

# 实验方法评价松辽盆地烃源岩的生排烃效率

陈瑞银<sup>1,2</sup>, 王汇彤<sup>1,2</sup>, 陈建平<sup>1,2</sup>, 刘玉莹<sup>1,3</sup>

(1. 中国石油天然气股份有限公司勘探开发研究院, 北京 100083;

2. 提高石油采收率国家重点实验室, 北京 100083; 3. 中国地质大学, 北京 100083)

**摘要:**针对烃源岩生排烃效率评价现有方法的不足和第四次油气资源评价研究的需要,基于模拟地质条件的最新生排烃实验平台,以白垩系烃源岩为例,开展了松辽盆地烃源岩生排烃条件和过程的模拟实验。结合包括轻烃在内的产物计量方法探索,对实验产烃量进行计量;通过实验产物的 H/C 原子比数据,对干酪根热成熟度进行标定,获得实验点所对应的地质  $R_o$  值;从而实现了松辽盆地白垩系烃源岩在各热演化阶段的生排烃效率厘定。结果表明,轻烃在总烃中的含量为 5%~29%,并有随实验热演化程度升高的特征,在生油高峰期的轻烃含量约为 25%,从而弥补了传统实验和利用岩心残留烃分析排烃效率方法中缺少轻烃组分的缺憾;通过生排烃效率曲线显示,松辽盆地白垩系烃源岩的最大生油效率为 680mg/g<sub>TOC</sub>,生油高峰期对应的绝对排烃效率为 57%。对压力的影响分析认为,压力确实影响热成熟演化,在生油阶段对  $R_o$  的抑制约为 0.2%;压力的释放促进排烃,是导致岩心滞留烃量降低和轻烃散失的主要原因,仅轻烃散失造成的生油高峰期绝对排烃效率偏差值就达 18%。常规方法低估了地质实际的滞留烃量,深层找气的前景乐观。

**关键词:**松辽盆地;生排烃;排烃效率;模拟实验;轻烃;压力

**中图分类号:**TE122.1

**文献标志码:**A

**文章编号:**1672-1926(2015)05-0915-07

**引用格式:**Chen Ruiyin, Wang Huitong, Chen Jianping, *et al.* An experimental method to evaluate the hydrocarbon generation and expulsion efficiency in the Songliao Basin[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2015, 26(5): 915-921. [陈瑞银, 王汇彤, 陈建平, 等. 实验方法评价松辽盆地烃源岩的生排烃效率[J]. *天然气地球科学*, 2015, 26(5): 915-921.]

## 0 引言

地质历史中,烃源岩生烃后紧接着排烃,两者互相影响。滞留在烃源岩内的液态烃,会在后续地质过程中继续演化,进而裂解成气。排出烃量和滞留烃量的多少,分别决定了常规油气与页岩油气成藏的规模。因此,研究烃源岩的生排烃并厘定其效率,意义重大。排烃研究方法很多,但也仍存在一定的局限性<sup>[1]</sup>。我们也注意到,在对钻井岩心和露头剖面样本的烃源岩残留烃分析数据中,残留烃量一般都较低,排烃效率普遍很高,这与近年来的页岩油、页岩气勘探突破相矛盾<sup>[2-4]</sup>。这种高排烃效率的认识,会让我们对页岩油气资源的潜力做出悲观的判

断。因此生排烃效率的研究和再评价,既是一个石油地质理论问题,在全国第四次油气资源评价工作中,也突显其重要的现实意义。松辽盆地作为中国第一个特大型油田的发现地,本文以其白垩系青山口组为例,利用最新生排烃实验方法,对其烃源岩生排烃效率进行再评价,具有一定的代表性,希望探索一套烃源岩生排烃评价新方法。

## 1 生排烃实验方法

### 1.1 地质背景与实验模型

松辽盆地为我国东部大型中、新生代具有断一拗双重结构的陆相沉积盆地,在大型拗陷发育的主沉积期,沉积了盆地内主要生油层——下白垩统青

山口组黑色泥岩。现今平均地温梯度为 3.8~4.2°C/100m,大地热量值为 1.70HFU。古地温梯度高(5.6°C/100m),是得以在嫩三期陆续生油的主因之一,天然气以成熟湿气为主。

以长深 1 井的埋藏史模型为参照<sup>[5]</sup>,确定实验的静岩压力和流体压力条件;参照 Lewan<sup>[6]</sup>的加水封闭实验,确定实验温度点和加热时间, $R_0$  为根据无压力条件下的 Easy  $R_0$  方法计算获得的参考值,实验参数如表 1 所示。其中,实验加热程序是从 20°C 快速升至目标温度,然后恒温 72~240h,总共在 300~370°C 段进行 10 个实验点的模拟;流体压力由实验中加入的蒸馏水压和生烃增压来实现;排烃阈值为  $\pm 3$ MPa,即在生烃过程中生烃增压排烃,让样品反应釜内的流体压力始终维持在设定压力值的  $\pm 3$ MPa 范围内。实验样品选自盆地达 11 井的上白垩统青山口组深灰色泥岩,其成熟度低( $R_0 = 0.53\%$ ),有机碳含量为 3.99%,游离烃、热解烃含量分别为 1.55mg/g 和 33.08mg/g,氢指数为 829mg/g<sub>TOC</sub>,属于 I 型干酪根。实验前,样品用蒸馏水洗净后自然晾干,然后粉碎至 30~90 目。

## 1.2 实验实现

实验设备为“提高石油采收率”国家重点实验室自主研发的生排烃实验系统,由 4 个主要模块构成:加热模块,通过热电偶对密封在釜体内的样品进行加热,由电脑控制温度和温度变化速率;加压模块,通过油泵的施压部件分别对样品和釜体进行施压,来模拟地层所受的静岩压力和对釜体进行密封;流体压力模拟与排烃控制模块,通过水压泵和自研的排烃控制专利装置,来实现模拟样品在地层中的孔隙流体压力,并按照实验要求,可模拟幕式、渗流等各种模式的排烃;产物收集计量模块,通过半导体冷阱装置和气液分离罐(或其他装置)来实现气液两相产物的分离和收集计量。整个实验系统中,实验流体产物在高压釜体内产生,经过连接各模块的导管,依次流向排烃控制模块、产物收集计量模块。

实验过程主要步骤:①称取 100g 样品,装入高压釜内的样品室内,依次安装各密封和施压套件,然后把高压釜置入加热炉内,施压固定和密封釜体,连接排烃管路;②连接高压釜、排烃装置、产物分离收集装置各管路后,注入 0.5MPa 左右的氦气以检验系统的密封性,100min 压降小于 0.005MPa 为合格,然后抽真空,反复 3 次,以达到置换空气和抽真空目的;③打开导体冷阱,使气液分离罐维持-20°C 低温,在实验控制计算机上输入各模拟实验参数以

及温度控制程序,选择运行记录和自动运行键,运行实验,加热、加压、排烃等实验过程开始自动进行;④实验结束后按照装样的逆顺序卸样,用二氯甲烷冲洗样品室内固体残渣表面、釜体内壁以及排烃管路,所得洗出烃与气液分离收集装置内的液态烃合计为排出液态烃;固体残渣粉碎后的二氯甲烷抽提物计为滞留油;所有收集到的气体计为气体产物,常温常压下计量总体积,通过色谱分析组分,计量气态烃含量。

## 2 产物计量方法

模拟生排烃地质环境为特点的新实验技术方法,虽然能够更好地定量评价生排烃效率<sup>[7]</sup>,但与传统实验一样,仍存在不能对液态烃产物精确计量的老问题,其中易挥发的轻烃组分( $C_5-C_{14}$ )对计量结果的影响最大。传统自然恒重方法有效计量了  $C_{14+}$  的液态烃,后来热蒸发技术可检测部分轻烃<sup>[8-10]</sup>,但仍未实现对轻烃全组分的计量。对于无水无渣样品的轻烃计量,近来又出现了全密封、低沸点溶剂冷抽提<sup>[11-13]</sup>、结合高效气相色谱分析等新方法<sup>[13-17]</sup>,说明对含轻组分液态烃的计量是个难题。虽然色谱分析方法可以不顾色谱柱老化直接带溶剂进行检测<sup>[13,18]</sup>,但本文实验排出液态烃产物是油、水、岩石矿物悬浮颗粒的混合物,需要进行除水、除渣等前处理操作,还是造成了轻烃损失,其损失量也无法估量校正。

针对以上问题,本研究探索了一套新计量方法。该方法把前处理和称量操作集成在一套特制装置里进行,用 0.1mg 精度分析天平密闭称重来计量。其特制装置(以下简称收集分液管)位于生排烃实验第四步的气液分离收集位置,特点是:①质量足够小而容积足够大,质量小是为了满足分析天平计量精度和量程的限制,容积大是为了能一次性保存所有液体产物及加入少量溶剂;②耐一定气压,因为排烃时会有瞬时高压;③耐低温不变形,便于气液的分离和轻烃保存,并防止水结冰爆裂;④可视化,以便于观察分液界面位置;⑤端口便于密封和与前后端设备的连接。收集分液管的功能有 4 个:密封收集和保存  $C_4+$  以上轻烃在内的液体产物、气液相产物分离、实现分液漏斗的功能和称量用容器的功能。

步骤如下:①收集分液管代替原实验的气液分离罐,并置入-20°C 冷阱内,以便收集分离包括轻烃在内的排出液态烃;②实验完毕后,在低温冷冻状态卸下收集分液管并快速密封端口,称总重( $M_1$ );③加入适量溶剂(二氯甲烷或氯仿),在溶剂保护下密

封常温解冻;④充分震荡后静止,待装置内的溶液分层,上层为水和较轻的岩石残渣悬浮物,下层为溶液和较重的岩石残渣悬浮物;⑤打开收集分液管下端口,分离液体,使下层溶液完全滴出并进入过滤装置,再次称量收集分液管总重( $M_2$ );⑥对上一步骤滴出的溶液进行过滤,获得固体残渣并称重( $M_3$ );⑦计算包括轻烃在内的液态烃总质量( $M$ ), $M = M_1 - M_2 - M_3$ 。

图 1 显示了分别用新方法和已有方法计量排出液态烃量的结果。随实验温度的升高,排出液态烃的产率都在增加,但 3 种方法的数值在相同温度点上存在明显的不同,而且随着温度的升高,差异性更明显。这种差别反映了轻烃的损失量。自然恒重方法是挥发溶剂后恒重的结果,轻烃基本跑光,因此计量到的为正常油,在色谱图上主要为  $C_{14+}$  的烃类峰, $C_5-C_{14}$  轻烃峰极低或未见。全二维气相色谱分析方法(GC×GC-FID)在过滤和浓缩前处理时,有部分轻烃的散失,但还有低碳数烃的存在,计量结果居中。本文新方法由于是低温分离后称量的原位密封物质和不挥发物质,计量包含了所有  $C_4+$  的轻烃组分,计量结果最大。显然,新方法与自然恒重法的计量结果差值,可以认为代表液态烃中轻烃的量。图中曲线对比可见,随着实验温度升高,样品成熟度增加,轻烃含量越高,在总烃中的比例为 5%~29%。

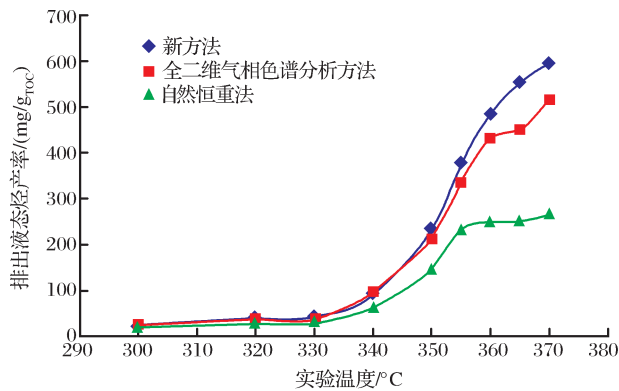


图 1 3 种方法计量排出液态烃产率对比

Fig. 1 Comparison of results obtained with different methods for expelled liquid hydrocarbon yield

### 3 成熟度标定

热演化和生烃是 2 个相关联但又不同的过程,前人<sup>[19-20]</sup>已发现了用镜质体反射率来标定生烃进程所存在的问题。在实验温度明显高于地质温度的情况下,干酪根大分子的芳构化反应速率加快,芳构化程度更高,造成镜质体表面更平,反射率值会偏大。

鉴于干酪根 H/C 原子比是干酪根质量好坏的最佳量度<sup>[21]</sup>,是标示干酪根转化程度的最佳方法,是干酪根转化为可溶烃的标志参数,不受芳构化程度的影响,与 Rock-Eval  $I_H$  值相比,更不受诸如矿物基质、沥青污染等的影响,用干酪根 H/C 原子比来评价实验样品的成熟度,具有明显的优势<sup>[22-23]</sup>。本文通过同类型地质样品的 H/C 原子比与  $R_o$  统计关系规律,以干酪根 H/C 原子比为桥梁,就可以把不同实验温度下的样品,标定到地质条件下所对应的地质成熟度坐标上。

对来自松辽盆地湖相 I 型泥岩样品 21 个、华北海相 I 型泥岩样品 26 个和鄂尔多斯盆地湖相 II<sub>1</sub> 型泥岩样品 15 个,经过干酪根富集和有机质溶剂抽提后,进行干酪根元素、镜质体反射率测定和相关关系分析,结果如图 2 所示。干酪根 H/C 原子比与  $R_o$  呈现相关度很高的对数函数关系,随着成熟度的增加,H/C 原子比迅速降低。

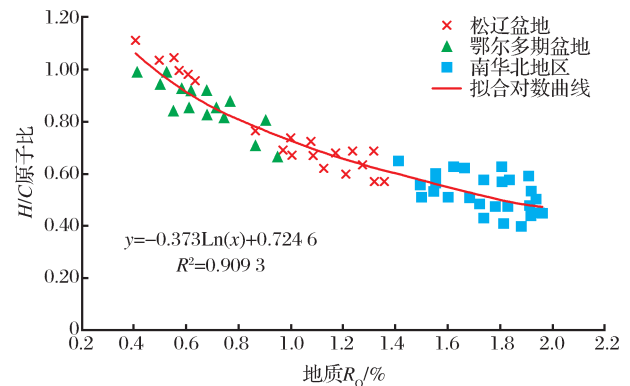


图 2 地质样品干酪根 H/C 原子比与成熟度  $R_o$  关系  
Fig. 2 Relationship between atomic ratio and vitrinite reflectance of geological sample's kerogen

同样方法,对 10 个生排烃实验固体残渣样品进行处理,测定其干酪根 H/C 原子比。根据以上获得的地质样品干酪根 H/C 原子比与  $R_o$  关系,可以获得相应实验温度点对应的地质  $R_o$  值,数据如表 1 所示。显然,Easy  $R_o$  值还是比标定后的地质  $R_o$  值高,实验产物实测  $R_o$  值比地质  $R_o$  值高 0.2%~0.35%。这种差别对评价烃源岩生油情况的影响极大。

### 4 生排烃效率

基于以上对实验产物的精确计量和成熟度的标定,可获得松辽盆地白垩系烃源岩在不同成熟时期的生排烃效率,如图 3 所示。图 3 中分别标示了气态烃、滞留烃、排出烃和总烃的产率,以阶段产烃率为分母计算所得排烃效率定义为相对排烃效率,以最大生

烃潜力为分母计算所得排烃效率定义为绝对排烃效率。整体上,松辽盆地白垩系源岩在  $R_o$  值为 0.5% 时开始生烃,0.8%~1.0% 达到生烃高峰,产烃率为 680mg/g<sub>TOC</sub>,1.3% 时的产烃率为 800mg/g<sub>TOC</sub>,生烃潜力释放殆尽。其中,气态烃产率在 1.3% 以前一直不高,不超过 100mg/g<sub>TOC</sub>;滞留烃量在  $R_o$  值为 0.8%~

1.0% 达到最大值 220mg/g<sub>TOC</sub>,之后逐渐降低;排出烃产率随着成熟度增加而增加,在 0.8%~1.0% 最强并超过滞留烃产率,之后增长趋势逐渐消减。从滞留烃与排出烃的变化特征上可以看出,排出烃快速增加的时机与滞留烃降低的时机基本相同,也是总产烃率增长最快的时候。

表 1 生排烃实验参数与成熟度地质标定数值

Table 1 The experimental parameters and calibration values of geological maturity

岩石密度 /(g/cm <sup>3</sup> )	埋深 /m	静岩压力 /MPa	静水压力 /MPa	Easy $R_o$ /%	模拟温度 /°C	排烃压力 /MPa	恒温时间 /h	实测 $R_o$ /%	地质 $R_o$ /%
2.47	1 800	44	18	0.60	300	±3	72	0.68	0.41
2.48	1 900	47	19	0.70	320	±3	72	0.79	0.53
2.49	2 000	50	20	0.80	330	±3	72	0.89	0.54
2.50	2 100	53	22	0.90	340	±3	72	0.98	0.71
2.51	2 200	55	23	1.00	350	±3	72	1.07	0.88
2.52	2 300	58	24	1.10	355	±3	72	1.19	0.95
2.53	2 400	61	25	1.20	360	±3	84	1.24	1.05
2.54	2 500	64	26	1.30	360	±3	96	1.30	1.13
2.56	2 700	69	28	1.55	365	±3	120	1.45	1.21
2.59	3 000	78	31	2.00	370	±3	240	1.68	1.34

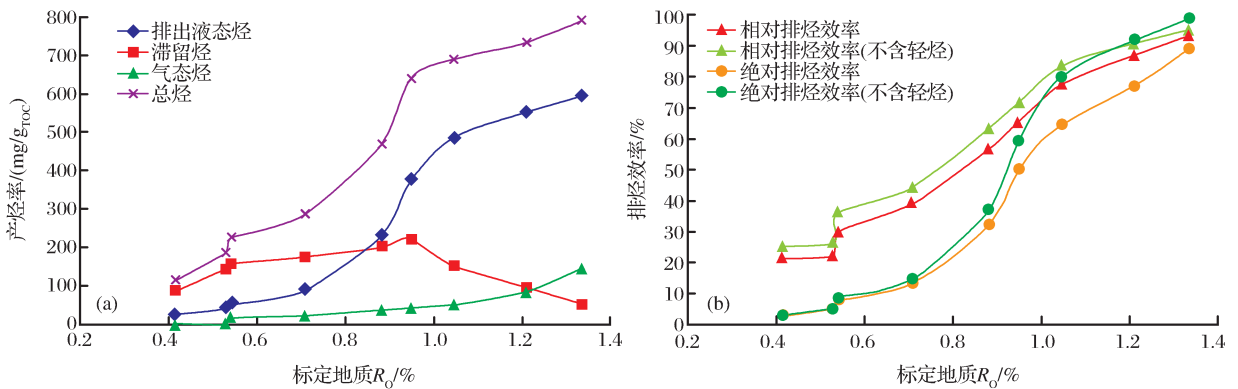


图 3 松辽盆地白垩系生排烃效率

Fig. 3 Hydrocarbon generation and expulsion efficiency of Cretaceous shale samples in Songliao Basin

对于排烃效率,不管是否包含轻烃,都是随成熟度的升高而增大,生油高峰时期的增速最大;在早期阶段,相对排烃效率明显比绝对排烃效率高,在高过成熟阶段两者趋近。在  $R_o$  值为 0.8%~1.0% 的生油高峰期,最大相对排烃效率为 73%,最大绝对排烃效率为 57%;不含轻烃的最大相对排烃效率为 78%,不含轻烃的最大绝对排烃效率为 73%。人们习惯上把绝对排烃效率叫作排烃效率,本文生油高峰期包含轻烃的最大排烃效率值与前人数学模拟结果(53%)<sup>[24]</sup> 近似,考虑到实验温度引起液态烃相变而利于排烃的因素,57% 应该已经是松辽盆地白垩系烃源岩在生油高峰期的排烃效率上限。

## 5 压力的影响

影响生排烃的因素很多,基于本文实验中模拟压力和排烃的特色,主要分析压力对成熟度的影响,以及压力释放与轻烃散失对排烃效率的影响。

关于压力对有机质热成熟的影响,前人已做了大量研究并有 3 种不同的认识<sup>[25-37]</sup>。表 1 数据显示,用 H/C 原子比标定后的地质  $R_o$  值总是比 Easy  $R_o$  值小;在样品大量生气之前,数值小约为 0.2%,大量生气后的差值更大。Easy  $R_o$  是基于化学反应动力学所得<sup>[35]</sup>,没有考虑压力对热演化生烃的影响,只适于开放系统,而本文实验为半封闭系统,模拟了一定地

质压力条件。由此推断,标定后的地质  $R_o$  与 Easy  $R_o$  间 0.2% 的差别,可能就是压力造成的,并表现为对地质热成熟演化的抑制。图 4 显示了模拟 10MPa 和 100MPa 地层压力下半封闭体系实验的产物实测  $R_o$ , 高压系列实验残渣实测  $R_o$  值比低压系列低 0.1%~0.4%。由此可见,不管是地质条件还是实验条件,压力对热成熟演化的影响确实存在,都表现为抑制作用,在生油阶段对  $R_o$  的抑制约为 0.2%,生气阶段的抑制量则更大。

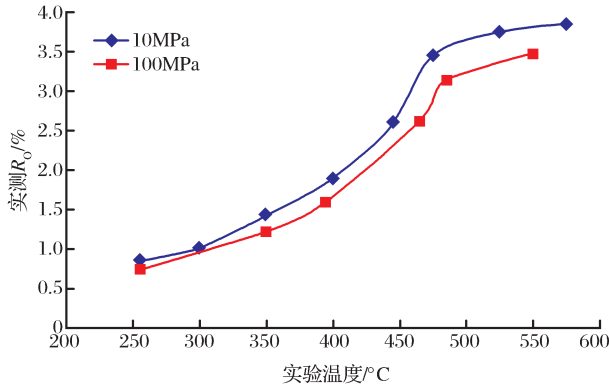


图 4 不同压力对半封闭实验产物的  $R_o$  影响

Fig. 4 Effect of pressure on  $R_o$  of sample in semi-open system experiment

众所周知,岩心库存放的岩心,虽取自井下地层,但常压放置的时间多在 3 个月以上,甚至达到 10 年以上,周围压力从几十个兆帕降低到常压,在如此高压梯度的驱动下,滞留液态烃部分排出,表面渗出的液态烃被涂抹和氧化,占总烃 5%~29% 的轻烃也将散失,色谱图中已难以显示  $C_9$ - 组分的存在。因此长期放置岩心的游离烃含量,代表了常温常压下它所能保存游离烃的最大能力,数值与岩性有关。据松辽盆地多口钻井岩心的统计结果,其最大游离烃含量  $S_1/TOC$  值约为 200mg/g<sub>TOC</sub>。

本文另一组实验进一步证实了压力释放确实影响了排烃。实验以达 11 井上白垩统青山口组的另一段样品( $TOC$  值为 5.08%,  $S_2$  值为 42.63mg/g,  $I_H$  值为 839mg/g<sub>TOC</sub>)为实验样品,按照前面的实验条件进行了 355°C 的生排烃实验,实验完毕后实验残渣常温常压放置,每隔一定时间取其一部分,对滞留烃量进行抽提定量(二氯甲烷为溶剂,碎样粒度小于 60 目,超声抽提 5 次至清澈,每次 30min),不同时间所抽提的滞留烃含量如图 5 所示。随着放置时间的增加,滞留烃含量迅速降低,与时间呈很好的对数线性关系。巧合的是,实验残渣与地质岩心在长期放置时间后的游离烃含量相近,放置 3 月—3 年的滞留烃量为

180~250mg/g<sub>TOC</sub>。因此,实验样品滞留烃量随放置时间的变化特征,证实了压力对排烃的影响,长期放置的实验残渣与岩心滞留烃量的相似性,解释了地质岩心游离烃含量数据的涵义,也给了我们一个启示:用岩心库内常压长期放置岩心的残留烃分析数据,来估算排烃效率,结果是偏高于地下实际情况的。

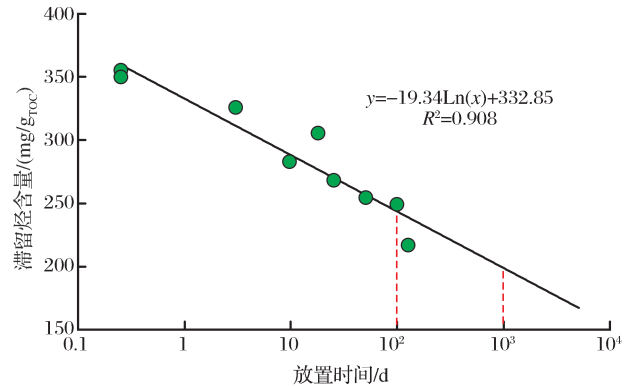


图 5 实验残渣滞留烃量随放置时间的关系

Fig. 5 Relationship between hydrocarbon retention amount and storage period of experimental sample

## 6 结论

(1)通过模拟地质压力与排烃条件的生排烃实验,经过包括轻烃在内的产物精确计量和成熟度的地质标定,可以获得可靠的烃源岩生排烃效率。松辽盆地白垩系青山口组烃源岩在生油阶段的最大产烃率为 680mg/g<sub>TOC</sub>,最大排烃效率为 57%,最大滞留烃量在 220mg/g<sub>TOC</sub> 以上。

(2)在生油阶段,轻烃在总烃中占 5%~29%,可为校正轻烃损失量提供一个参考范围。轻烃计量的差别,可以造成生油高峰期绝对排烃效率的差值达 18%,极大地影响烃源岩排烃效率的认识。

(3)压力对有机质热成熟演化起抑制作用,在生油阶段可造成  $R_o$  值约 0.2% 的降低,生气阶段的抑制作用更明显。

(4)压力的释放促进排烃,这是导致用一般钻井岩心滞留烃量估算排烃效率偏大的主要原因;松辽盆地白垩系烃源岩岩心游离烃量为 200mg/g<sub>TOC</sub>,是压力释放后排烃与轻烃散失的结果,低估了地质实际滞留烃量,深层找到大规模气的前景可以预见。

## 参考文献 (References):

- [1] Pang Xiongqi. Modeling of Geologic Process[M]. Beijing: Petroleum Industry Press, 2003: 1-487. [庞雄奇. 地质过程定量模拟 [M]. 北京: 石油工业出版社, 2003: 1-487.]
- [2] Hu Qingming. Exploration and development of shale gas in China

- achieving a major breakthrough[J]. *Energy Conservation in Petroleum & Petrochemical Industry*, 2014, 4(11): 52. [胡庆明. 我国页岩气勘探开发实现重大突破[J]. 石油石化节能, 2014, 4(11): 52.]
- [3] Wu Xin, Ren Zhiyong, Wang Yong, *et al.* Situation of world shale gas exploration and development[J]. *Resources & Industry*, 2013, 15(5): 61-67. [吴馨, 任志勇, 王勇, 等. 世界页岩气勘探发现现状[J]. 资源与产业, 2013, 15(5): 61-67.]
- [4] Yu Guoming, Xu Xu. Shale gas in Fuling: Historical breakthrough[J]. *China Petrochemical Industry*, 2014, (4): 13-16. [俞国明, 徐徐. 涪陵页岩气: 历史性突破[J]. 中国石化, 2014, (4): 13-16.]
- [5] Guo Wei, Yu Wenxiang, Liu Zhaojun, *et al.* The burial history of the southern Songliao Basin[J]. *Journal of Jilin University: Earth Science Edition*, 2009, 39(3): 353-360. [郭威, 宇文祥, 刘招君, 等. 松辽盆地南部埋藏史[J]. 吉林大学学报: 地球科学版, 2009, 39(3): 353-360.]
- [6] Lewan M D. Laboratory Simulation of Petroleum Formation Hydrolysis[M]. *Organic geochemistry*, edited by Michael H. Engel and Stephen A. Macko. New York: Plenum Press, 1993: 419-440.
- [7] Zheng Lunju, Qin Jianzhong, He Sheng, *et al.* Preliminary study of formation porosity thermo compression simulation experiment of hydrocarbon generation and expulsion[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2009, 31(3): 296-302. [郑伦举, 秦建中, 何生, 等. 地层孔隙热压生排烃模拟实验初步研究[J]. 石油实验地质, 2009, 31(3): 296-302.]
- [8] Qian Zhihao, Cao Yulan, Rong Zhengguang. Light hydrocarbon determination with thermal evaporation method[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 1982, 4(4): 280-284. [钱志浩, 曹玉兰, 荣正光. 热蒸发法测定轻烃[J]. 石油实验地质, 1982, 4(4): 280-284.]
- [9] Qian Zhihao, Cao Yin, Wang Congfeng, *et al.* The New Progress of Petroleum Geological Test Technology [M]. Beijing: Geological Publishing House, 1994: 1-194. [钱志浩, 曹寅, 王从风, 等. 石油地质实验测试技术新进展[M]. 北京: 地质出版社, 1994: 1-194.]
- [10] Qin Jianzhong, Qian Zhihao, Cao Yin, *et al.* New techniques in oil and gas geochemical exploration[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2005, 27(5): 519-528. [秦建中, 钱志浩, 曹寅, 等. 油气地球化学新技术新方法[J]. 石油实验地质, 2005, 27(5): 519-528.]
- [11] Liu Weixin, Ba Liqiang, Zhang Meizhen, *et al.* New technological advances in petroleum exploration[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2003, 25(6): 777-782. [刘伟新, 把立强, 张美珍, 等. 石油地质分析测试技术新进展[J]. 石油实验地质, 2003, 25(6): 777-782.]
- [12] Jiang Qigui, Chen Weijun, Jin Juchang, *et al.* Analysis method of light hydrocarbon with low boiling-point from source rocks[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2004, 26(5): 492-495. [蒋启贵, 陈伟钧, 金聚畅, 等. 岩石低沸点轻烃指纹分析方法研究[J]. 石油实验地质, 2004, 26(5): 492-495.]
- [13] Jiang Qigui, Zhang Caiming, Zhang Meizhen, *et al.* Research on the quantitative analysis method of C<sub>6</sub>-C<sub>15</sub> light hydrocarbon in source rock samples[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2007, 29(5): 512-521. [蒋启贵, 张彩明, 张美珍, 等. 岩石 C<sub>6</sub>-C<sub>15</sub> 轻烃定量分析方法研究[J]. 石油实验地质, 2007, 29(5): 512-521.]
- [14] Xiong Yongqiang, Geng Ansong, Wang Yunpeng, *et al.* Experimental research of kerogen secondary hydrocarbon generation kinetics[J]. *Science in China: Series D*, 2001, 31(4): 315-320. [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[J]. 中国科学: D 辑, 2001, 31(4): 315-320.]
- [15] Wang Huitong, Zhang Shuichang, Weng Na, *et al.* Analysis of condensate oil by comprehensive two-dimensional gas chromatography[J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2012, 39(1): 123-128. [王汇彤, 张水昌, 翁娜, 等. 凝析油全二维气相色谱分析[J]. 石油勘探与开发, 2012, 39(1): 123-128.]
- [16] Adahchour M, Beens J, Vreuls R J J, *et al.* Recent developments in comprehensive two-dimensional gas chromatography (GC×GC): Introduction and instrumental setup[J]. *Trends in Analytical Chemistry*, 2006, 25(5): 438-454.
- [17] Reddy C M, Nelson R K, Sylva S, *et al.* Identification and quantification of alkene-based drilling fluids in crude oils by comprehensive two-dimensional gas chromatography with flame ionization detection[J]. *Journal of Chromatography A*, 2007, 1148(1): 100-107.
- [18] Wang Zhaoyun, Cheng Keming, Zhang Baisheng, *et al.* The study on simulation experiments of hydrocarbon generation and expulsion of mud limestone[J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 1996, 14(1): 127-134. [王兆云, 程克明, 张柏生, 等. 泥灰岩的生排烃模拟实验研究[J]. 沉积学报, 1996, 14(1): 127-134.]
- [19] Hao Fang. Kinetics of Hydrocarbon Generation and Mechanisms of Petroleum Accumulation in Overpressured Basins[M]. Beijing: Science Press, 2005: 1-406. [郝芳. 超压盆地生烃作用动力学与油气成藏机理[M]. 北京: 科学出版社, 2005: 1-406.]
- [20] Chen Jianyu, Hao Fang. Improvement of organic petrology studying types and maturity of organic matter[J]. *Petroleum Geology and Experiment*, 1990, 12(4): 426-431. [陈建渝, 郝芳. 有机岩石学研究有机质类型和成熟度的改进[J]. 石油实验地质, 1990, 12(4): 426-431.]
- [21] Jones R W, Edison T A. Microscopic observations of kerogen related to geochemical parameters with emphasis on thermal maturation[M]//Oltz D F. *Low Temperature Metamorphism of Kerogen and Clay Minerals*; SEPMP, Los Angeles: Pacific Section, 1978: 1-12.
- [22] Horsfield B. Practical criteria for classifying kerogens; Some observations from pyrolysis-gas chromatography[J]. *Geochim Cosmochim Acta*, 1989, 53(4): 891-901.
- [23] Baskin D K. Atomic H/C ratio of kerogen as an estimate of thermal maturity and organic matter conversion[J]. *AAPG Bulletin*, 1997, 81(9): 1437-1450.
- [24] Braun R L, Burnham A K. Mathematical model of oil generation, degradation and expulsion[J]. *Energy Fuels*, 1990, 4(1): 132-146.
- [25] Chandra D. Reflectance of coals carbonized under pressure[J]. *Economic Geology*, 1965, 60(3): 621-629.
- [26] Hryckowian E, Dutcher R R, Dachille F. Experimental studies

- of anthracite coals at high pressures and temperatures[J]. *Economic Geology*, 1967, 62(4): 517-539.
- [27] Yang Tianyu, Wang Hanyun. Simulation experiment of organic matter in high temperature and high pressure[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 1987, 8(4): 380-389. [杨天宇, 王涵云. 岩石中有机质高温高压模拟实验[J]. 石油与天然气地质, 1987, 8(4): 380-389.]
- [28] Huang Jianquan, Zhou Zhongyi, Fan Shanfa. High Temperature and High Pressure Experimental Study on the Formation of Deep Basin Petroleum [M]. Nanjing: Jiangsu Science & Technology Press, 1992: 244-245. [黄健全, 周中毅, 范善发. 盆地深部油气形成的高温高压实验研究[M]. 南京: 江苏科学技术出版社, 1992: 244-245.]
- [29] Xie Qilai, Fan Shanfa, Zhou Zhongyi. Simulation experiment of pressure affecting on evolution and hydrocarbon generation of source rock[J]. *Mineral Rock Geochemistry Bulletin*, 1996, 15(2): 91-93. [解启来, 范善发, 周中毅. 压力对烃源层演化及产烃影响的模拟实验[J]. 矿物岩石地球化学通报, 1996, 15(2): 91-93.]
- [30] Sajgo C S, Mcevoy J, Wolof G A, *et al.* Influence of temperature and pressure on maturation process[J]. *Organic Geochemistry*, 1986, 10(1-3): 331-337.
- [31] Price L C, Wenger L M. The influence of pressure on petroleum generation and maturation as suggested by aqueous pyrolysis[J]. *Organic Geochemistry*, 1992, 19(1-3): 141-159.
- [32] Dalla Torre M, Mahlmann R F, Ernst W G. Experimental study on the pressure dependence of vitrinite maturity[J]. *Organic Geochemistry*, 1997, 61(4): 2921-2928.
- [33] Jiang Feng, Du Jianguo, Wang Wanchun, *et al.* Research on ultra high pressure high temperature simulation experiments: The influence of high temperature and pressure on organic matter maturation[J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 1998, 16(3): 153-160. [姜峰, 杜建国, 王万春, 等. 高温超高压模拟实验研究: 温压条件下对有机质成熟作用的影响[J]. 沉积学报, 1998, 16(3): 153-160.]
- [34] Hao Fang, Jiang Jianqun, Zou huayao, *et al.* The overpressure differently and levelly retard the organic matter evolution[J]. *Science in China: Series D*, 2004, 34(5): 443-451.
- [35] Sweeney J J, Burnham A K, Braun R L. A model of hydrocarbon generation from type one kerogen: Application to Uinta basin, Utah[J]. *AAPG Bulletin*, 1987, 71(8): 967-985.
- [36] Xiao Zhihua, Hu Guoyi, Li Zhisheng. Effect of pressure on hydrocarbon generation of source rock in close system[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2007, 18(2): 284-288. [肖芝华, 胡国艺, 李志生. 封闭体系下压力变化对烃源岩产气率的影响[J]. 天然气地球科学, 2007, 18(2): 284-288.]
- [37] Zhou Lihong, Yu Xuemin, Jiang Wenya, *et al.* Overpressure retardation of the thermal evolution of Paleogene source rocks and its significance for petroleum geology in Qikou Sag[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2013, 24(6): 1118-1124. [周立宏, 于学敏, 姜文亚, 等. 歧口凹陷异常压力对古近系烃源岩热演化的抑制作用及其意义[J]. 天然气地球科学, 2013, 24(6): 1118-1124.]

## An Experimental Method to Evaluate the Hydrocarbon Generation and Expulsion Efficiency in the Songliao Basin

CHEN Rui-yin<sup>1,2</sup>, WANG Hui-tong<sup>1,2</sup>, CHEN Jian-ping<sup>1,2</sup>, LIU Yu-ying<sup>1,3</sup>

(1. PetroChina Research Institute of Petroleum Exploration and Development, Beijing 100083, China; 2. State Key Laboratory of Enhanced Oil Recovery, Beijing 100083, China; 3. China University of Geosciences, Beijing 100083, China)

**Abstract:** The process and condition of hydrocarbon generation and expulsion has been simulated on the Cretaceous source rocks from the Songliao Basin, based on the latest experiment platform of hydrocarbon generation and expulsion. New hydrocarbon measurement method is used to acquire accurate data about experimental products including light hydrocarbon. The geological  $R_o$  are correlated with atomic H/C ratios of pyrolyzed kerogens from experimental solid products. Thus hydrocarbon generation and expulsion efficiency in the thermal evolution process is determined. Results show that, the content of light hydrocarbon is about 5%-29% and about 25% during the peak period of oil generation, and it increases with the increase of thermal maturation. The maximum amount of hydrocarbon generation is 680mg/g<sub>TOC</sub>, and the absolute hydrocarbon expulsion efficiency at the peak of oil generation is 57%. Analysis of pressure factor indicates that, fluid pressure does affect thermal maturation and hydrocarbon expulsion. Pressure can reduce the maturity in oil generation phase. The decreased value of  $R_o$  is about 0.2%. Pressure release promotes hydrocarbon expulsion, which results in the decrease of residual hydrocarbon content and light hydrocarbon loss from cores. Light hydrocarbon loss can cause 18% deviation of expulsion efficiency at oil generation peak. The conventional method underestimated the residual hydrocarbon amount in geological conditions, and gas exploration prospect is optimistic.

**Key words:** Songliao Basin; Hydrocarbon generation and expulsion; Hydrocarbon expulsion efficiency; Simulation experiment; Light hydrocarbon; Pressure