中国科学: 地球科学 2017 年 第 47 卷 第 5 期: 567 ~ 585
SCIENTIA SINICA Terrae earthcn.scichina.com
《中国科学》杂志社 SCIENCE CHINA PRESS
论 文

准噶尔盆地南缘凝析油、蜡质油与稠油的形成机理

陈建平[1,2,3*], 邓春萍[1,2,3], 王绪龙[4], 倪云燕[1,2,3], 孙永革[5], 赵喆[1], 廖健德[4], 王培荣[3], 张蒂嘉[1,2,3], 梁狄刚[1,2,3]

1. 中国石油勘探开发研究院, 北京 100083;
2. 提高石油采收率国家重点实验室, 北京 100083;
3. 中国石油天然气集团公司油气地球化学重点实验室, 北京 100083;
4. 中国石油新疆油田公司, 克拉玛依 834000;
5. 浙江大学地球科学系, 杭州 310027

* E-mail: chenjp@petrochina.com.cn

收稿日期: 2016-09-06; 接受日期: 2017-02-28; 网络版发表日期: 2017-03-29
中国石油天然气股份有限公司科学研究与技术开发项目(编号: 06-01A-01-02, 2011A-0201, 2014A-0211, 2016A-0202)资助

摘要 对于发育多套不同成熟度烃源岩、存在多种类型原油及天然气的复杂含油气区, 如何准确判断油气来源与成因一直是非常困难的事情. 准噶尔盆地南缘中部地区存在正常原油、轻质油、凝析油、蜡质油和稠油, 同时也发现了大量天然气, 长期以来对该地区凝析油的来源与成因一直存在很大争议, 而对于蜡质油与稠油的形成则几乎没有研究. 本文以该地区为研究实例, 探讨复杂油气区凝析油、蜡质油与稠油成因判识地质地球化学方法, 揭示该地区多种类型原油并存的原因与地球化学过程. 南缘中部地区40多个原油、轻质油、凝析油和稠油化学组成及其变化特征精细分析对比表明, 该区凝析油以低碳数正构烷烃为主, 含有丰富的环己烷、甲基环己烷等环烷烃和苯、甲苯、二甲苯等低碳数芳烃, 庚烷值在19~21%, 异庚烷值在1.9~2.1, 甲苯/正庚烷比值在1.5~2.0之间, 其烷烃的分布与高密度蜡质原油和稠油呈镜像关系. 结合该区原油、凝析油油源及天然气气源对比结果认为, 该区凝析油是白垩系湖相烃源岩生成的成熟原油油藏, 在后期遭受了侏罗系生成的高成熟天然气气侵改造的产物, 为蒸发分馏/相控运移分馏作用形成的凝析油. 蜡质油是蒸发分馏/相控运移分馏作用过程的中间产物或阶段产物, 稠油是蒸发/相控运移分馏作用的残留物. 蒸发/相控运移分馏作用是南缘凝析油、蜡质油、稠油形成的主要成因机理, 其导致油藏原油及凝析油的正庚烷、甲基环己烷、甲苯等轻烃化合物含量发生很大变化, 使凝析油的甲苯/正庚烷等比值具有很大的不确定性. 因此, 不能依据凝析油中甲苯/正庚烷与正庚烷/甲基环己烷比值简单地套用Thompson图版判识其成因, 而必须从研究区地质条件、烃源岩成烃演化与生烃历史、各种类型油气分子组成与分布特征、不同物理化学性质油气在纵向及区域上分布等方面综合分析判识凝析油的成因.

关键词 凝析油, 蜡质油, 稠油, 轻烃, 蒸发分馏, 相控运移分馏, 准噶尔盆地南缘

中文引用格式: 陈建平, 邓春萍, 王绪龙, 倪云燕, 孙永革, 赵喆, 廖健德, 王培荣, 张蒂嘉, 梁狄刚. 2017. 准噶尔盆地南缘凝析油、蜡质油与稠油的形成机理. 中国科学: 地球科学, 47: 567–585, doi: 10.1360/N072016-00221

英文引用格式: Chen J P, Deng C P, Wang X L, Ni Y Y, Sun Y G, Zhao Z, Liao J D, Wang P R, Zhang D J, Liang D G. Formation mechanism of condensates, waxy and heavy oils in the southern margin of Junggar Basin, NW China. Science China Earth Sciences, 60: 972–991, doi: 10.1007/s11430-016-9027-3

© 2017 《中国科学》杂志社

1 引言

凝析油通常是由低碳数轻烃组成的一类特殊原油. 大量研究表明, 烃源岩在高成熟阶段(镜质体反射率R_o 1.3~1.6%)可以生成一定数量的高成熟凝析油(Tissot和Welte, 1984), 这已被全球许多盆地油气勘探结果所证实. 但是, 国内外也有很多学者认为凝析油不一定是烃源岩在高成熟演化阶段生成的产物. III型有机质和煤系地层中树脂生源有机质在低成熟演化阶段也可以生成凝析油(Snowdon, 1982, 1991; Boreham等, 1993; 卢松年等, 1994; 陈践发等, 1995); 细菌对沉积有机质降解改造及细菌来源的有机质也有利于形成短链的凝析油(王铁冠等, 1995); 蒸发分馏作用(Evaporative fractionation) (Thompson, 1987, 1988, 2010, 2016; 张水昌等, 2000; 苏爱国等, 2004)与相控运移分馏作用(Phase-controlled molecular fractionation) (Larter等, 1991; Curiale等, 1996a, 1996b; 苏爱国等, 2000; 黄海平等, 2001)也可以形成凝析油、蜡质油和稠油. 原油热裂解(Horsfield等, 1992; Peters等, 2005)或“稳态催化反应”(Mango, 1990, 1994, 1997)可以形成轻烃或凝析油. 因此, 对于发育多套不同沉积环境与成熟-高成熟烃源岩的含油气盆地, 通常存在多种类型原油或不同成熟度的原油、凝析油, 同时还可能存在大量天然气, 如何准确判断凝析油的来源与成因是非常困难的事情.

从国内外已发表的文献看, 许多学者在判识凝析油的成因时通常应用Thompson(1987, 1988)提出的甲苯/正庚烷~正庚烷/甲基环己烷比值参数或图版(Walters, 1990; Dzou等, 1993; 马柯阳, 1995; 马柯阳等, 1995; Masterson等, 2001; 傅宁等, 2003; 梁狄刚等, 2003; 陈桂华等, 2003; 何文祥等, 2004; 张斌等, 2010; 龚德瑜等, 2014; 陈涛等, 2015; 苏奥等, 2015), 认为甲苯/正庚烷比值高的凝析油属于蒸发分馏成因. 但是, 也有学者认为甲苯/正庚烷比值低的凝析油是蒸发分馏成因(苏爱国等, 2003; 朱扬明等, 2003; 苏奥等, 2013). 显然, 不同学者对凝析油轻烃化合物比值判识凝析油成因有着绝然相反的观点. 那么, 轻烃参数能否有效判识凝析油的成因, 如何正确判识凝析油的成因?

准噶尔盆地南缘地区发育5套不同沉积类型与成熟度的烃源岩, 其中部地区霍尔果斯、玛纳斯、呼图壁等背斜构造(图1)发现的油气类型十分复杂(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2015a, 2015b), 既有一般的黑色正常原油, 也有棕色-浅棕色轻质油、黄色-无色凝析油, 还有黑色粘稠原油及大量天然气, 属于典型的复杂含油气区. 对于南缘地区背斜构造中的天然气, 绝大多数学者认为它们以煤型气为主, 属于高-过成熟阶段湿气和干气, 主要来源于侏罗纪煤系烃源岩(王绪龙等, 2004[1], 2013; 陈世加等, 2004; 廖健德等, 2006, 2011; 刘建等, 2016). 但是, 对凝析油的来源则有不同的观点, 而对蜡质原油和稠油的成因则没有研究. 陈世加等(2004)根据呼图壁背斜凝析油轻烃中甲基环己烷含量及Mango轻烃成因分类图认为, 呼图壁背斜凝析油属于腐殖型, 来源于高成熟的侏罗纪煤系烃源岩. 蒋宜勤等(2006)[2]认为玛纳斯构造凝析油主要来自侏罗系烃源岩, 白垩系烃源岩有一定的贡献. 廖健德等(2006, 2011)、陈建平等(2008[3], 2016a, 2016b)、康素芳等(2008)、王绪龙等(2013)则认为南缘中部霍玛吐等背斜原油来源于下白垩统烃源岩. 南缘中部地区原油为什么会呈现如此多样性? 为什么同样是来源于白垩系湖相烃源岩的原油物理化学性质呈现这么大的差异? 凝析油究竟是不是高成熟凝析油? 凝析油一定是烃源岩在高成熟阶段生成的产物吗? 蜡质原油和稠油又是如何形成的? 与凝析油是什么关系?

针对上述一系列问题, 本文以准噶尔盆地南缘中部为研究实例区, 对该地区40多个凝析油、原油及稠油样品进行了详细地球化学分析, 在原油、凝析油地球化学特征与来源准确判识的基础上(陈建平等, 2015b, 2016a~c), 综合运用原油物性、轻烃色谱与全油色谱等分析资料, 结合烃源岩生烃演化史及构造发

1) 王绪龙, 蓝文芳, 康素芳, 向宝力, 杨海波, 陈世加, 孔玉华. 2004. 准噶尔盆地油气地球化学研究进展. 新疆油田公司勘探开发研究院研究报告

2) 蒋宜勤, 向宝力. 2006. 准噶尔盆地重点勘探区带实验地质跟踪研究: 玛纳1井油气成因分析. 新疆油田公司勘探开发研究院研究报告

3) 陈建平, 赵喆, 梁狄刚, 王培荣, 王汇彤, 邓春萍, 高志勇. 2008. 准噶尔盆地多烃源资源潜力及成藏地球化学研究. 中国石油勘探开发研究院研究报告

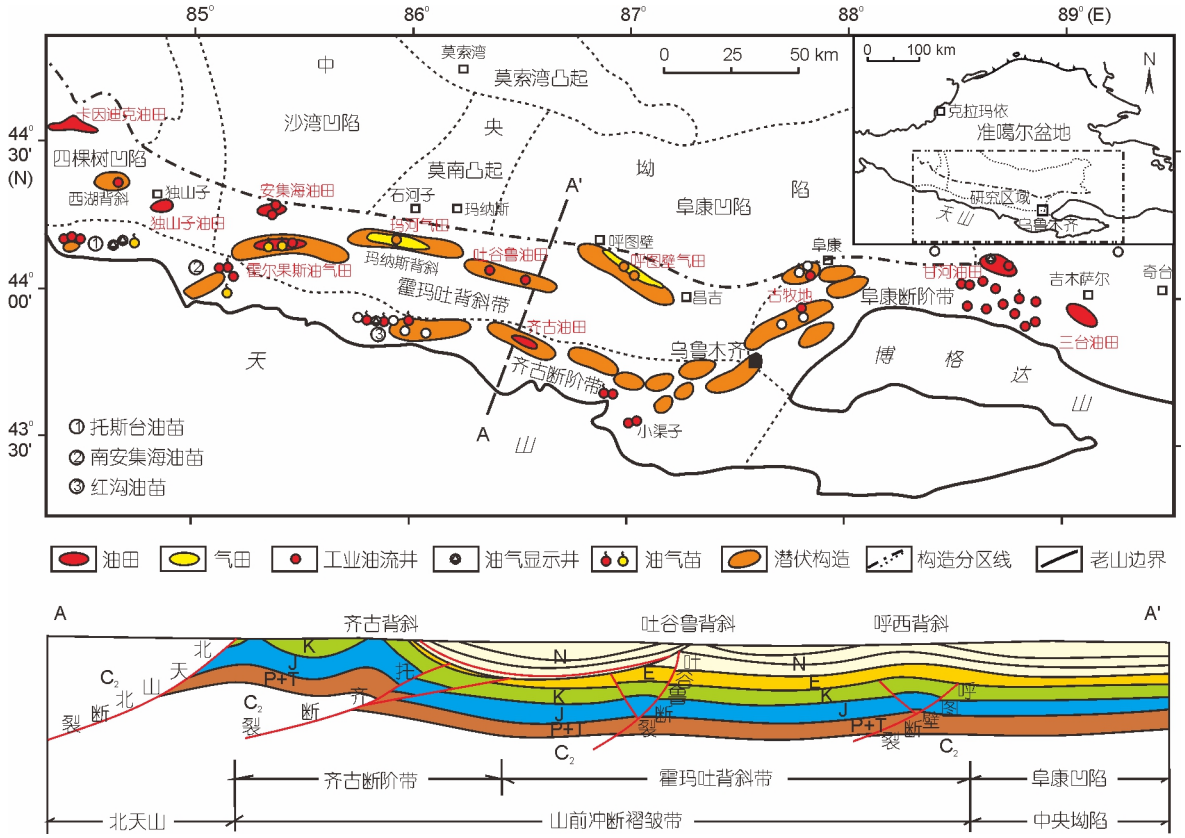

图 1　准噶尔盆地南缘构造圈闭与油气田分布图

育情况等, 对该地区原油、凝析油及稠油的组成及变化特征进行了深入研究, 并深入探讨了复杂油气区凝析油成因判断的地质地球化学方法. 本文对深入认识南缘地区油气形成与分布规律具有重要现实意义, 同时对复杂含油气盆地凝析油、轻质油、蜡质油、稠油的成因判识具有重要的科学意义.

2　基本地质背景

2.1　基本构造特征

准噶尔盆地南缘东起阜康断裂带, 西至四棵树凹陷, 北与中央坳陷的沙湾凹陷、莫南凸起、阜康凹陷相接, 南邻北天山, 东西长500km, 南北宽40~60km, 面积21000km^2, 构造位置属于北天山山前坳陷(图1). 南缘是准噶尔盆地最年轻也是最复杂的褶皱带, 是经历三个构造期(晚海西、印支-燕山、喜马拉雅期)发展起来的一级构造单元, 现今构造呈现"东西分段、南北分带"的面貌(杨海波等, 2004; 况军等, 2005, 2006, 陈书平等, 2007, 郭召杰等, 2011). 根据构造形成机理及构造样式, 可将其进一步划分为4个二级构造单元: 四棵树凹陷、霍玛吐构造带、齐古断阶带和阜康断阶带(图1). 根据构造特点与差异性, 南缘分为西、中、东三部分, 独山子以西为西段(西部), 独山子到乌鲁木齐为中段(中部), 乌鲁木齐以东为东段(东部).

2.2　沉积地层与烃源岩

南缘地区发育有二叠系、三叠系、侏罗系、白垩系、古近系和新近系6套沉积地层, 自二叠纪以来基本上持续性沉积, 最大沉积厚度达15km, 一般厚度也在10km以上(新疆油气区石油地质志编写组, 1991; 王绪龙等, 2013). 下二叠统-中二叠统下部主要为一套粗碎屑沉积; 中二叠统芦草沟组为一套半深湖~深湖相沉积, 厚600~1600m, 油页岩发育; 上二叠统主要为河流相-浅湖相-半深湖沉积, 厚0~730m(Graham等, 1990; Carroll等, 1992). 中下三叠统主要为河流-浅湖相粗碎屑沉积, 厚300~1300m; 上三叠统为三角洲-滨浅

湖-半深湖相沉积, 夹有沼泽相碳质泥岩薄层和煤线, 厚300~800m. 中下侏罗统是一套以河沼相、湖沼相沉积交替的含煤沉积, 最大厚度近3000m, 上侏罗统为山麓河流相红色粗碎屑沉积, 厚0~350m. 下白垩统是一套以泥岩为主的湖相和湖沼相沉积, 最厚达1600m; 上白垩统主要为山麓河流相粗碎屑沉积, 厚80~800m. 古新-始新统为河流-浅湖相沉积, 厚15~855m; 始新-渐新统为较稳定的浅湖-深湖相沉积, 厚44~800m; 渐新-上新统以浅水湖沼相及河流相沉积为主.

南缘地区存在二叠系、三叠系、侏罗系、白垩系、古近系5套有效烃源岩, 但在不同区域有差异, 中部地区烃源岩层系最多可达5套, 东部和西部是2~4套(陈建平等, 2008[3], 2015a, 2016c; 王绪龙等, 2013). 在凹陷中二叠系、三叠系、侏罗系烃源岩埋藏深度均很大, 达到高-过成熟阶段, 在地质历史时期均具有生成高成熟凝析油的可能性. 白垩系烃源岩目前主要处于成熟生油阶段, 可能尚未达到生成高成熟凝析油的演化阶段. 古近系烃源岩大部分地区处于未成熟-低成熟阶段, 只在西部四棵树凹陷达到了低成熟-成熟生油阶段, 没有生成高成熟凝析油的可能性.

3 样品与实验

3.1 样品

目前在南缘中部呼图壁、玛纳斯和霍尔果斯背斜均发现了大量凝析油. 呼图壁背斜位于南缘第三排构造带(图1), 主要由新近系、古近系、白垩系和侏罗系地层构成, 储集层主要是古近系紫泥泉子组与白垩系东沟组砂岩(图2a). 呼图壁构造以天然气为主, 伴有少量凝析油. 玛纳斯背斜位于南缘第二排背斜带中段, 东侧为吐谷鲁背斜, 西侧为霍尔果斯背斜(图1). 该背斜在古近系紫泥泉子组获得多层商业性天然气和凝析油(图2b), 在凝析油气藏下部的白垩系东沟组还存在轻质油. 霍尔果斯背斜自上而下钻遇新近系塔西河组(N_1t)、沙湾组(N_1s), 古近系安集海河组($E_{2-3}a$)、紫泥泉子组($E_{1-2}z$)及白垩系东沟组, 并在多层系获得油气(图2c,d), 其中既有一般正常密度原油, 也有低密度凝析油和轻质油, 还有高密度稠油. 本文所研究的凝析油样品(表1)主要来源于南缘中部这些背斜构造.

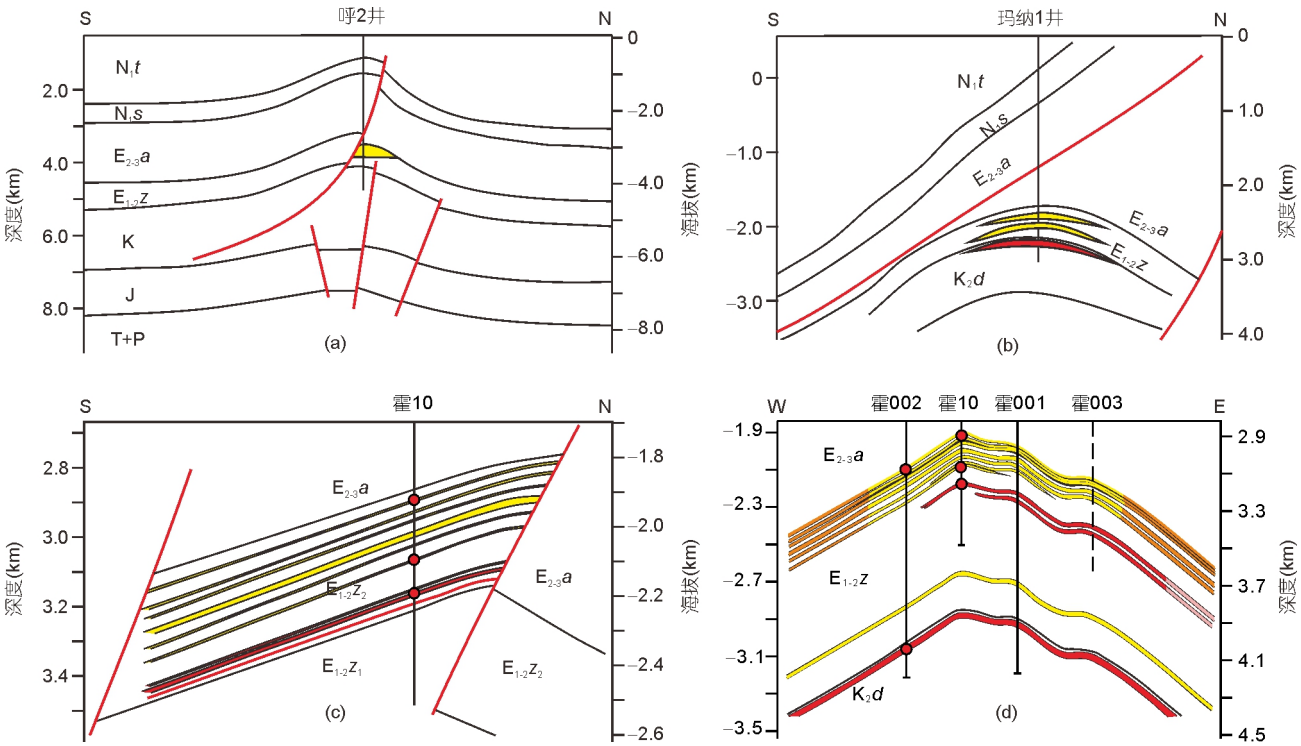

图 2　南缘部分背斜构造油气藏剖面示意图

(a) 呼图壁背斜; (b) 玛纳斯背斜; (c)和(d) 霍尔果斯背斜(红点为原油采样位置)

表 1　南缘地区部分凝析油和原油基本物理化学性质及全油气相色谱参数表[a)]

编号	构造	井号	井深(m)	层位	颜色/类型	密度 (g/cm^3)	粘度 (mPa·S)	凝固点 (℃)	含蜡量 (%)	饱和烃 (%)	芳烃 (%)	非烃 (%)	沥青质 (%)	CPI	主峰碳	C_{21}^-/C_{22}^+
6026	呼图壁	呼2	3561.5~3575.0	$E_{1\text{-}2}z$	浅黄色凝析油	0.7832	0.83	–26.2	3.51	82.25	9.06	4.41	4.28	1.15	C_{10}	9.28
5567	呼图壁	呼2	3594.0~3597	$E_{1\text{-}2}z$	浅黄色凝析油	0.7768	0.84	–20	1.36	97.43	1.28	0.64	0.21	1.33	C_8	79.52
0122	呼图壁	呼001	3584~3590	$E_{1\text{-}2}z$	无色凝析油	0.7764	0.82	–19	1.64	93.42	3.04	3.54	0.00	1.41	C_{10}	10.11
0123	呼图壁	呼002	3536~3571.5	$E_{1\text{-}2}z$	无色凝析油	–	–	–	–	92.48	3.35	4.17	0.00	1.29	C_9	10.27
0165	玛纳斯	玛纳1	2414~2446.5	$E_{1\text{-}2}z$	淡黄色凝析油	0.7612	1.02	–25.2	0.74	92.2	7.78	0.00	0.00	1.23	C_8	10.42
2884	玛纳斯	玛纳001	2365.51~2485	$E_{1\text{-}2}z$	浅黄色凝析油	0.7727	1.42	–26.1	0.50	91.06	4.53	3.15	1.26	1.21	C_{11}	9.88
7723	玛纳斯	玛纳001	2516~2522	$E_{1\text{-}2}z$	淡黄色原油	0.7652	1.38	–21.3	1.96	95.37	3.46	1.17	0.00	1.07	C_8	13.59
7724	玛纳斯	玛纳001	2787~2791	K_2d	黄褐色原油	0.7710	1.65	–15.4	2.25	88.74	8.89	2.15	0.22	1.10	C_{23}	1.53
5558	霍尔果斯	霍10	3064.0~3067.0	$E_{1\text{-}2}z$	棕黑色轻质油	0.7967	1.10	10	6.62	87.38	8.54	2.73	1.33	1.14	C_8	7.10
5559	霍尔果斯	霍10	3159.0~3170.0	$E_{1\text{-}2}z$	棕黑色原油	0.8303	7.36	35	12.57	91.95	4.54	2.89	0.61	1.13	C_8	1.55
5560	霍尔果斯	霍002	3097~3110	$E_{1\text{-}2}z$	黑色稠油	0.9409	48.00	37	11.57	40.02	33.49	12.47	14.01	1.08	C_{14}	1.71
5561	霍尔果斯	霍002	4050~4057	K_2d	棕褐色原油	0.8361	12.25	30	8.9	89.35	5.78	3.57	1.28	1.11	C_{14}	1.85
5562	霍尔果斯	霍浅1	644.0~645.0	N_1t	棕黑色原油	0.8928	31.34	26	–	63.25	14.89	18.25	3.61	1.09	C_{27}	0.64
5563	吐谷鲁	吐谷1	1840~1855	$E_{1\text{-}2}z$	棕褐色原油	0.8619	11.06	33	–	93.66	3.61	2.11	0.61	1.11	C_{14}	1.85
5564	吐谷鲁	吐谷2	1507.5~1570	$E_{1\text{-}2}z$	棕褐色原油	0.8611	10.64	32	16.81	86.65	11.91	1.42	0.00	1.09	C_{23}	1.23
5565	吐谷鲁	吐谷2	1786	$E_{1\text{-}2}z$	棕褐色原油	0.8668	12.50	33	17.84	90.56	8.51	0.92	0.00	1.07	C_{23}	1.17
5566	吐谷鲁	吐002	1610~1625	$E_{1\text{-}2}z$	棕色轻质油	0.8345	3.44	20	6.55	91.21	7.04	1.59	0.16	1.16	C_{22}	1.26
6025	齐古	齐8	2715~2737	T_1	棕黑色原油	0.8806	37.78	10	9.02	62.61	8.03	15.97	13.39	1.20	C_{17}	2.14
6020	古牧地	牧5	1300~1700	J_1s	棕色原油	0.8456	5.82	11.5	13.93	82.36	8.18	6.82	2.64	1.20	C_{19}	2.57

a) 凝析油、轻质油C_{24}以上烷烃含量低, CPI值仅供参考; –: 未检测

3.2 实验分析

3.2.1 凝析油与原油组分

凝析油与原油族组分分析采用棒薄层火焰离子化检测法, 仪器为IATROSCAN MK-6S型; 环境条件: 室温20~30℃, 相对湿度≤65%; 所用试剂为正己烷、二氯甲烷、氯仿和异戊醇, 试剂均经过精馏纯化并用色谱检测无杂质; 分析条件: 空气流量2000mL/min, 氢气流量160mL/min, 扫描速度30s/次. 具体分析操作流程按照石油工业行业标准SY/T 5119-2008.

3.2.2 轻烃与全油气相色谱分析

轻烃气相色谱分析采用Agilent 7890A气相色谱仪, 恒压模式, 载气N_2, 前置压力107kPa, 平均线速度14cm/s, 分流比50:1; HP PONA色谱柱, 长50m, 直径0.20mm, 膜厚0.50μm; 升温程序: 起始温度35℃, 恒温10min, 以0.5℃/min的速率升至60℃, 再以6.0℃/min的速率升温至320℃, 恒温保持30min; FID检测器. 全油气相色谱分析采用的仪器及条件与轻烃气相色谱基本相同, 只是升温程序不同: 起始温度35℃, 恒温5min, 然后以3.5℃/min的速率升至320℃, 恒温保持30min.

4 南缘地区凝析油地球化学特征

4.1 凝析油物理化学性质

呼图壁背斜凝析油为浅黄色和无色凝析油, 密度在0.7764~0.7832g/cm^3, 粘度在0.8mPa·s左右, 凝固点–20~–25℃, 含蜡量小于2%(表1), 油质非常轻. 在凝析油的族组成中, 饱和烃含量在82~98%, 芳烃在1~9%, 非烃和沥青质的含量非常低. 玛纳斯背斜凝析油为淡黄色或浅黄色, 密度为0.7612~0.7727g/cm^3, 粘度在1.0~1.5mPa·s, 凝固点低于–20℃. 凝析油饱和烃含量在91~96%, 芳烃在3~8%, 非烃和沥青质含量低于5%. 霍尔果斯背斜有正常原油、轻质油、凝析油和稠油, 其中轻质油的密度在0.79~0.82g/cm^3, 粘度在1~5mPa·s, 凝固点在3~20℃, 含蜡量在5~10%, 饱和烃含量在80%以上, 芳烃在10%左右.

4.2 全油气相色谱特征

南缘中部地区凝析油的全油气相色谱显示它们均以低碳数烷烃为主, 主峰碳为nC$_7$~nC$_{10}$, C_{21}^-/C_{22}^+比值基本上在9以上(表1、图3). 需要注意的是, 由于低碳数烃类非常容易挥发而损失, 因而这些凝析油实际主峰碳也可能是C$_7$以前的烷烃. 尽管无法获知低碳数烷烃的准确损失量, 但是这些凝析油C$_{15}$以上中高碳数正构烷烃仍然比较丰富是比较明显的. 例如: 呼图壁背斜呼2井3594~3597m凝析油, 虽然C_{21}^-/C_{22}^+比值高达79.52, 但最高碳数正构烷烃仍然可达C$_{20}$以上; 3561~3575m凝析油正构烷烃更高达C$_{25}$以上. 玛纳斯背斜凝析油也类似, C$_{15}$以上烷烃也占相当大的比例, 最高碳数正构烷烃可达C$_{25}$以上(图3). 通常, 高成熟的凝析油以低碳数烷烃为主, 高碳数烷烃含量较低或很低. 南缘凝析油的全油色谱正构烷烃分布特征表明它们的成熟度并不是特别高, 应该不是有机质在高成熟阶段生成的.

4.3 凝析油轻烃组成特征及成熟度

南缘呼图壁、玛纳斯等背斜凝析油轻烃分析表明(图4、表2), 在nC$_8$以前轻烃组成中含有丰富的链烷烃、环烷烃和芳烃. 所有凝析油均以甲基环己烷(MCH)的含量为最高, 其次是nC$_6$~nC$_8$正构烷烃、环己烷、苯和甲苯, 其它支链烷烃或环烷烃的含量相对比较低. 在C$_7$烃类组成中, 链烷烃含量占28~34%(正庚烷15~17%, 其它异构支链烷烃13~17%), 环烷烃占39~46%(甲基环己烷占32~38%, 二甲基环戊烷仅占6~7%, 乙基环戊烷小于2%), 甲苯占22~31%.

Thompson(1979, 1983)通过对大量源岩及原油轻烃组成统计研究认为, 不同结构的C$_7$烷烃可以反映原油的成熟度, 并提出了两个成熟度判识参数, 石蜡指数1(即异庚烷值)和石蜡指数2(即庚烷值), 其中庚烷值18~22%和异庚烷值0.8~1.2之间为石蜡基正常油; 庚烷值22~30%和异庚烷值1.2~2.0之间为成熟油; 庚烷值30~60%和异庚烷值2.0~4.0之间为高成熟油; 庚烷值<18%和异庚烷值<0.8为生物降解油. 必须注意的是Thompson(1979, 1983)提出的异庚烷值和庚烷值判识原油成熟度的前提条件是原油为没有经历过次生改造的原生原油. 如果原油经历了次生变化, 那么异庚烷值和庚烷值将受到影响, 成熟度的判识也就出现偏差. 王培荣(2011)通过对中国含油气盆地大量烃源岩及原油轻烃组成特征研究认为, 异庚烷值和庚烷值参数受有机质类型、蒸发分馏、生物降解等多种因素影响, 判识原油的成熟度不是很精确, 并在Thompson(1983)

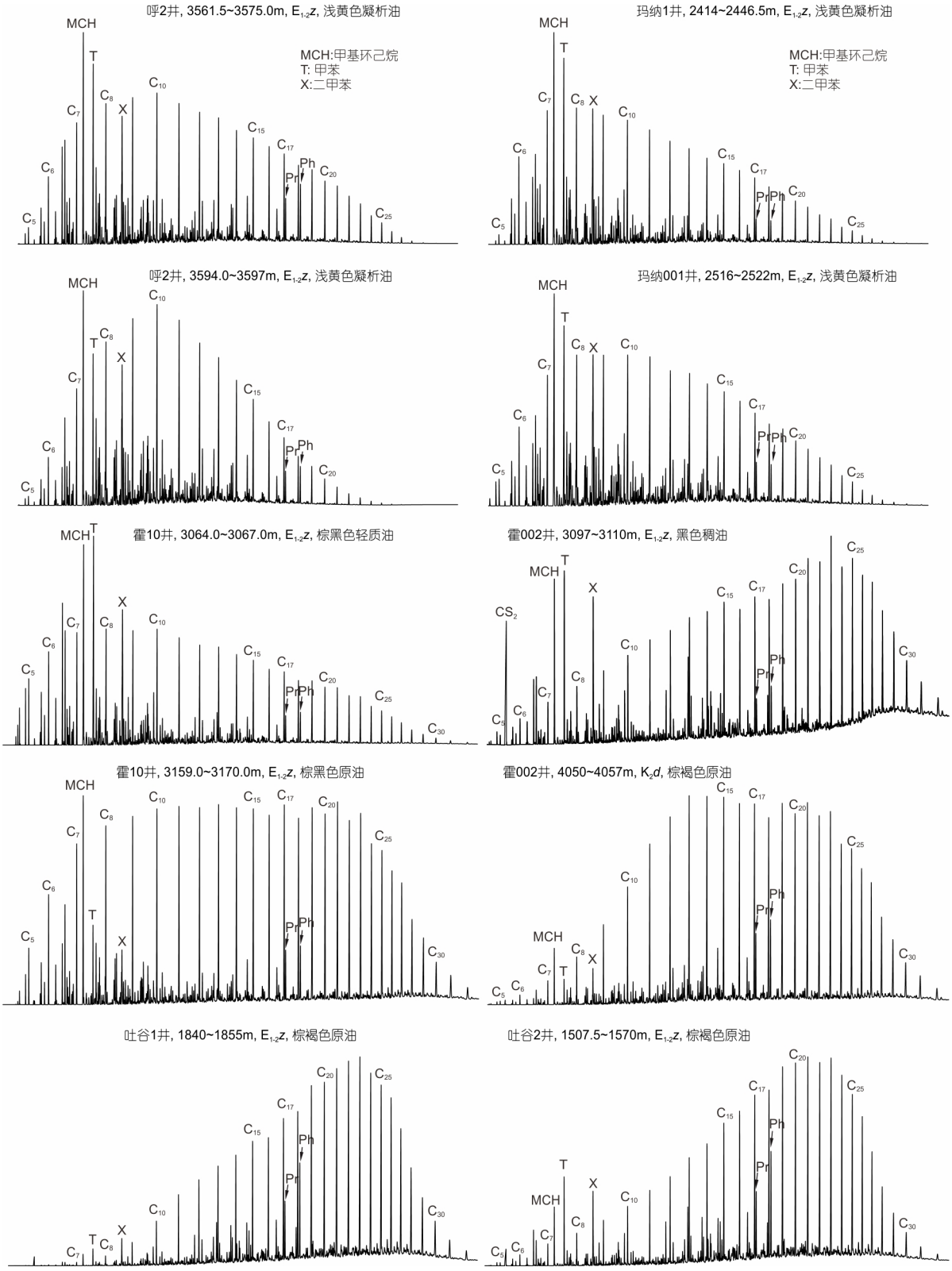

图 3　南缘地区部分凝析油与原油全油色谱图

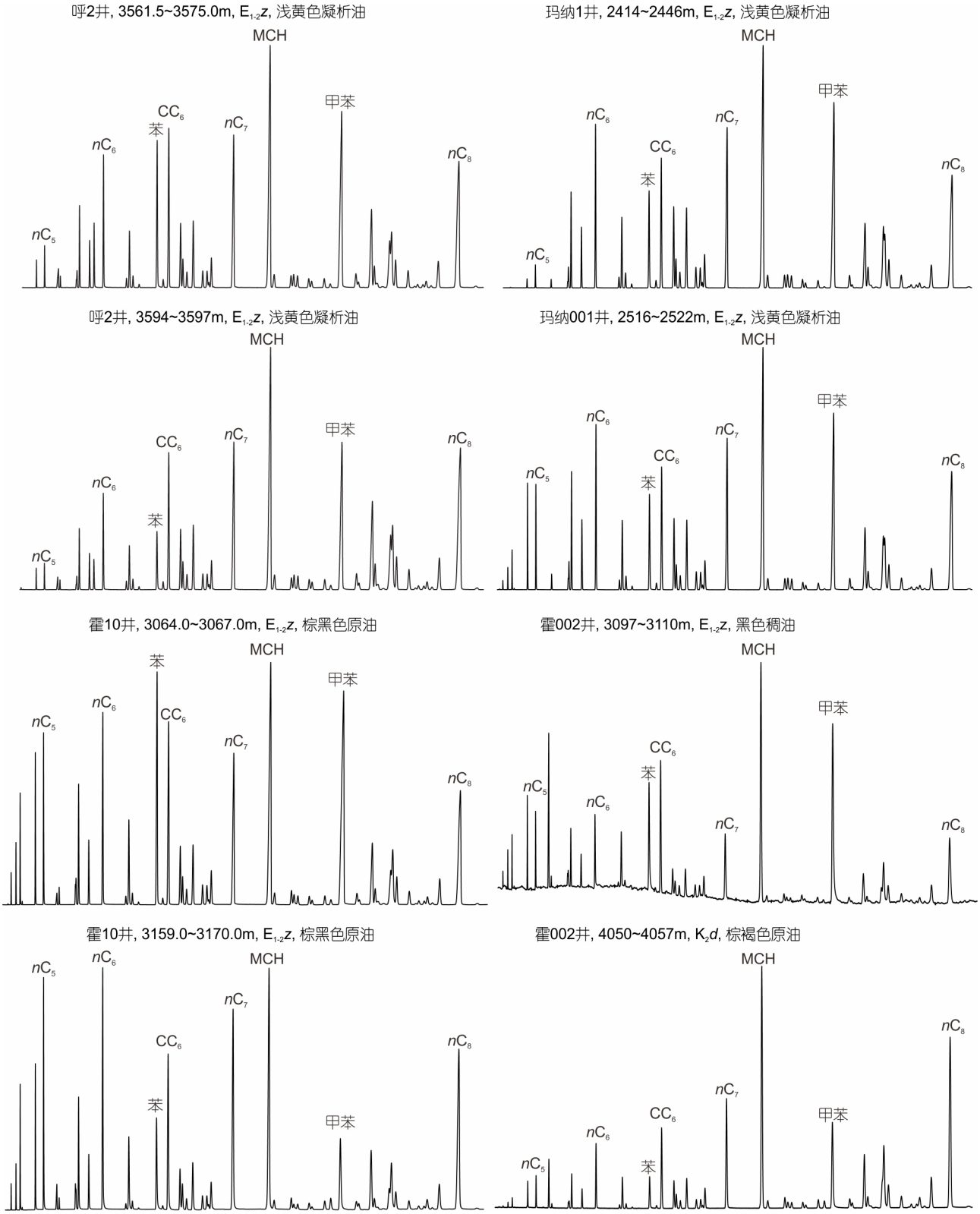

图 4　南缘中部部分凝析油与原油轻烃色谱图

表 2　南缘地区部分凝析油和原油轻烃组成与参数表[a)]

编号	井号	深度(m)	层位	样品类型	庚烷值	异庚烷值	nC_7/MCH	甲苯/正庚烷	C_7链烷(%)	C_7环烷(%)	C_7芳烃(%)	iC_7(%)	nC_7(%)	MCH(%)	DMCP(%)	ECP(%)
6026	呼2	3561.5~3575	$E_{1\text{-}2}z$	浅黄色凝析油	19.97	1.98	0.48	1.59	31.69	42.18	26.13	15.20	16.48	34.50	6.47	1.21
5567	呼2	3594.0~3597	$E_{1\text{-}2}z$	浅黄色凝析油	19.89	1.97	0.46	1.29	32.76	45.32	21.93	15.74	17.02	37.29	6.72	1.31
0122	呼001	3584~3590	$E_{1\text{-}2}z$	无色凝析油	19.33	1.97	0.46	1.70	30.69	42.31	27.01	14.76	15.93	34.72	6.42	1.16
0123	呼002	3536~3571.5	$E_{1\text{-}2}z$	无色凝析油	19.24	1.95	0.45	2.10	28.54	40.14	31.32	13.62	14.92	33.00	6.03	1.11
0165	玛纳1	2414~2446	$E_{1\text{-}2}z$	浅黄色凝析油	20.63	2.09	0.52	1.61	33.78	39.82	26.40	17.37	16.40	31.39	7.17	1.27
2884	玛纳001	2365.5~2485	$E_{1\text{-}2}z$	浅黄色凝析油	20.25	2.11	0.50	1.54	33.80	41.07	25.14	17.50	16.29	32.62	7.13	1.32
7723	玛纳001	2516~2522	$E_{1\text{-}2}z$	浅黄色凝析油	20.41	2.07	0.49	1.59	32.59	41.42	25.99	16.22	16.37	33.24	6.93	1.25
7724	玛纳001	2787~2791	K_2d	黄褐色原油	16.09	2.33	0.35	1.84	31.20	44.54	24.25	18.06	13.15	38.04	6.21	0.30
5558	霍10	3064~3067	$E_{1\text{-}2}z$	棕黑色轻质油	18.96	1.58	0.45	2.45	26.03	39.03	34.94	11.79	14.24	31.63	6.21	1.19
5559	霍10	3159~3170	$E_{1\text{-}2}z$	棕黑色原油	26.90	1.51	0.75	0.42	42.66	45.95	11.39	15.39	27.27	36.34	7.92	1.69
5560	霍002	3097~3110	$E_{1\text{-}2}z$	黑色稠油	15.07	1.34	0.31	2.33	23.13	47.85	29.02	10.66	12.47	40.01	6.32	1.52
5561	霍002	4050~4057	K_2d	棕褐色原油	19.89	1.45	0.41	0.99	29.92	52.32	17.76	12.03	17.89	43.66	6.78	1.89
5562	霍浅1	644.0~645.0	N_1t	棕黑色原油	17.62	2.23	0.40	1.64	31.24	44.59	24.17	16.49	14.75	36.90	6.18	1.52
5563	吐谷1	1840~1855	$E_{1\text{-}2}z$	棕褐色原油	12.41	1.47	0.24	4.96	18.56	40.99	40.45	10.40	8.16	34.25	5.38	1.37
5564	吐谷2	1507.5~1570	$E_{1\text{-}2}z$	棕褐色原油	16.23	1.61	0.36	4.16	20.85	35.58	43.58	10.37	10.48	29.49	5.07	1.02
5565	吐谷2	1786.00	$E_{1\text{-}2}z$	棕褐色原油	15.55	1.53	0.29	3.79	18.57	41.57	39.86	8.07	10.50	35.61	4.86	1.10
5566	吐002	1610~1625	$E_{1\text{-}2}z$	棕色轻质油	17.13	1.52	0.39	2.75	24.87	40.09	35.03	12.12	12.75	32.93	6.13	1.02
6020	牧5	1300~1700	J_1s	棕黑色原油	25.53	2.29	0.62	0.47	42.98	46.14	10.89	19.60	23.38	37.42	7.09	1.62

a) MCH-甲基环己烷; DMCP-二甲基环戊烷; ECP-乙基环戊烷

提出的划分标准基础上进行了适当修改, 分为未成熟、低成熟-成熟和高-过成熟三类, 其中: 庚烷值<18%和异庚烷值<1.0为未成熟; 庚烷值18~30%和异庚烷值1.0~2.0之间为低成熟-成熟, 庚烷值>30%和异庚烷值>2.0为高-过成熟.

在南缘中部地区呼图壁、玛纳斯、霍尔果斯等构造, 无论是正常原油还是凝析油或稠油, 庚烷值和异庚烷值均在比较小的范围内变化(表2), 庚烷值最高为26.9%, 最低为12.4%, 异庚烷值最高为2.33, 最低1.16, 其中凝析油的庚烷值在19~21%之间, 异庚烷值在1.9~2.1之间. 显然, 按照Thompson(1979, 1983)和王培荣(2011)的划分标准, 南缘中部地区的原油、凝析油或稠油, 无论它们否经历过次生改造, 基本上为成熟油而不是高成熟原油. 另一方面, Mango(1987, 1990, 1997)和BeMent等(1995)认为, 2-甲基环己烷/3-甲基环己烷和2,4-二甲基戊烷/2,3-二甲基戊烷(2,4-DMP/2,3-DMP)比值为温度的函数, 对应于有机质生烃的温度, 而与有机质的年代和类型、埋藏时间及速率无关. Mango(1997)提出了计算温度的公式: T=140+15ln(2,4-DMP/2,3-DMP). 南缘中部地区凝析油的2,4-二甲基戊烷/2,3-二甲基戊烷比值基本上在0.33~0.50之间, 计算其有机质经历的最高温度在123~130℃之间. 值得注意的是, 该地区大多数原油遭受了严重的次生蚀变, 轻烃的组成发生了很大变化, 而且凝析油是次生成因的(见后文讨论), 其轻烃组成也不是其原始状态. 因此, 2,4-二甲基戊烷/2,3-二甲基戊烷比值可能不能反映其原始值, 由其计算的温度不能反映生烃有机质所经历的最高温度(Peters等, 2005). 但是, 由霍10井3157~3170m原油(表2中5559号样品, 未遭受次生改造, 详见后文讨论)计算的温度只有120℃, 处于生油高峰的温度. 由此可见, 该地区没有受到次生蚀变的原油是有机质在生油高峰阶段生成的原油.

此外, 据陈建平等(2015b, 2016c), 南缘中部呼图壁、玛纳斯、霍尔果斯等背斜原油、轻质油及凝析油C_{29}甾烷20S/(20S+20R)值均在0.40~0.55之间, ββ/(αα+ββ)值在0.50~0.60之间. 例如, 呼2井凝析油C_{29}甾烷20S/(20S+20R)和ββ/(αα+ββ)值分别仅为0.41和0.52, 芳烃甲基菲指数(Radke等, 1983, 1986, 1987)计算的成熟度R_c仅为0.42%(明显偏低), 甲基菲分布分数(Kvalheim等, 1987)计算的成熟度R_c也仅为0.87%.

从上述凝析油轻烃组成特征可以看出, 南缘中部地区的凝析油是成熟凝析油, 应该是烃源岩在成熟生油阶段生成的产物, 而不是在高成熟阶段生成的产物.

5 南缘凝析油、蜡质油与稠油成因

在南缘中部地区众多背斜构造中, 目前发现的油气物理化学性质变化很大, 既有一般正常密度原油, 也有低密度轻质油与凝析油, 密度较高的蜡质原油和高密度稠油(表1), 同时还有大量天然气. 油源对比表明, 无论是正常原油、轻质油、凝析油还是稠油, 其单体烃分子碳同位素组成和生物标志物组成均非常相似, 均来源于白垩系清水河组烃源岩(陈建平等, 2016a, 2016b, 2016c). 那么, 为什么这些同源原油在基本物理化学性质上呈现如此大的差异呢? 从这些背斜构造同时发现了大量天然气来看, 后期大量天然气注入对油藏的改造作用可能是导致其物理化学性质复杂化的根本原因. 这一次生改造作用即为Thompson(1987, 1988)提出的"蒸发分馏"作用和Larter等(1991)提出的相控运移分馏作用.

5.1 蒸发分馏: 南缘凝析油、蜡质油、稠油的主要形成机理

5.1.1 正构烷烃分布证据

Thompson(1987)通过在装有原油的密闭容器中多次注入过量甲烷实验发现, 饱含天然气的原油组分发生明显分馏, 碳数相对较低的组分溶入天然气随天然气运移, 而且随着分馏程度的增强被分馏出来的组分的碳数逐渐增高, 而残留油中低碳数烃类含量逐渐降低, 高碳数烃类的相对含量逐渐增高. Thompson(1987, 1988)由此提出了"蒸发分馏"概念来描述储层中原油发生的次生变化. 苏爱国等(2004)进行了类似的模拟实验, 获得了基本相似的结果.

由图3可见, 南缘中部地区凝析油正构烷烃基本上以nC$_7$至nC$_{10}$为最高, 随着碳数增高含量逐渐降低, C$_{20}$以前低碳数正构烷烃是其主要成分. 与凝析油组成不同的是霍002井3097~3110m稠油, 其高碳数烷烃含量明显高于低碳数烷烃, C$_{25}$以前烷烃的分布与凝析油基本上呈镜像关系. 与霍002井稠油具有相似正构烷烃分布特征的原油在南缘许多探井中都存在, 如霍002井4050~4057m白垩系东沟组原油、吐谷鲁背斜的吐谷1、吐谷2井原油等(图3), 这些原油的密度也

相对比较高(表1). 与上述凝析油及稠油组成不同的是霍10井3159~3170m原油, 其低碳数烷烃与高碳数烷烃分布比较均衡, 烷烃的分布属于正常原油形式. 显然, 将霍10井3159~3170m正常组分原油作参照, 南缘中部地区凝析油、稠油正构烷烃组分的变化完全符合Thompson(1987)“蒸发分馏”观察到的组分分馏现象, 凝析油属于油藏中原油被天然气携带“蒸发分馏”出去的低分子量轻质部分, 而稠油属于残余油, 凝析油和稠油属于蒸发分馏的两个端元产物. Losh等(2002, 2010)也在美国墨西哥湾盆地路易斯安纳州沿海地区许多油藏中观察到了类似的现象, 认为是气洗(蒸发分馏)导致的, 并计算出正构烷烃的损失量最高达到91%.

5.1.2　低碳数芳烃分布证据

Thompson(1987)的实验表明, 随着蒸发分馏程度的增强, 随天然气分馏的液态组分中低碳数芳烃相对于同碳数烷烃的含量逐渐增加. 由此, Thompson(1987)认为一些富含轻质芳烃(苯、甲苯、二甲苯)、环烷烃(甲基环戊烷、环己烷和甲基环己烷)石油的成因可能与蒸发分馏有关, 并用甲苯/nC_7描述原油的蒸发分馏程度(图5).

南缘中部呼图壁、玛纳斯及霍尔果斯背斜等凝析油、轻质油轻烃组成中一个非常明显的特征是苯、甲苯、二甲苯的含量非常高(图3、图4). 甲苯的含量仅次于含量最高的甲基环己烷, 通常高于正庚烷, 甲苯/正庚烷比值一般在1.3~2.0(表2、图5), 苯/正己烷比值在0.7~1.6之间. 霍尔果斯背斜霍10井3157~3170m正常原油(5559号)低碳数芳烃的含量相对比较低, 其甲苯/正庚烷比值仅为0.42(表2、图5). 与霍10井正常原油相比, 这些背斜构造中凝析油、轻质油低碳数芳烃的相对含量明显偏高. 按照Thompson(1987)提出的判识图版, 它们属于蒸发分馏作用的产物.

但是, 另一方面, 南缘中部地区一些密度较大的原油或稠油也有很高的苯和甲苯含量, 甲苯/正庚烷比值甚至高于这些凝析油. 例如: 霍002井3097~3110m稠油甲苯/正庚烷比值为2.33(表2, 图5中5560号样品); 吐谷1井、吐谷2井等蜡质原油, 含蜡量高达16~17%, 族组分主要为饱和烃和芳烃, 非烃和沥青质含量<1.5%(表1), 其甲苯/正庚烷比值更是高达4.16~4.96(表2, 图5中5563、5564、5565号样品). 从这些稠油或蜡质原油缺

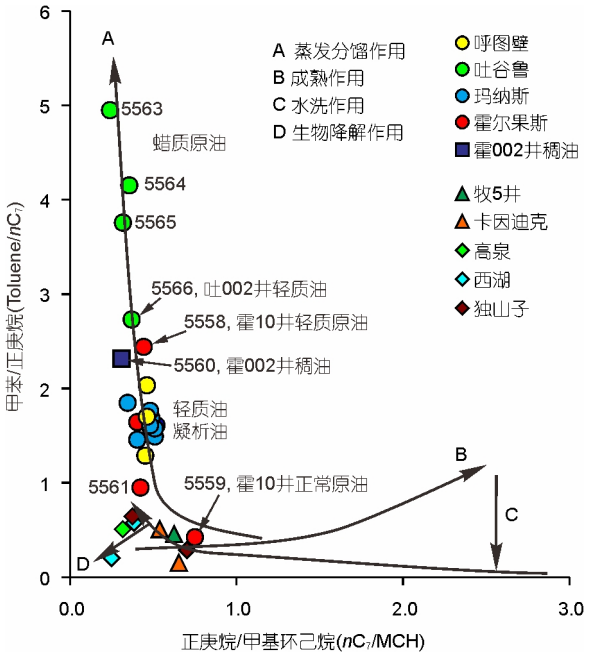

图 5　南缘地区部分凝析油、原油石蜡度与芳香度关系图

乏低碳数烷烃而以高碳数烷烃为主的分布来看(图3), 它们应该属于蒸发分馏作用的残留原油, 或者为“蒸发分馏”晚期阶段的产物. 显然, 甲苯/nC_7比值并不能正确地判识凝析油、轻质油或蜡质原油是蒸发分馏出去的产物还是残留产物.

5.1.3　关于“蒸发分馏”作用的思考

Thompson(1987, 1988)通过对大量凝析油轻烃组成的分析及PVT模拟实验, 发现过量天然气注入油藏可导致油藏原油成分发生分馏, 低碳数轻质烃类随天然气运移, 在温度/压力降低时形成凝析油, 高碳数重烃则残留于油藏中形成残留油, 分馏作用的最终结果是凝析油和残留油中轻芳烃和环烷烃类浓度增高. 由此提出了以甲苯/正庚烷比值衡量分馏作用的程度, 以甲苯/正庚烷比值和正庚烷/甲基环己烷比值图版判识凝析油的成因. 然而, 从南缘中部背斜构造各种原油的甲苯/正庚烷比值看(图5), 该比值并不能很好地表示原油的分馏程度, 也无法区分凝析油、轻质油、蜡质原油等究竟是分馏产物还是分馏残留物.

实际上, 原油的组分构成非常复杂. 油藏原油遭受气侵改造是一个极其复杂的物理化学过程, 可能包括气态烃的侵入、气态烃与液态烃互溶、体积膨胀、

脱沥青、气态或液态烃的运移、温度与压力降低后气态烃逸出或液态烃的析出等等过程. 目前对这一过程仍然很难描述清楚. 在气-液两相体系中, 气态烃在液态烃中的溶解度、液态烃在气态烃中的溶解度、气态烃脱溶、液态烃凝析等与体系的温度、压力、烃类的极性、不同烃类组分的逸度(气-液平衡常数)、饱和蒸汽压等均有密切关系. 例如, 在22℃条件下, 正庚烷和甲基环己烷的饱和蒸汽压分别为5.24kPa和5.33kPa, 甲苯为3.33kPa, 二甲苯为0.74~0.98kPa. 从饱和蒸汽压来看, 在相同温度压力条件下甲基环己烷、正庚烷比甲苯和二甲苯更容易成为气相溶入天然气中发生分馏.

从物质平衡与组分分馏原理的角度看, 经过气洗“蒸发”分馏的残留原油应该贫低碳数正构烷烃而相对富集高碳数烷烃及低分子量芳烃; 与此相反, 随天然气“蒸发”运移出去的液态组分应该是富集低碳数正构烷烃而贫高碳数烷及芳烃类化合物, 并不会出现随着分馏程度增强分馏出来的凝析物中芳烃含量相对增高的现象, 也即蒸发分馏作用不可能使分馏出去的产物与残留物同时富集轻芳烃和环烷烃类. 实际上, Thompson(1987)实验中观察到的随着分馏程度增强分馏出来的液态凝析物中低碳数芳烃逐渐增高现象, 反映的只是分馏过程中每个阶段产物中低碳数芳烃与烷烃相对含量的情况, 也即后一阶段的分馏产物中并不包含前一阶段的产物, 不是全程累积分馏产物中芳烃与烷烃相对含量的情况. 在蒸发分馏作用早期阶段, 分馏出来的凝析物中低碳数芳烃与同碳数烷烃的比值, 如甲苯/正庚烷, 小于未发生分馏作用的原始原油(表3、图6); 随着分馏程度的增强, 分馏出来的产物碳数越来越高, 其中低碳数正构烷烃相对含量越来越少, 而低碳数芳烃相对含量越来越高(图6), 从而逐渐呈现分馏出来的产物中甲苯/正庚烷比值越来越大. 同时, 在分馏残留物中低碳数芳烃相对于同碳数烷烃的含量也逐渐增高. Thompson(1987)构建甲苯/正庚烷与正庚烷/甲基环己烷比值图版的基础正是蒸发分馏作用阶段产物而不是全程累积分馏产物.

由表3可见, 在蒸发分馏作用不同阶段分馏出来产物的甲苯/正庚烷比值呈现很大的变化. 一个原油的甲苯/正庚烷比值低或很低并不意味着其不是分馏出来的产物, 而甲苯/正庚烷比值高可能表示其为某一分馏阶段产物, 也可能表示其为蒸发分馏的残余物. Thompson(1987)的图版并不能很好地判识凝析油是否是蒸发分馏作用形成的, 也无法很好地判识密度较高的原油是蒸发分馏作用残留油还是蒸发分馏作用阶段产物, 或者是分馏出来液态产物再次被气洗分馏的残留油, 其在地质条件下的应用有非常大的局限性.

按照物质平衡原理和烷烃、芳烃的极性、逸度、饱和蒸汽压等物理化学性质, 蒸发分馏累积物中甲苯/正庚烷比值应该始终低于原始原油, 而残留油中应该始终高于原始原油. 但是, 在地质条件下, 油藏中蒸发分馏出去的油气在向上运移再次成藏时具有非常大

表 3　蒸发分馏实验原油和凝析油参数表[a)]

阶段	样品	B	X	F	H
0	原始原油	1.24	0.81	0.67	21.3
1	凝析油 1	0.85	0.80	0.77	22.2
2	凝析油 2	1.14	0.89	0.69	20.8
3	凝析油 3	1.33	1.05	0.62	20.3
4	凝析油 4	1.77	1.21	0.46	17.6
5	凝析油 5	2.24	1.40	0.45	17.9
6	凝析油 6	3.18	1.79	0.35	15.1
7	凝析油 7	4.50	2.25	0.29	13.2
8	凝析油 8	6.13	2.70	0.25	11.9
9	凝析油 9	8.00	3.72	0.20	10.7
10	凝析油 10	8.50	4.63	0.21	10.3
11	凝析油 11	7.00	10.14	0.20	10.0

a) 据Thompson, 1987; B=甲苯/正庚烷(Toluene/nC$_7$); X=乙苯/正辛烷(Xylene/nC$_8$); F=正庚烷/甲基环己烷(nC$_7$/MCH); H=庚烷值

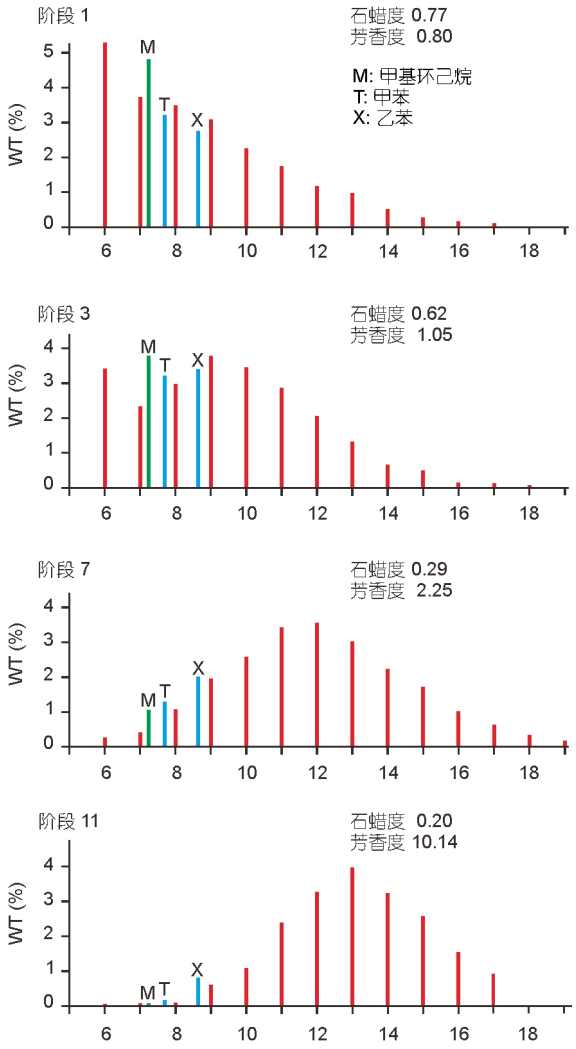

图 6　模拟实验3凝析油的模拟气相色谱图

据Thompson (1987)

的不确定性. 如果聚集成藏的是全部或早期的蒸发分馏出来的油气, 那么凝析油的甲苯/正庚烷比值低于原始原油或大致相等. 如果聚集的是蒸发分馏某一阶段或晚期的油气, 那么其甲苯/正庚烷比值高于原始原油. 在地质条件下绝大多数情况应该是只有一部分蒸发分馏出来的油气在圈闭中再聚集成藏, 也即圈闭中聚集的可能只是蒸发分馏过程中某一阶段的油气. 因此, 蒸发分馏形成的凝析油中低碳数芳烃的含量就具有很大的不确定性, 其甲苯/正庚烷比值高于、低于或等于原始原油的可能性均存在. 图5中凝析油、轻质油、蜡质油、稠油的甲苯/正庚烷比值交互分布很好地反映了地质条件下蒸发分馏过程的复杂性. 美国墨西哥湾盆地Louisiana海上South Marsh Island Block 208-209地区也呈现类似的情况(Losh等, 2010), 凝析油与原油的甲苯/正庚烷比值也交互分布, 也有许多原油的甲苯/正庚烷比值也大于凝析油.

因此, 对于一个地区的凝析油是否为蒸发分馏成因的判识, 不能仅仅根据其甲苯/正庚烷、正庚烷/甲基环己烷比值简单地套用Thompson(1987)图版进行判识, 必须从实际地质条件、油气的物理化学性质、各种油气分子组成及分布特征、不同物理化学性质的油气在区域上的分布等综合分析.

5.1.4　南缘凝析油、蜡质油、稠油的主要成因机理

尽管Thompson(1987)根据实验提出的甲苯/正庚烷与正庚烷/甲基环己烷比值模版并不能很好地判识凝析油究竟是否是蒸发分馏形成的, 但是, 如果原油或凝析油具有异常高或异常低的低碳数芳烃含量, 那么在排除了有机质类型等影响因素后, 基本上可以肯定这些原油或凝析油应该经历了次生改造, 蒸发分馏作用可能是主要的次生蚀变作用. 按照Thompson(2010)及其所引文献, 蒸发分馏作用在全球很多含油气盆地中均存在, 是一种比较普遍的油藏次生改造作用.

南缘中部很多背斜构造中既有正常原油、也有凝析油、蜡质原油和稠油. 这些原油具有十分相似的碳同位素组成和生物标志物组成特征, 属于同源的成熟原油, 来源于白垩系湖相烃源岩(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2015b, 2016a, 2016b, 2016c). 在这些原油中, 凝析油具有丰富的低碳数烷烃和芳烃; 高密度蜡质油和稠油相对缺乏低碳数烷烃, 但相对富集低碳数芳烃和高碳数烷烃(图3和图4), 即具有较高的甲苯/正庚烷比值(图5), 符合蒸发分馏作用形成的各种液态原油的化学组成特征.

另一方面, 在南缘中部这些构造中均发现了大量的高-过成熟的天然气, 在分布层系上与各种性质原油交错分布, 但它们与原油并不同源, 而是来源于高-过成熟的侏罗纪煤系烃源岩(陈世加等, 2004; 廖健德等, 2006, 2011; 王绪龙等, 2013). 因此, 从油气来源与赋存形式上看, 南缘中部地区存在液态原油和天然气的充注成藏过程, 具有发生蒸发分馏作用的基本条件.

综合上述信息判断, 南缘中部地区背斜构造油藏应该遭受了大量天然气的侵入, 蒸发分馏作用是这些凝析油的主要成因, 高密度蜡质原油是气洗分馏作用

的中间产物, 稠油则是分馏作用最终残留原油. 凝析油、蜡质油和稠油形成的物理化学过程可以概括为如图7所示: 正常原油油藏(A)遭受大量天然气气侵发生油气互溶形成轻质油(油气藏B), 同时伴随着脱沥青作用可能产生沥青质沉淀形成少量稠油; 饱含低分子量液态烃的天然气向上运移, 随着温度/压力降低, 在合适的圈闭将形成凝析油气藏(C1), 如呼图壁、玛纳斯背斜的凝析油气藏; 随着温度和压力逐渐降低, 最终将形成基本没有液态烃的天然气藏(G); 原油藏中残余原油由于失去轻质组分而形成高分子量烃类相对富集的蜡质原油及脱沥青作用形成的稠油(C); 随着天然气的持续注入与分馏作用的增强, 被天然气携带出去的烃类的分子量将越来大, 在向上运移过程中随着温度与压力的降低, 在合适的条件下可以形成几乎没有非烃与沥青质的蜡质原油/轻质油油藏(C2), 例如吐谷鲁背斜吐谷1井、吐谷2井和霍尔果斯背斜霍002井白垩系东沟组高蜡油(表1、图3), Louisiana沿海地区也存在类似的原油(Losh等, 2002, 2010); 此外, 先期分馏出来的再成藏原油也可能继续遭受气洗形成这类非烃、沥青质含量极低的蜡质原油; 饱含液态烃的天然气继续向上运移则可能形成凝析油气藏(C3), 最终将形成基本不含液态烃的天然气藏(G); 原油藏中残余原油最终将形成主要由高分子量烃类、非烃与沥青质构成的稠油(D), 例如霍002井紫泥泉子组地层中的稠油(表1、图3).

5.2 相控运移分馏: 凝析油、蜡质油形成的另一种机理

Thompson(1987, 1988)提出的“蒸发分馏”作用只是富低碳数烷烃、环烷烃与芳烃类凝析油的一种形成机理. 该类凝析油也可以有另一种机理形成, 即相控运移分馏作用(Phase-controlled molecular fractionation, Larter等, 1991). 所谓相控分馏作用是指高温高压下含气态烃的液相油流体或含液态烃的气流体, 在温度或/和压力降低时占少数相物质在多数相物质中的溶解度下降, 在某一温度/压力时达到泡点或露点, 也即在两相达到平衡时, 形成饱和气态烃的液态油和/或饱和凝析油的气态烃的过程. 相控运移分馏作用过程中运移物质既可以是液相也可以是气相. 实际上, Thompson(1987, 1988)提出的蒸发分馏作用是相控运移分馏作用的一种形式或过程的一部分, 其运移物质是饱含液态烃的天然气. 这一过程即为大量天然气侵入油藏后低分子量液态烃溶入天然气中形成饱含液态烃的天然气流, 当其向上运移达到露点温度/压力时液态烃从中析出, 形成蜡质油、轻质油、凝析油和天然气. 本文以下讨论的相控运移分馏作用其运移流体是饱含天然气的液态油.

Larter等(1991)应用高温高压PVT实验装置进行了相控运移分馏模拟实验, 结果表明正常原油被注入过量溶解气后形成富气的低密度单相凝析油, 同时伴随着脱沥青作用产生沥青质沉淀; 当富气单相油流沿温度和压力降低的“运移路径”运移至某温度/压力点并达到两相平衡时, 部分液态组分析出形成密度相对较高的原油, 而仍然溶于气相中的液态组分富含低分子量芳烃; 当温度和压力进一步降低时形成贫低分子量芳烃的凝析油与天然气. 苏爱国等(2004)进行了类似的模拟实验, 同样获得了富低分子量芳烃的凝析油. Curiale等(1996a, 1996b)认为美国墨西哥湾盆地路易斯安纳州沿海Vermilion 14和Vermilion 39区块的凝析油即为相控运移分馏成因. 张水昌等(2000)认为塔里木盆地塔北及塔中地区的凝析油及蜡质原油也是蒸发-相控运移分馏形成的.

南缘中部地区部分凝析油、轻质原油也可能直接是相控运移分馏形成的(图7). 正常原油油藏遭受气侵后发生油气互溶, 形成以轻质油为主的油气藏(B); 气侵过程中发生脱沥青作用, 在原油藏中形成稠油(残余油); 气侵作用导致原油体积膨胀, 使部分饱含气的轻质原油溢出油藏并呈液相沿输导层或断裂向上运移; 随着温度与压力的降低, 分子量较大的液态组分逐渐析出形成蜡质原油(油藏B1); 中低分子量液态组分继续以液相运移, 在更低的温度和压力条件下再析出形成轻质原油(油气藏B2)或凝析油(油气藏B3); 最终将形成基本不含液态烃的天然气藏(G).

南缘中部地区存在由上述过程形成的各类原油与凝析油. 例如, 霍10井3064~3067m原油, 密度仅为0.7967g/cm^3, 与凝析油的密度基本相当(表1), 但其颜色呈棕黑色, 明显比一般凝析油深很多, 非烃和沥青质低, 仅略高于凝析油, 高碳数正构烷烃含量比凝析油高(图3), 同时也含有相对较高的低碳数芳烃(表2). 如果这类轻质原油进一步遭受气侵发生蒸发分馏则可能形成非烃、沥青质含量很低的蜡质原油. 例如, 吐谷鲁背斜吐谷1、吐谷2井和霍尔果斯背斜霍002井

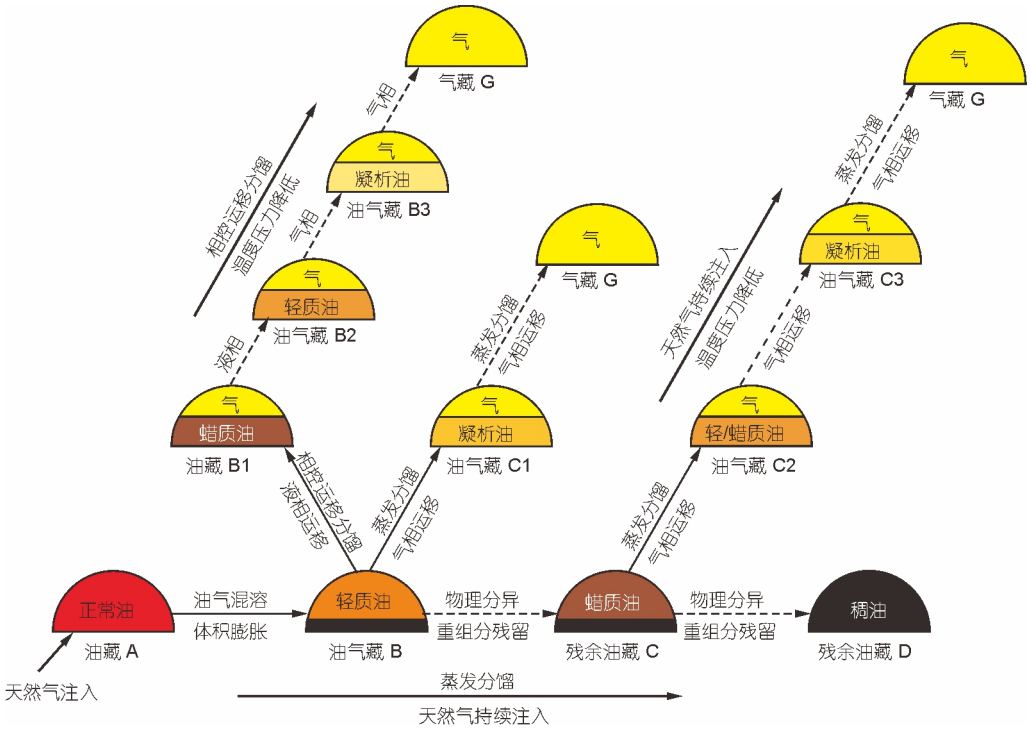

图 7　南缘中部凝析油、轻质油、蜡质油及稠油形成过程示意图

白垩系东沟组原油, 非烃、沥青质含量很低(表1)、缺乏低碳数烷烃而富含低碳数芳烃(图3), 它们可能就是正常原油经过相控运移分馏形成的高蜡原油. 霍002井稠油则可能是脱沥青作用形成的.

6　南缘凝析油形成的地质条件与过程

南缘地区二叠系、三叠系、中下侏罗统、下白垩统清水河组、古近系安集海河组烃源岩均为有效的烃源岩, 而且在坳陷中二叠系、三叠系、侏罗系烃源岩埋藏深度均很大, 达到高-过成熟演化阶段(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2015a; 2016c). 白垩系烃源岩成熟度相对低一些, 目前主要处于成熟生油阶段. 古近系成熟度更低, 目前主要处于未成熟-低成熟生油阶段, 少量处于成熟阶段. 这些不同时代的烃源岩大量生烃期与构造形成期匹配与否决定了生成的油气能否在构造中充注成藏, 从而也就决定了凝析油、蜡质油、稠油的成因与形成过程.

6.1　南缘烃源岩热演化生烃史

准噶尔盆地南部地区古地温场经历了由高到低逐渐降温的过程, 地温梯度由二叠纪时期的32.0~36.6℃/km逐渐降低至目前的18~22℃/km(王社教等, 2000a, 2000b; 邱楠生等, 2001, 2002). 为了确定南部烃源岩的热演化生烃过程, 在探井样品实测镜质体反射率约束下, 应用盆地模拟软件计算了南部坳陷区烃源岩热演化生烃史(图8). 在霍玛吐构造带玛纳斯背斜南部(图8a), 中、下侏罗统烃源岩主要生油阶段在早白垩世-中新世(130~10Ma), 生油高峰大约在始新世-早中新世(50~15Ma); 干酪根裂解生气始于始新世初(50Ma), 目前处于大量生气阶段. 二叠系和三叠系烃源岩埋藏深度大于侏罗系烃源岩, 其生油与生气时期也早于侏罗系. 下白垩统烃源岩目前最大埋藏深度达到8800~9000m, 比昌吉凹陷深800~1000m左右, 其生油始于始新世(50Ma), 大约在中新世初期(20Ma)开始大量生油. 目前, 白垩系烃源岩主要处于生油高峰阶段, 部分烃源岩处于生油窗后期阶段. 古近系安集海河组烃源岩在中新世末期(6Ma)开始进入生油门限, 目前仍然处于低成熟生油阶段. 坳陷北部各时代烃源岩埋藏深度比中部浅一些, 生烃时间也略晚一些(图8b), 中、下侏罗统生油也主要在上新世以前, 白垩系目前处于低成熟生油早期阶段.

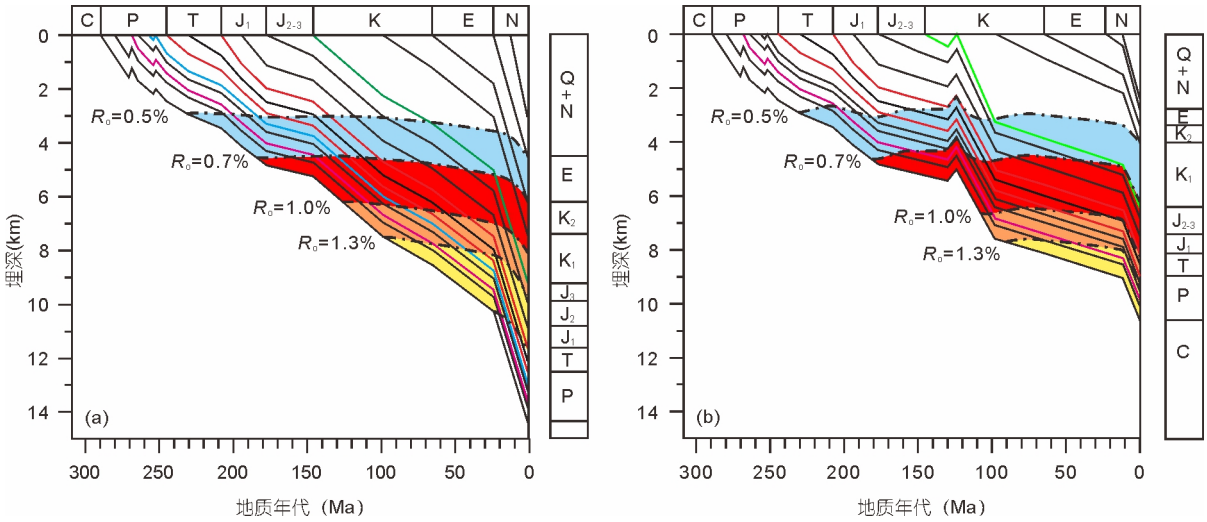

图 8　南缘中部烃源岩埋藏演化与生烃史图

(a) 南缘中部沉积坳陷中部; (b) 南缘中部沉积坳陷北部

6.2　南缘构造演化与油气充注成藏

准噶尔盆地南缘北天山-博格达山中新世以来(25Ma)开始大幅度隆升(Hendrix等, 1994; 方世虎等, 2005, 2007; 胡玲等, 2005; 郭召杰等, 2006, 2011; 杜治利等, 2007; 王宗秀等, 2008), 齐古背斜等第一排构造形成于10~7Ma左右, 霍尔果斯等第二排背斜构造形成于3~1.5Ma左右, 独山子、安集海等第三排背斜构造形成于1Ma左右, 而呼图壁背斜形成更晚, 是正在形成的背斜构造. 因此, 南缘地区背斜构造形成时间非常晚, 只可能捕获约10Ma左右以来形成的油气.

对照南缘中部地区5套烃源岩生油、生气关键时期与构造形成期之间的匹配关系可以看出, 在二叠系、三叠系、侏罗纪烃源岩大量生油时期, 目前发现油气的背斜构造基本上尚未形成. 除了位于南缘边部二叠系、三叠系埋藏相对比较浅且早期有古构造存在的背斜外, 中部绝大多数背斜构造基本上不可能充注来自二叠系、三叠系和侏罗系生成的原油. 然而, 白垩系烃源岩大量生油时期正好是这些构造的形成时期, 两者具有良好的匹配关系, 因而这些构造圈闭可以聚集白垩系烃源岩生成的原油. 油源对比证实这些圈闭中的成熟原油来源于白垩系清水河组湖相烃源岩(陈建平等, 2016a, 2016b, 2016c; 王绪龙等, 2013).

另一方面, 侏罗纪煤系烃源岩在上新世(5Ma)以来一直处于高成熟至过成熟生气阶段, 与南缘中部构造形成期也相匹配, 这些背斜也具有圈闭侏罗纪煤系烃源岩生成的天然气的条件. 南缘中部构造天然气甲烷含量基本上在80~97%, 以湿气为主; 甲烷碳同位素组成δ^{13}C值主要在–35~–31‰之间, 乙烷和丙烷的碳同位素组成δ^{13}C值均大于–25‰, 属于典型的腐殖型有机质生成的天然气, 表明它们确实来源于侏罗纪煤系烃源岩(王绪龙等, 2004, 2013; 陈世加等, 2004; 廖健德等, 2006, 2011).

此外, 南缘推覆带断裂非常发育, 每一个背斜构造均有基本平行于背斜轴向的逆冲推覆断裂及一系列次级断裂(图3), 沟通深部多个烃源层与上部储层, 成为油气向上运移的通道, 为油气多次充注成藏创造了十分有利的条件. 白振华等(2013)通过对玛纳斯背斜油气藏砂岩储层包裹体及荧光光谱特征等研究认为, 该背斜构造存在两期油气充注过程, 第一期(11Ma)为原油充注成藏, 第二期(3Ma)为天然气充注成藏. 南缘中部其它背斜构造与玛纳斯构造有着几乎相同的构造发育背景和历史, 因而油气充注成藏情况也应该非常相似. 尽管构造形成时间与油气充注时间可能均不是十分准确, 但油气包裹体揭示了南缘中部背斜构造经历了前油后气的两次充注成藏过程.

6.3　南缘凝析油形成的地质过程

蒸发/相控运移分馏是极其复杂的物理化学过程(图7). 注入油藏的天然气的组分或干燥程度不同, 其携带液态烃的能力也不同; 注入天然气的数量和持续

时间不同, 其携带出去的液态烃成分和油藏中残留物的组成也就有很大差异. 被天然气携带出去的液态烃在不同温度/压力的圈闭中可形成化学组成不同的原油, 可能是凝析油、轻质油或蜡质油. 如果这些再成藏的原油继续或再次遭受天然气气洗, 其成分仍然会发生变化, 可能形成以高碳数烷烃为主的蜡质油、轻质油和凝析油. 因此, 蒸发/相控运移分馏作用可以导致一个地区各种不同类型油气混合分布的复杂局面.

南缘中部地区背斜构造完全具备发生蒸发分馏或相控分馏形成凝析油、轻质油、蜡质原油和稠油的地质与地球化学条件, 油气充注成藏可能经历了如下过程: 白垩系湖相烃源岩在中新世开始大量生油, 生成的原油在南缘背斜中充注成藏; 侏罗纪煤系烃源岩在上新世开始生成大量高-过成熟天然气, 并通过断裂向上运移充注进入早期油藏, 使油藏中白垩系原油遭受气侵而发生蒸发分馏/相控分馏; 混合的油气呈气相或液相继续向上运移, 随着温度/压力降低液态组分逐渐析出形成蜡质油、轻质油和凝析油. 这一过程导致了南缘诸多背斜构造中正常原油、蜡质油、轻质油、凝析油、稠油和天然气共存并呈交错分布的复杂局面.

7 结论

准噶尔盆地南缘背斜构造圈闭十分发育, 中部地区众多背斜构造中存在正常原油、轻质油、凝析油、蜡质原油、稠油及大量天然气. 通过近40个原油、凝析油和稠油物理化学性质与化学组成等的地球化学特征分析研究, 对该地区凝析油、蜡质油和稠油的成因获得如下结论.

(1) 南缘地区中部凝析油虽然以低碳数烷烃为主, 但C_{15}以上高碳数烷烃含量也较高, C_{29}甾烷20S/(20S+20R)值在0.40~0.55之间, 甲基菲指数和分布分数计算的成熟度(R_c)在0.70~1.1%之间, 庚烷值在19~21%, 异庚烷值在1.9~2.1, 其生成温度在120~130℃之间, 属于成熟凝析油而非高成熟凝析油.

(2) 南缘地区中部凝析油含有丰富的环烷烃和甲苯、二甲苯等低碳数芳烃, 甲苯/正庚烷比值在1.5~2.0之间; 其烷烃分布与高密度蜡质原油和稠油呈镜像关系, 为早期油藏原油经过蒸发分馏/相控运移分馏作用形成的凝析油; 蜡质油是分馏过程的中间产物或阶段产物, 稠油是蒸发分馏最后的残留物. 蒸发分馏是南缘地区凝析油、轻质油、蜡质油及稠油主要的形成机理, 相控运移分馏是次要的形成机理.

(3) 南缘地区二叠系、三叠系烃源岩主要生油气时期早于含油气构造形成期, 而侏罗纪煤系烃源岩大量生气与白垩系湖相烃源岩大量生油期与构造形成期相匹配, 先期来源于白垩系的成熟原油在后期遭受了大量侏罗系来源的高-过成熟天然气的气侵, 蒸发分馏/相控分馏作用导致了该地区背斜构造中各种类型原油及天然气共存并呈交错分布的复杂状况.

(4) 蒸发/相控运移分馏作用可以导致原油及凝析油的轻烃组成发生很大变化, 甲苯/正庚烷等比值具有很大的不确定性, 其取决于所捕获油气所处的蒸发/相控分馏作用阶段. Thompson的甲苯/正庚烷与正庚烷/甲基环己烷比值图版不能准确判识凝析油的成因, 必须从研究区地质条件、烃源岩生烃历史、各种类型油气的分布及物理化学特征等综合判识凝析油的成因.

致谢 感谢审稿人对本文初稿提出的建设性修改意见. 中国石油勘探开发研究院、新疆油田公司对本文依托项目的完成提供了大力支持与帮助, 在此一并致以诚挚的感谢.

参考文献

白振华, 姜振学, 宋岩, 赵孟军, 方世虎, 张健. 2013. 准南前陆盆地玛纳斯背斜油气动态成藏过程. 天然气工业, 38: 37–42

陈桂华, 李友川, 付宁, 胡根成, 吴伟力, 陈明, 高伟义, 章海鹰. 2003. 平湖油气田油气分布主控因素分析. 中国海上油气(地质), 17: 164–169

陈建平, 王绪龙, 邓春萍, 赵喆, 倪云燕, 孙永革, 杨海波, 王汇彤, 梁狄刚, 朱如凯, 彭希龄. 2015a. 准噶尔盆地南缘油气生成与分布规律——烃源岩地球化学特征与生烃史. 石油学报, 36: 767–780

陈建平, 王绪龙, 邓春萍, 赵喆, 倪云燕, 孙永革, 杨海波, 王汇彤, 梁狄刚. 2015b. 准噶尔盆地南缘油气生成与分布规律——原油地球化学特征与分类. 石油学报, 36: 1315–1331

陈建平, 王绪龙, 邓春萍, 赵喆, 倪云燕, 孙永革, 杨海波, 王汇彤, 梁狄刚. 2016a. 准噶尔盆地南缘油气生成与分布规律——典型原油油源对比. 石油学报, 37: 160–171

陈建平, 王绪龙, 邓春萍, 赵喆, 倪云燕, 孙永革, 杨海波, 王汇彤, 梁狄刚. 2016b. 准噶尔盆地南缘油气生成与分布规律——典型油藏油源解剖与原油分布规律. 石油学报, 37: 415–429

陈建平, 邓春萍, 王绪龙, 倪云燕, 孙永革5, 赵喆, 王培荣, 廖健德, 张蒂嘉, 梁狄刚. 2016c. 准噶尔盆地南缘凝析油油源. 石油勘探与开发, 43: 830–840

陈践发, 沈平, 文启彬. 1995. 我国凝析油的成因类型及其地球化学特征和意义. 沉积学报, 13: 32–40

陈世加, 王绪龙, 阿布力米提, 李延均, 王立宏. 2004. 呼图壁气藏成藏地球化学特征. 天然气工业, 24: 16–18

陈书平, 漆家福, 于福生, 杨桥. 2007. 准噶尔盆地南缘构造变形特征及其主控因素. 地质学报, 81: 151–157

陈涛, 侯读杰, 米巨磊, 何大双, 施和生, 朱俊章. 2015. 白云凹陷原油气洗作用. 东北石油大学学报, 39: 60–66

杜治利, 王清晨. 2007. 中新生代天山地区隆升历史的裂变径迹证据. 地质学报, 81: 1081–1101

方世虎, 贾承造, 郭召杰, 宋岩, 张志诚. 2005. 准噶尔盆地南缘前陆冲断带形成时间的初步厘定. 地学前缘, 12: 66

方世虎, 宋岩, 贾承造, 郭召杰, 张志诚, 刘楼军. 2007. 天山北缘晚新生代快速变形时间的确定及其成藏意义. 地学前缘, 14: 205–214

傅宁, 李友川, 陈桂华, 陈明, 高伟义, 章海鹰. 2003. 东海西湖凹陷油气“蒸发分馏”成藏机制. 石油勘探与开发, 30: 39–42

龚德瑜, 李明, 李启明, 肖中尧, 陶小晚, 黄士鹏. 2014. 塔里木盆地乌什凹陷原油地球化学特征及油源分析. 天然气地球科学, 25: 62–69

郭召杰, 张志诚, 吴朝东, 方世虎, 张锐. 2006. 中、新生代天山隆升过程及其与准噶尔、阿尔泰山比较研究. 地质学报, 80: 1–15

郭召杰, 吴朝东, 张志诚, 陈伟. 2011. 准噶尔盆地南缘构造控藏作用及大型油气藏勘探方向浅析. 高校地质学报, 17: 185–195

何文祥, 王培荣, 潘贤庄, 王峰. 2004. 莺-琼盆地原油的蒸发分馏作用, 石油勘探与开发, 31: 52–54

黄海平, 张水昌, 苏爱国. 2001. 油气运移聚集过程中的地球化学作用. 石油实验地质, 23: 278–284

胡玲, 何登发, 胡道功. 2005. 准噶尔盆地南缘霍尔果斯-玛纳斯-吐谷鲁断裂晚新生代构造变形的ESR测年证据. 地球学报, 26: 121–126

康素芳, 王绪龙, 廖健德, 周妮, 罗玲. 2008. 准噶尔盆地霍尔果斯油气田油气特征及油气充注次序. 特种油气藏, 15: 20–23

况军, 贾希玉. 2005. 喜马拉雅运动与准噶尔盆地南缘油气成藏. 新疆石油地质, 26: 129–133

况军, 齐雪峰. 2006. 准噶尔前陆盆地构造特征与油气勘探方向. 新疆石油地质, 27: 5–9

梁狄刚, 陈建平, 张宝民, 张水昌, 王飞宇, 赵孟军. 2003. 塔里木盆地库车坳陷陆相油气的生成. 北京: 石油工业出版社. 1–265

廖健德, 吴运强, 赵增义, 景文, 地里达尔. 2006. 准噶尔盆地霍尔果斯地区油气成因研究. 天然气勘探与开发, 29: 21–23

廖健德, 赵增义, 马万云, 郭印兴, 沈南, 周妮. 2011. 准噶尔盆地呼图壁气田油气成因及成藏分析. 新疆地质, 29: 453–456

刘建, 张文慧, 高翠欣, 倪倩, 袁红英. 2016. 准南霍玛吐背斜带天然气成因类型及来源. 海洋地质与第四纪地质, 36: 135–141

卢松年, 张刚. 1994. 一种新的凝析油形成模式. 中国科学 B辑, 24: 81–86

马柯阳. 1995. 凝析油形成新模式——原油蒸发分馏机制研究. 地球科学进展, 10: 567–571

马柯阳, 范璞. 1995. 塔北沙18井石炭系蒸发分馏成因凝析油确认的地球化学证据. 科学通报, 40: 1785–1787

邱楠生, 王绪龙, 杨海波, 向英. 2001. 准噶尔盆地地温分布特征. 地质科学, 36: 350–358

邱楠生, 杨海波, 王绪龙. 2002. 准噶尔盆地构造-热演化特征. 地质科学, 37: 423–429

苏爱国, 张水昌, 向龙斌, 王小强. 2000. 相控和气洗分馏作用对油气组分及碳同位素组成的影响. 地球化学, 29: 549–555

苏爱国, 朱扬明, 梁狄刚, 韩德馨, 张水昌, 王延斌, 黄海平. 2003. 青海柴达木盆地南八仙油气田油源与成藏机理. 地球化学, 32: 393–399

苏爱国, 张水昌, 韩德馨, 王延斌. 2004. PVT分馏实验中链状烷烃分子的行为. 沉积学报, 22: 354–358

苏奥, 陈红汉, 王存武. 2013. 东海盆地西湖凹陷油气成因及成熟度判别. 石油勘探与开发, 40: 521–527

苏奥, 陈红汉. 2015. 东海盆地西湖凹陷油岩地球化学特征及原油成因来源. 地球科学——中国地质大学学报, 40: 1072–1082

王培荣. 2011. 烃源岩与原油中轻馏分测定及其地球化学应用. 北京: 石油工业出版社. 1–312

王社教, 胡圣标, 李铁军, 汪集旸, 赵文智. 2000a. 准噶尔盆地大地热流. 科学通报, 45: 1327–1332

王社教, 胡圣标, 汪集旸. 2000b. 准噶尔盆地热流及地温场特征. 地球物理学报, 43: 771–779

王铁冠, 钟宁宁, 侯读杰, 黄光辉, 于志海, 杨池银, 廖前进. 1995. 细菌在板桥凹陷生烃机制中的作用. 中国科学 B辑, 25: 882–889

王绪龙, 支东明, 王屿涛, 陈建平, 秦志军, 刘德光, 向英, 蓝文芳, 李娜. 2013. 准噶尔盆地烃源岩与油气地球化学. 北京: 石油工业出版社. 1–565

王宗秀, 李涛, 张进, 柳永清, 马宗晋. 2008. 博格达山链新生代抬升过程及意义. 中国科学 D辑: 地球科学, 38: 312–326

新疆油气区石油地质志编写组. 1991. 新疆油气区: 准噶尔盆地. 中国石油地质志, 卷15, 北京: 石油工业出版社. 1–390

杨海波, 陈磊, 孔玉华. 2004. 准噶尔盆地构造单元划分新方案. 新疆石油地质, 25: 686–688

张斌, 黄凌, 吴英, 王辉, 崔洁. 2010. 强烈气洗作用导致原油成分变化的定量计算: 以库车坳陷天然气藏为例. 地学前缘, 17: 270–279

张水昌. 2000. 运移分馏作用: 凝析油和蜡质油形成的一种重要机制. 科学通报, 45: 667–670

朱扬明, 苏爱国, 梁狄刚, 程克明. 2003. 柴达木盆地北缘南八仙油气藏的蒸发分馏作用. 石油学报, 24: 31–35

BeMent W O, Levey R A, Mango F D. 1995. The temperature of oil generation as defined with C7 chemistry maturity parameter (2,4-DMP/2,3-DMP ratio). In: Grimalt J O, Dorronsoro C, eds. Organic Geochemistry: Development and Applications to Energy, Climate,

Environment and Human History. AIGOA, Donostia-San Sebastian, Spain. 505–507

Boreham C J, Powell T G. 1993. Petroleum source rock potential of coal and associated sediments: Qualitative and quantitative aspects. In: Law B E, Eice D D, eds. Hydrocarbon from Coal. AAPG Studies Geol, 38: 133–157

Carroll A R, Brassell S C, Graham S A. 1992. Upper Permian lacustrine oil shales, Southern Junggar Basin, Northwest China. AAPG Bull, 76: 1874–1902

Curiale J A, Bromley B W. 1996a. Migration of petroleum into Vermilion 14 field, Gulf Coast, U.S.A. —Molecular evidence. Org Geochem, 24: 563–579

Curiale J A, Bromley B W. 1996b. Migration induced compositional changes in oils and condensates of a single field. Org Geochem, 24: 1097–1113

Dzou L I P, Hughes W B. 1993. Geochemistry of oils and condensates, K Field, offshore Taiwan: A case study in migration fractionation. Org Geochem, 20: 437–462

Graham S A, Brassell S, Carroll A R, Xiao X, Demaison G, McKnight C L, Liang Y, Chu J, Hendrix M S. 1990. Characteristics of selected petroleum source rocks, Xinjiang Uygur Autonomous Region, Northwest China. AAPG Bull, 74: 493–512

Hendrix M S, Dumitru T A, Graham S A. 1994. Late Oligocene-early Miocene unroofing in the Chinese Tian Shan: An early effect of the India-Asia collision. Geology, 22: 487–490

Horsfield B, Schenk H J, Mills N, Welte D H. 1992. An investigation of the in-reservoir conversion of oil to gas: Compositional and kinetic findings from closed-system programmed-temperature pyrolysis. Org Geochem, 19: 191–204

Kvalheim O M, Christy A A, Telnæs N, Bjørseth A. 1987. Maturity determination of organic matter in coals using the methylphenanthrene distribution. Geochim Cosmochim Acta, 51: 1883–1888

Larter S, Mills N, 1991. Phase-controlled molecular fractionation in migrating petroleum charges. In: England W A, Fleet A J, eds. Petroleum Migration. Geol Soc Spec Publ. 59: 137–147

Losh S, Cathles Iii L. 2010. Phase fractionation and oil-condensate mass balance in the South Marsh Island Block 208–239 area, offshore Louisiana. Mar PetGeol, 27: 467–475

Losh S, Cathles L, Meulbroek P. 2002. Gas washing of oil along a regional transect, offshore Louisiana. Org Geochem, 33: 655–663

Mango F D. 1987. A aivariance in the isoheptanes of petroleum. Science, 273: 514–517

Mango F D. 1990. The origin of light hydrocarbons in petroleum: A kinetic test of the steady-state catalytic hypothesis. Geochim Cosmochim Acta, 54: 1315–1323

Mango F D. 1994. The origin of light hydrocarbons in petroleum: Ring preference in the closure of carbocyclic rings. Geochim Cosmochim Acta, 58: 895–901

Mango F D. 1997. The light hydrocarbons in petroleum: A critical review. Org Geochem, 26: 417–440

Masterson W D, Dzou, L I P, Holba A G, Fincannon A L, Ellis L. 2001. Evidence for biodegradation and evaporative fractionation in West Sak, Kuparuk and Prudhoe Bay field areas, North Slope, Alaska. Org Geochem, 32: 411–441

Peters K E, Walters C C, Moldowan J M. 2005. The Biomarker Guide: Biomarkers and Isotopes in Petroleum Exploration and Earth History. 2nd ed. Part II. Cambridge: Cambridge University Press. 475–1155

Radke M. 1987. Organic geochemistry of aromatic hydrocarbons. In: Brooks J, Welte D, eds. Advances in Petroleum Geochemistry, 2. London: Academic Press. 141–207

Radke M, Welte D H. 1983. The methylphenanthrene index (MPI): A maturity parameter based on aromatic hydrocarbons. In: Bjorøy M, Albrecht P, Cornford C, eds. Advances in Organic Geochemistry 1981. New York: J. Wiley and Sons. 504–512

Radke M, Welte D H, Willsch H. 1986. Maturity parameters based on aromatic hydrocarbons: Influence of the organic matter type. Org Geochem, 10: 51–63

Snowdon L R, Powell T G. 1982. Immature oil and condensates-modification of hydrocarbon generation model for terrestrial organic matter. AAPG Bull, 66: 1422–1426

Snowdon L R. 1991. Oil from Type III organic matter: Resinite revisited. Org Geochem, 17: 743–747

Thompson K F M. 1979. Light hydrocarbons in subsurface sediments. Geochim Cosmochim Acta, 43: 657–672

Thompson K F M. 1983. Classification and thermal history of petroleum based on light hydrocarbons. Geochim Cosmochim Acta, 47: 303–316

Thompson K F M. 1987. Fractionated aromatic petroleums and the generation of gas-condensates. Org Geochem, 11: 573–590

Thompson K F M. 1988. Gas-condensate migration and oil fractionation in deltaic systems. Mar PetGeol, 5: 237–246

Thompson K F M. 2010. Aspects of petroleum basin evolution due to gas advection and evaporative fractionation. Org Geochem, 41: 370–385

Thompson K F M. 2016. Hybrid gas condensates and the evolution of their volatile light hydrocarbons. Org Geochem, 93: 32–50

Tissot B P, Welte D H. 1984. Petroleum Formation and Occurrence. Berlin-Heidelberg-New York-Tokyo: Springer-Verlag. 1–699

Walters C C. 1990. Organic geochemistry of gases and condensates from block 511A High Island south addition offshore Texas, Gulf of Mexico. In: Schumacher D, Perkins B, eds. Gulf Coast Oils and Gases. Proceedings of the Ninth Annual Research Conference, GCS/SEPM Foundation: Arlington, Texas. 85–198