

琼东南盆地深水区崖城组煤系烃源岩定量评价

熊波^{1,2}, 苏龙³, 张功成⁴, 沈怀磊⁴, 郑建京³

(1. 中国科学院大学渗流流体力学研究所, 河北廊坊 065007;

2. 中国石油勘探开发研究院廊坊分院, 河北廊坊 065007;

3. 中国科学院油气资源研究重点实验室, 甘肃兰州 730000;

4. 中海石油(中国)有限公司北京研究中心, 北京 100027)

摘要:油气勘探揭示, 琼东南盆地深水区下渐新统崖城组属于海陆过渡相煤系烃源岩, 是主力气源岩之一。选择崖城组煤系烃源岩样品开展全岩热解实验, 定量评价生气极限和生烃动力学特征。结果表明, 崖城组煤系烃源岩的主生气期镜质体反射率(R_o)值为0.96%~2.74%, 生气极限 R_o 值为4.38%, 该值对应处 ΔR_o 的最大值为0.83%, 且累积和阶段产率变化不大, 预示煤系烃源岩生气过程基本结束。通过实验结果与收集到的钻井实测 R_o 值对比, 认为在中央坳陷边缘及其邻区, 崖城组煤系烃源岩仍具有生成天然气的巨大潜力。该项研究对于深水区盆地的油气勘探具有重要的理论和现实意义。

关键词:琼东南盆地; 煤系烃源岩; 生气极限; 生烃动力学

中图分类号: TE121.1⁺1

文献标志码: A

文章编号: 1672-1926(2014)04-0542-09

引用格式: Xiong Bo, Su Long, Zhang Gongcheng, *et al.* Quantitative evaluation for coal-bearing source rocks of Yacheng Formation in the deepwater area of the Qiongdongnan Basin[J]. Natural Gas Geoscience, 2014, 25(4): 542-550. [熊波, 苏龙, 张功成, 等. 琼东南盆地深水区崖城组煤系烃源岩定量评价[J]. 天然气地球科学, 2014, 25(4): 542-550.]

0 引言

气源分析和探井地球化学资料表明^[1-6], 琼东南盆地深水区(水深大于300m)天然气源岩除陵水组和崖城组浅海相泥岩外, 主要为崖城组煤层、炭质泥岩和暗色泥岩等海陆过渡相地层, 有机质类型以腐殖型干酪根为主。地震资料揭示, 下渐新统崖城组煤系烃源岩^[2,6], 在中央坳陷分布广泛^[7-9]。现有钻井揭示, 崖城组总厚度为0~2150m^[2-3,6], 横向上北厚南薄, 是深水区主力气源岩之一。截至目前, 盆地内共发现2个商业性煤成气田, 其中崖13-1大气田储量近 $1\,000 \times 10^8 \text{ m}^3$ ^[1-2], 成为我国海域重要的天然气田勘探区, 该区煤系烃源岩研究对指导我国海

域深水区盆地油气勘探具有重要意义。但是, 由于目前对琼东南盆地深水区勘探程度较低, 所获得的崖城组钻井取心岩心非常有限, 制约了对该盆地深水区崖城组煤系烃源岩的深入研究。为此, 本文根据采集到的浅水区煤样以及与区域资料对比, 选用茂名金塘矿区渐新统生油岩, 作为琼东南盆地深水区崖城组煤系烃源岩的替代样品开展全岩热解实验, 以期的定量评价琼东南盆地深水区崖城组煤系烃源岩的生气极限和生烃动力学特征提供借鉴。

1 地质背景

琼东南盆地位于海南岛东南部海域, 轴向北东,

收稿日期: 2013-10-24; 修回日期: 2014-01-25.

基金项目: 中国科学院“西部之光”人才培养计划项目(编号: 2008ZX05018-003); 国家科技重大专项(编号: 2011ZX05008-002-23; 004-11); 中国科学院油气资源研究重点实验室开放基金(编号: KFJJ2013-04)联合资助.

作者简介: 熊波(1979-), 男, 湖北荆州人, 博士研究生, 主要从事油气田开发研究. **E-mail:** xiongb69@petrochina.com.cn.

通讯作者: 苏龙(1975-), 男, 甘肃临洮人, 副研究员, 博士, 主要从事沉积盆地油气地质、地球化学与构造地质学等研究.

E-mail: longsu@lzb.ac.cn.

面积约为 $10\times 10^4\text{km}^2$;西侧与莺歌海盆地相邻,东北与珠三坳陷相邻,北部为海南隆起,南部与永乐隆起相接。盆地经历了古新世—渐新世多幕裂陷、早—中中新世热沉降及晚中新世—第四纪新构造运动快速沉降3个主要阶段^[7,9](表1)。盆地可进一步划分为北部坳陷、中部隆起和中央坳陷等二级构造单元,其中中央坳陷大部分处于深水区。

已有研究表明^[6-9],南海北部大陆边缘是准被动

大陆边缘,与我国东部古近纪—新近纪陆相裂谷盆地不同,具有先陆后海的沉积特征^[7,9]。根据岩性、电性、古生物和沉积旋回特征,将琼东南盆地钻井揭露的沉积地层划分为7个岩组,自下而上分别为渐新统崖城组、陵水组,中新统三亚组、梅山组、黄流组,上新统莺歌海组及全新组—更新统乐东组^[7]。油气勘探实践证明,煤系地层主要见于崖城组和陵水组,为琼东南盆地的主要气源岩之一^[2,7-8]。

表 1 琼东南盆地深水区地层与盆地演化(据张功成等^[7],修改)

Table 1 The stratigraphy and evolution in the deepwater area of the Qiongdongnan Basin
(modified after Gongcheng Zhang, *et al.*^[7])

| 界 | 系 | 统 | 组(段) | 底界起始时间/Ma | 底界地震标志层 | 构造演化阶段 | | | |
|-------------|------|---------|------|-----------|-----------------|-----------------|------------------|-------------|----|
| 新 生 界 | 新近系 | 全新统一更新统 | 乐东组 | 2.48 | T ₂₀ | 新构造期 | | | |
| | | 上新统 | 莺歌海组 | 5.4 | T ₃₀ | | | | |
| | | | 黄流组 | 11.5 | T ₄₀ | | | | |
| | | 中新统 | 梅山组 | 一段 | 15 | T ₅₀ | 热沉降期 | | |
| | | | | 二段 | | | | | |
| | | | 三亚组 | 一段 | 23.3 | T ₆₀ | | | |
| | | | | 二段 | | | | | |
| | | 古近系 | 渐新统 | 陵水组 | 一段 | 30 | T ₆₁ | 裂 陷 期 | 晚幕 |
| | | | | | 二段 | | T ₆₂ | | |
| | | | | | 三段 | | T ₇₀ | | |
| | 一段 | | | | T ₇₁ | | | | |
| | 崖城组 | | | 二段 | 32 | T ₇₂ | 中幕 | | |
| | | | | 三段 | | T ₈₀ | | | |
| | | | | 始新统 | | 56.5 | T ₁₀₀ | | 早幕 |
| | 前新生界 | | | | | | 前裂谷期 | | |

琼东南盆地现今地温场具有“三高”特征^[10-11],即地温梯度高、大地热流值高和成熟度高,且深水区比浅水区更热。其热流值总体表现为西高东低、南高北低的特征;浅水区地温梯度为 $30\sim 40^{\circ}\text{C}/\text{km}$,平均热流值为 $(66\pm 9.8)\text{mW}/\text{m}^2$;深水区地温梯度为 $60\sim 160^{\circ}\text{C}/\text{km}$,平均热流值为 $(77.5\pm 14.8)\text{mW}/\text{m}^2$ 。新构造期(5.3Ma)以来,盆地快速沉降沉积,沉降速率大于 $200\text{m}/\text{Ma}$ ^[12];沉积地层厚度巨大,在中央坳陷局部凹陷可达 $10\ 000\text{m}$ 以上,最大沉积厚度约为 $12\ 000\text{m}$ ^[9]。新构造运动深刻影响到烃源岩演化,特别是盆地西部的晚期巨幅沉降^[13],崖城组烃源岩快速深埋,地温升高,有机质急剧演化,短期内迅速成熟,达到成熟—高成熟阶段^[11],生排烃产物主要是天然气^[2,8-9]。

2 样品及实验方法

用以确定生烃动力学参数的热模拟实验分为封

闭体系^[14-16]和开放体系^[17-20]。一般来讲,前者适用于Ⅰ型烃源岩及其干酪根,而研究Ⅱ型与Ⅲ型烃源岩及其生烃特征时采用后者更合理^[16-17]。模拟烃源岩的生烃、排烃运移过程中不应该全采用封闭体系。因此,有必要研究开放体系条件下烃源岩的生烃动力学特征。琼东南盆地深水区煤系烃源岩资料极少^[8-9],烃源岩定量评价尤为重要。

本文研究采集到浅水区 Ya13-1-6 井 3 977~3 979m段少量煤样,因琼东南盆地深水区勘探程度低,受海上钻井的特殊性和取样高成本等客观条件限制,故没有采集到深水区烃源岩样品。而浅水区烃源岩已经历过第一次生烃,且成熟度较高,不适合进行模拟实验。

经区域资料对比,选用茂名金塘矿区渐新统生油岩^[21]替代琼东南盆地深水区崖城组烃源岩样品进行实验。生油岩样品干酪根 H/C 值为 1.65, O/C 值为 0.19,有机质类型为Ⅱ型^[15];有机碳含量

(TOC) 值为 11.40%，镜质组反射率(R_o) 值为 0.44%，处于未成熟阶段，能满足生烃热模拟实验的

要求(表 2)。实验中直接利用全岩样品，以使实验条件更接近地层实际情况。

表 2 煤系烃源岩样品的地球化学参数
Table 2 The data of geochemical parameters derived from the samples of the coal-bearing source rocks

| 采样地点 | 岩性 | 深度/m | $T_{\max}/^{\circ}\text{C}$ | TOC/% | $S_1/(\text{mg/g})$ | $S_2/(\text{mg/g})$ |
|------------|-----|-------------|-----------------------------|-------|---------------------|---------------------|
| 茂名金塘矿区 | 生油岩 | 采场露头 | 431 | 11.40 | 1.24 | 55.36 |
| Ya13-1-6 井 | 煤 | 3 977~3 979 | 439 | 72.13 | 3.57 | 216.83 |

生烃热模拟实验设计了 2 种方法。第 1 种为封闭体系含水实验，样品为茂名生油岩，采用 GCF-0.25L 型高压釜，模拟温度为 250~500℃；为了获得生气极限，在低升温速率程序升温至 500℃ 时分别延长加热 144h 和 216h。第 2 种为开放体系无水实验，样品为茂名生油岩和 Ya13-1-6 井煤样，在真空管式炉上进行，模拟温度为 250~1100℃，实验方法参考文献[15, 17]；升温速率分别为 8℃/min 和 20℃/min，用于获取生烃动力学参数。

封闭体系含水实验前，将样品粉碎至粒径 1~10mm，取约 50g 和一定量的去离子水加入反应釜中^[15]，按标准方法进行密封、试漏，用氮气排空并用真空泵抽真空，程序升温。开放体系无水实验温阶为 50℃，载气为纯 He，进样量约 30g。采用 Agilent 6890N 气相色谱仪进行产物组分分析，用 DELTA-plus XP 同位素质谱仪测定气体碳同位素组成。采用美国劳伦斯国家实验室动力学模型及 Kinetics2005 专用软件计算生烃动力学参数。

3 煤系烃源岩定量评价

不同类型的生烃母质，其生烃、演化过程不尽相同；即使类型相同，采用不同的模拟实验系统，其生烃过程也存在差别，不同阶段产气率会有较大变化^[22-23]。因此，在评价煤系烃源岩的生气极限之前，必须确定不同实验系统下煤系烃源岩生成天然气的主生气期。

3.1 主生气期

结果显示，生油岩样品热模拟生成的甲烷、乙烷、丙烷与重烃的累积产率呈现一直增大趋势，不同组分的增加幅度明显不同；在封闭体系中，甲烷生成高峰对应的镜质组反射率(R_o) 值在 3.0% 左右(图 1)。

以开放体系下天然气转化率 20%~80% 及其曲线斜率的突变点，确定生油岩样品的主生气期为 $R_o=0.96\%\sim2.74\%$ (图 2)。显然，与经典油气生成理论的生气窗起点 $R_o=0.9\%$ 接近^[14]，而终点值

差别较大，主要是因模拟实验系统和实验条件等不同而存在差别^[17, 22-23]。前人^[22] 通过封闭体系生烃动力学方法研究结果表明，原油(液态烃) 样品的主生气期对应的 R_o 值为 1.6%~3.5%，可见，原油大量裂解生气明显滞后于干酪根裂解生气。与前人^[17, 22-23] 通过不同的方法得到的主生气期对比可知，本文获得的天然气主生气期 R_o 值的边界是合理的。

3.2 生气极限

通过封闭体系热模拟气体产率特征的对比分析可知，生气极限 R_o 值至少在天然气阶段产率的高峰之后，其值应大于 3.0% (图 1)。在天然气的生成与成藏过程中，煤系烃源岩中的干酪根、以聚集和分散形式赋存的可溶有机质是主要的气源^[22]。前人^[22-23] 研究结果表明，原油大量裂解生气明显滞后于干酪根裂解生气，导致阶段产率高峰延续到热演化的更高阶段。主生气期结束时，即 R_o 值为 2.74% (图 2)，乙烷、丙烷和重烃已全部裂解为甲烷，因此，下面仅讨论甲烷的相关参数特征。恒温不同时间含水实验甲烷碳同位素值、干燥系数、 R_o 值和甲烷产率大小对比说明(表 3)，在 500℃ 之前，甲烷产率增加较大，甲烷碳同位素值持续增高。500℃ 时，与恒温 72h 后的参数相比较，恒温 144h 后的各参数值都有较大的增加，而恒温 216h 后的甲烷累积和阶段产率变化不大，甲烷碳同位素值进一步变高，干燥系数和终止压力值近似。通过上述对比分析可知，恒温 144h 后，生油岩的生气过程基本结束。据此确定恒温 144h 的 R_o 值 4.38% 为生气极限。

同时，开放体系无水实验的数据也能从另一方面来说明生气极限 R_o 值为 4.38%。在有机质的热演化过程中(图 3)， R_o 值呈现不可逆性的连续增长^[14]，与生成的天然气累积产率 A—G 阶段的递增趋势是一致的。表现出先慢后快再变慢的特征：在天然气生成的早期(A—B 段) 和晚期阶段(F—G 段)，递增速度很慢；在主生气期 B—D 段，递增速度

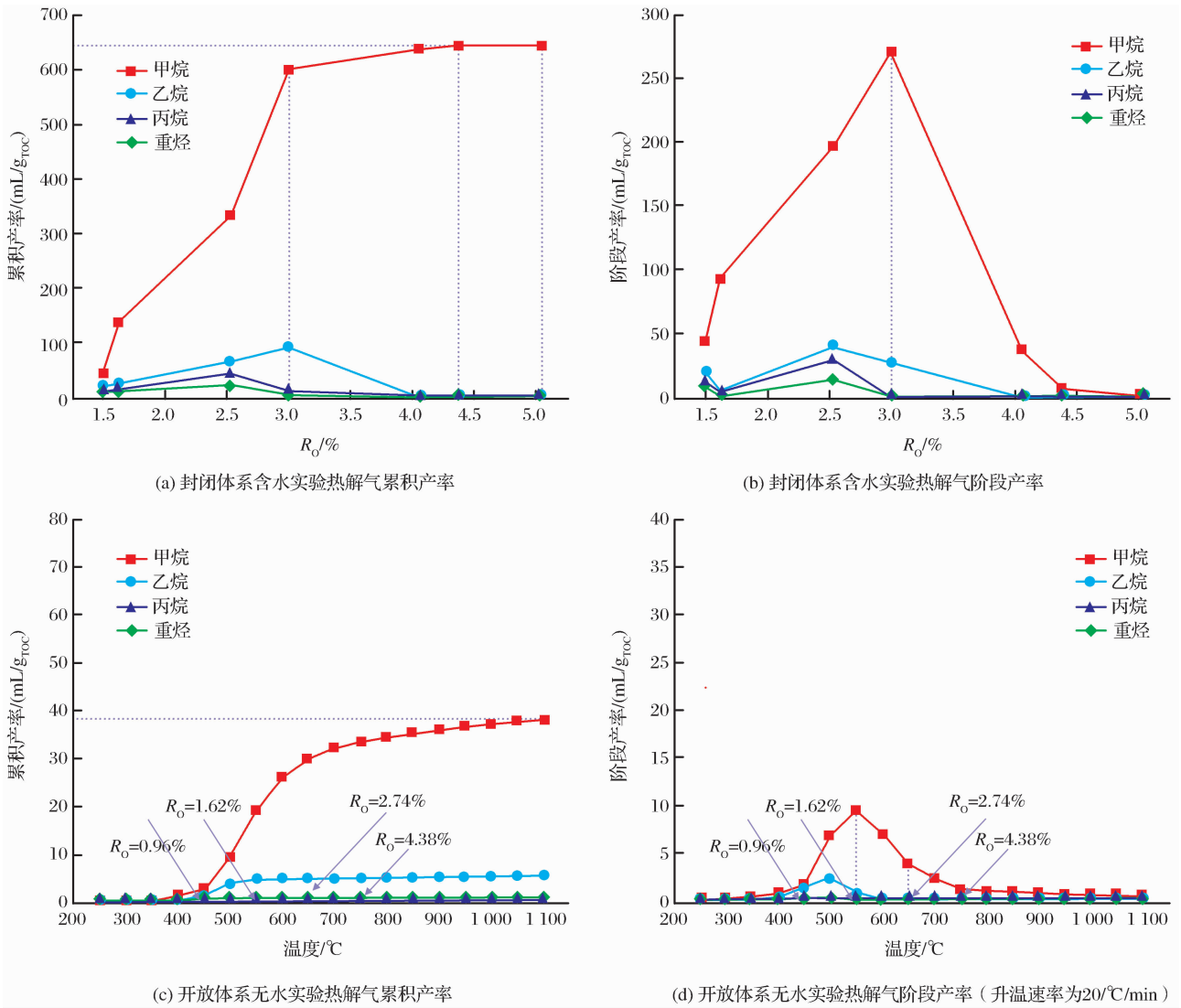


图 1 茂名生油岩热解气产率曲线特征

Fig. 1 Characteristics of the hydrocarbon gas generation rates derived from Maoming source rocks in the pyrolysis experiments

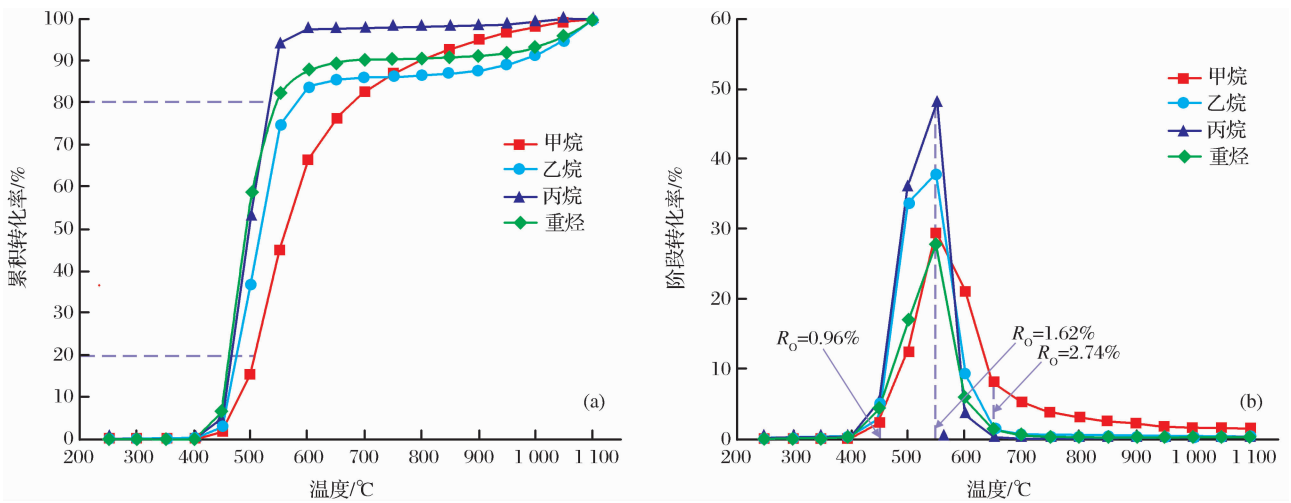


图 2 茂名生油岩热解气转化率曲线

Fig. 2 Transformation ratio of gas derived from Maoming source rocks

表 3 生油岩恒温含水实验的参数对比结果

Table 3 The comparison table of the parameter in the experiment by the hydrous and the constant temperature derived from Maoming source rocks

| 序号 | 温度/℃ | 时间/h | 加水量/mL | R_o /% | 样品量/g | 压力/MPa | 甲烷阶段产率/mL | 甲烷累积产率/mL | 干燥系/((C_1/C_{1-5})) | $\delta^{13}C_1$ /‰ |
|----|------|------|--------|----------|-------|--------|-----------|-----------|-------------------------|---------------------|
| 1 | 300 | 72 | 14 | 1.50 | 47.24 | 5.22 | 43.04 | 43.04 | 0.515 | -35.5 |
| 2 | 350 | 72 | 12 | 4.60 | 47.27 | 5.86 | 93.11 | 136.15 | 0.554 | -35.4 |
| 3 | 400 | 72 | 10 | 2.53 | 60.28 | 7.31 | 195.69 | 331.84 | 0.577 | -31.6 |
| 4 | 450 | 72 | 8 | 3.00 | 33.15 | 8.26 | 269.81 | 601.65 | 0.816 | -29.2 |
| 5 | 500 | 72 | 6 | 4.06 | 60.06 | 9.97 | 36.55 | 638.20 | 0.996 | -25.3 |
| 6 | 500 | 144 | 5 | 4.38 | 60.02 | 10.21 | 6.63 | 644.83 | 0.997 | -25.1 |
| 7 | 500 | 214 | 4 | 5.05 | 65.16 | 10.22 | 0.05 | 644.88 | 0.998 | -24.5 |

却很快;而在主生气期后的 D—F 段, R_o 值热演化速度最快,但是累积产率却由快速递增转变到慢速递增,阶段产率由其高峰转变到低谷。可见, R_o 值在 D—F 段的演化特征,无法清晰地描述天然气的阶段产率特征。

在实际应用中,主要是采用 ΔR_o 指标来刻画。所谓的 ΔR_o ,即相邻温度点的 R_o 差值。由图 3 可知, R_o 值在 D—F 段的演化对应的模拟温度为 650~800℃, R_o 值热演化速度最快,但 ΔR_o 近似,在 0.80%~0.83% 之间,曲线 L—N 段近似水平,而 ΔR_o 最大处(M 点)为 0.83%,对应的 R_o 值(E 点)为 4.38%;之后 E—F 段, R_o 值递增速度仍然最快,但 ΔR_o 值已由快速减小变为慢速减少趋势,即由 0.8% 减小到约 0.1%,与阶段产率减少的趋势是一致的。上述变化过程,揭示出 ΔR_o 能更清楚地刻画气体阶段产率不同演化过程中的演化特征,特别是 ΔR_o 的最大值 0.83% 之后,累积和阶段产率变化不大,预示煤系烃源岩生气过程基本结束,对应的 R_o 值 4.38% 确定为生气极限,与热模拟气体累积及阶段产率特征对比的结论相一致。

Tissot 和 Welte^[14] 的经典油气生成模式认为,当 R_o 值大于 4.0% 时,甲烷也开始遭受到高温的破坏,岩石开始进入变质作用阶段;大量热模拟实验也表明^[22-23],泥质烃源岩在 R_o 值达 3.0% 左右时,产气速率减缓, R_o 值为 4.0% 时,基本不生气;王云鹏等^[24] 认为Ⅱ型干酪根的生气极限为 $R_o=4.4\% \sim 4.5\%$ 。本文研究结果与上述文献^[14,22-24] 的生气极限结论近似,从而确定生气极限为 $R_o=4.38\%$ 是合理的。

3.3 生烃动力学评价

天然气的生成动力学模拟方法,能把热模拟实验数据同具体盆地演化史有机地结合起来,定量地

预测盆地天然气组分,恢复天然气的形成、运移和聚集历史,已成为天然气地质理论发展和资源评价的重要内容^[14,16-19,25]。

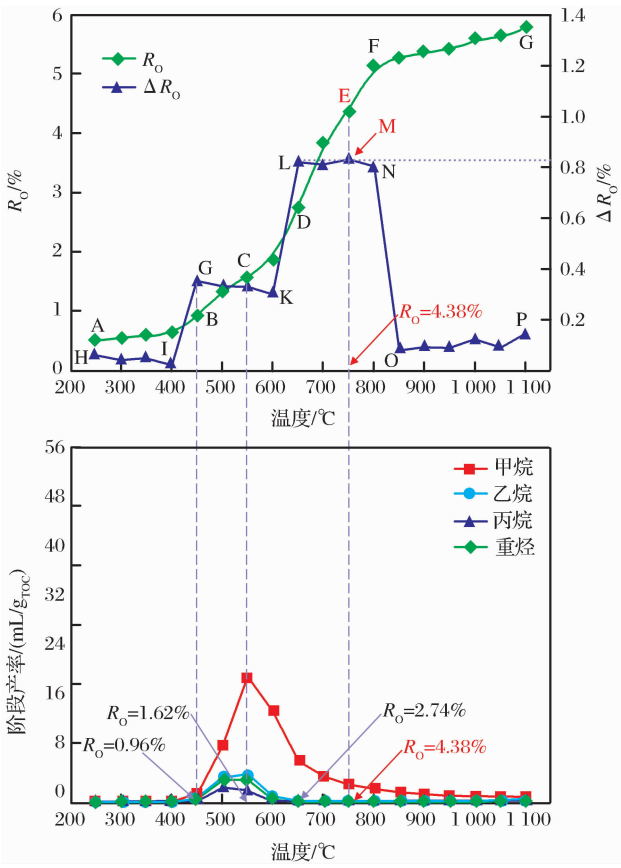


图 3 茂名生油岩热演化 R_o 及其 ΔR_o 与阶段产率的关系

Fig. 3 Relationship between R_o and its corresponding to ΔR_o and the phase rates of the hydrocarbon gas generation in the open-system experiment derived from Maoming source rocks

3.3.1 各烃类组分的生烃动力学参数

有机质生气过程是热力作用下的化学反应,因此,从理论上讲,其反应的速率和程度及其与时间、

温度的关系,同许多热化学反应过程一样,由相关理论来定量描述^[16,18]:

$$X(t)=\sum X_i(t)$$

(1)

对于第*i*个反应生成*X_i*的过程,有

$$X_i(t)=X_{i0}[1-\exp(-k_i(t))]$$

(2)

$$k_i=A_i\exp(-E_i/RT)$$

(3)

式(1)—式(3)中,*X*为时间*t*时总的油气生成量;*X_i*为第*i*个反应在时间*t*时的生成量;*X_{i0}*为第*i*个生烃母体可生成*X_i*的最大潜力;*k_i*为反应速率常数;*t*为时间;*E_i*为活化能;*A_i*为指前因子;*R*为气体常数;*T*为绝对温度。对于特定的油页岩这种生烃母体,*E_i*及*A_i*均为常数,可通过实验得出。通过对实验数据进行归一化处理,计算得到动力学参数。

以生油岩生成的甲烷产率为例,由实验分别得到了高、低升温速率条件下,甲烷在不同温度点时的产率*C_{1t}*与该样品甲烷的最大产率*C_{1max}*的比值,即甲烷在不同温度点时的转换率*C_i*,本文采用以下的公式^[25]:

$$C_i=C_{1t}/C_{1\max}$$

(4)

因本热解实验采用超高温 1 100℃,故生油岩热解生气进行彻底,且气态烃边生边排,根据琼东南盆地现今高地温场的特征,得到了较高升温速率(20℃/min)条件下*C_{1max}*为 68.27mL/g(表 4),其产烃量按每克有机碳计算。得出甲烷在不同温度点的转换率*C_i*值后,利用式(1)—式(3),通过专用软件进行处理与计算,即可算出甲烷生成的活化能及指前因子。实际的计算通过计算机完成。

3.3.2 生烃动力学定量模型

煤系烃源岩生成的甲烷、乙烷、丙烷与重烃的活化能分布范围和相应的指前因子,经对比分析,结果与已有研究相近^[16,18-19,24],其指前因子大小介于 10¹¹~10¹⁵ s⁻¹ 之间,稍高于 Pepper 等^[19]报道的结果。其活化能分布呈不对称峰型^[15],与不同学者利用不同母质的有机质,采用不同的热解实验装置和系统得到的活化能分布峰型有所差别^[22-24]。按照*C₁*、*C₂*、*C₃*的顺序,各组分活化能主频所占的比例依次增高,且其主活化能也升高,相应的指前因子呈指数增大(表 5)。而重烃组分的活化能主频所占的比例与主活化能均小于*C₁*、*C₃*组分的,但其指前因子却呈指数增大。由式(1)、式(3)可知,重烃组分的活化能减小和指前因子的增大都会对反应速度常数有较大的贡献。

在研究中收集了琼东南盆地浅水区崖城组煤系

烃源岩的 8 口钻井实测 *R_o* 数据,经分析可知(图 4),煤系烃源岩处在 3 930~5 577.6m 深度范围内,*R_o* 值在 0.43%~2.19%之间,平均为 1.02%,处于生油到干气的不同阶段,说明崖城组煤系烃源岩的绝大部分,还远没有达到生气极限 4.38%。因此,深水区崖城组煤系烃源岩,沿中央坳陷(乐东—陵水—松南—北礁凹陷)的边缘及其邻区,*R_o* 值至少大于 0.7%^[3-4],根据前人^[6-9,14,22-24]的研究结论与本文实验结果综合分析表明,琼东南盆地深水区崖城组煤系烃源岩仍具有很好的生气潜力。

表 4 20/(℃/min)升温速率条件下茂名生油岩的气体产率数据

Table 4 The data of the hydrocarbon gas generation rates derived from Maoming source rocks in the open-system experiment under the heating rates of 20 ℃/min

| 温度 /℃ | C ₁ /(mL/g _{TOC}) | C ₂ /(mL/g _{TOC}) | C ₃ /(mL/g _{TOC}) | C ₄₋₆ /(mL/g _{TOC}) |
|----------|---|---|---|---|
| 250 | nd* | nd | nd | nd |
| 300 | nd | nd | nd | nd |
| 350 | nd | nd | nd | 0.03 |
| 400 | 0.05 | 0.01 | 0.01 | 0.17 |
| 450 | 1.43 | 0.38 | 0.26 | 0.89 |
| 500 | 10.23 | 4.31 | 2.64 | 4.70 |
| 550 | 23.83 | 8.73 | 4.66 | 8.40 |
| 600 | 33.05 | 9.84 | 4.83 | 9.07 |
| 650 | 38.73 | 10.02 | 4.84 | 9.20 |
| 700 | 45.33 | 10.09 | 4.84 | 9.27 |
| 750 | 51.94 | 10.12 | 4.84 | 9.31 |
| 800 | 56.82 | 10.15 | 4.84 | 9.34 |
| 850 | 60.26 | 10.20 | 4.85 | 9.37 |
| 900 | 62.19 | 10.28 | 4.86 | 9.41 |
| 950 | 63.35 | 10.44 | 4.88 | 9.52 |
| 1 000 | 64.15 | 10.70 | 4.90 | 9.71 |
| 1 050 | 65.51 | 11.13 | 4.94 | 10.05 |
| 1 100 | 68.27 | 11.72 | 4.94 | 10.55 |

注:nd 表示含量小,无法检测。

上述研究结论,有助于破解南海北部深水盆地许多成藏机理问题以及对勘探前景的预测和把握,尤其是在国内外大陆架诸盆地深水盆地都相继发现了一些大型油气田^[7-9],取得引人注目进展的情况下,显得尤为重要。另一方面,从分析中国南海北部盆地深水煤系烃源岩所处的实际地质背景为出发点,在开展模拟实验和生烃动力学研究的同时,得出深水盆地煤系烃源岩,不同演化阶段各组分的动力学定量模型,为南海北部深水盆地煤系烃源岩

评价提供可靠的实验依据。同时,在应用南海深水
区盆地已具有不同成熟度的煤系烃源岩时,需要根
据待研究深水区盆地的煤系烃源岩所受地热史等参

数,以本文提供的低熟煤系烃源岩的动力学参数作
为参照指标,做出地质条件下煤系烃源岩的生气过
程分析。

表 5 煤系烃源岩的动力学定量模型计算结果

Table 5 The dynamics quantitative model of the coal-bearing hydrocarbon source rocks by calculation

| 样品 | 组分 | 活化能分布范围/(kcal/mol) | 活化能主频*/(kcal/mol) | 指前因子/S ⁻¹ | 活化能主频比例/% |
|-----|----|--------------------|-------------------|-----------------------|-----------|
| 生油岩 | 甲烷 | 38~86 | 52 | 6.47×10 ¹¹ | 20.44 |
| | 乙烷 | 44~92 | 54 | 2.70×10 ¹² | 38.04 |
| | 丙烷 | 43~77 | 63 | 1.09×10 ¹⁵ | 42.50 |
| | 重烃 | 46~70 | 48 | 8.39×10 ¹⁵ | 25.05 |
| 煤 | 甲烷 | 43~95 | 59 | 1.86×10 ¹³ | 13.24 |
| | 乙烷 | 45~93 | 61 | 8.79×10 ¹⁴ | 21.91 |
| | 丙烷 | 47~90 | 63 | 5.29×10 ¹⁵ | 22.77 |
| | 重烃 | 47~93 | 57 | 3.26×10 ¹⁵ | 26.49 |

* 活化能单位 1cal/mol=4.1868J/mol

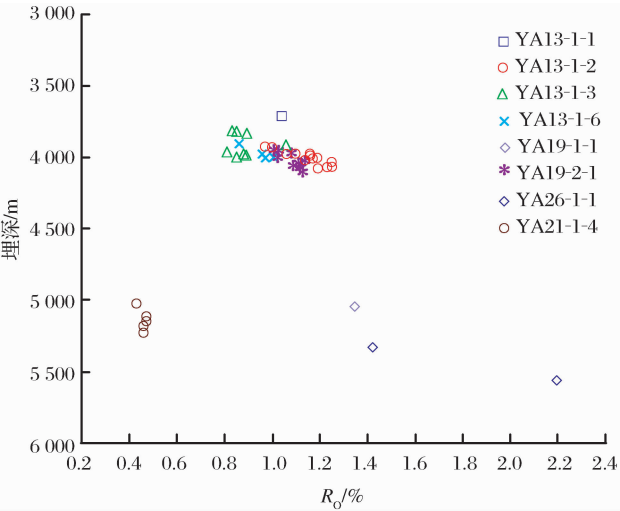


图 4 琼东南盆地崖城组煤系烃源岩的钻井实测 R_o 值

Fig. 4 Vitrinite reflectance from the drilled wells for the coal-bearing hydrocarbon source rocks of Yacheng Formation in the Qiongdongnan Basin

4 结论

(1)南海北部琼东南盆地下渐新统崖城组煤系
烃源岩的生气极限量评价表明,随温度和加热时
间的增加,成熟度和气态烃产率均递增,天然气的主
生气期 R_o 值为 0.96%~2.74%,当 R_o 值为 4.38%
时,累积生烃与阶段生烃的产率都不再增加,且阶段
生烃 R_o 的差值 ΔR_o 值达最大 0.83%,煤系烃源岩
生气过程基本结束。因此,确定崖城组煤系烃源岩
的生气极限为 4.38%。与浅水区的钻井实测 R_o 值
数据相比较,后者远低于生气极限值,认为分布于中
央拗陷的边缘及其邻区的深水区崖城组煤系烃源

岩,仍有较好的生气潜力。

(2)通过计算获得了南海北部琼东南盆地深水
区煤系烃源岩不同演化阶段的动力学定量模型,且
崖城组煤系烃源岩热解生成的甲烷、乙烷、丙烷和重
烃对应的活化能分布呈不对称峰型。

(3)创新了应用热模拟实验方法与生烃动力学
方法,定量评价和研究中国海域深水区盆地煤系烃
源岩的新思路,确切地描述了中国海域深水区盆地
煤系烃源岩的生烃动力学特征。该研究思路不仅在
理论上可为深水区盆地煤系烃源岩的研究及评价提
供一种新的参照,而且,对于我国广阔海域深水区盆
地的油气勘探而言,无疑会提供科学依据,从而拓宽
天然气的勘探领域。

参考文献(References):

[1] Dai Jinxing, Hu Guoyi, Ni Yunyan, *et al.* Natural gas distribu-
tion feature in the east of China[J]. Natural Gas Geoscience,
2009, 20(4): 471-487. [戴金星, 胡国艺, 倪云燕, 等. 中国东部
天然气分布特征[J]. 天然气地球科学, 2009, 20(4): 471-
487.]

[2] Huang Baojia, Li Xushen, Wang Zhenfeng, *et al.* Source rock
geochemistry and gas potential in the deep water area, Qiong-
dongnan Basin[J]. China Offshore Oil and Gas, 2012, 24(4):
1-7. [黄保家, 李绪深, 王振峰, 等. 琼东南盆地深水区烃源岩
地球化学特征与天然气潜力[J]. 中国海上油气, 2012, 24(4):
1-7.]

[3] Zhang Yina, Zhang Gongcheng, He Yuping, *et al.* Sedimenta-
tion and source rock characteristics of Yacheng Formation in
Beijiao Sag of Qiongdongnan Basin[J]. Natural Gas Geosci-
ence, 2013, 24(4): 725-732. [张义娜, 张功成, 何玉平, 等. 琼
东南盆地北礁凹陷崖城组沉积与烃源岩发育特征[J]. 天然气

- 地球科学, 2013, 24(4): 725-732.]
- [4] Wu Yukun, Hu Mingyi, Liu Zhifeng, *et al.* The sedimentary facies and coal measures source rock distribution of Yacheng Formation in Yabei Sag, Qiongdongnan Basin[J]. Natural Gas Geoscience, 2013, 24(3): 582-590. [吴玉坤, 胡明毅, 刘志峰, 等. 琼东南盆地崖北凹陷崖城组沉积相及煤系烃源岩分布[J]. 天然气地球科学, 2013, 24(3): 582-590.]
- [5] Li Zengxue, He Yuping, Liu Haiyan, *et al.* Sedimentology characteristics and coal-forming models in Yacheng Formation of Qiongdongnan Basin[J]. Acta Petrolei Sinica, 2010, 31(4): 542-547. [李增学, 何玉平, 刘海燕, 等. 琼东南盆地崖城组煤的沉积学特征与聚煤模式[J]. 石油学报, 2010, 31(4): 542-547.]
- [6] Zhang Gongcheng, He Yuping, Shen Huailei. Distribution of Yachen Formation coal measure in Yabei Sag in Qiongdongnan Basin[J]. Natural Gas Geoscience, 2012, 23(4): 654-661. [张功成, 何玉平, 沈怀磊. 琼东南盆地崖北凹陷崖城组煤系烃源岩分布及其意义[J]. 天然气地球科学, 2012, 23(4): 654-661.]
- [7] Zhang Gongcheng, Mi Lijun, Wu Shiguo, *et al.* Deepwater area-the new prospecting targets of northern continental margin of South China Sea[J]. Acta Petrolei Sinica, 2007, 28(2): 15-21. [张功成, 米立军, 吴时国, 等. 深水区——南海北部大陆边缘盆地油气勘探新领域[J]. 石油学报, 2007, 28(2): 15-21.]
- [8] Zhang Gongcheng, Mi Lijun, Wu Jingfu, *et al.* Rises and their plunges: Favorable exploration direction for major fields in the deepwater area, Qiongdongnan Basin[J]. China Offshore Oil and Gas, 2010, 22(6): 360-368. [张功成, 米立军, 吴景富, 等. 凸起及其倾没端——琼东南盆地深水区大中型油气田有利勘探方向[J]. 中国海上油气, 2010, 22(6): 360-368.]
- [9] Zhu Weilin, Zhang Gongcheng, Yang Shaokun, *et al.* Natural Gas Geology of Northern Continental Margin of South China Sea[M]. Beijing: Petroleum Industrial Press, 2007. [朱伟林, 张功成, 杨少坤, 等. 南海北部大陆边缘盆地天然气地质[M]. 北京: 石油工业出版社, 2007.]
- [10] Mi Lijun, Yuan Yusong, Zhang Gongcheng, *et al.* Characteristics and genesis of geothermal field in deep-water area of the northern South China Sea[J]. Acta Petrolei Sinica, 2009, 30(1): 27-32. [米立军, 袁玉松, 张功成, 等. 南海北部深水区地热特征及其成因[J]. 石油学报, 2009, 30(1): 27-32.]
- [11] Wu Jinfu, Yang Shunchun, Zhang Gongcheng, *et al.* Geothermal history and thermal evolution of the source rocks in the deep-water area of the northern South China Sea[J]. Chinese Journal of Geophysics, 2013, 56(1): 170-180. [吴景富, 杨树春, 张功成, 等. 南海北部深水区盆地热历史及烃源岩热演化研究[J]. 地球物理学报, 2013, 56(1): 170-180.]
- [12] Lin Changsong, Zhang Yanmei. The simulation analysis for the history of the basin subsidence[M]//Gong Zaisheng, Li Sitian, Xie Taijun, *et al.* Analysis of Oil and Gas Accumulation in the Continental Margin Basin, North of South Sea, China. Beijing: Science Press, 1997: 83. [林畅松, 张艳梅. 盆地沉降史模拟分析[M]//龚再升, 李思田, 谢泰俊, 等. 南海北部边缘盆地分析与油气聚集. 北京: 科学出版社, 1997: 83.]
- [13] Su Long, Zheng Jianjing, Wang Qi, *et al.* Formation mechanism and research progress on overpressure in the Qiongdongnan Basin[J]. Natural Gas Geoscience, 2012, 23(4): 662-672. [苏龙, 郑建京, 王琪, 等. 琼东南盆地超压的研究进展及形成机制[J]. 天然气地球科学, 2012, 23(4): 662-672.]
- [14] Tissot B P, Welte D H. Petroleum Formation and Occurrence [M]. Berlin, Heidelberg, New York: Springer-Verlag, 1984: 1-699.
- [15] Su Long, Zheng Jianjing, Chen Guojun, *et al.* The upper limit of maturity of natural gas generation and its implication for the Yacheng Formation in the Qiongdongnan Basin, China [J]. Journal of Asian Earth Sciences, 2012, 54/55: 203-213.
- [16] Ungerer P. State of the art in kinetic modeling of oil formation and expulsion[J]. Organic Geochemistry, 1990, 16(1): 1-25.
- [17] Liu Quanyou, Krooss B M, Jin Zhijun, *et al.* Determination of kinetic parameters in open system non-isothermal pyrolysis with ultra-high temperature for coal and its macerals and geological extrapolation of natural gas[J]. Earth Science Frontiers, 2009, 16(1): 167-172. [刘全有, Krooss B M, 金之钧, 等. 煤及显微组分在超高温开放体系实验中动力学参数确立与天然气形成过程预测[J]. 地学前缘, 2009, 16(1): 167-172.]
- [18] Behar F, Tang Y, Liu J. Comparison of rate constants for some molecular tracers generated during artificial maturation of kerogens: Influence of kerogen type[J]. Organic Geochemistry, 1997, 26: 281-287.
- [19] Pepper A S, Corvi P J. Simple kinetic models of petroleum formation. Part 1: Oil and gas generation from kerogen[J]. Marine and Petroleum Geology, 1995, 12(3): 291-319.
- [20] Lu Shuangfang, Wang Min, Wang Yuewen, *et al.* Comparison of simulation results from the closed and open experimental systems and its significance[J]. Acta Sedimentologica Sinica, 2006, 24(2): 282-288. [卢双舫, 王民, 王跃文, 等. 密闭体系与开放体系模拟实验结果的比较研究及其意义[J]. 沉积学报, 2006, 24(2): 282-288.]
- [21] Guo Min, Zhou Mingwen, Li Rui, *et al.* Analysis on oil shale forming conditions in Maoming Basin of Guangdong province [J]. Geology and Mineral Resources of South China, 2009, (2): 47-51. [郭敏, 周明文, 李瑞, 等. 广东茂名盆地油页岩成矿因素分析[J]. 华南地质与矿产, 2009, (2): 47-51.]
- [22] Zhao Wenzhi, Wang Zhaoyun, Zhang Shuichang, *et al.* Successive generation of natural gas from organic materials and its significance in future exploration[J]. Petroleum Exploration and Development, 2005, 32(2): 1-7. [赵文智, 王兆云, 张水昌, 等. 有机质“接力成气”模式的提出及其在勘探中的意义[J]. 石油勘探与开发, 2005, 32(2): 1-7.]
- [23] Hu Guoyi, Li Zhisheng, Luo Xia, *et al.* The comparison of gas generation potential and model between two different thermal simulation systems[J]. Acta Sedimentologica Sinica, 2004, 22(4): 718-728. [胡国艺, 李志生, 罗霞, 等. 两种热模拟体系下有机质生气特征对比[J]. 沉积学报, 2004, 22(4): 718-728.]

- [24] Wang Yunpeng, Zhao Changyi, Wang Zhaoyun, *et al.* Kinetic method for determining the main gas generation period of marine organic matters and its application[J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2005, 32(4): 153-158. [王云鹏, 赵长毅, 王兆云, 等. 利用生烃动力学方法确定海相有机质的主生气期及其初步应用[J]. *石油勘探与开发*, 2005, 32(4): 153-158.]
- [25] Liu Jinzhong, Tang Yongchun. Predict methane generation with kerogen kinetic method of one case[J]. *Chinese Science Bulletin*, 1998, 43(11): 1187-1191. [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): 1187-1191.]

Quantitative Evaluation for Coal-bearing Source Rocks of Yacheng Formation in the Deepwater Area of the Qiongdongnan Basin

XIONG Bo^{1,2}, SU Long³, ZHANG Gong-cheng⁴, SHEN Huai-lei⁴, ZHENG Jian-jing³

(1. *Institute of Porous Flow and Fluid Mechanics, University of Chinese Academy of Sciences, Langfang 065007, China;*

2. *Langfang Branch of Research Institute of Petroleum Exploration and Development, Langfang 065007, China;*

3. *The Key Laboratory of Petroleum Resources Research, Institute of Geology and Geophysics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China;* 4. *CNOOC Research Center, Beijing 100027, China*)

Abstract: Oil and gas exploration of the Qiongdongnan Basin in South China Sea have revealed that source rocks in Lower Oligocene Yacheng Formation in the deepwater area, as one of the main gas source rocks, are coal-bearing source rocks of transitional facies. Based on the controlling factors for medium-sized gas fields in deepwater basin, we carried out the whole rock pyrolysis for coal-bearing source rocks of Yacheng Formation, and conducted study on quantitative evaluation for both the upper limit of maturity for gas generation (ULMGG) or “the deadline of gas generation” and quantitative dynamic model. Linked to geological background, we tested the thermal evolution of coal-bearing source rocks under different conditions and natural gas generation. The results show that the upper limit of maturity for gas generation of the whole rock is equal to 4.38% for vitrinite reflectance (VR), where the gas generation rates change little with the increase of maturation, the ΔR_o -value is 0.83% of the maximum related to VR of 4.38% R_o , and the process of gas generation from source rock nearly ends while R_o is over 4.38%. At the same time, we obtained the quantitative dynamic model for coal-bearing source rocks of Yacheng Formation under different evolution stages. By comparing to both the conclusions of pyrolysis experiments and the data of VR from the source rock of Yacheng Formation on a series of selected 8 wells in the shallow-water continental shelf basins, it indicates that the most source rocks are still far from reaching ULMGG of the whole rock for type II kerogen. The coal-bearing source rocks of Yacheng Formation in the local areas of the deepwater basin still have preferable natural gas generation potential, especially in the areas along the central depression belt from the depocenter to both the margin and its adjacent areas. It has both theoretical and practical significance to oil and gas exploration and development in the other basins with low exploration degree in the northern South China Sea.

Key words: Qiongdongnan Basin; Coal-bearing source rocks; The upper limit of maturity for gas generation; Kinetics