

文章编号: 1000-0550 (2005) 03-0537-05

利用生烃动力学和碳同位素生烃动力学 探索油气田气体来源

米敬奎^{1,2} 刘新华¹ 杨孟达¹ 杨荣丰¹

1 (湖南科技大学土木工程学院 湖南湘潭 411201) 2 (中国石油勘探开发研究院实验研究中心 北京 100083)

摘要 利用气体碳同位素探索油气来源的传统方法由于受源岩类型、源岩成熟度等因素的影响,其实际应用受到很大的限制。生烃动力学和碳同位素动力学结合在这方面具有非常明显的优越性。本文利用热模拟实验,通过生烃动力学和碳同位素动力学计算,表明鄂尔多斯盆地上古生界苏里格气田气体的主要是他源阶段累积气,来源于气田南部高成熟区域、西部的天环坳陷气体的贡献比例分别为 49%、22%,气田区域的源岩累积气体占 29%。

关键词 生烃动力学 同位素动力学 苏里格气田 上古生界 气源

第一作者简介 米敬奎 男 1966 年出生 博士 副教授 有机地球化学

中图分类号 P593 **文献标识码** A

源岩的类型不同,所产生的气体的碳同位素不同,这也是传统方法利用气体同位素研究油气来源的基本原理^[1]。气体的碳同位素同时又受到源岩成熟度的影响,不同类型的源岩,如果其成熟度不同,也可以产生同位素相同的气体^[2]。这也是利用传统同位素方法研究气体源岩的缺陷所在。同时,由于气体在运移和聚集过程中各种地质条件的差异,气体同位素发生分馏效应,这也使利用传统同位素方法探索油气源的研究方面遇到了许多困难。近年来,油气地球化学方面最大的进展是源岩生烃动力学与同位素动力学的发展与应用^[3~11]。生烃动力学是根据化学反应动力学原理,在实验室内采用快速升温的热模拟方法,再现源岩在不同地质条件的生烃过程。碳同位素动力学研究就是在生烃动力学研究的基础上模拟天然气形成过程中同位素的分馏规律。生烃动力学与碳同位素动力学方法将天然气生成、运移和聚集与盆地的埋藏史、受热史有效地结合起来,动态地评价天然气的生成与成藏,为天然气成因研究和油气资源评价提供了新的思路与方法。

本研究拟利用热模拟实验,通过生烃动力学和碳同位素动力学计算,并结合盆地的热史,对鄂尔多斯盆地苏里格气田的气体来源进行探讨,同时对气体的聚集过程进行论述。

1 原理与方法

1.1 原理

热模拟实验是根据温度可以弥补时间的原理,利用实验室快速的高温生烃过程来模拟地质条件下源岩缓慢的生烃过程。

碳同位素动力学计算依据 Tang 等 (2000) 提出的碳同位素动力学理论和模型,把重碳甲烷 ($^{13}\text{CH}_4$) 和正常甲烷 ($^{12}\text{CH}_4$) 视为两个不同的产物,分别计算各自的反应速率和产率。 $^{13}\text{CH}_4$ 和 $^{12}\text{CH}_4$ 的反应速率和产率的差异体现在活化能的不同上。活化能采用 Weibull 分布,用连续的 S 形函数描述 $^{13}\text{CH}_4$ 和 $^{12}\text{CH}_4$ 的活化能差。

1.2 方法

利用生烃动力学和碳同位素动力学探讨油气的来源包括以下几个重要步骤:

1.2.1 热模拟实验

本研究利用的是利用国际上最流行金管—高压釜封闭体系。实验条件:压力 50MP,采用 2 /小时和 20 /小时两种升温速率。

气体成分和含量采用内标法,通过 HP8890 气相色谱仪进行测定;用 delta plus 色谱—质谱同位素仪测定气体同位素;用 MPV3 测定残渣的反射率。

本次研究所采用的样品是盆地中广泛发育、稳定

性好的山西组 8#煤,样品采自山西省宝德县成家庄煤矿。其煤岩组成为:镜质体 61%,其中基质镜质体约 40%,均质镜质体 15%;惰质组(主要为半丝质体)含量为 32%;稳定组 7%,以小孢子和树脂体为主。元素组成:N, 0.280% (0.291% ~ 0.268%); C, 66.845% (67.081% ~ 66.61%); H, 4.835% (4.78% ~ 4.89%); H/C, 0.868 (0.855 ~ 0.881)。样品的成熟度 $VR_o = 0.60\%$ 。

1.2.2 生烃动力学计算和同位素动力学计算

干酪根热解实验数据处理及生烃动力学参数的计算采用美国加州大学劳伦斯·利物莫尔国家实验室 Robert L. Brawn 和 Alan K. Burnham 共同研制开发的 Kinetics(2.41)动力学软件。通过 Kinetics 软件的模拟计算,可以获得活化能分布和频率因子。利用所获得的生烃动力学参数,结合研究区的埋藏史、古地温和热演化史,并可恢复不同地质时期烃源岩的生烃史。

同位素动力学计算采用美国加州理工学院能源与环境研究中心开发的碳同位素动力学专用软件 COR-Isotope kinetics (2002 年第一版程序)。

碳同位素动力学模拟计算所涉及的主要公式如下:

$$^{13}C_i = ^{13}C_{int} \times F^{(-1)}$$

其中,

$$\begin{aligned} &= \frac{k^*}{K} = \exp\left(-\frac{S^+}{R}\right) \exp\left(-\frac{S^+}{RT}\right) \\ &= \frac{A_f^*}{A_f} \exp\left(-\frac{Ea}{RT}\right) \end{aligned}$$

式中:—同位素分馏因子; F —甲烷转化率;

A_f^*/A_f —频率因子比,为 $e^{S^+/R}$; Ea —焓差,为 H^+ 。

$$\text{由 } 1 - x = \int_0^t \exp\left[-\int_0^t k dt\right] \times D_{(E)} dE$$

$$D_{(E)} = \left(\frac{A_f^*}{A_f}\right) \times \left[\frac{(E - r)}{R}\right]^{(-1)} \times \exp\left\{-\left[\frac{(E - r)}{R}\right]\right\}$$

求出 Ea 的分布。根据正态分布,构造 Ea 的 S 形函数:

$$\begin{aligned} Ea &= L + (H - L) \times f_{(E)} \\ f_{(E)} &= \frac{1}{\sqrt{2}} \times e^{-(E-L)^2/2} dE \end{aligned}$$

其中, H 和 L 分别为 Ea 的估算最大值和最小值。碳同位素动力学模拟计算关键在于求取 Ea 。

1.2.3 对古地温模式进行计算

热模拟实验是在实验室内利用快速的升温来模拟地质条件下低温慢速的源岩生烃过程,其实验结果必须外推,才能应用于地质条件^[3]。

要进行生烃史和同位素动力学计算,首先要确定盆地的热史。根据任战利等^[12,13]对鄂尔多斯盆地热史的研究,该盆地除在 $K_1 - J_2$ 发生过区域热异常外,该时期的古地温梯度为 $4^\circ/100\text{m}$,其它地质时期古地温梯均为 $3^\circ/100\text{m}$ 。早白垩世末期盆地整体抬升,地温下降,地层剥蚀厚度达 $1000 \sim 1600\text{m}$ 。对于盆地的不同区域来说,其最高古地温虽然有所差别,但达到最高古地温的时间应基本相同。鄂尔多斯盆地晚古生代地层古地温模式可简化为图 1。那么,进行生烃史计算的关键问题是最高古地温的确定。本研究采用了两种方法计算地层最高古地温: VR_o 动力学模型及 EasyRo 方法。(具体方法见文献 14)。

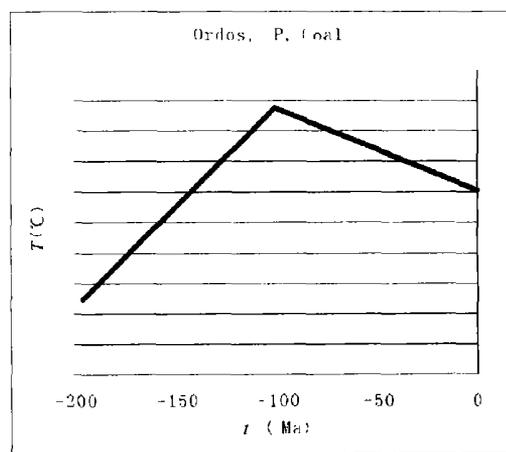


图 1 鄂尔多斯盆地的古地简化温模式

Fig 1 The simple paleo-thermal pattern of Ordos basin

2 应用实例

2.1 地质背景

苏里格气田在区域构造上属于伊陕斜坡北部中段。含气面积 5715.9km^2 ,天然探明储量 $5378 \times 10^8\text{m}^3$ 。其源岩为石炭—二叠系煤系,主力储层有两层:盒 8,含气面积 3500km^2 ;山 1,含气面积 2430km^2 。

苏里格气田 CH_4 含量相对较低, C_2+ 含量较高,干燥系数 $0.92 \sim 0.97$ 。天然气 $^{13}\text{C}_1$ 介于 $-29.96\text{‰} \sim -36.45\text{‰}$,平均 $^{13}\text{C}_1 = -32.68\text{‰}$ (表 1),碳同位素大部分呈现 $^{13}\text{C}_1 < ^{13}\text{C}_2 > ^{13}\text{C}_3$ 的特征,根据所作

气源分析,天然气来源于 C—P 含煤岩系,属煤型气。

表 1 鄂尔多斯晚古生代储层天然气碳同位素特征

Table 1 The carbon isotope character of natural gas from Upper Paleozoic stratum in Ordos basin

| 气田 | 孔号 | 时代 | 同位素值 $^{13}\text{C}/\text{‰}$ | | | | |
|-------|---------|----------------------|-------------------------------|--------------|--------------|---------------|---------------|
| | | | C_1 | C_2 | C_3 | $i\text{C}_4$ | $n\text{C}_4$ |
| 苏里格气田 | 桃 6 | P_2s | -29.96 | -23.78 | -25.41 | -22.96 | -24.49 |
| | 桃 5 | P_1s | -36.46 | -23.14 | -24.28 | -21.97 | -22.46 |
| | 桃 5 | P_2s | -33.05 | -23.57 | -23.72 | -21.62 | -22.46 |
| | 苏 6 | P_1s | -33.85 | -23.73 | -24.17 | -22.81 | -23.41 |
| | 苏 6 | P_2s | -33.54 | -24.02 | -24.72 | -22.78 | -23.23 |
| | 苏 14 | P_2s | -32.54 | -24.11 | | | |
| | 苏 25 | P_2s | -32.14 | -21.88 | | | |
| | 苏 33-18 | P_2s | -31.74 | -23.06 | -23.44 | -22.03 | -23.45 |
| | 苏 40-16 | P_2s | -30.18 | -27.17 | -25.51 | -21.58 | -22.02 |

2.2 结果与讨论

图 2 是计算出的推导出正常甲烷 ($^{12}\text{CH}_4$)、重碳甲烷 ($^{13}\text{CH}_4$) 的活化能分布和频率因子,获得了相应的甲烷碳同位素动力学计算参数 (表 2)。图 3 - 5 是利用上述方法建立的苏里格庙地区及其附近代表钻孔天然气甲烷碳同位素演化的动力学模型。

表 2 本研究样品甲烷生成碳同位素动力学参数

Table 2 The kinetics indexes of methane carbon isotope

| 组分 | $L/$ (cal/mol) | $H/$ (cal/mol) | $E_0/$ (cal/mol) | $i/$ (cal/mol) | $n/$ (cal/mol) |
|--------------|-------------------|-------------------|---------------------|-------------------|-------------------|
| C_1 | 1.020 | 32.88 | 90.20 | 5600.0 | 7.32 |
| | | | | | 0.01096 |

注:表中 L 为同位素分馏因子; i 为焓差的最小值; n 为焓差的最大值; E_0 为平均活化能; H 为均方差,%; H 为活化能门限值。

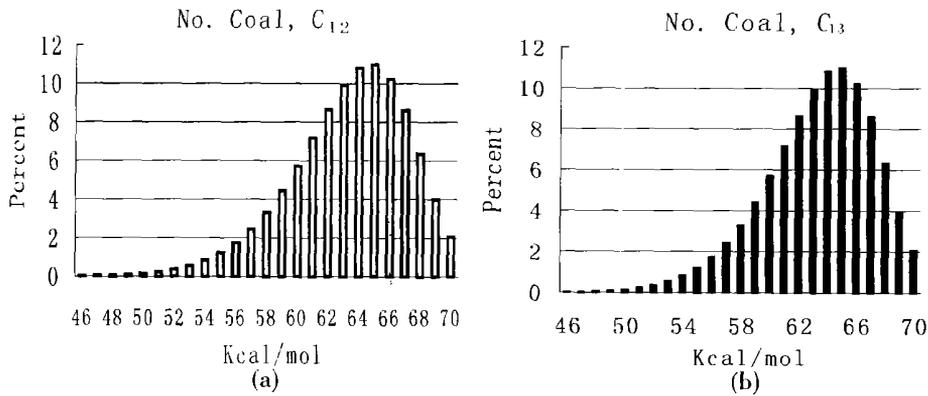


图 2 正常甲烷和重碳甲烷的活化能分布

Fig 2 The activation energy distribution map of natural and heavy methane

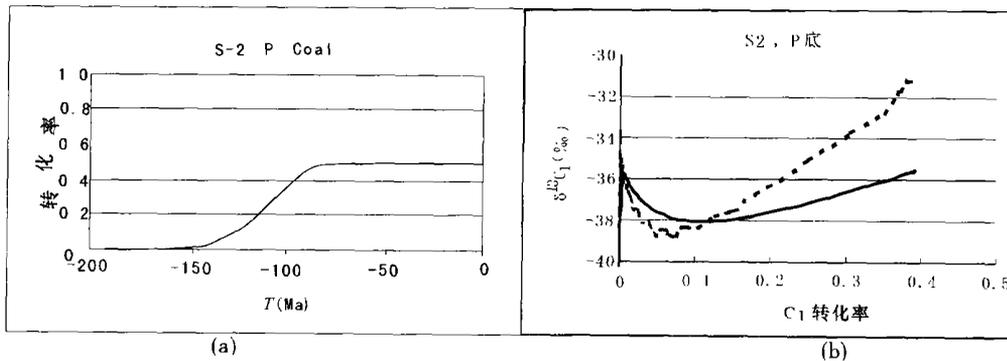


图 3 苏 - 2 井二叠系煤生烃史 (a) 及生成天然气 $^{13}\text{C}_1$ 演变动力学模型 (b)

Fig 3 The hydrocarbon generation history of Permian coal and kinetics evolving mode in S-2 well

耿安松,熊永强,冯乔,等. 鄂尔多斯盆地和四川盆地川东复杂低渗气田勘探技术研究“十五”国家重大科技攻关项目成果报告. 2003. 9
魏国齐,陈孟晋. 鄂尔多斯盆地和四川盆地川东复杂低渗气田成藏规律研究与勘探目标评选研究报告. 中国石油勘探开发研究院廊坊分院天然气研究所. 2003. 8

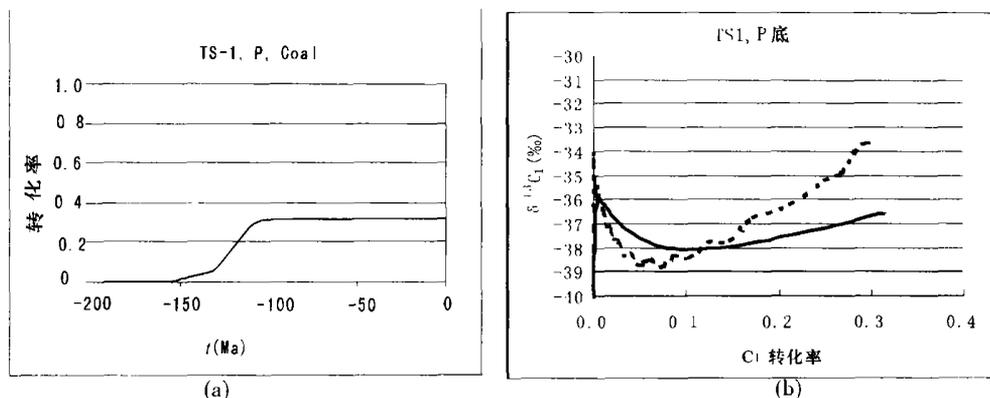


图 4 天深 - 1 井二叠系煤生烃史 (a) 及天然气生成 $^{13}\text{C}_1$ 演变动力学模型 (b)

Fig 4 The hydrocarbon generation history of Permian coal and kinetics evolving mode in TS-1 well

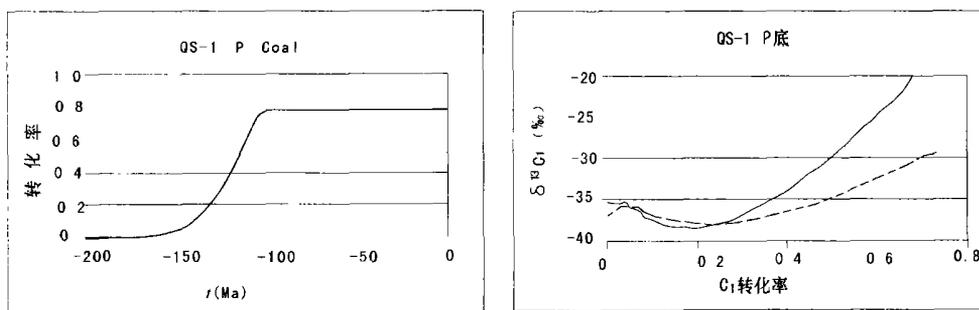


图 5 庆深 1 井二叠系煤天然气生成 $^{13}\text{C}_1$ 演变动力学模型

Fig 5 The hydrocarbon generation history of Permian coal and kinetics evolving mode in QS-1 well

根据鄂尔多斯盆地上古生界的沉积特征以及成藏地质背景分析, 苏里格气田有三个可能的气源区:

- 天环坳陷北部 (天深 1 井);
- 南部生气中心 (定边以南);
- 苏里格气田含煤岩系。

应用生烃史及所建立的碳同位素动力学模型分析结果显示:

南部生气中心: 根据生烃史的计算结果, 参考钻井庆深 - 1 井, 二叠系底煤 R_o 达 2.80%, C_1 转化率达 0.78。根据本研究所建立起的碳同位素动力学模型, 庆深 - 1 井区生成的天然气 $^{13}\text{C}_1$ 介于 $-28.5\text{‰} \sim -20\text{‰}$ 之间。

天深 1 井位于天环坳陷北部, 该井具有一定代表性。根据前述埋藏史及古地温史建立起的碳同位素动力学模型 (图 4), 烃源岩已进入生气高峰期, $VR_o = 1.80\%$ 生成的天然气 $^{13}\text{C}_1$ 应介于 $-36.5\text{‰} \sim -33.5\text{‰}$, 明显轻于苏里格气田天然气碳同位素值。显然不是主力气源岩分布区。

苏里格气田区域以苏 2 井作为代表, 该井位于气田中部, 二叠系煤 $R_o = 2.20\%$, 根据动力学计算 C_1

转化率为 0.52。根据动力学模型 (图 2), 生成的天然气 $^{13}\text{C}_1$ 介于 $-34\text{‰} \sim -27.5\text{‰}$ 之间, 与气藏内天然气碳同位素值相吻合。

分别设三个气源区: 南部、苏里格地区及西部贡献比例为 X 、 Y 、 Z , 三个代表钻孔 QS-1、S-2 及 TS-1 $^{13}\text{C}_1$ 分别为 -28.5‰ (C_1 转化率从 0.1 开始聚集), -34‰ (累积气), -35.6‰ (C_1 转化率从 0.2 开始聚集), 三个气源区天然气成份相似, 则有如下简化方程式:

$$X + Y + Z = 1 \quad (1)$$

$$-28.5X - 34Y - 35.6Z = -32.68 \quad (2)$$

天环坳陷北部面积 18800 km^2 , 聚集 C_1 转化率从 0.20 ~ 0.32 天然气; 苏里格地区面积 5716 km^2 , 聚集 C_1 转化率从 0 ~ 0.52 的天然气。据此计算得:

$$Y = 1.3Z \quad (3)$$

三式联立求解得: $X = 0.49$; $Y = 0.29$; $Z = 0.22$

因此, 苏里格气田天然气主要来源于南部生气中心, 其贡献占 49%, 苏里格地区与天环坳陷东段分别占 29% 与 22%。

鄂尔多斯盆地上古生界 8 号煤热解气碳同位素

分布形式为: $^{13}\text{C}_1 < ^{13}\text{C}_2 < ^{13}\text{C}_3$ 。而苏里格气田天然气碳同位素在大部分区域呈现 $^{13}\text{C}_1 < ^{13}\text{C}_2 > ^{13}\text{C}_3$ 的特征,这应与混源成因有关。

3 结论

(1)利用生烃动力学和同位素动力学结合盆地热史探索油气来源这种方法不但能研究源岩的生烃能力,而且能揭示气体碳同位素的演化特征与源岩成熟度之间的关系。

(2)苏里格气田气体主要是他源阶段累积气,南部高成熟区域、西部的天环坳陷气体的贡献比例分别为 49%、22%,气田区域的源岩累积气体占 29%。

参考文献 (References)

- 1 王启军,陈建渝. 油气地球化学. 武汉:中国地质大学出版社, 1988 [Wang Qijun, Chen Jianyu. Oil and Gas Geochemistry. Wuhan: China University of Geoscience Press, 1988]
- 2 刘金钟. 干酪根生烃动力学研究及地质应用. 见: 有机地球化学研究新进展. 第八届全国有机地球化学会议论文集. 北京:石油工业出版社, 2002. 343~351 [Liu Jinzhong. Study on the hydrocarbon generation dynamics of kerogen and its applications. In: The New Study Advancement of Geochemistry. Beijing: Petroleum Industry Press, 2002. 343~351]
- 3 Bernhard Cramer, Eckhard Faber, Peter Gerling, *et al*. Reaction kinetics of stable carbon isotope in natural gas—insights from dry, open system pyrolysis experiments. *Energy and Fuels* 2001, 15: 517~532
- 4 Francois Lorant, Francois Behar, Mireille Vandenbroucke. Methane generation from methylated aromatics: Kinetic study and carbon isotope modeling. *Energy and Fuels* 2000, 14: 1143~1155
- 5 Mastalerz M, Schimmenann A. Isotopically exchangeable organic hydrogen in coal relates to thermal maturity and maceral composition. *Organic Geochemistry*, 2002, 33: 921~931
- 6 Tang Y, Perry J K, Jenden P D, *et al*. Mathematical modeling of stable carbon isotope ratio in natural gases. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2000, 64 (15): 2673~2687
- 7 Ulrich Bemer, Eckhard Faber and Wolfgang Stahl. Mathematical simulation of the carbon isotopic fraction between huminitic coals and related methane. *Chemical Geology*, 1992, 94: 315~39
- 8 Ulrich Bemer, Eckhard Faber, Georg Scheeder, *et al*. Primary cracking of algal and landplant kerogens: kinetic models of isotope variations in methane, ethane and propane. *Chemical Geology*, 1995, 126: 233~245
- 9 Melodye A R, George E C, Chung H M. 利用天然气的碳同位素比值建立热成因气模型. 天然气地球科学, 2002, 13 (5-6): 19~26 [Melodye A R, George E C, Chung H M. The model constructing of pyrolysis gas using the carbon isotope ratio of natural gas. *Natural Gas Geoscience*, 2002, 13 (5-6): 19~26]
- 10 熊永强,耿安松,王云鹏,等. 干酪根二次生烃动力学模拟实验研究. 中国科学 (D), 2001, 31 (4): 315~320 [Xiong Yongqiang, Geng Ansong, Wang Yunpeng, *et al*. The experimental study on dynamics for secondary hydrocarbon generation. *Science in Chinese (D)*, 2001, 31 (4): 315~320]
- 11 付少英,彭平安,张文正,等. 鄂尔多斯盆地上古生界煤的生烃动力学研究. 中国科学 (D), 2002, 32 (10): 812~818 [Fu Shaoying, Peng Ping'an, Zhang Wenzheng, *et al*. Study on the hydrocarbon generation kinetics of the Upper-Paleozoic coal in Ordos basin. *Science in Chinese (D)*, 2001, 31 (4): 315~320]
- 12 任战利,赵重远. 鄂尔多斯盆地古地温研究. 沉积学报, 1994, 12 (1): 17~24 [Ren Zhanli, Zhao Zhongyuan. Study on the paleo-geothermal of Ordos basin. *Acta Sedimentologica Sinica*, 1994, 12 (1): 17~24]
- 13 任战利. 利用磷灰石裂变径迹研究鄂尔多斯盆地地热史. 地球物理学报, 1995, 38 (3): 339~349 [Ren Zhanli. Study on the geothermal history of Ordos basin using phosphorite fissioning track. *Acta Geophysica Sinica*, 1995, 38 (3): 339~349]
- 14 米敬奎. 鄂尔多斯盆地上古生界油气运聚规律, 博士学位论文. 中国科学院广州地球化学研究所. 2003. 11 [Mi Jingkui. The migration and accumulation characters of the Upper Paleozoic gas reservoir in Ordos Basin [Ph. D.]. Guanzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences 2003. 11]

Discussion on the Source of Oil and Gas Using the Dynamics of Carbon Isotope and Hydrocarbon Generation

MI Jing-kui^{1,2} LU Xin-hua¹ YANG Meng-da¹ YANG Rong-feng¹

1 (School of Civil Engineering, Hunan University of Science & Technology, Xiangtan Hunan 411201)

2 (Petroleum Exploration and Development Research Institute CNPC, Beijing 100083)

Abstract The application value of traditional method to explore the oil and gas source using carbon isotope was bounded by the type and maturity of source rock. The method to combine the kinetics of carbon isotope with that of hydrocarbon generation has great advantages in discussing the source of oil and gas. In this paper, the thermal simulation experiment to the source rock was done, the results of kinetics calculation of hydrocarbon generation and carbon isotope have shown that the gas of Suligemiao gas field in the Upper Paleozoic stratum in Ordos basin mainly belong to stage accumulation gas which come from around areas, the contributions to the gas field from high maturity southern area and Tianhuan depression are 49% and 22% respectively, and the accumulation gas come from Suligemiao area is only make up of 29%.

Key words hydrocarbon generation kinetics, isotope kinetics, Suligemiao gas field, Upper Paleozoic, gas source