

文章编号:1672-6561(2016)02-0235-10

投稿网址: <http://jese.chd.edu.cn/>

珠江口盆地惠州凹陷两类原油地球化学特征对比

王 芳^{1,2}, 包建平^{1,2}, 朱翠山^{1,2}

(1. 长江大学 油气资源与勘探技术教育部重点实验室, 湖北 武汉 430100;

2. 长江大学 地球环境与水资源学院, 湖北 武汉 430100)

摘 要:依据珠江口盆地惠州凹陷不同类型原油样品中各类生物标志物分布与组成特征的分析结果, 可以将其划分为煤成油和湖相油两大类。以 HZ9-2-1 井为代表的煤成油表现出强烈的姥鲨烷优势, $C_{19} \sim C_{26}$ 三环萜烷系列相对丰度呈现阶梯状依次降低, C_{24} 四环萜烷相对丰度远高于 C_{26} 三环萜烷, 藿烷系列 C_{29} 降藿烷和 C_{31} 升藿烷较为丰富, 新藿烷(Ts 和 C_{29} Ts)含量很低, 甾烷组成中 C_{29} 规则甾烷和重排甾烷占绝对优势, 这与典型煤成油的分子地球化学特征一致。湖相油中姥鲨烷优势较弱, $C_{19} \sim C_{26}$ 三环萜烷系列呈现以 C_{21} 为主峰的正态分布, C_{24} 四环萜烷丰度与 C_{26} 三环萜烷丰度相当, 新藿烷和重排藿烷含量中等, 伽马蜡烷含量极低, 2-甲基藿烷与 C_{30} 4-甲基甾烷十分丰富且存在正相关关系。它们可以作为鉴别研究区原油成因类型的主要依据。

关键词:有机地球化学; 原油; 生物标志物; 链烷烃; 萜烷; 甾烷; 惠州凹陷; 珠江口盆地

中图分类号: P618.130.2; TE122.1⁺13

文献标志码: A

Comparison of Geochemical Characteristics of Two Kinds of Crude Oils in Huizhou Sag of Pearl River Mouth Basin

WANG Fang^{1,2}, BAO Jian-ping^{1,2}, ZHU Cui-shan^{1,2}

(1. Key Laboratory of Oil and Gas Resource and Exploration Technology of Ministry of Education,

Yangtze University, Wuhan 430100, Hubei, China; 2. School of Earth Environment and

Water Resources, Yangtze University, Wuhan 430100, Hubei, China)

Abstract: Based on the distributions and compositions of various biomarkers from different crude oils in Huizhou sag of Pearl River Mouth Basin, they can be classified into coal-derived and lacustrine oil. The coal-derived oils from well HZ9-2-1 have the characteristics of higher Pr/Ph value (more than 4.5), abnormally abundant C_{24} tetracyclic terpane, step-like decreasing pattern for $C_{19} \sim C_{26}$ tricyclic terpanes, more abundant C_{29} norhopane and C_{31} homohopane, lower neohopanes in $C_{27} \sim C_{35}$ hopanes, and absolutely predominant C_{29} rearranged and regular steranes in $C_{27} \sim C_{29}$ steranes. These features are the main indicators to discriminate coal-derived oils from other oils. However, for lacustrine oils, their Pr/Ph values are relatively low (less than 3.0), the abundances of C_{24} tetracyclic terpane and C_{26} tricyclic terpane are similar, the distribution of $C_{19} \sim C_{26}$ tricyclic terpanes is normal with the main peak of C_{21} , neohopanes and rearranged hopanes are moderate, gammacerane index indicating paleosalinity is very low. It is noted that 2-methylhopanes and 4-methylsteranes indicating cyanobacteria and dinoflagellate input are very abundant respectively, and the variation of their relative abundances has a normal correlation,

收稿日期: 2015-10-12

基金项目: 国家自然科学基金项目(41272169); 国家科技重大专项项目(2008ZX05025-003-001)

作者简介: 王 芳(1989-), 女, 湖北襄阳人, 理学硕士研究生, E-mail: 453411740@qq.com。

通讯作者: 包建平(1962-), 男, 江苏张家港人, 教授, 博士研究生导师, 工学博士, E-mail: bjp405@163.com。

representing a specific ecosystem condition to be suitable for the growth of two kinds of microbes. They have an important role in oil-source correlation.

Key words: organic geochemistry; crude oil; biomarker; chain alkane; terpane; sterane; Huizhou sag; Pearl River Mouth Basin

0 引言

珠江口盆地是中国重要的含油气盆地之一,已发现了众多的油气田和含油气构造,惠州凹陷是珠一坳陷一个富油凹陷。油气勘探实践表明,惠州凹陷油层主要分布在珠江组 and 珠海组,文昌组湖相泥岩和恩平组煤系源岩是其主要生油岩系^[1-6],它们对已发现油气均有贡献^[7-8]。大量文献涉及了珠江口盆地油源研究^[8-19]。研究结果表明,惠州凹陷原油分为 3 类,分别来源于文昌组湖相烃源岩、恩平组煤系烃源岩及前两者的混源油。主要分类根据是姥植比(Pr/Ph 值)、C₂₇~C₂₉ 甾烷碳数组成、4-甲基甾烷和奥利烷及双杜松烷等陆源三萜烷相对含量及碳同位素组成特征^[16-18]。特定的沉积环境中形成的烃源岩具有一系列与之对应的地球化学特征^[20],很少有文献注意到惠州凹陷原油中各类生物标志化合物组成特征和相互之间的变化规律。本文通过对取自惠州凹陷的 12 个原油样品中各类生物标志物分布与组成特征的系

统分析,明确了这些原油的地球化学特征及鉴定依据,并首次探讨了这些原油中代表蓝细菌贡献的 2-甲基藿烷系列和代表浮游藻类贡献的 4-甲基甾烷系列之间的相互关系,提出利用 2-甲基藿烷系列和 4-甲基甾烷系列的相对组成划分研究区原油成因类型,为该地区油源研究提供新的方法和手段。

1 地质背景

珠江口盆地位于南中国海北部、华南大陆边缘(图 1),面积约 175 000 km²,是在加里东、海西、燕山期褶皱基底上形成的中、新生代含油气盆地^[21-24]。该盆地由北向南可划分为 5 个 NE 向大型构造带,即北部断阶带、北部坳陷带、中央隆起带、南部坳陷带和南部隆起带。珠一坳陷位于珠江口盆地北部坳陷带,为一个 NE 向展布的狭长坳陷,长 550 km,宽 70~100 km,面积为 39 910 km²。惠州凹陷位于珠一坳陷中部,由惠西、惠北、惠南、惠东和陆西 5 个半地堑和惠中、惠东 2 个低凸起组成。

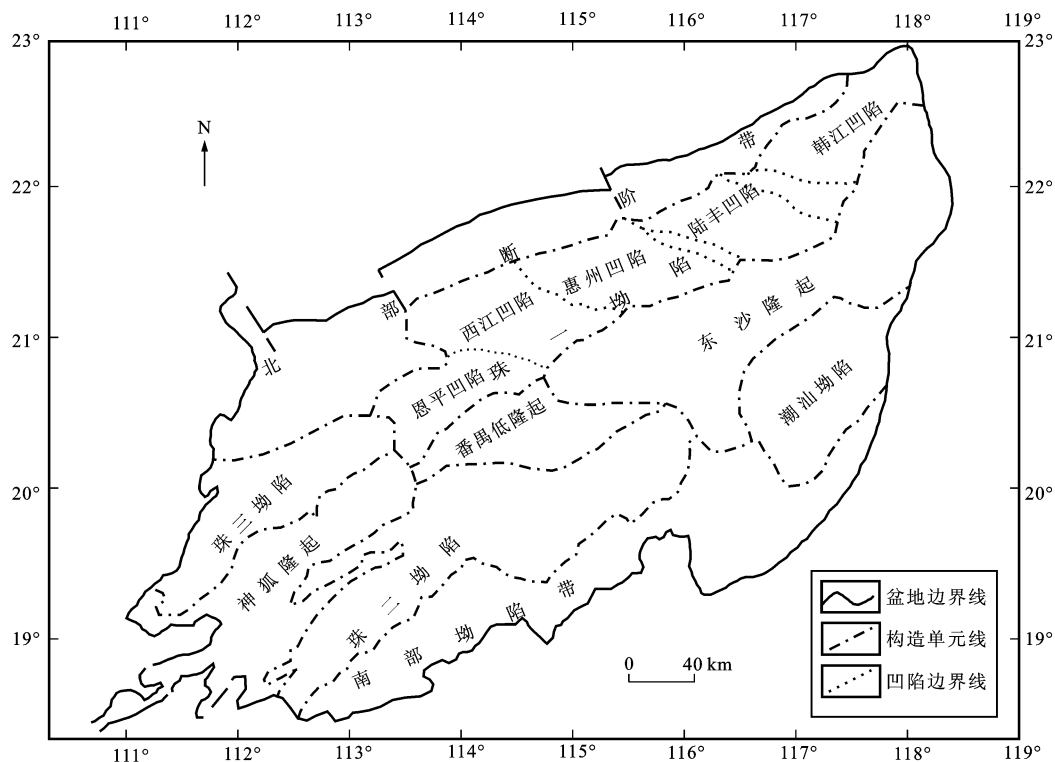


图 1 珠江口盆地构造划分

Fig. 1 Tectonic Units of Pearl River Mouth Basin

珠江口盆地发育经过了古新世—早渐新世的盆地断陷发育期和晚渐新世—第四纪坳陷期两个阶段^[25]。文昌组湖相烃源岩形成于始新世断陷裂谷阶段深水环境,而恩平组含煤烃源岩系则形成于早渐新世的滨、浅湖沼泽环境,上渐新统珠海组和下中新统珠江组则发育了主要储集层段。

2 样品采集和试验方法

选取惠州凹陷的12个原油样品进行对比研究。样品用正己烷沉淀原油中的沥青质,而后采用硅胶/氧化铝柱色谱法把脱沥青质原油分离成饱和烃、芳香烃和非烃。

饱和烃色谱质谱分析仪器为惠普公司GC6890/5973MSD气相色谱/质谱联用仪。色谱柱为HP-5ms石英弹性毛细柱(30 m×0.25 mm×0.25 μm)。升温程序为:50℃恒温2 min,从50℃到100℃的升温速率为20℃·min⁻¹,从100℃到310℃的升温速率为3℃·min⁻¹,在310℃恒温15.5 min。进样器温度为

300℃,载气为氦气,流速为1.04 mL·min⁻¹,扫描范围为50~550 amu。检测方式为全扫描,电离能量为70 eV,离子源温度为230℃。

3 链烷烃系列分布与组成特征

珠江口盆地惠州凹陷原油中的链烷烃主要包括正构烷烃系列和植烷系列。不同原油中的正构烷烃系列总体分布特征较为相似,碳数范围宽(C₉~C₃₈),中高分子量化合物丰度高,没有碳数优势现象,碳优势指数(CPI)近于1.0(图2、表1),显示成熟原油的特点。但在植烷系列组成上,不同原油间的差异较大。从表1可以看出:HZ9-2-1井原油以强烈的姥鲛烷优势为特征,其Pr/Ph值介于4.57~5.29之间,这与恩平组煤系烃源岩的特征相吻合,显示出煤成油的特征;而在其他原油中,姥鲛烷优势较弱,其Pr/Ph值介于1.40~2.35之间,这与惠州凹陷文昌组湖相烃源岩中植烷系列的组成特征基本一致,显示湖相油的特征。

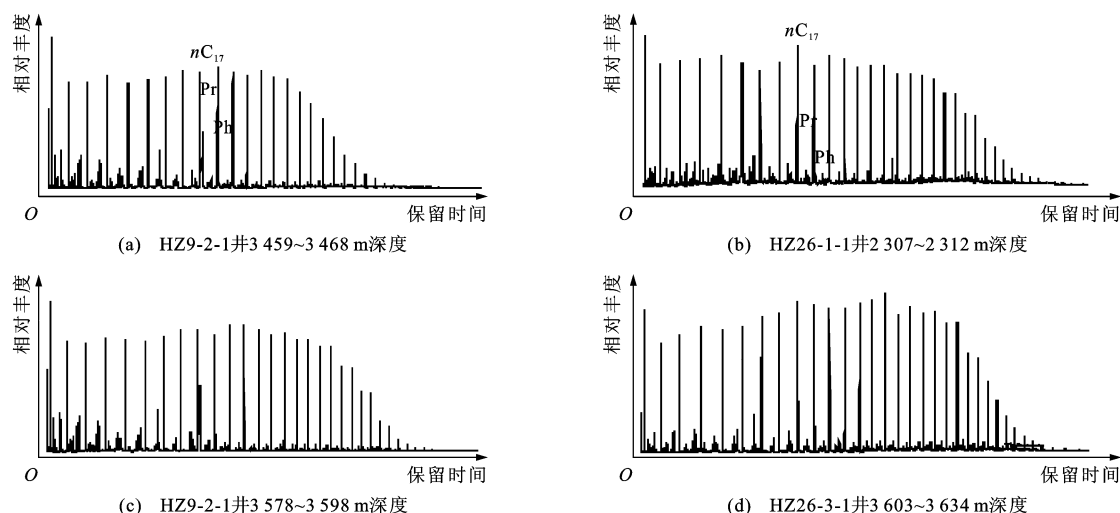


图2 链烷烃系列质量色谱

Fig. 2 Mass Chromatograms of Chain Alkane Series

植烷系列的组成特征与烃源岩沉积环境的氧化还原性密切相关。一般而言,还原环境形成的烃源岩具有一定的植烷优势,其姥植比常小于1.0;而形成于弱氧化环境中的烃源岩则具有明显的姥鲛烷优势,其姥植比常远大于1.0。这一特征会被各自所生原油继承下来,从而成为油源对比的重要依据。由此可以判断具有高姥植比的HZ9-2-1井原油应该来源于恩平组煤系烃源岩,而其他低姥植比原油则应该来源于文昌组湖相烃源岩,介于两者之间的原油可能属于两类原油的混源油。

4 萜烷系列分布与组成特征

4.1 三环萜烷系列

三环萜烷系列在烃源岩和原油中普遍存在,但在不同性质样品中其分布特征差异较大,因而它具有特定的地球化学意义。一般而言,湖相和海相烃源岩及其相关原油中的三环萜烷系列呈现以C₂₁或C₂₃为主峰的正态分布,而在煤系烃源岩和煤成油中三环萜烷系列呈现出C₁₉~C₂₆的相对丰度呈阶梯状依次降低^[26]。高丰度的C₂₄四环萜烷是陆源有机质输入的指标^[27]。

表 1 链烷烃系列组成

Tab. 1 Compositions of Chain Alkane Series

井号	井深/m	Pr/ <i>n</i> C ₁₇ 值	Ph/ <i>n</i> C ₁₈ 值	Pr/Ph 值	CPI 值
HZ21-1-1	2 957.0~2 980.0	0.28	0.14	2.26	1.04
HZ21-1-1	2 874.0~2 885.0	0.27	0.15	2.00	1.03
HZ25-4-1	2 228.5~2 230.0	0.23	0.13	1.96	1.03
HZ26-3-1	3 603.0~3 634.0	0.31	0.19	1.76	1.03
HZ33-2-1	2 194.0~2 200.0	0.82	0.39	2.12	1.02
HZ18-1-1		0.58	0.28	2.29	1.07
HZ27-1-1	2 405.0~2 420.0	0.35	0.26	1.40	1.05
HZ26-1-1	2 307.0~2 312.0	0.29	0.15	2.09	1.03
HZ32-3		0.29	0.13	2.35	1.03
HZ9-2-1	3 578.0~3 598.0	0.53	0.12	4.73	1.03
HZ9-2-1	3 459.0~3 468.0	0.47	0.11	4.57	1.09
HZ9-2-1	3 679.0~3 691.0	0.71	0.14	5.29	1.03

注:*n*C₁₈代表碳数为 18 的正构烷烃。

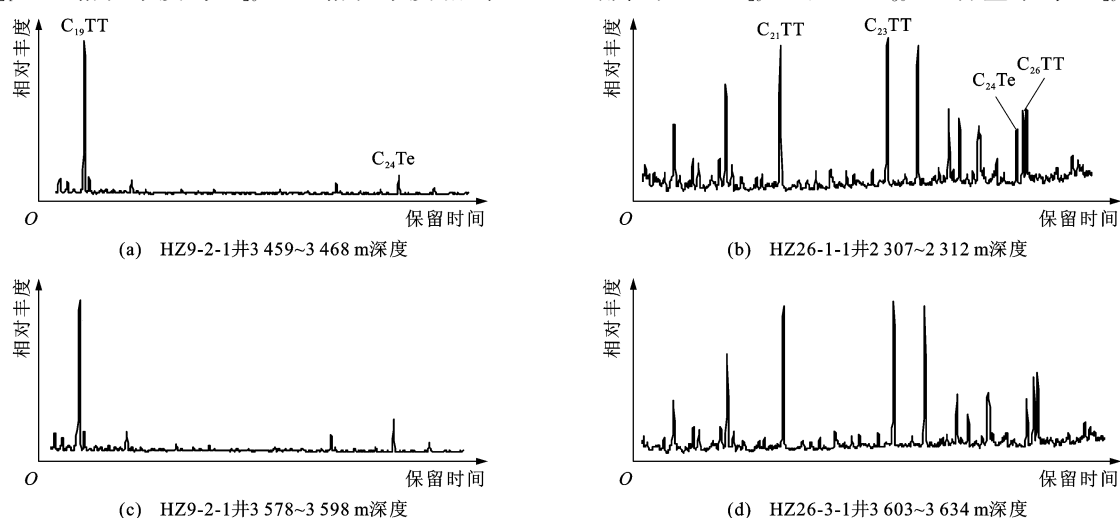
在所研究的原油中,三环萜烷系列呈现两种不同的分布特点,表明相应烃源岩的母质来源和沉积环境有着较大差异。从图 3 可以看出:HZ9-2-1 井原油中三环萜烷系列 C₁₉~C₂₆ 相对丰度呈现阶梯状依次降低,C₁₉ 三环萜烷/C₂₃ 三环萜烷值(C₁₉ TT/C₂₃ TT 值)较高,介于 21~32 之间,C₂₄ 四环萜烷相对丰度远高于 C₂₆ 三环萜烷,两者的比值(C₂₄ Te/C₂₆ TT 值)大于 6,可能暗示着该类原油的烃源岩中陆源有机质贡献较大^[27],这与煤系源岩和煤成油的特征一致^[26];而在其他原油中,C₁₉~C₂₆ 三环萜烷系列呈现以 C₂₁ 为主峰的正态分布,C₁₉ TT/C₂₃ TT 值小于 3.0,C₂₄ 四环萜烷丰度与 C₂₆ 三环萜烷丰度相当,两

者的比值约为 0.50,显示出湖相油的特征。在 C₁₉ TT/C₂₃ TT 值-C₂₄ Te/C₂₆ TT 值的关系图上,原油聚集在两个截然不同的区域,表明它们可以较好地地区分研究区原油的成因类型(图 4),而且可以预料由两类原油构成的混源油应该分布在这两类原油之间过渡区域,混源油中不同类型原油的相对贡献决定了它们在混源油区是靠近煤成油端元还是湖相油端元。

4.2 三萜烷系列

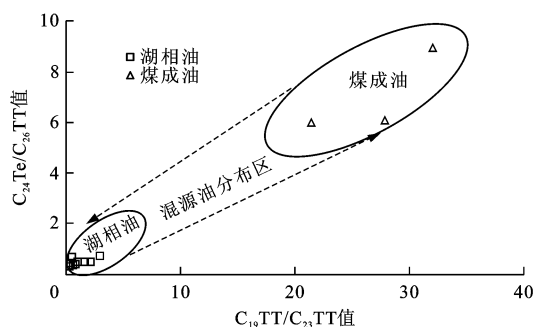
所研究原油中的三萜烷主要包括 C₂₇~C₃₅ 藿烷系列、C₂₈~C₃₆ 2-甲基藿烷系列、伽马蜡烷、奥利烷和双杜松烷,这些不同化合物常具有不同的地球化学意义。一般来说,重排藿烷起源于含有黏土并沉积在弱氧化到氧化环境沉积物中的菌类有机质^[28];新藿烷的前身物可能为里白烯和里白醇或 C₂₉ 降藿烷类,而不是 C₃₅ 细菌藿烷多醇^[29];升藿烷的分布特征与沉积环境的氧化还原性密切相关,常用 C₃₅ 升藿烷指数(C₃₅/(C₃₁+C₃₅)值)作为衡量标志,C₃₅ 升藿烷指数小于 0.06 代表底水或沉积物形成于氧化环境,大于 0.1 指示缺氧环境^[30];伽马蜡烷来源于原生动物四膜虫醇,可以指示沉积水体的古盐度^[31];奥利烷来源于陆源被子植物,是衡量陆源有机质贡献的标志化合物^[32];双杜松烷是由被子植物的达玛树脂经过生物聚合形成的,是一类指示高等植物树脂输入的标志化合物^[33]。

在三萜烷系列分布特征上,HZ9-2-1 井原油中藿烷系列表现为新藿烷(Ts 和 C₂₉ Ts)含量很低,重排藿烷(diaC₂₉ H 和 diaC₃₀ H)含量中等,C₂₉ 降藿烷



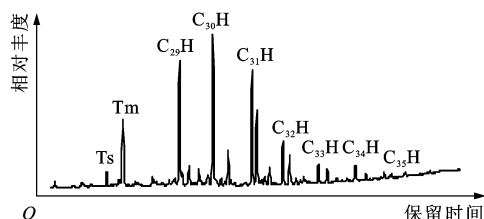
TT 表示三环萜烷;Te 表示四环萜烷

图 3 三环萜烷系列和 C₂₄ 四环萜烷质量色谱Fig. 3 Mass Chromatograms of Tricyclic Terpane Series and C₂₄ Tetracyclic Terpane

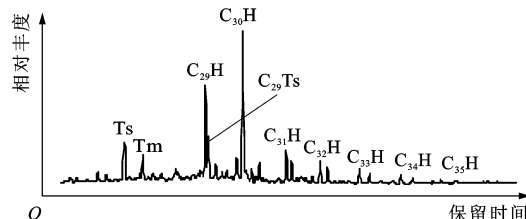
图4 $C_{24}Te/C_{26}TT$ 值与 $C_{19}TT/C_{23}TT$ 值的关系Fig. 4 Relationship Between $C_{24}Te/C_{26}TT$ Value and $C_{19}TT/C_{23}TT$ Value

较丰富, $C_{29}H/C_{30}H$ 值介于 0.72~0.82 之间(图5),这与富含陆源有机质烃源岩生成的原油中 C_{29} 降藿烷相对丰度较高的认识一致^[34]。该类原油中, C_{31} 升藿烷含量高, C_{31} 升藿烷指数小于 0.06, 且伽马蜡烷含量极低, 介于 0.03~0.05 之间, 指示弱氧化的淡水沉积环境, 这一系列特征与煤系烃源岩和典型煤成油中的藿烷系列具有较好的相似性, 这可能与偏氧化的沼泽环境在成岩阶段细菌活动强烈有关。而在其他原油中, 新藿烷含量较高, 重排藿烷含量与 HZ9-2-1 井原油相差不大, 但 C_{29} 降藿烷含量低于 HZ9-2-1 井原油, 升藿烷指数略高于 HZ9-2-1 井原油, 介于 0.05~0.07 之间, 伽马蜡烷含量极低, 伽马蜡烷指数小于 0.01, 这与惠州凹陷文昌组湖相烃源岩中的藿烷系列组成特征具有较好的可比性, 表明它们之间存在成因联系^[8]。

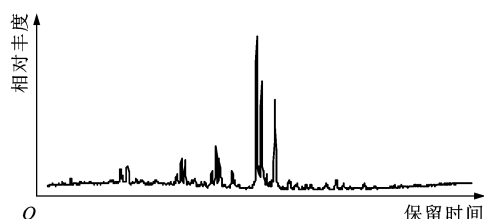
新藿烷相对丰度(Ts/Tm 值、 $C_{29}Ts/C_{29}H$ 值)一方面与成熟度有关, 随着成熟度的增加而增



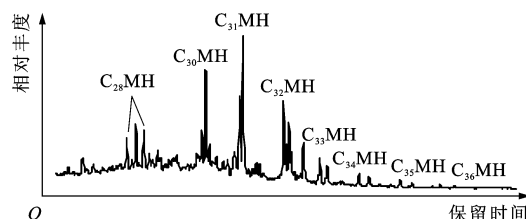
(a) HZ9-2-1井3459~3468 m深度, 质荷比为191



(b) HZ26-1-1井2307~2312 m深度, 质荷比为191



(c) HZ9-2-1井3459~3468 m深度, 质荷比为205



(d) HZ26-1-1井2307~2312 m深度, 质荷比为205

Tm 和 H 代表 17 α (H) 藿烷; Ts 代表新藿烷; MH 为 2-甲基藿烷

图5 三萜烷系列质量色谱

Fig. 5 Mass Chromatograms of Triterpane Series

加^[28], 另一方面受岩性^[35]、成岩条件(包括氧化还原电位(Eh)、pH 值)及生源影响^[29], 即沉积-有机相条件的影响。鉴于所研究原油的 C_{29} 甾烷 20S/(20S+20R) 成熟度介于 0.42~0.48 之间, 表明其成熟度基本一致, 可见成熟度不是影响原油中其丰度变化的主要因素。此时, 烃源岩性质及形成的沉积-成岩条件可能是主要影响因素。

包建平首次报道了惠州凹陷文昌组湖相优质烃源岩中含有丰富的指示蓝细菌贡献的 2-甲基藿烷系列, 而恩平组烃源岩中则几乎检测不出这类特殊生物标志物^[36]。本文所研究的原油样品中来源于文昌组湖相烃源岩的原油较来源于恩平组煤系烃源岩的 HZ9-2-1 井原油明显富含甲基藿烷系列, 前者的甲基藿烷指数大于 0.10, 而后者的小于 0.06。由此可见, 2-甲基藿烷系列的相对组成特征也是鉴别惠州凹陷湖相油与煤成油的重要依据。值得注意的是, 不同原油具有明显不同的三萜烷组成, 从而较好地把它分为两个不同的成因类型(图6), 这与前述依据三环萜烷和四环萜烷组成得到的认识一致, 表明三萜烷标志物相对组成也能较好地甄别研究区原油的成因和来源。如果存在由两类原油构成的混源油, 那么它们应该分布在两个端元油之间的过渡区域, 从而为研究区混源油的确定提供了鉴别依据。

5 甾烷系列分布与组成特征

原油中甾烷系列的分布与组成可以提供丰富的地球化学信息^[37]。一般来说, C_{27} ~ C_{29} 规则甾烷的

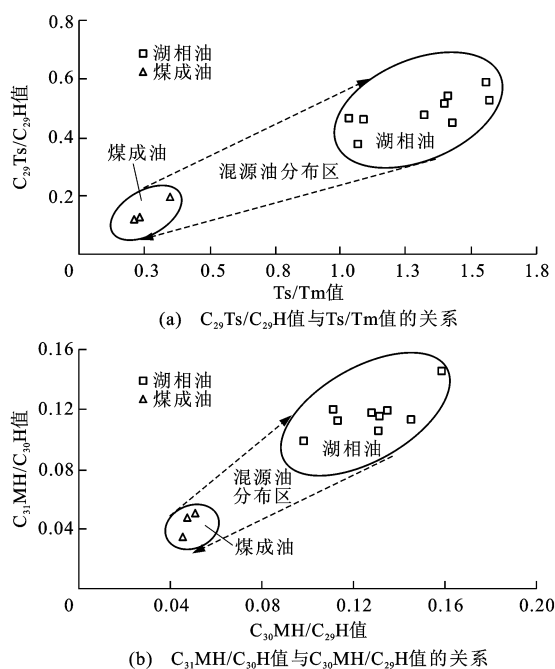


图6 $C_{29}Ts/C_{29}H$ 值与 Ts/Tm 值、 $C_{31}MH/C_{30}H$ 值与 $C_{30}MH/C_{29}H$ 值的关系

Fig. 6 Relationships Between $C_{29}Ts/C_{29}H$ Value and Ts/Tm Value, and $C_{31}MH/C_{30}H$ Value and $C_{30}MH/C_{29}H$ Value

碳数组成受控于有机质的性质。 C_{27} 甾烷指示浮游植物藻类的贡献, C_{29} 甾烷则指示陆源有机质的输入^[38];重排甾烷的发育除与成熟度有关外,还与源岩中的黏土和酸性介质条件密切相关^[28],因为偏酸性的介质条件和较高的 E_h 值是甾类分子结构中甲角基发生重排转化的必备条件^[39]; C_{30} 4-甲基甾烷一般来源于沟鞭藻生物体中的 4 α -甲基甾醇^[40],在中国东部断陷湖盆始新统湖相烃源岩中广泛分布,但只有在珠江口盆地文昌组和北部湾盆地涠西南凹陷

流沙港组湖相烃源岩中以高丰度的形式存在^[8,36,41],表明这类生物对此类烃源岩的成烃具有特殊意义。

在所研究原油中甾烷系列的分布特征存在显著差异。从图7可以看出:HZ9-2-1井原油中 C_{29} 规则甾烷和重排甾烷占绝对优势,而 C_{27} 和 C_{28} 甾烷含量明显偏低,基本缺乏 4-甲基甾烷,显示典型煤成油的甾烷碳数组成,这与三塘湖盆地塘参1井煤成油和吐哈盆地煤成油中甾烷分布特征具有较好的可比性^[26,42],表明陆源有机质是其主要原始生烃母质;而在其他原油中, C_{30} 4-甲基甾烷异常丰富,其相对丰度基本都超过 C_{29} 规则甾烷,其与 C_{29} 规则甾烷的丰度比值介于 1.23~2.47 之间,而常规的 $C_{27} \sim C_{29}$ 甾烷因丰富 4-甲基甾烷系列的干扰导致在质荷比为 217 的质量色谱上难以分辨,这无疑会影响与此相关参数的计算。 C_{30} 4-甲基甾烷指示了浮游生物沟鞭藻属的贡献^[40],因此,原油中丰富的 4-甲基甾烷表明这类浮游生物在该类湖相油的生成过程中起了重要作用,这与惠州凹陷发育的文昌组湖相烃源岩的甾烷组成特征是吻合的,因而也是研究区进行油源对比的主要依据^[8]。由此可见,4-甲基甾烷是鉴定惠州凹陷湖相油和煤成油的重要依据。

值得注意的是,本文所研究的 12 个原油样品中同时检测出了 2-甲基藿烷和 4-甲基甾烷系列,而且不同成因原油其相对丰度变化呈现良好的正相关性,这在 C_{30} 升藿烷指数与 C_{30} 4-甲基甾烷/ C_{29} 甾烷值关系图(图8)上得到了较好的印证,同时又把研究区两类原油很好地区分开,而且依据两类原油在图8中的分布特点,比较容易预测相应混源油中这

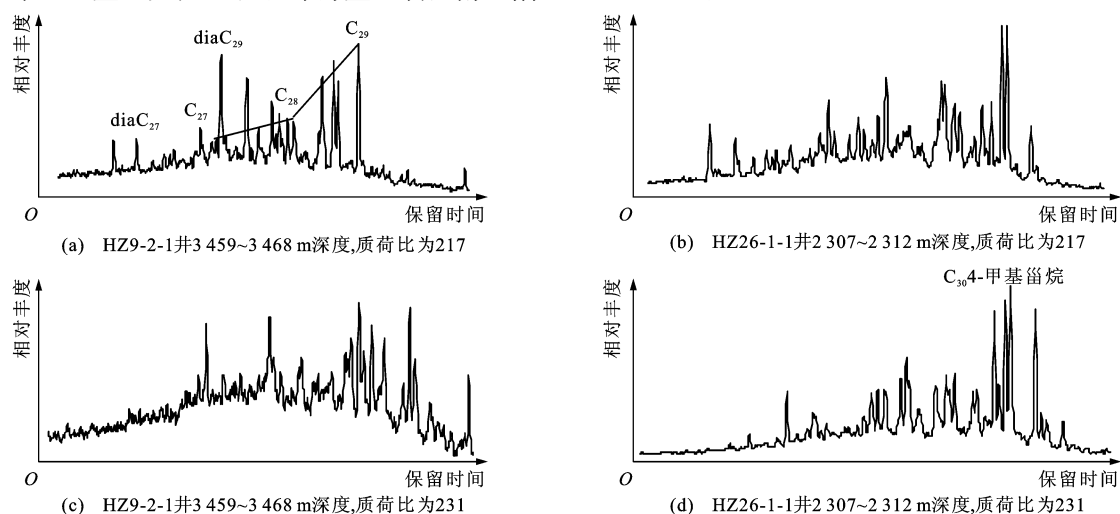


图7 甾烷系列质量色谱

Fig. 7 Mass Chromatograms of Sterane Series

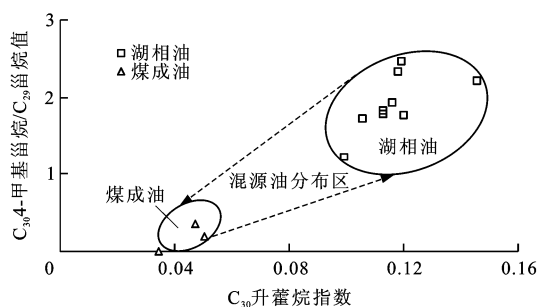


图8 C_{30} 4-甲基甾烷/ C_{29} 甾烷值与 C_{30} 升藿烷指数的关系

Fig. 8 Relationship Between C_{30} 4-methylsterane/ C_{29} Sterane Value and C_{30} Homohopane Index

两个参数组成特征。这一现象不仅说明文昌组沉积时期的古生态条件适宜沟鞭藻类和蓝细菌的共同繁盛,同时也表明它们在研究区的油源研究中具有很好的实用价值。

微量元素与 4-甲基甾烷相互关系的研究结果表明,惠州凹陷烃源岩中 C_{30} 4-甲基甾烷/ C_{29} 甾烷值与 $w(V)/(w(V)+w(Ni))$ 值存在一定的正相关性。其中, $w(\cdot)$ 为元素质量分数。水体中浮游藻类的繁盛造成湖底环境缺氧,使 V 元素在沉积物中富集,反映水生生物勃发与沉积环境对微量元素富集有影响^[43]。文昌组烃源岩沉积时,湖盆水体较局限,珠江口盆地彼此分割为北、南 2 个断陷带与相邻断陷带相间分布的构造格局^[44],推测当时的沉积水体可能处于一种富营养状态。大量 N、P 等营养物质的存在是导致沉积水体富营养化的主要原因,此时有利于一些浮游生物(如蓝绿藻等)的异常繁盛,而生物的异常生长引起水体中溶解氧含量的下降,结果又会导致生物的死亡,并形成富有机质的沉积地层,研究区湖相油和烃源岩中丰富的 2-甲基藿烷系列可能就与这一特殊的水化学条件有关。Summons 等认为 2-甲基藿烷系列来源于蓝细菌体内的 2 β -甲基细菌藿烷多醇^[45],但 Ricci 等通过大量的培养基试验和基因组证据认为,蓝细菌不是 2-甲基藿烷类化合物的唯一来源,2-甲基藿烷类不是可靠的指示蓝细菌的生物标志物,而是一种特定生态环境的生物标志物,在以低氧、低固定氮和高渗透压力为特征的固着微生物群落(Sessile Microbial Communities)栖息环境中,2-甲基藿烷类化合物非常丰富^[46]。因此,惠州凹陷文昌组湖相烃源岩沉积时水体的富营养化可能是丰富甲基甾烷和甲基藿烷系列化合物存在的原因。

值得注意的是,尽管 HZ9-2-1 井原油属于典型的煤成油,呈现高姥植比、 C_{29} 重排甾烷和规则甾烷

占绝对优势的特征,但在此类原油中同为指示陆源有机质贡献的奥利烷和双杜松烷丰度明显偏低,甚至低于研究区的湖相油,这与珠江口盆地白云凹陷的煤成油形成鲜明对照^[2];前者的奥利烷指数(奥利烷/ C_{30} 藿烷值)约为 0.10,而后者介于 0.10~0.30 之间。McCaffrey 等指出在河流三角洲体系,奥利烷与藿烷的丰度比值不是总和指示陆源有机质输入的指标(比如 C_{29} 甾烷丰度)成正比,或是与指示海相有机质输入的指标(C_{30} 或 C_{28} 甲基甾烷丰度)成反比^[47]。Murray 等认为,奥利烷的丰度不仅与陆源有机质的输入量有关,而且在早期成岩作用阶段,奥利烷的丰度对 Eh 值和 pH 值的变化非常敏感,还原的沉积-成岩环境可能有利于奥利烷的形成,因为陆源有机质占绝对优势的腐殖煤(总有机碳为 64%)中奥利烷含量明显低于陆源有机质含量相对较低的页岩(总有机碳为 1.6%)^[48]。这一现象应该表明丰富的陆源有机质并不是奥利烷形成的唯一条件,可能还需要特殊的成岩环境。湖相烃源岩的形成环境较沼泽环境形成的烃源岩还原性强,在偏还原的沉积-成岩环境中可能有利于奥利烷的形成,因此,惠州凹陷某些湖相油中奥利烷含量可能高于典型煤成油。由此可见,在判断研究区原油成因和来源时,仅仅依据奥利烷这一个生物标志物的相对丰度显然是不够的,应该综合利用各类生物标志物所提供的地球化学信息。

6 结 语

(1)珠江口盆地惠州凹陷湖相油的 Pr/Ph 值较低, $C_{19} \sim C_{26}$ 三环萜烷系列中呈现以 C_{21} 为主峰的正态分布, C_{24} 四环萜烷与 C_{26} 三环萜烷的丰度相当,新藿烷和重排藿烷含量中等,2-甲基藿烷系列和 C_{30} 4-甲基甾烷十分丰富;而典型煤成油中 Pr/Ph 值较高, $C_{19} \sim C_{26}$ 三环萜烷系列相对丰度呈现阶梯状依次降低的现象, C_{24} 四环萜烷的相对丰度远高于 C_{26} 三环萜烷,新藿烷含量很低, C_{29} 降藿烷较丰富, C_{29} 规则甾烷和重排甾烷占绝对优势。这是鉴定惠州凹陷湖相油和煤成油的主要依据。

(2)尽管在研究区奥利烷是一个指示被子植物来源的陆源有机质输入的可靠标志,但特殊的形成条件决定了丰富的陆源有机质并不一定导致高含量此类标志物的形成,这是 HZ9-2-1 井煤成油具有低奥利烷丰度的原因。因此,在判别原油成因时需要综合利用各类生物标志物提供的相关地球化学信息。

(3)惠州凹陷湖相油中甲基藿烷和甲基甾烷系

列含量的协同变化可能与文昌组主力湖相源岩沉积时水体出现了富营养化有关。

参考文献:

References:

- [1] 朱伟林,张功成,高 乐.南海北部大陆边缘盆地油气地质特征与勘探方向[J].石油学报,2008,29(1):1-9.
ZHU Wei-lin, ZHANG Gong-cheng, GAO Le. Geological Characteristics and Exploration Objectives of Hydrocarbons in the Northern Continental Margin Basin of South China Sea[J]. Acta Petrolei Sinica, 2008,29(1):1-9.
- [2] 傅 宁,米立军,张功成.珠江口盆地白云凹陷烃源岩及北部油气成因[J].石油学报,2007,28(3):32-38.
FU Ning, MI Li-jun, ZHANG Gong-cheng. Source Rocks and Origin of Oil and Gas in the Northern Baiyun Depression of Pearl River Mouth Basin[J]. Acta Petrolei Sinica, 2007,28(3):32-38.
- [3] 刘明辉,梅廉夫,杨亚娟,等.珠江口盆地惠州凹陷北部裂陷期与拗陷期沉降作用时空差异及主控因素[J].地球科学与环境学报,2015,37(2):31-43.
LIU Ming-hui, MEI Lian-fu, YANG Ya-juan, et al. Temporal-spatial Differences of Subsidence Between Syn- and Post-rift Stages in Northern Huizhou Sag of Pearl River Mouth Basin and Their Main Control Factors[J]. Journal of Earth Sciences and Environment, 2015,37(2):31-43.
- [4] 王 维,叶加仁,杨香华,等.珠江口盆地惠州凹陷古近纪多幕裂陷旋回的沉积物源响应[J].地球科学,2015,40(6):1061-1071.
WANG Wei, YE Jia-ren, YANG Xiang-hua, et al. Sediment Provenance and Depositional Response to Multistage Rifting, Paleogene, Huizhou Depression, Pearl River Mouth Basin[J]. Earth Science, 2015,40(6):1061-1071.
- [5] 余 烨,张昌民,李少华,等.惠州凹陷珠江组泥岩地球化学特征及其地质意义[J].中国石油大学学报:自然科学版,2014,38(1):512-522,595.
YU Ye, ZHANG Chang-min, LI Shao-hua, et al. Geochemical Characteristics and Geological Significance of Mudstones from Zhujiang Formation of Huizhou Depression[J]. Journal of China University of Petroleum: Natural Science, 2014,38(1):512-522,595.
- [6] 袁彩萍,徐思煌,薛 罗,等.珠江口盆地惠州凹陷主力烃源岩测井预测及评价[J].石油实验地质,2014,36(1):110-116.
YUAN Cai-ping, XU Si-huang, XUE Luo, et al. Prediction and Evaluation with Logging of Main Source Rocks in Huizhou Sag, Pearl River Mouth Basin[J]. Petroleum Geology and Experiment, 2014,36(1):110-116.
- [7] 傅 宁,李友川,汪建蓉.惠州凹陷西区油源研究[J].中国海上油气:地质,2001,15(5):322-328.
FU Ning, LI You-chuan, WANG Jian-rong. Oil-source Correlation in the Western Huizhou Sag[J]. China Offshore Oil and Gas: Geology, 2001,15(5):322-328.
- [8] 张水昌,龚再升,梁狄刚,等.珠江口盆地东部油气系统地球化学: I, 油组划分、油源对比及混源油确定[J].沉积学报,2004,22(增):15-26.
ZHANG Shui-chang, GONG Zai-sheng, LIANG Di-gang, et al. Geochemistry of Petroleum Systems in the Eastern Pearl River Mouth Basin: I, Oil Family Classification, Oil-source Correlation and Mixed Oil Analysis [J]. Acta Sedimentologica Sinica, 2004,22(S):15-26.
- [9] FU J M, PEI C M, SHENG G Y, et al. A Geochemical Investigation of Crude Oils from Eastern Pearl River Mouth Basin, South China Sea[J]. Journal of Southeast Asian Earth Sciences, 1993,8(1/2/3/4):469-486.
- [10] 黄正吉.珠江口盆地陆相烃源岩与油气生成[J].中国海上油气:地质,1998,12(4):255-261.
HUANG Zheng-ji. Nonmarine Source Rock and Petroleum Formation of Pearl River Mouth Basin[J]. China Offshore Oil and Gas: Geology, 1998,12(4):255-261.
- [11] 傅 宁,李友川,徐建勇,等.珠三拗陷文昌组中深湖相烃源岩新的生物标志化合物组合模式与油源对比[J].中国海上油气,2012,24(4):13-19.
FU Ning, LI You-chuan, XU Jian-yong, et al. A New Biomarker Combination in the Wenchang Formation Source Rock of Middle-deep Lacustrine Facies and Oil-source Correlations in Zhu III Depression[J]. China Offshore Oil and Gas, 2012,24(4):13-19.
- [12] 马 宁,侯读杰.珠江口盆地烃源岩及原油新四环萜烷组合模式[J].特种油气藏,2014,21(2):24-27.
MA Ning, HOU Du-jie. The Combination Model of New Tetracyclic Terpane in Source Rock and Crude Oil of Zhujiangkou Basin[J]. Special Oil and Gas Reservoirs, 2014,21(2):24-27.
- [13] 李友川,张功成,傅 宁.珠江口盆地油气分带性及其控制因素[J].中国海上油气,2014,26(4):8-14.
LI You-chuan, ZHANG Gong-cheng, FU Ning. Hydrocarbon Zonation and Its Control Factors in Pearl River Mouth Basin[J]. China Offshore Oil and Gas, 2014,26(4):8-14.
- [14] HU Y, HAO F, ZHU J Z, et al. Origin and Occurrence of Crude Oils in the Zhu1 Sub-basin, Pearl River Mouth

- Basin, China [J]. *Journal of Asian Earth Sciences*, 2015, 97: 24-37.
- [15] 朱扬明, 谢建明, 孙林婷, 等. 珠江口盆地原油中新二环、四环萜烷的检出及其地球化学意义[J]. *地球化学*, 2015, 44(4): 313-322.
- ZHU Yang-ming, XIE Jian-ming, SUN Lin-ting, et al. Identification and Geochemical Significances of Novel Bicyclic and Tetracyclic Terpanes in Crude Oils from the Pearl River Mouth Basin[J]. *Geochimica*, 2015, 44(4): 313-322.
- [16] 傅宁, 朱雷. 珠一坳陷惠州西凹混源油研究[J]. *石油地质*, 2007, 12(2): 20-26.
- FU Ning, ZHU Lei. Research on Mixed Oil in Western Huizhou Sag of Zhu I Depression[J]. *Petroleum Geology*, 2007, 12(2): 20-26.
- [17] 李友川, 陶维祥, 孙玉梅, 等. 珠江口盆地惠州凹陷及其邻区原油分类与分布特征[J]. *石油学报*, 2009, 30(6): 830-834, 842.
- LI You-chuan, TAO Wei-xiang, SUN Yu-mei, et al. Classification and Distribution of Oil in Huizhou Depression of Pearl River Mouth Basin[J]. *Acta Petroleologica Sinica*, 2009, 30(6): 830-834, 842.
- [18] 马宁, 侯读杰, 施和生. 惠州凹陷原油成因研究[J]. *断块油气田*, 2012, 19(5): 545-549.
- MA Ning, HOU Du-jie, SHI He-sheng. Study on Oil Genesis in Huizhou Depression[J]. *Fault-block Oil and Gas Field*, 2012, 19(5): 545-549.
- [19] 国朋飞, 何生, 柴德蓉, 等. 珠 I 坳陷油源对比及恩平组烃源岩的相对贡献[J]. *地球科学*, 2015, 40(7): 1177-1186.
- GUO Peng-fei, HE Sheng, CHAI De-rong, et al. Oil-source Correlation and Relative Contribution of Source Rock from Enping Formation in Zhu I Depression[J]. *Earth Science*, 2015, 40(7): 1177-1186.
- [20] 包建平, 朱翠山, 倪春华. 北部湾盆地不同凹陷原油生物标志物分布与组成特征[J]. *沉积学报*, 2007, 25(4): 646-652.
- BAO Jian-ping, ZHU Cui-shan, NI Chun-hua. Distribution and Composition of Biomarkers in Crude Oils from Different Sags of Beibuwan Basin[J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 2007, 25(4): 646-652.
- [21] LI P L, RAO C T. Tectonic Characteristics and Evolution History of the Pearl River Mouth Basin[J]. *Tectonophysics*, 1994, 235(1/2): 13-25.
- [22] 张功成, 杨海长, 陈莹, 等. 白云凹陷: 珠江口盆地深水区一个巨大的富生气凹陷[J]. *天然气工业*, 2014, 34(11): 11-25.
- ZHANG Gong-cheng, YANG Hai-zhang, CHEN Ying, et al. The Baiyun Sag: A Giant Rich Gas-generation Sag in the Deepwater Area of the Pearl River Mouth Basin[J]. *Nature Gas Industry*, 2014, 34(11): 11-25.
- [23] 龚晓峰, 何家雄, 莫涛, 等. 珠江口盆地珠一坳陷惠陆油区含油气系统与油气运聚成藏模式[J]. *天然气地球科学*, 2015, 26(12): 2292-2303.
- GONG Xiao-feng, HE Jia-xiong, MO Tao, et al. The Petroleum System and Hydrocarbon Migration and Accumulation Mode of Huilu Oil Region in Zhu I Depression of Pearl River Mouth Basin[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2015, 26(12): 2292-2303.
- [24] 施和生, 何敏, 张丽丽, 等. 珠江口盆地(东部)油气地质特征、成藏规律及下一步勘探策略[J]. *中国海上油气*, 2014, 26(3): 11-22.
- SHI He-sheng, HE Min, ZHANG Li-li, et al. Hydrocarbon Geology, Accumulation Pattern and the Next Exploration Strategy in the Eastern Pearl River Mouth Basin[J]. *China Offshore Oil and Gas*, 2014, 26(3): 11-22.
- [25] CHEN S Z, PEI C M. Geology and Geochemistry of Source Rocks of the Eastern Pearl River Mouth Basin, South China Sea[J]. *Journal of Southeast Asian Earth Sciences*, 1993, 8(1/2/3/4): 393-406.
- [26] 包建平, 马安来, 黄光辉, 等. 三塘湖盆地原油地球化学特征及其成因类型[J]. *石油勘探与开发*, 1999, 26(4): 25-29.
- BAO Jian-ping, MA An-lai, HUANG Guang-hui, et al. The Origin and Geochemical Characteristics of Crude Oils from Santanghu Basin[J]. *Petroleum Exploration and Development*, 1999, 26(4): 25-29.
- [27] PHILIP R P, GILBERT T D. Biomarker Distributions in Austrian Oils Predominantly Derived from Terrigenous Source Material[J]. *Organic Geochemistry*, 1986, 10(1/2/3): 73-84.
- [28] PETERS K E, WALTERS C C, MOLDOWAN J M. The Biomarker Guide: Biomarkers and Isotopes in Petroleum Exploration and Earth History [M]. Cambridge: Cambridge University Press, 2005.
- [29] MOLDOWAN J M, FAGO F J, CARLSON R M K, et al. Rearranged Hopanes in Sediments and Petroleum[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1991, 55(11): 3333-3353.
- [30] 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.
- [31] VENKATESAN M I. Tetrahymanol: Its Widespread Occurrence and Geochemical Significance[J]. *Geochimica*

- et *Cosmochimica Acta*, 1989, 53(11): 3095-3101.
- [32] NYTOFT H P, BOJESSEN-KOEFOED J A, CHRISTIANSEN F G, et al. Oleanane or Lupane? Reappraisal of the Presence of Oleanane in Cretaceous-Tertiary Oils and Sediments[J]. *Organic Geochemistry*, 2002, 33(11): 1225-1240.
- [33] VAN AARSSSEN B G K, COX H C, HOOGENDOORN P, et al. A Cadinene Biopolymer in Fossil and Extant Dammar Resins as a Source for Cadinanes and Bicinanes in Crude Oils from South East Asia [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1990, 54 (11): 3021-3031.
- [34] BROOKS P W. Unusual Biological Marker Geochemistry of Oils and Possible Source Rocks, Offshore Beaufort-Mackenzie Delta, Canada [J]. *Organic Geochemistry*, 1986, 10(1/2/3): 401-406.
- [35] SEIFERT W K, MOLDOWAN J M. Applications of Steranes, Terpanes and Monoaromatics to the Maturation, Migration and Source of Crude Oils [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1978, 42 (1): 77-95.
- [36] 包建平, 朱俊章, 朱翠山, 等. 惠州凹陷文昌组烃源岩及相关原油中的 2-甲基藿烷系列 [J]. *地球化学*, 2012, 41(1): 70-77.
- BAO Jian-ping, ZHU Jun-zhang, ZHU Cui-shan, et al. 2-methylhopane Series in the Source Rocks and the Related Crude Oils from Wenchang Formation in Huizhou Sag [J]. *Geochimica*, 2012, 41(1): 70-77.
- [37] 王汇彤, 张水昌, 翁 娜, 等. 生物标志化合物甾烷、藿烷的定量分析新方法 [J]. *中国科学: 地球科学*, 2014, 44(8): 1713-1722.
- WANG Hui-tong, ZHANG Shui-chang, WENG Na, et al. A New Analytical Method for Quantifying of Sterane and Hopane Biomarkers [J]. *Science China: Earth Sciences*, 2014, 44(8): 1713-1722.
- [38] 包建平, 刘玉瑞, 朱翠山, 等. 北部湾盆地迈陈凹陷徐闻 X1 井油气地球化学特征 [J]. *天然气地球科学*, 2006, 17(3): 300-304.
- BAO Jian-ping, LIU Yu-rui, ZHU Cui-shan, et al. The Geochemical Properties of Natural Gas and Crude Oil from Xuwen X1 Well, Maicheng Sag, Beibuwan Basin [J]. *Natural Gas Geoscience*, 2006, 17(3): 300-304.
- [39] KIRK D N, SHAW P M. Backbone Rearrangements of Steroidal 5-enes [J]. *Journal of Chemical Society, Perkin Transactions I*, 1975, 22: 2248-2294.
- [40] WOLFF G A, LAMB N A, MAXWELL J R. The Origin and Fate of 4-methyl Steroid Hydrocarbons I. Diagenesis of 4-methyl Sterenes [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1986, 50(3): 335-342.
- [41] 黄保家, 黄合庭, 吴国瑄, 等. 北部湾盆地始新统湖相富有机质页岩特征及成因机制 [J]. *石油学报*, 2012, 33(1): 25-31.
- HUANG Bao-jia, HUANG He-ting, WU Guo-xuan, et al. Geochemical Characteristics and Formation Mechanism of Eocene Lacustrine Organic-rich Shales in the Beibuwan Basin [J]. *Acta Petrolei Sinica*, 2012, 33(1): 25-31.
- [42] 程克明. 吐哈盆地油气生成 [M]. 北京: 石油工业出版社, 1994.
- CHENG Ke-ming. The Oil and Gas Generation in Tuha Basin [M]. Beijing: Petroleum Industry Press, 1994.
- [43] 马 宁, 侯读杰, 施和生, 等. 珠江口盆地惠州凹陷烃源岩发育的主控因素分析 [J]. *大庆石油学院学报*, 2012, 36(3): 19-34.
- MA Ning, HOU Du-jie, SHI He-sheng, et al. Analysis of the Main Controlling Factors of Source Rocks of Huizhou Sag in the Pearl River Mouth Basin [J]. *Journal of Daqing Petroleum Institute*, 2012, 36(3): 19-34.
- [44] 崔莎莎, 何家雄, 陈胜红, 等. 珠江口盆地发育演化特征及其油气成藏地质条件 [J]. *天然气地球科学*, 2009, 20(3): 384-391.
- CUI Sha-sha, HE Jia-xiong, CHEN Sheng-hong, et al. Development Characteristics of Pearl River Mouth Basin and Its Geological Conditions for Oil and Gas Accumulation [J]. *Natural Gas Geoscience*, 2009, 20 (3): 384-391.
- [45] SUMMONS R E, JAHNKE L L, HOPE J M, et al. 2-methylhopanoids as Biomarkers for Cyanobacterial Oxygenic Photosynthesis [J]. *Nature*, 1999, 400: 554-557.
- [46] RICCI J N, COLEMAN M L, WELANDER P V, et al. Diverse Capacity for 2-methylhopanoid Production Correlates with a Specific Ecological Niche [J]. *The ISME Journal*, 2014, 8(3): 675-684.
- [47] MCCAFFREY M A, DAHL J E, SUNDARARAMAN P, et al. Source Rock Quality Determination from Oil Biomarkers II: A Case Study Using Tertiary-reservoired Beaufort Sea Oils [J]. *AAPG Bulletin*, 1994, 78 (10): 1527-1540.
- [48] MURRAY A P, SOSROWIDJOJO I B, ALEXANDER R, et al. Oleananes in Oils and Sediments: Evidence of Marine Influence During Early Diagenesis? [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1997, 61(6): 1261-1276.