质微生物改造实验技术和石油化工领域中催化加氢热解技术的开发和应用,为成烃初期和过成熟期的成烃演化试验研究及成烃示踪指标体系的完善提供了良好的平台和技术。

参考文献:

- [1] 李国玉. 世界石油地质[M]. 北京: 石油工业出版社, 2006.
- [2] Mahmoud M D, Vaslet D, Husseini M I. The Lower Silurian Qalibah Formation of Saudi Arabia: an important hydrocarbon source rock[J]. AAPG Bulletin, 1992, 76:1491-1506.
- [3] Kamali M R, Rezaee M R. Burial history reconstruction and thermal modeling at Kuhe Mond, SW Iran[J]. J Pet. Jelo, 2003, 24(4):451-464.
- [4] 刘文汇, 张殿伟, 高波, 等. 天然气来源的多种途径及其意义[J]. 石油与天然气地质, 2006, 26(4):393-401.
- [5] 戴金星. 威远气田成藏期及气源[J]. 石油实验地质, 2003, 25(5):473-479.
- [6] 谢增业, 田世诚, 魏国齐, 等. 川东北飞仙关组层沥青与古油藏研究[J]. 天然气地球科学, 2005, 16(3):283-289.

- [7] 蔡勋育,朱扬明,黄仁春. 普光气田沥青地球化学特征及成因[J]. 石油与天然气地质, 2006, 27(3): 340-348.
- [8] 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): 1-9.
- [9] 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): 1065-1071.
- [10] 郑伦举,秦建中,张渠,等. 中国海相不同类型原油与沥青生气潜力研究[J]. 地质学报, 2008, 82(3): 360-365.
- [11] 徐永昌. 天然气成因理论及应用[M]. 北京: 科学出版社, 1994.
- [12] 戴金星. 天然气碳氢同位素特征和各类天然气鉴别[J]. 天然气地球科学, 1993, 4(2-3): 1-40.
- [13] Peters K E, Moldowan J M. 生物标记化合物指南——古代沉积物和石油中分子化石的解释[M]. 姜乃煌, 张水昌, 林永汉, 等译. 北京: 石油工业出版社, 1995.
- [14] Clayton C J. Carbon isotope fractionation during natural-gas generation from kerogen[J]. Mar. Petrol. Geol., 1991, 8: 232-240.
- [15] Clayton C J. Effect of maturity on carbon isotope ratios of oils and condensates[J]. Organic Geochemistry, 1991, 17: 887-899.
- [16] Cramer B, Krooss B M, Littke R. Modeling isotope fractionation during primary cracking of natural gas: A reaction kinetic approach[J]. Chem. Geol., 1998, 149: 235-250.
- [17] 金强,田海芹,戴俊生. 微量元素组成在固体沥青—源岩对比中的应用[J]. 石油实验地质, 2001, 23(3): 285-291.
- [18] Behar F, Kressmann S, Rudkiewicz J L, *et al.* Experimental simulation in a confined system and kinetic modelling of kerogen and oil cracking[J]. Organic Geochemistry, 1992, 19(1-3): 173-189.
- [19] Clayton C J, Bjoroy M. Effect of maturity on $^{13}\text{C}/^{12}\text{C}$ ratios of individual compounds in North Sea oils[J]. Org. Geochem., 1994, 21: 737-750.
- [20] Liu Wenhui, Xu Yongchang. Significance of the isotopic composition of He and Ar in natural gas[J]. Chinese Sci. Bull., 1993, 38(20): 1726-1730.
- [21] 徐永昌, 刘文汇, 沈平, 等. 天然气地球化学的重要分支——稀有气体地球化学[J]. 天然气地球科学, 2003, 14(3): 157-166.
- [22] 张殿伟, 刘文汇, 郑建京, 等. 塔中地区天然气氮、氩同位素地球化学特征[J]. 石油勘探与开发, 2005, 35(6): 38-41.
- [23] 张殿伟, 刘文汇, 郑建京, 等. 氩同位素用于库车凹陷天然气主力气源岩判识[J]. 地球化学, 2005, 34(4): 405-409.
- [24] 刘文汇, 陈孟晋, 关平, 等. 天然气成藏过程的三元地球化学示踪体系[J]. 中国科学: D辑, 2007, 37(7): 908-915.
- [25] 金强, 程付启, 刘文汇. 混源气藏及混源比例研究[J]. 天然气工业, 2004, 24(2): 22-24.
- [26] Faber E, Stahl W. Geochemical surface exploration for hydrocarbons in the North Sea[J]. AAPG Bulletin, 1984, 68: 363-368.
- [27] Bemmer U, Faber E. Maturity related mixing model for methane, ethane and propane, based on carbon isotopes[J]. Organic Geochemistry, 1988, 13: 67-72.
- [28] Jenden P D, Drazan D J, Kaplan I R. Mixing of thermogenic natural gases in northern Appalachian basin[J]. AAPG Bulletin, 1993, 77(6): 980-998.
- [29] 高先志. 利用甲烷碳同位素研究混合气的混合体积[J]. 沉积学报, 1997, 15(2): 63-65.
- [30] 夏新宇, 赵林, 戴金星, 等. 鄂尔多斯盆地中部气田奥陶系风化壳气藏天然气来源及混源比计算[J]. 沉积学报, 1998, 16(3): 75-79.
- [31] 王顺玉, 戴鸿鸣, 王海清. 混源天然气定量计算方法——以川西地区白马庙气田为例[J]. 天然气地球科学, 2003, 14(5): 351-353.
- [32] 刘文汇, 刘全有, 徐永昌, 等. 天然气地球化学数据的获取及应用[J]. 天然气地球科学, 2003, 14(1): 21-29.
- [33] 程付启, 金强, 刘文汇. 混合气藏类型划分及成藏模式探讨[J]. 中国石油大学学报: 自然科学版, 2003, 31(2): 19-24.
- [34] 宋一涛. 丛粒藻烃类的研究[J]. 石油与天然气地质, 1991, 12(1): 22-33.
- [35] 宋一涛, 李树晴. 颗石藻生烃的热模拟实验研究 I. 烃的产率、性质及烯烃、烷烃的特征[J]. 高校地质学报, 1995, 1(2): 95-106.
- [36] 吴庆余, 王睿勇, 戴俊彪, 等. 探讨海相油气成因的一种超微浮游藻类成烃实验系统[J]. 科学通报, 1998, 43(20): 2239-2240.
- [37] 王开发, 张玉兰, 吴国暄, 等. 盘星藻热模拟生油研究[J]. 同济大学学报, 1994, 22(2): 184-190.
- [38] 李超, 徐茂泉, 王开发, 等. 单细胞海藻热模拟生烃研究[J]. 厦门大学学报: 自然科学版, 2001, 40(3): 764-769.
- [39] 郭汝泰, 杨凤丽. 藻类有机质的成烃机制探讨[J]. 同济大学学报, 2002, 30(1): 41-45.
- [40] 秦建中, 李志明, 刘宝泉, 等. 海相优质烃源岩形成重质油与固体沥青潜力分析[J]. 石油实验地质, 2007, 29(3): 280-291.
- [41] 宋一涛, 王铁冠. 原生动物门梨形四膜虫的无水热解实验产物及伽马蜡-2-烯的检出[J]. 地球化学, 2004, 33(2): 147-151.
- [42] 吴庆余, 章冰, 盛国英, 等. 藻类生物化学成分差异对其热解生烃产率和特征的影响[J]. 矿物岩石地球化学通报, 1996, 15(2): 76-79.
- [43] 黄第藩, 长大江, 王培荣, 等. 中国未成熟石油成因机制和成藏条件[M]. 北京: 石油工业出版社, 2003.
- [44] 梁狄刚, 陈建平. 中国南方高、过成熟区海相油源对比问题[J]. 石油勘探与开发, 2005, 32(2): 8-14.
- [45] Murray I P, Love G D, Snape C E, *et al.* Comparison of covalently-bound aliphatic biomarkers released via hydropyrolysis with their solvent-extractable counterparts for a suite of Kimmeridge clays[J]. Organic Geochemistry, 1998, 29(5-7): 1487-1505.
- [46] Brocks J J, Love G D, Snape C E, *et al.* Release of bound aromatic hydrocarbons from late Archean and Mesoproterozoic kerogens via hydropyrolysis[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2003, 67(8): 1521-1530.

[47] 周建伟,李术元,岳长涛,等. 高演化沉积有机质中共价键结合的生物标志物的提取及分析[J]. 石油学报:石油加工, 2006, 22 (4):84-91.

[48] 周建伟,李术元,钟宁宁. 利用催化加氢热解技术提取沉积有机质中生物标志化合物[J]. 石油学报,2006, 27(1): 58-63.

[49] Liu Wenhui, Sun Mingliang, Xu Yongchang. An approach to noble-gas isotopic compositions in natural gases and gas-

source tracing in the Ordos Basin, China[J]. Chinese Science Bulletin, 2002, 47(6): 489-493.

[50] 刘文汇,张殿伟,王晓锋. 天然气气—源对比的地球化学研究[J]. 沉积学报,2004,22(增刊):27-32.

[51] 刘文汇,徐永昌. 天然气中的氦、碳同位素相关研究[J]. 天然气地球科学,1997,8(1):7-10.

Research Progress on Manifold Hydrocarbon Source and Its Trace System in Marine Strata

LIU Wen-hui

(Wuxi Research Institute of Petroleum Geology, Petroleum Exploration and Production Research Institute, SINOPEC, Wuxi 214151, China)

Abstract: The important breakthroughs in marine petroleum exploration recently show that the enormous exploration potential and new progress of theoretical research on oil and gas geology, including the theory on hydrocarbon generation; multiformity of type of hydrocarbon source and conversion in marine strata, indicate that manifold hydrocarbon sources coexist in mutual conversion, and in continuous or superposed hydrocarbon generation despite different phases or ages, present the mechanism of "multi-source complex and multi-stage continuity" on formation and evolution of natural gases; preliminary trace index system are proposed; experimental geology and experimental methods & analytical techniques are developing quickly; the biodegradation of modern algae and the simulating experiments of modern algae thermal evolution, catalytic hydropyrolysis from the higher evolved organic sediment, and the compositions of noble gases and their isotopic quantitative analysis are presenting a good research platform and experimental techniques for the in-depth studies on the theory of hydrocarbon generation and perfect the trace index system. Whereas, the marine petroleum exploration is still faced with many challenges, which include many unresolved questions relating to the mechanism, index, and technique for effective revealing of main hydrocarbon source, so the theory of hydrocarbon generation is up for perfection, and the composite application of multiple index and development of new index is still an important way.

Key words: Marine strata; Manifold hydrocarbon source; Hydrocarbon conversion; Trace system; Research progress.

=====

《天然气地球科学》杂志入编《中文核心期刊要目总览》

接北京大学图书馆《中文核心期刊要目总览》(2008 年版)编辑委员会通知,《天然气地球科学》(双月刊)杂志正式入编《中文核心期刊要目总览》(2008 年版,即第 5 版)之石油、天然气工业类的核心期刊。

《中文核心期刊要目总览》(2008 年版)对核心期刊的评价采用定量评价和定性评审相结合的方法。其中定量评价指标采用了被引量、被摘量、被引量、他引量、被摘率、影响因子、获国家奖或被国内外重要检索工具收录、基金论文比、Web 下载量等 9 个指标,涉及评价期刊 12400 余种,共收录了 1980 余种核心期刊。

(本刊通讯员)