

文章编号: 1000-0550(2001)04-0611-06

临南地区石油运移方向与成藏期次研究

陈庆春¹ 林玉祥² 唐洪三³

(¹ 南京大学地球科学系 南京 210093) (² 北京大学地质学系 北京 100871)

(³ 胜利石油管理局地质科学研究所 山东东营 257015)

摘要 根据原油及油砂抽提物中含氮化合物分析、原油生物标志成熟度参数及储层流体包裹体烃类成分分析,研究了临南地区石油运移的方向、距离、成藏期次。结果表明临南油田仅有一期油气运聚成藏过程,属中新世末形成的成熟原油,4-甲基萘烷含量较高。曲堤油田存在两期油气运聚成藏过程,早期原油成熟度低,4-甲基萘烷含量低,运移距离较远,成藏后大部分散失,晚期充注的原油成熟度较高,4-甲基萘烷含量也较高,并保存至今。

关键词 临南地区 运移方向 含氮化合物 包裹体烃类 成藏期次

第一作者简介 陈庆春 男 1963年出生 高级工程师 石油地质学

中图分类号 TE122.1 **文献标识码** A

临南地区是指临南洼陷南部及其邻近地区(图1)。根据陆相湖盆成油理论的源控说^[1],油气从生烃洼陷向周围的构造、地层等圈闭运移。但油气运移不是向四面八方等强度运移的,而是有一个或若干个主导方向^[2],位于油气运移方向、有时甚至是主导运移方向上的圈闭才是有效的。本文旨在从油藏地球化学的角度来研究临南地区油气的运移方向与成藏规律,从而促进本区的石油勘探与开发进程。

1 地质及地球化学背景

临南地区位于渤海湾盆地济阳拗陷西部,其地台基底为太古界变质岩,缺失元古界。地台盖层自下而上依次为寒武系、早中奥陶统、中上石炭统、二叠系、中下侏罗统、下第三系、上第三系和第四系。其中下第三系沙三段是主要烃源岩,目前临南洼陷周围发现的工业油气均来自洼陷深处的沙三段。

临南洼陷沙三段为深湖—半深湖相沉积,沉积环境为弱氧化—氧化条件。其干酪根类型南部以I~II₁为主,北部以II型为主。多数样品中检测到含量不等的奥利烷,说明有机质生源中有高等生物体的输入。而且随着沙三段沉积相带的变化,水生生物和高等植物的贡献比例不同,南部水体中甲藻较为繁盛。

沙三段有机碳含量变化范围为0.29%~2.62%,氯仿沥青“A”为0.05%~0.41%,总烃浓度为0.027%~0.209%,热解生油潜量($S_1 + S_2$)为0.08~10.60 mg/g,可见其生烃条件比较优越。临南洼陷沙三段成熟烃源岩 R_o 值为0.51%~0.64%, T_s/T_m 为0.10~2.00,

甾烷 $C_{29}S/(S+R)$ 和 $C_{29}\beta\beta/(aa+\beta\beta)$ 分别在0.49~0.55和0.44~0.52之间。生、排烃门限深度分别为3000 m和3500 m。

曲堤油田(图1、2中以“曲”字号井为代表井)原油和油砂抽提物受到不同程度的生物降解,且遭受生物降解的程度随埋藏深度增加而变轻。所有受到生物降

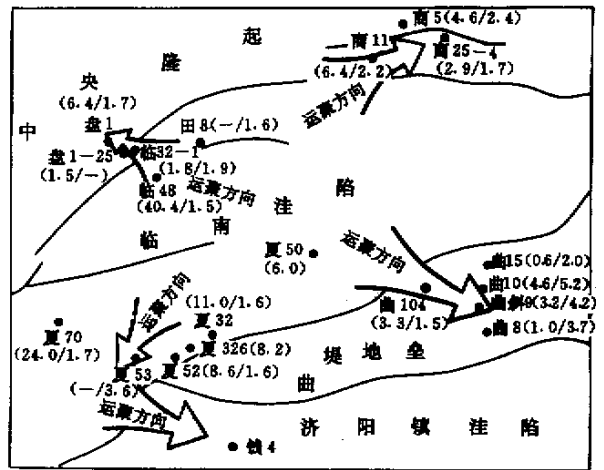


图1 临南地区油砂中咔唑含量与1-4-甲基咔唑比值分布(图中括号内“分子”表示咔唑含量($\mu\text{g/g}$);“分母”表示1-4-甲基咔唑比值;“-”表示无分析数据)

Fig. 1 Distribution of carbazole content and 1-4-methyl carbazole of oil sand in Linnan Area (In Fig. 1, datas over “/” means carbazole content (unit $\mu\text{g/g}$), datas below “/” means the ratio of 1-methyl carbazole to 4-methyl carbazole, “-” means no data)

解的原油或油砂抽提物中正构烷烃仍部分保存,但 Pr/nC_{17} 、 Ph/nC_{18} 明显增加,属于轻度的生物降解,相当于 K. E. Peter 等分类中的轻度 I 级^[3],因此仍可用其生物标志化合物的分布特征来研究原油的成因和运移。

水洗作用对原油成分也有影响。水洗的结果是原油中苯和甲苯等低分子量的芳烃化合物优先除去。在

水洗程度严重的情况下,原油中汽油馏分明显降低,芳烃的碳同位素也有明显的变化。本次研究选用环己烷/苯、3-甲基戊烷/苯、甲基环己烷/苯、1,1-二甲基环戊烷/甲苯来考察原油的水洗现象。从表 1 可见曲斜 9 井 ($Ng_3 + Es_4$) 和曲 10 井 (Es_4)、曲 10-斜 6 井 (Es_4) 均受到一定程度的水洗,但很轻微,且随深度增加水洗的影响程度减弱(如曲 104-斜 1 和曲 104-斜 4 井受水洗

表 1 研究区内原油中芳烃含量的变化

Table 1 Variation of aromatics content in oil from studying area

井号	井深/m	层位	3-甲基戊烷/苯	环己烷/苯	1,1-二甲基戊烷/甲苯	甲基环己烷/甲苯
曲斜 9	1 265.0~1 654.0	$Ng_3 + Es_4$	24.70	62.17	0.78	23.45
曲 10-斜 6	1 636.0~1 540.0	Es_3	13.85	24.90	0.48	5.73
曲 10	1 851.4~1 854.8	Es_4	12.95	25.10	0.27	7.65
曲 104-斜 1	2 200.0~2 206.0	Es_4	3.14	5.90	0.76	5.38
曲 104-斜 4	2 439.0~2 500.0	Es_4	2.15	5.62	0.14	3.06
夏 52-213	3 075.0~3 078.4	Es_3	4.10	9.50	0.17	4.40
夏 70-斜 3	3 578.2~3 615.0	Es_3	5.10	10.2	0.21	3.80
钱 402	1 644.8~1 648.0	$Es_4^{\text{上}}$	—	—	7.90	199
钱 5	2 008.0~2 011.0	$Es_4^{\text{上}}$	—	—	8.50	219

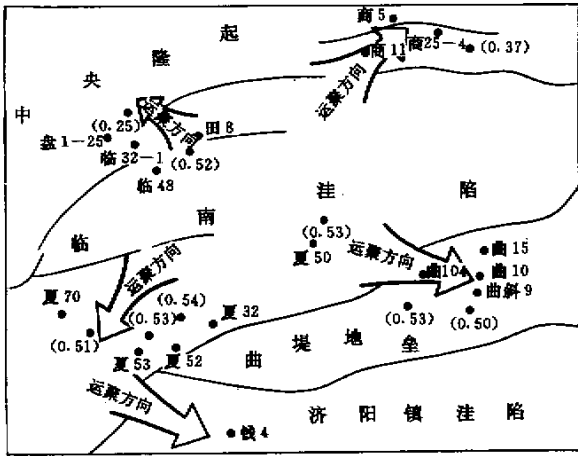


图 2 临南地区油砂中 C_{29} 甾烷 $S/(S+R)$ 变化图

Fig. 2 Diagram of C_{29} sterane $S/(S+R)$ of oil sand in Linnan Area

影响明显减弱)。

从原油次生变化平面分布来看,曲堤地垒上的原油遭受了轻微的生物降解和水洗作用,并且仅仅影响到埋深 1 850 m 以上的原油;临南油田(图 1、2 中以“夏”字号井为代表井)的原油既未受到生物降解,也未受到水洗作用,而钱官屯构造(图 1、2 中以钱 4 井为代表井)上的原油由于运移距离较长和水洗作用使芳烃

损失严重,但并未受到生物降解;而临盘油田(图 1、2 中以“临”字号井为代表井)仅浅层馆陶组原油受到轻度生物降解。

2 原油二次运移方向

2.1 含氮化合物指示的原油二次运移方向

含氮化合物是原油及烃源岩中的一种非烃组分,其含量一般占原油的 0.1%~2.0%,而且一般随原油运移距离的增加其在原油中的含量减少^[4]。在原油和烃源岩样品中检测到的中性氮化合物主要是咪唑、苯并咪唑和二苯并咪唑三个系列,每个系列又有多种烷基取代异构体^[5]。对咪唑系列而言,在原油二次运移过程中,不同结构的烷基咪唑化合物表现出不同的化学极性。裸露型异构体易于被矿物吸附,随运移距离的增加急剧减少。而屏蔽型咪唑化合物随运移减少的速度较慢。因而可以用这两类化合物的比值来确定原油的运移方向和距离^[4]。有关的指标有 1-/4-甲基咪唑等。苯并咪唑系列中也有相应的不同结构化合物比值可作运移指标^[4,6]。

原油中咪唑类化合物的分离分析方法^[7]。首先将原油脱去沥青质,然后将脱沥青质组分在中性氧化铝层析柱中分别以石油醚、甲苯和氯仿/乙醇混合液冲洗,依次得到饱和烃、芳香烃和含氮馏分。将含氮馏分

用装有硅酸的层析柱分离,分别以正己烷/甲苯、甲苯、甲苯/无水乙醇冲洗,依次得到非碱性含氮化合物(吡啶类和胺类)和碱性含氮化合物。吡啶类化合物再进行色谱—质谱—质谱分析。色谱条件:日本岛津 GC-14A 气相色谱仪,装有氮磷选择性检测器(GC-NPD)和 DB-5 弹性石英毛细柱(30 m×0.32 mm×0.25 μm),载气为氦气。升温条件:初始温度 40℃,以 20℃/min 升至 150℃,然后以 40℃/min 升至 310℃,恒温 20min。色谱—质谱—质谱分析:使用连接 HP5 色谱的 Finnigan TSQ-45 型仪器,色谱使用 HP5 弹性石英毛细柱(25 m×0.32 mm×0.52 μm),载气为氦气,初始温度 40℃,以 10℃/min 升至 200℃,然后以 3℃/min 至 310℃,恒温 27 min。质谱条件为:电子轰击离子源 70 eV,数据采集和处理在 INCOS 数据处理系统上进行。吡啶类化合物定性根据保留时间、质谱图和文献资料^[7]。

本区原油含氮化合物的绝对含量和有关化合物的比值相差很大,表明这些原油有不同的运移途径和距离。从图 1 可见,临南洼陷周围油砂抽提物中吡啶的绝对含量围绕洼陷呈环状分布,位于洼陷边缘的夏 70、临 48、田 8 等井原油中吡啶含量最高,均在 2.0 μg/g 以上,表明它们离油源区最近,运移距离最短。洼陷南北两侧各构造带上的其它原油随着离洼陷中心距离的增加,其吡啶含量递减。北部中央隆起构造带上临盘油田和商河油田临商断层以北各井原油吡啶含量明显低于断层南侧原油,说明原油通过临商断层经过了较长距离的运移。临南洼陷南侧构造带上的原油吡啶含量也有明显的规律性,位于夏口断裂斜坡带西部的临南油田原油(油砂)吡啶含量(平均 1.1 μg/g)与曲堤油田(平均 0.2 μg/g)相比明显偏高,说明两油田原油运移距离不同。

不同结构类型的烷基吡啶比值也同样指示上述原油的运移情况(图 1)。邻近临南洼陷的原油 1-/4-甲基吡啶比值较低,如临 48、田 8 和夏 70 等井的原油该比值为 1.5 左右,表明原油运移距离较短。临商断层北侧原油该比值高于南侧原油,一般在 2.0 左右,表明北侧原油运移距离较长。临南油田原油该比值平均为 2.23,低于曲堤油田原油(油砂)平均值 4.06,说明临南油田的原油运移距离比曲堤油田要近。其它含氮化合物的有关运移参数也表明同样的原油运移趋势。

利用含氮化合物的运移指标还可以确定局部地区原油运移的具体方向。例如在临南油田,原油的 1-/4-甲基吡啶比值从夏 32 井的 1.57(4 个样品平均值),到夏 52 井的 1.62(6 个样品平均),再到夏 53 井的 3.60,呈现出逐渐增加的趋势,表明本油田原油来自北东方向(图 1)。又如曲堤油田,根据原油中吡啶含量可以

判断出其石油充注的方向。从夏 52 井原油的吡啶含量 0.60 μg/g 到曲 104 井的 0.30 μg/g(3 个样平均),再到曲 15 井至曲 8 井一线的 0.20 μg/g,呈依次递减的趋势,原油从西北方向充注成藏形成了曲堤油田。

2.2 原油生物标志物反映原油充注过程及方向

烃源岩在地质历史上可以发生多次生排烃过程。一般早期生成的石油运移至离油源区较远的圈闭中聚集成藏,而后期生成的成熟度更高的原油往往聚集在较近的圈闭中。在同一圈闭中,早期的原油常常占据全部上部储层,而晚期生成的石油占据下部储层。不同成熟度的原油混合速度很慢,这种原生的差异性一般可以保留至今^[4,8,9]。因而对于同源石油可以利用原油成熟度的平面变化来确定油源方向^[10]。

获取流体包裹体中烃类的方法参见潘长春等人的研究成果^[11]。第一步,将砂岩储集岩岩芯粉碎成小块(粒径 1~2 cm),用二氯甲烷浸泡 48 小时。第二步,将样品碎至单个砂粒,筛选粒径 0.25~0.1 mm 的砂粒(主要为石英和长石类矿物)100 g,用二氯甲烷—甲醇抽提,初步除去颗粒表面有机组分。第三步,用盐酸处理样品并清洗、干燥后,再用二氯甲烷—甲醇抽提。第四步,用浓硫酸重铬酸钾溶液处理 12 小时并洗净。第五步,将样品尽可能磨细,用二氯甲烷—甲醇抽提,得到颗粒中油气包裹体有机组分。

包裹体中的有机组分经过脱沥青和硅胶—氧化铝

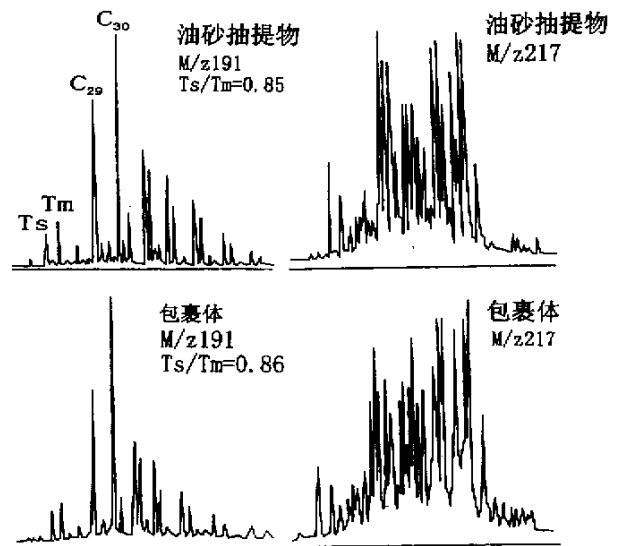


图 3 临南油田油砂抽提物与包裹体烃类色质对比图

Fig.3 Comparison diagram of hydrocarbon GC-MS analysis of oil sand extracts and hydrocarbons in inclusion in Linnan Oilfield

柱层析分离,得到饱和烃、芳烃和非烃。饱和烃进行气

相色谱和色谱—质谱分析。色谱分析用 Varian 3700 色谱仪,配置 25 m DB-1 色谱柱,载气为氮气。柱温条件:初始温度 90℃,持续 2 min,以 4℃/min 升温至 290℃,持续 30 min。色质分析用 Finnigan TSQ70B,色谱 Varian 3 400 配置 30 m×0.25 mm HP-5 色谱柱,柱温条件:初始温度 70℃,持续 5min,以 3℃/min 升温至 220℃,再以 2℃/min 升至 290℃,持续 30 min。

临南洼陷北部临盘油田、商河油田的原油属同源原油,这些原油的 $C_{29}S/(S+R)$ 有较大的变化(图 2),盘 1-25 和商 25-4 井原油该比值最低,仅为 0.25 和 0.37,属早期(渐新世末)生成的烃类,是两油田距洼陷油源区最远的井。两油田其它井原油的比值随与油源区距离的减小而增高,在邻近洼陷的田 8 井原油中达 0.52,表明其成熟度高,运移距离短。

临南油田和曲堤油田有不同的油源,它们有各自的成熟度变化规律。临南油田夏 52 井原油 $C_{29}S/(S+R)$ 平均 0.51(6 个样品),夏 70 井亦为 0.51(3 个样品),夏 53 井为 0.50,夏 326 井为 0.53,夏 32 井达到 0.54。油藏内部成熟度参数指示的石油从东北方向充注与含氮化合物指示的方向一致。

曲堤油田原油的 $C_{29}S/(S+R)$ 也呈现规律性的变化。邻近油源区的夏 50 井 $C_{29}S/(S+R)$ 为 0.53,到

曲 104 井仍为 0.53,再向东南方向曲 15 至曲 18 一线,该值变为 0.50,说明运移方向是从西北向东南。

3 临南、曲堤油田成藏史分析

通过测定油层砂岩石英次生加大边和岩石裂隙充填物中包裹体的有机成分、包体均一温度,可以了解包体的形成期次及相应的埋深,从而对油藏的成藏演化史进行分析^[11-13]。

临南油田夏 52 井 3 071 m 沙三段油砂包裹体烃类和其抽提物的色质分析表明,两者具有相同的地化特征,如其萘烷分布相同,均以藿烷系列占优势(图 3),三环萘含量很低, T_s/T_m 相近,两者分别为 0.85 和 0.86 μ -甲基甾烷均很丰富,与规则甾烷相当。可见临南油田成藏史较为单一,油源只有一个,即临南洼陷南部沙三段成熟烃源岩。

曲 9-71 井 1 218.0~1 225.4 m 井段馆陶组所含原油受到较严重的生物降解(图 4),饱和烃中正构烷烃被消耗殆尽,仅类异戊二烯型烷烃仍然保存,其特点是 4-甲基甾烷含量较高,与规则甾烷相当,甾烷 $C_{29}S/(S+R)$ 和 $C_{29}\beta\beta/(\alpha\alpha+\beta\beta)$ 分别为 0.52 和 0.44,成熟度较高。但该井段油砂包裹体中的烃类 $C_{13}\sim C_{36}$ 范

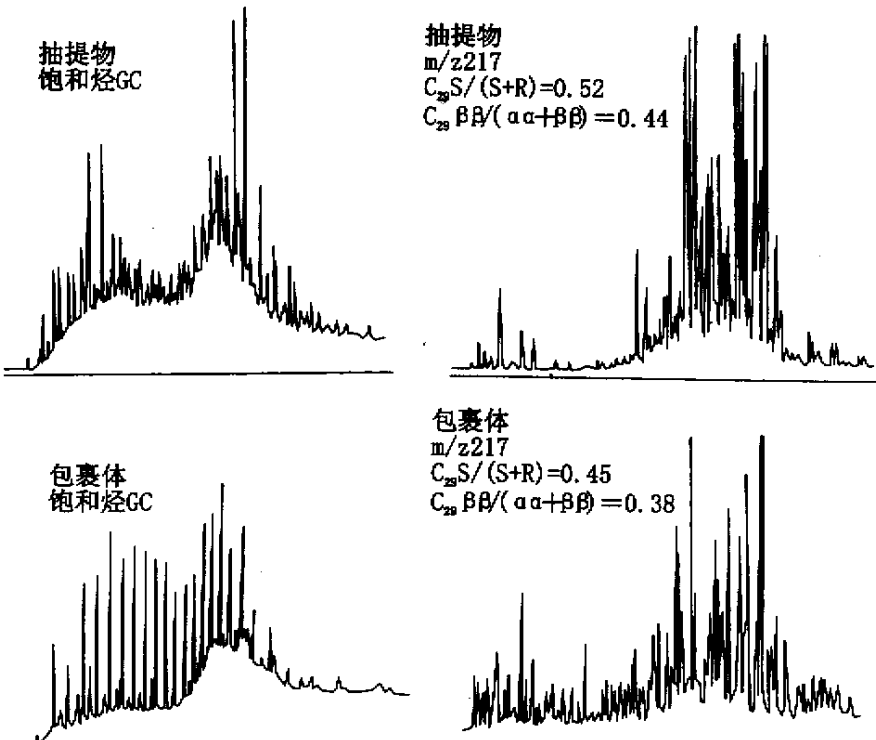


图 4 曲堤油田曲 9-71 井油砂抽提物和包裹体色谱、色质对比图

Fig. 4 Comparison diagram of hydrocarbon GC and GC-MS analysis of oil sand extracts and inclusion in Well Qu9-11, Qudi Oilfield

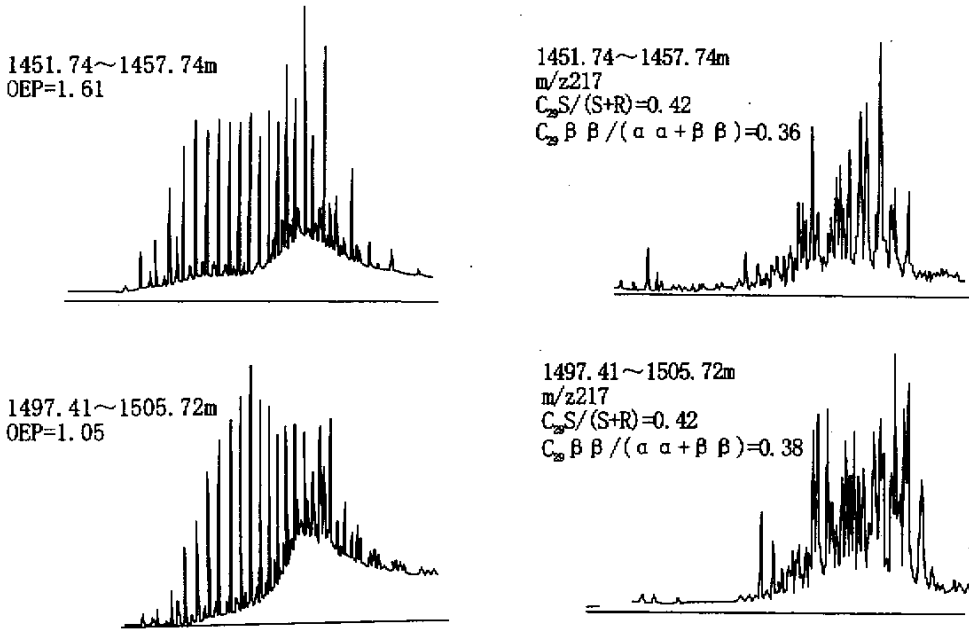


图5 曲堤油田曲10井沙三段两种不同期次包裹体成分对比

Fig.5 Comparison diagram of hydrocarbon of two kinds of inclusions in Well Qu10, Qudi Oilfield

围内正构烷烃分布完整,其生物标志物组成和分布也与原油完全不同,如其4-甲基甾烷含量很低,不及规则甾烷的1/3,甾烷 $C_{29}S/(S+R)$ 和 $C_{29}\beta\beta/(\alpha\alpha+\beta\beta)$ 分别为0.45和0.38,正构烷烃OEP为1.20,成熟度较低。因此该储层段曾有两期油气充注过程,第一期石油中4-甲基甾烷含量较少、成熟度较低,进入储层后形成包裹体,并免受生物降解作用。之后第二期石油注入储层,并受到生物降解。

曲10井沙三段油层剖面上两个包裹体也反映了两期油气充注过程(图5)。本井上部储层1451.74~1457.74m储层抽提物很少,但包裹体烃类较多,其4-甲基甾烷较少,正构烷烃主峰碳为 C_{29} ,OEP为1.61,甾烷 $C_{29}S/(S+R)$ 和 $C_{29}\beta\beta/(\alpha\alpha+\beta\beta)$ 分别为0.42和0.36,与曲9-71包裹体相似,为同期形成的包裹体。而本井下部储层1497.41~1505.72m另一包裹体的4-甲基甾烷却很丰富,与规则甾烷相当,正构烷烃主峰碳数为 C_{23} ,OEP仅1.05,甾烷 $C_{29}S/(S+R)$ 和 $C_{29}\beta\beta/(\alpha\alpha+\beta\beta)$ 分别为0.42和0.38,与储层原油相似。说明存在两期石油充注过程,而且第一期油气充注成藏以后散失,因为如果第一期油气保存下来,则第二期充注的油气只能对第一期石油进行稀释,不会使储层流体有很大的变化,难以形成第二期包裹体。也有可能第一期石油较少仅充满圈闭上部储层,而第二期石油储集在储层下部。

从上述可知,曲堤油田原油成因类型比较复杂。

早期(渐新世末)生成的原油成熟度较低,4-甲基甾烷含量较低,一般聚集与储层的高部位。具有这种地化特征的原油在曲堤地垒中、西段均有发现,表明其分布较广,运移有一定规模,在曲古1、夏80、曲斜17、曲6及曲7井砂岩抽提物中均见有与上述原油相同的地化特征。从夏23井油砂、曲9-斜53井原油等烃类分析也证实这一现象。晚期原油形成与中新世末期,生成成熟度较高的、4-甲基甾烷含量较丰富的原油,储集于圈闭储层的较低部位,从而形成两期油气聚集。

北部临盘油田也存在两期石油运移,临商断层以北原油属早期生成的成熟度较低的原油,而靠近临南洼陷油源区的原油属晚期成熟原油。商河油田主要以早期成熟度较低的原油为主。限于篇幅两油田的成藏期次研究不再赘述。

4 结论

原油中含氮化合物含量及其组成变化可以反映石油二次运移方向,而储层包裹体烃类成分分析可以提供有关成藏史的信息。临南油田原油从东北向西南方向运移,运移距离较短,属晚期成熟度较高的原油,4-甲基含量较高。曲堤油田有两期油气运移聚集过程,早期原油从西北向东南方向运移,成熟度较低,4-甲基甾烷含量很低,运移距离较远,且大部分散失,晚期原油也是从西北向东南运移,运移距离较近。北部临盘油田也有两期石油运聚过程,而商河油田是一期充注

成藏。

参 考 文 献

- 1 胡见义, 黄第藩, 徐树宝等. 中国陆相石油地质理论基础[M]. 北京: 石油工业出版社, 1991. 210 ~ 221
- 2 李明诚. 石油与天然气运移[M]. 北京: 石油工业出版社, 1994. 110 ~ 113
- 3 Peters K E, Moldowan J M. Effects of source, thermal maturity, and biodegradation on the distribution and isomerization of homohopanes in petroleum[J]. *Organic Geochemistry*, 1991, 17(1): 47 ~ 61
- 4 Larter S R, Aplin A C, 王铁冠译. 油藏地球化学: 方法、应用于机遇[M]. 北京: 石油工业出版社, 1994. 4 ~ 20 ~ 25
- 5 李素梅, 张爱云, 王铁冠等. 含氮化合物的实验方法初步评价[J]. 地球化学, 1999, 28(4): 397 ~ 404
- 6 黄光辉, 王培荣, 杨坚强等. 应用芳烃、中性氮馏分研究油藏原油注入史[J]. 江汉石油学院院报, 1998, 20(3): 18 ~ 23
- 7 Li M, Larter S R, Stoddart D, *et al.* Fractionation of pyrrolic nitrogen compounds in petroleum during migration: derivation of migration-related geochemical parameters[A]. In: Cubitt J M, England W A, eds. *The Geochemistry of reservoirs*[M]. 1995. 86: 103 ~ 123
- 8 王铁冠, 张枝焕. 油藏地球化学描述的基本原理与方法[J]. 勘探家, 1997, 2(4): 9 ~ 14
- 9 张枝焕, 王铁冠. 油藏分隔性的地球化学研究[J]. 地质地球化学, 1998, 26(2): 53 ~ 61
- 10 陈建渝, 刘从印, 张树林等. 原油中生物标志物的组成是成藏史的反映[J]. 地球科学——中国地质大学学报, 1997, 22(6): 97 ~ 102
- 11 潘长春, 杨坚强. 油气藏微观不均一性及其意义[J]. 沉积学报, 1998, 16(4): 98 ~ 103
- 12 George S C, Kreger F W, Eadlington P J, *et al.* Geocada, comparison of oil-bearing fluid inclusions and produced oil from Toro sandstone, Papua New Guinea[J]. *Org. Geochem.*, 1997, 26: 155 ~ 173
- 13 郑有业, 王思源, 李小菊等. 有机包裹体研究在石油地质领域中的应用现状[J]. 地质地球化学, 1998, 26(2): 72 ~ 75

Analysis of Oil Migration Direction and Accumulation Time in Linnan Area

CHEN Qing-chun¹ LIN Yu-xiang² TANG Hong-san³

(Nanjing University, Nanjing 210093) 2 (Beijing University, Beijing 100871)

3 (Shengli Oilfield, Dongying Shandong 257015)

Abstract

Linnan Area located in western Jiyang Depression, Bohai Gulf Basin. Formations revealed by drilling includes Cambrian, Ordovician, Carboniferous, Permian, Jurassic, Tertiary and Quaternary. The third member (E_3) of Shahe Jie Formation of Tertiary is the most important source rock of Linnan Sag and contributes to all oilfields around Linnan Sag. The E_3 has a sedimentary environment of deep to semi-deep lake facies, Kerogen type I to II₁ in south and II in north Linnan Sag and a high content of organic matter, so it possesses a great potential of hydrocarbon generation.

The second migration direction and distance of oil are forecasted according to nitrogen-containing compounds and maturation indicators of biomarker in oil sand extracts. The oil in Linnan Sag migrated toward four main directions, i. e. Linpan, Shanghe, Quti and Linnan Oilfield. The carbazole content and C_{29} sterane $S/(S+R)$ decrease and the 1-/4-methyl carbazole increase with the distance increasing from the center of Linnan Sag to all oilfields around it.

The analysis of hydrocarbon composition inside inclusions shows that only one process of migration and accumulation of oil took place in Linnan Oilfield and that this kind of oil belongs to mature oil formed during late Miocene Epoch and have a high 4-methyl sterane content. Two kinds of oil exist in Quti Oilfield, the first, formed during late Oligocene Epoch, has a low 4-methyl sterane content and a low maturation level, and migrated to far traps and then escaped. The second is mature oil with a high 4-methyl sterane and have kept accumulation state at present.

In north area, the oil accumulation process of Linpan Oilfield has the same substance with Quti Oilfield, and Shanghe Oilfield is similar to Linnan Oilfield.

Key words Linnan Area, direction of migration, nitrogen-containing compound, hydrocarbons in inclusion, accumulation time