

珠江口盆地白云凹陷储层沥青成因及其对油藏调整改造的启示

李美俊^{1,2}, 张忠涛³, 陈 聪³, 杨程宇², 卢晓林², 付 健², 代金慧², 唐友军¹

[1. 长江大学 资源与环境学院 油气资源与勘探技术教育部重点实验室, 湖北 武汉 430100; 2. 中国石油大学(北京) 油气资源与探测国家重点实验室, 北京 102249; 3. 中国海洋石油 南海东部公司, 广东 深圳 518000]

摘要:在珠江口盆地白云凹陷多个层系都发现了储层沥青。储层沥青丰度自上部的珠海组、珠江组至深部的恩平组、文昌组逐渐增加。储层沥青在物性较好的粗粒砂岩中多为零星状出现,而在细粒的粉砂岩和泥岩中主要呈脉状分布而且含量明显增加。几乎所有的储层沥青均没有显示出明显的各向异性,而且沥青反射率均小于2.0%,表明高温热裂解不是储层沥青形成的主要原因。沥青抽提物的分子地球化学组成特征显示,白云凹陷储层沥青抽提物中缺乏25-降霍烷系列,色谱基线没有明显的“UCM”鼓包,单井地层埋藏史显示储层也未遭受大幅度的抬升剥蚀,因此储层沥青也非生物降解成因。结合地质背景和油气藏特征分析认为,白云凹陷储层沥青的成因为:恩平组-文昌组烃源岩早期生成的原油聚集藏以后,深部主要遭受了后期天然气的气洗作用。不同层位烃源岩、储层热演化的时间差异是导致白云凹陷油气藏发生调整,并转变为轻质油、挥发油等特殊油藏类型的重要原因。

关键词:反射率;裂解;气洗;储层沥青;白云凹陷;珠江口盆地

中图分类号:TE135

文献标识码:A

Origin of reservoir bitumen and its implications for adjustment and reformation of hydrocarbon-accumulation in Baiyun Sag, Pearl River Mouth Basin

Li Meijun^{1,2}, Zhang Zhongtao³, Chen Cong³, Yang Chengyu², Lu Xiaolin², Fu Jian², Dai Jinhui², Tang Youjun¹

[1. Key Laboratory of Exploration Technologies for Oil and Gas Resources (Yangtze University), Ministry of Education, College of Resources and Environment, Wuhan, Hubei 430100, China; 2. State Key Laboratory of Petroleum Resources and Prospecting, China University of Petroleum (Beijing), Beijing 102249, China; 3. CNOOC East Nanhai Corp. Ltd., Shenzhen, Guangdong 518000, China]

Abstract: Reservoir bitumen has been discovered in multiple Paleogene series of strata in the Baiyun Sag, Pearl River Mouth Basin. The abundance of reservoir bitumen gradually increases from the shallower Zhuhai and Zhujiang formations to deeply buried Enping and Wenchang Formations. The reservoir bitumen only sporadically occurs in coarse-grained sandstones with better permeability and porosity, while occurs in siltstones and mudstones in the form of veins. Almost all reservoir bitumen samples do not show apparent anisotropy with bitumen reflectance lower than 2.0%, suggesting that the reservoir bitumen in the Baiyun Sag doesn't mainly result from high-temperature cracking. All bitumen extracts lack 25-norhopane series according to the analysis of molecular geochemical composition. No gas chromatogram base-line “hump” was discovered in all saturated hydrocarbon of reservoir bitumen. The reconstructed burial history of representative individual wells shows that the reservoir strata have not experienced large-scale uplifting and denudation. Therefore, the reservoir bitumen in the Baiyun Sag is not of biodegradation origin. Based on the analyses of the geological setting and characteristics of oil and gas reservoirs, the origin of reservoir bitumen could be attributed to later “gas washing” for deeply buried hydrocarbon-accumulation generated by source rocks of Enping and Wenchang Formations during the early thermal maturity stage. The time differences of thermal evolution for source rocks and reservoirs of various stratigraphic horizons leads to the adjustment and altering of oil and gas reservoirs in the Baiyun Sag, subsequently resulting in the formation of light and volatile oil reservoirs.

收稿日期:2018-07-15; 修订日期:2018-08-18。

第一作者简介:李美俊(1972—),男,教授,有机地球化学、油气地球化学。E-mail:meijunli@cup.edu.cn。

基金项目:国家自然科学基金项目(41272158);油气资源与探测国家重点实验室自主研究课题(PRP/indep-2-1402)。

Key words: bitumen reflectance, cracking, gas washing, reservoir bitumen, Baiyun Sag, Peral River Mouth Basin

白云凹陷是珠江口盆地的一个次级凹陷,以产天然气为主^[1],近些年来随着勘探的不断深入,已经在凹陷内发现了凝析油、轻质油和挥发性油藏^[2]。已发现油气藏的储层主要为古近系的珠海组、珠江组以及恩平组海相砂岩^[1]。不同储层的钻探资料显示,白云凹陷油气藏中的储层沥青也很常见。

原油高温裂解是储层沥青较常见的成因,裂解沥青广泛存在于石油天然气储层、煤层甚至燃烧物中^[3]。其本质是有机组份在高温烘烤的条件下发生歧化反应,有机物分子的一部分碳链断裂形成气态烃类,另一部分缩聚形成高密度的硬质沥青^[3-5]。因此,在国内文献中常称之为干沥青、脆沥青、焦沥青或者热解沥青^[3,6-8]。除裂解成因以外,沥青的产生还可能与石油的氧化和生物降解、水洗、气洗等作用有关,这些使石油的性质产生次生变化的作用可以统称为石油的蚀变作用^[9-14]。对储层沥青成因的研究可以直观的表现出油气藏成藏之后的地质作用过程对油气以及其他地质流体的影响。这种影响一方面可能导致已形成油气藏的破坏,另一方面也可能调整和改造油气藏,使油气藏中油气的性质发生变化。因此对储层沥青成因及其地质意义的研究,有利于判识油气成藏之后的一系列

次生作用对油气藏的影响,从而丰富油气成藏理论并为进一步的勘探决策提供参考。对白云凹陷储层沥青的成因及石油地质意义研究成果还不多见,本文将综合储层沥青的有机岩石学、分子地球化学特征、石油地质背景以及油气藏性质,研究白云凹陷储层沥青的成因,并分析储层沥青形成过程对研究区油气藏调整改造的影响。

1 地质背景及样品采集

白云凹陷位于珠江口盆地珠二坳陷内,是珠江口盆地重要的深水勘探领域。白云凹陷可以划分为白云主凹、番禺低隆起、东沙隆起、云开低隆起和云荔低隆起等主要构造单元^[1](图1)。主要的含油气构造发育在白云主凹周缘的各个隆起上,白云主凹内主要发育烃源岩,周缘地区也有部分构造圈闭^[15]。白云凹陷自下而上发育古近系文昌组、恩平组和珠海组,新近系珠江组、韩江组、粤海组和万山组^[16](图2),其中文昌组、恩平组及珠海组是主要的潜在烃源层,其在垂向上和纵向上均存在很强的非均质性,烃源岩分布及地球化学性质较为复杂^[1]。

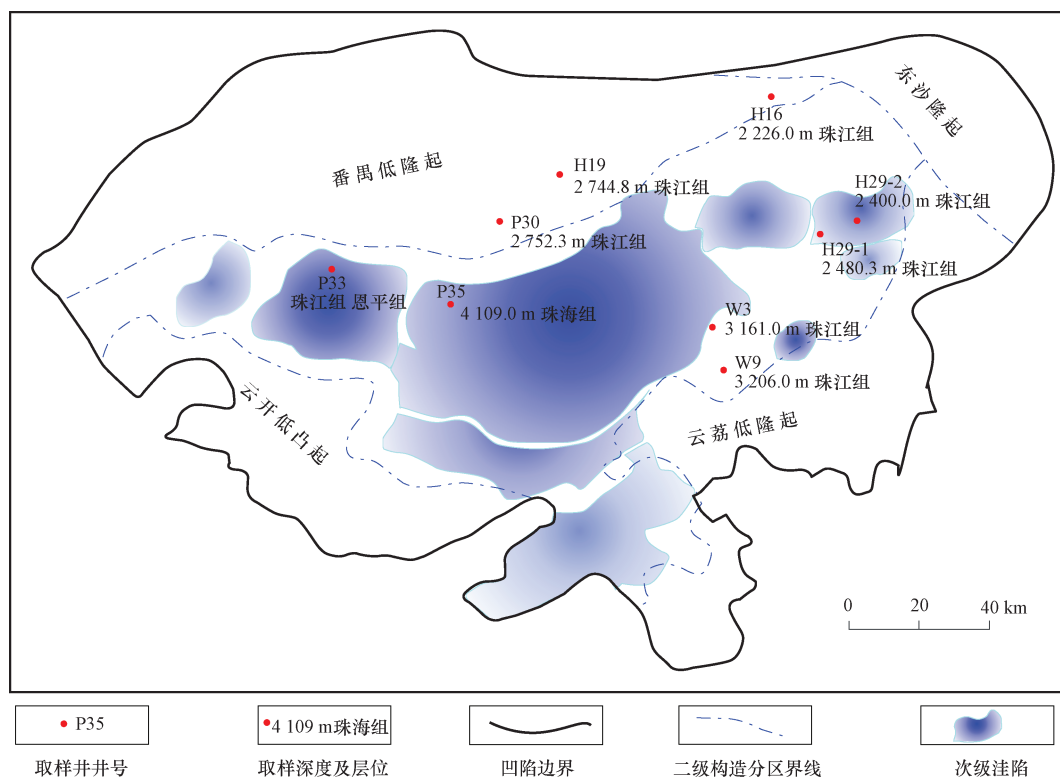


图1 白云凹陷构造分区及储层沥青分析取样井位置

Fig. 1 Structural units and location of sampled wells for reservoir bitumen analysis in Baiyun Sag

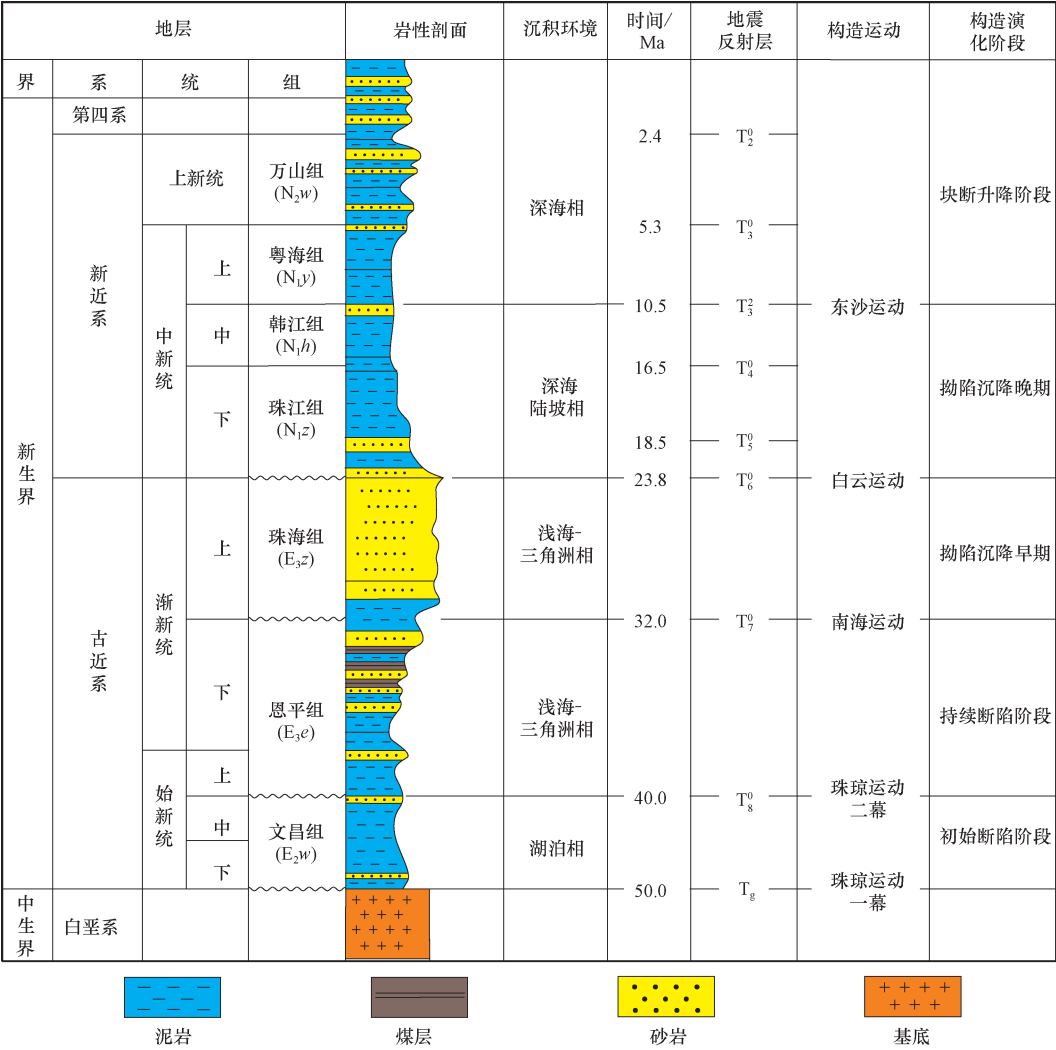


图 2 白云凹陷新生界地层综合柱状图 [16]

Fig. 2 Composite stratigraphic column of the Cenozoic strata in Baiyun Sag [16]

分别对白云凹陷的 9 口井(图 1)岩心以及岩屑样品中的沥青进行了取样,并对样品进行了反射光显微镜观察和反射率测定。共制备快光片样品 22 件,其中岩心样品 12 件,取样井位于白云凹陷北部、中部和东部;10 件岩屑样品均取自 P33 井,样品深度范围为 2 555.0 ~ 5 091.7 m (表 1)。北部和东部取样层位均为珠江组,中部样品来自珠江组、珠海组及恩平组。在所有取样井中,P33 井的含沥青丰度最高,在珠江、珠海以及恩平组中均发现了沥青。因此,选取该井为基准井,结合不同深度岩心、岩屑的沥青反射率制作了沥青反射率剖面。

2 沥青产状及反射率特征

含有储层沥青的岩心样品主要为细砂岩、中-细砂岩,仅 P33 井恩平组为泥岩、粉砂质泥岩。白云凹

陷东部和北部的 5 口井样品中均未观察到沥青,含沥青的井主要位于凹陷中部、西部,其中以 P33、P35 井丰度较高。样品中沥青主要以充填状出现(图 3a, b),但其充填方式以及相对丰度有明显差异(表 1)。大部分储层砂岩中的沥青丰度较低且为零星的无定形充填(图 3a, b),而高沥青丰度的样品多为粉砂岩和泥岩(表 1),沥青常为顺层的脉状充填和裂隙式充填(图 3c, d)。

样品中的沥青均没有表现出各向异性,沥青反射率值总体偏低并表现出了良好的深度相关性(图 3e)。通过沥青反射率校正公式: $R_{cv}(\%) = 0.618 R_b + 0.4$ [3] 计算可知,样品中沥青的等效镜质体反射率为 0.51% ~ 1.07%。P33 井沥青反射率剖面显示沥青反射率无论在校正前后均与深度保持良好线性关系(图 3e),说明该井中的沥青形成并没有受到明显热异常事件的影响,而是随着埋藏升温正

表 1 白云凹陷储层沥青样品岩性、产状及反射率

Table1 The lithology, occurrence and reflectance of reservoir bitumen samples taken from Baiyun Sag

井号	样品类型	深度/m	层位	岩性	沥青产状	沥青反射率(R_b)/%	等效镜质组反射率(R_{ev})/%
P33	岩屑	2 555.0	韩江组	细砂岩	零星充填状	0.17	0.51
P33	岩屑	2 890.0	珠江组	细砂岩	未见沥青	—	—
P33	岩屑	3 095.0	珠江组	细砂岩	零星充填状	0.27	0.57
P33	岩心	3 438.2	珠江组	中-细砂岩	未见沥青	—	—
P33	岩屑	3 510.0	珠江组	中-细砂岩	未见沥青	—	—
P33	岩心	3 818.0	珠海组	中-细砂岩	零星充填状	0.47	0.69
P33	岩屑	3 865.0	珠海组	中-细砂岩	未见沥青	—	—
P33	岩屑	4 075.0	珠海组	细砂岩	零星充填状	0.53	0.73
P33	岩心	4 291.0	恩平组	泥岩	未见沥青	—	—
P33	岩屑	4 350.0	恩平组	粉砂质泥岩	脉状	0.57	0.75
P33	岩屑	4 555.0	恩平组	粉砂质泥岩	脉状	0.71	0.84
P33	岩屑	4 770.0	恩平组	泥岩	脉状	0.77	0.88
P33	岩屑	4 945.0	恩平组	细砂岩	未见沥青	—	—
P33	岩心	5 091.7	恩平组	泥岩	脉状	1.1	1.08
H16	岩心	2 226.0	珠江组	中-细砂岩	未见沥青	—	—
H29-2	岩心	2 400.0	珠江组	中-细砂岩	未见沥青	—	—
H29-1	岩心	2 480.3	珠江组	中-细砂岩	未见沥青	0.21	0.53
H19	岩心	2 744.8	珠江组	中-细砂岩	零星充填状	—	—
P30	岩心	2 752.3	珠江组	中-细砂岩	未见沥青	—	—
W3	岩心	3 161.0	珠江组	中-细砂岩	零星充填状	0.27	0.57
W9	岩心	3 206.0	珠江组	细砂岩	未见沥青	—	—
P35	岩心	4 109.0	珠海组	粉砂质泥岩	脉状	0.57	0.75

注: $[R_{ev}(\%) = 0.618R_b + 0.4]$, 据 Jacob, 1992]; “—”表示没有数据。

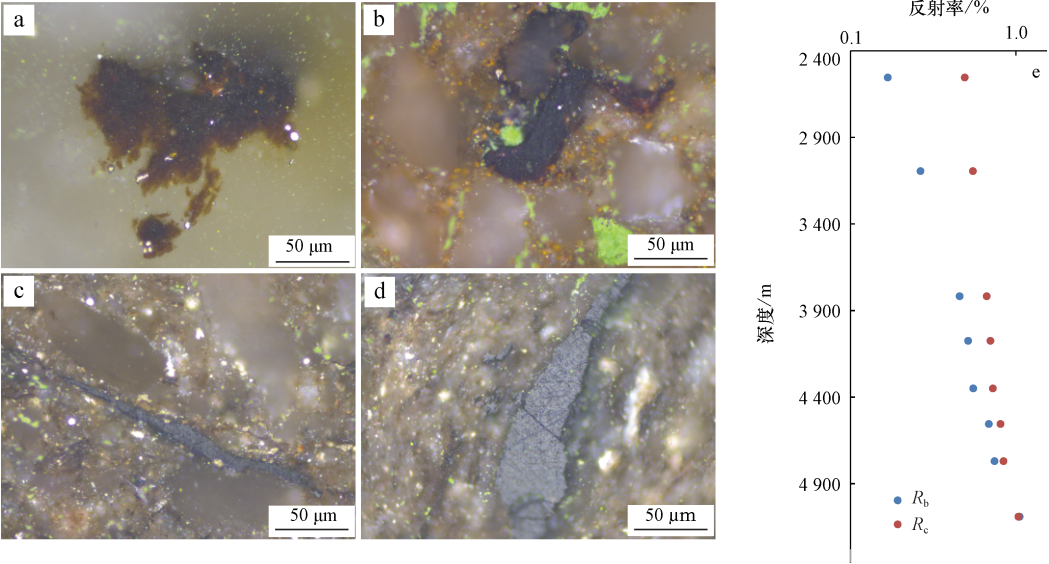


图 3 白云凹陷储层沥青微观反射光特征及沥青反射率剖面(P33 井)

Fig. 3 Micro-reflectance features of reservoir bitumen and bitumen reflectance profiles in Baiyun Sag(Well P33)

a. 零星分布的充填状沥青, W3 井, 埋深 3 161.0 m; b. 零星分布的充填状沥青, P33 井, 埋深 3 818.0 m; c. 脉状充填沥青,

P35 井, 埋深 4 109.0 m; d. 裂隙式充填沥青, P33 井, 埋深 5 091.7 m; e. 沥青反射率剖面

$[R_{ev}(\%) = 0.618R_b + 0.4]$, 据 Jacob, 1992]

常演化^[3]。

3 沥青抽提物分子地化特征

P33 井不同层位储层沥青抽提物饱和烃色谱图 (TIC) 和三萜类分布图 (m/z 191) 如图 4 所示, 明显看出储层沥青饱和烃色谱图基线平直, 没有明显“鼓包” (UCM: 未分辨的复杂混合物, 在色谱上不能分离而使基线形成的鼓包), 正构烷烃系列分布完整, 没有明显

的损失, 姥鲛烷 (Pr) 和植烷 (Ph) 等非环状类异戊二烯没有遭受损失, 也未检测出明显的 25 - 降霍烷系列 (该化合物一般是原油遭受严重生物降解的标志), 由此推测沥青非生物降解成因。

P33 井珠海组含沥青砂岩 (埋深 3 818.0 m) 抽提物地化特征与恩平组煤系泥岩特征相似, 例如具有明显的姥鲛烷优势, Pr/Ph (姥鲛烷/植烷) 比值为 4.74 (图 4b), 高的 Pr/Ph 是恩平组煤系泥岩的典型特征 (图 5b, c)。而恩平组含沥青砂岩 (埋深 4 302.0 m)

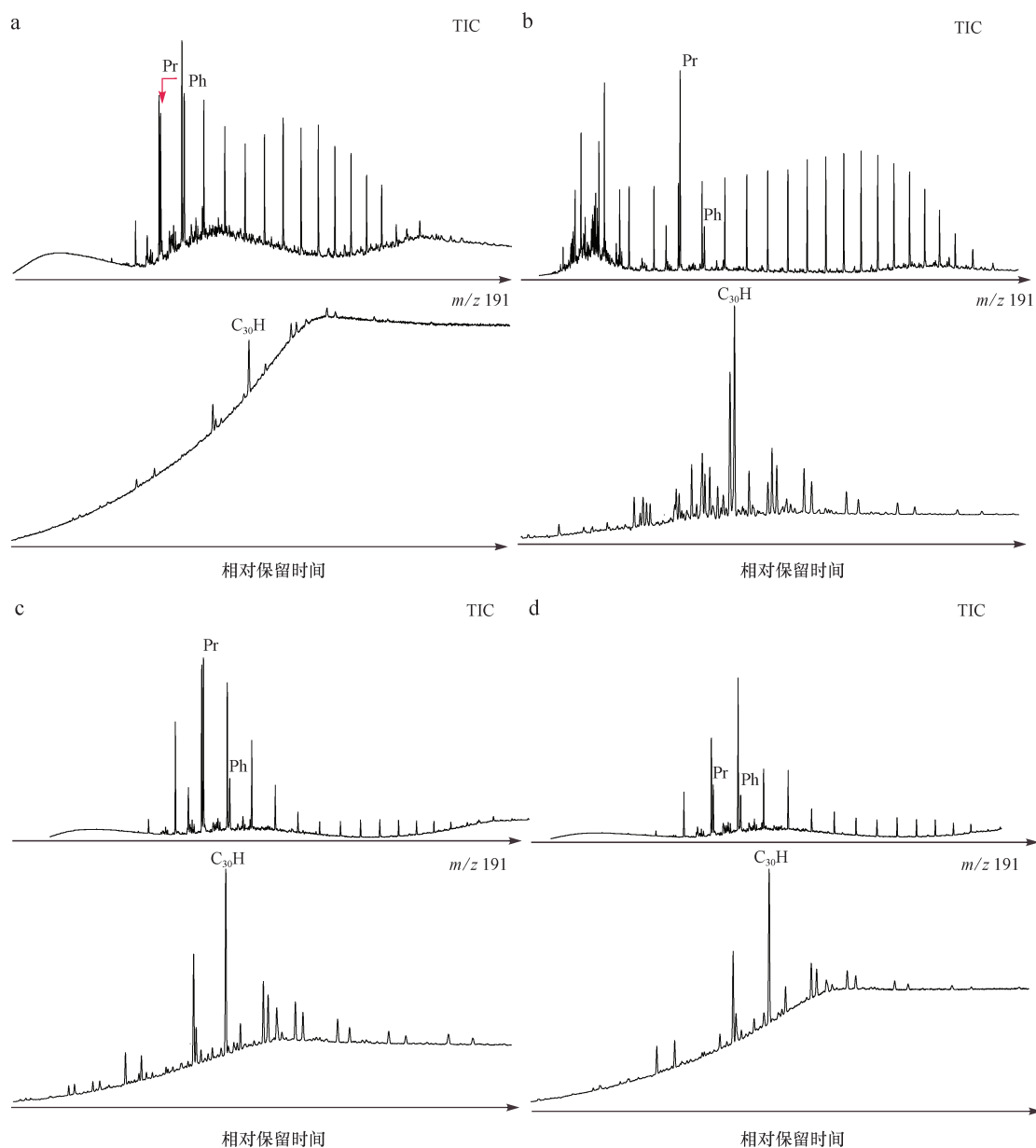


图 4 白云凹陷 P33 井沥青抽提物饱和烃色谱 (TIC) 及三萜类 (m/z 191 质量色谱图) 分布特征

Fig. 4 The gas chromatograms of saturates (TIC) and the distribution of triterpanes (m/z 191 mass chromatograms)

for saturated hydrocarbons of reservoir bitumen extracts from Well P33 in Baiyun Sag

a. 埋深 3 429.2 m, 珠江组二段, 砂岩岩心, Pr/Ph = 0.91; b. 埋深 3 818.0 m, 珠海组, 砂岩岩心, Pr/Ph = 0.74;

c. 埋深 4 302.0 m, 恩平组, 砂岩岩心, Pr/Ph = 3.29; d. 埋深 5 090.7 m, 恩平组, 泥岩岩心, Pr/Ph = 1.35

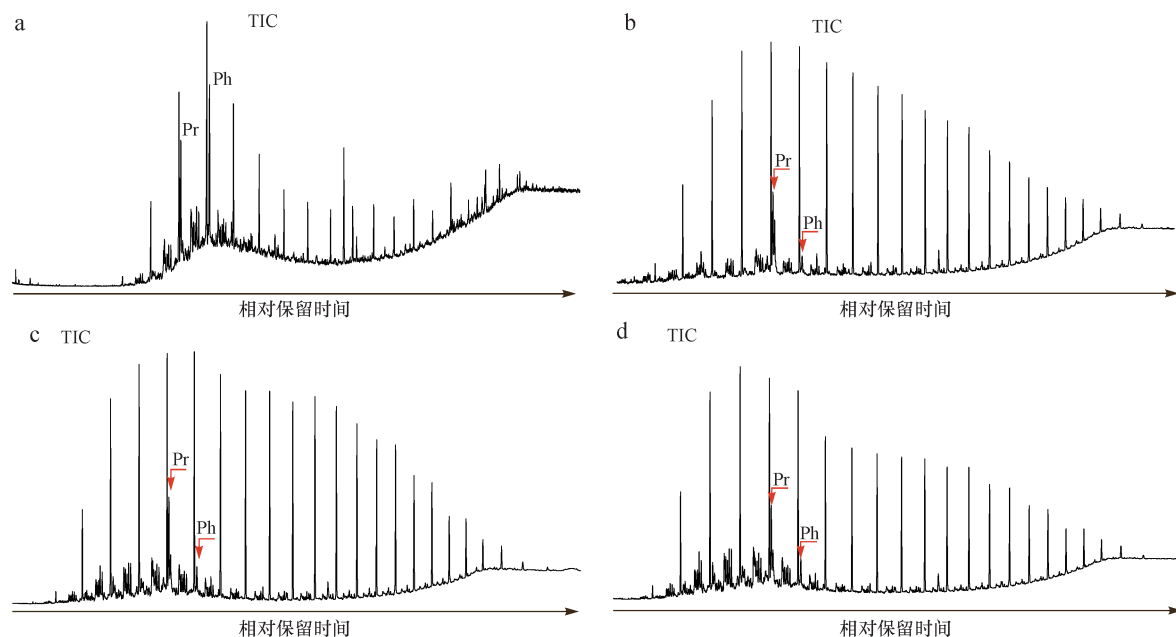


图5 白云凹陷代表性烃源岩抽提物饱和烃色谱(TIC)图

Fig. 5 Gas chromatograms (TIC) of saturate fractions for representative source rock extracts in Baiyun Sag

a. H34井,埋深3 255.0~3 285.0 m,珠海组陆棚泥岩,Pr/Ph=0.72; b. P33井,埋深4 296.0 m,恩平组煤系泥岩,Pr/Ph=5.54;
c. P33井,埋深4 345.0~4 370.0 m,恩平组煤系泥岩,Pr/Ph=3.60; d. W4井,埋深3 410.0~3 440.0 m,文昌组湖相泥岩,Pr/Ph=1.29

和泥岩岩心(埋深5 090.7 m)抽提物总的地球化学特征与文昌组湖相泥岩相似,例如较低的Pr/Ph比值(图4c,d),其中4 302.0 m砂岩样品可能受到恩平组煤系烃源岩生成烃类的混合,其Pr/Ph高于典型的文昌组泥岩(图5d),而又低于典型的恩平组煤系泥岩(图5b,c)。P33井珠江组(埋深3 429.0 m)(图4a)和H29-1井珠江组(埋深2 480.0 m)含沥青砂岩抽提物地化特征与珠海组陆棚泥岩相似(图5b),沥青可能为来自珠海组的原油遭受后期改造形成。

4 沥青成因机制

4.1 裂解成因

中国诸多含油气盆地中均发现过热解沥青,例如燕山地区中上元古界沥青砂岩中的沥青^[17],四川盆地东部古生界白云岩中的沥青^[18],四川盆地川中古隆起上元古界-古生界沥青^[19]。这些裂解成因的沥青都具有高反射率($R_b > 2.0\%$),强各向异性的特征。然而研究区尚没有发现高沥青反射率,并且具有明显各向异性的储层沥青样品(表1;图3)。此外,研究区本文恢复了白云凹陷西区和东区代表性井的埋藏史-热史(图6),结果表明,白云东区的H29-1井(图6a),恩平组和文昌组底界的现今最高温度尚未超过液态烃裂解的温度界限 $150\text{ }^{\circ}\text{C}$ ^[20],白云西区的P33井,位于靠近凹陷中心部分,目前恩平组埋深已超

过5 000 m(图6b),目前高含量沥青的样品也主要发现于该井,从恢复的埋藏史-热史曲线看,恩平组底界现今最高温度约为 $160\text{ }^{\circ}\text{C}$ 左右(图6),可能受到一定程度的热裂解作用(图6)。因此,研究区出现大规模、区域性裂解沥青的可能性不大。

裂解沥青往往会表现出较高的各向异性级别和反射率,而且往往与热液作用有关^[19]。这种裂解沥青往往表现出和孔隙性相关,因为热液更容易烘烤孔隙性较好的储层,从而产生沥青。另外,发生大规模原油裂解的储层中往往能发现纯甲烷包裹体和沥青-甲烷包裹体^[21],但上述特征在白云凹陷储层中都没有发现。

在恩平组烃源岩中发现了丰度较高的沥青,说明这些沥青很可能是早期生成的热成熟度较低阶段的原油充填了烃源岩内的残余孔隙,之后在较高温度下经历裂解作用形成。根据前人研究,干酪根在低热演化阶段很可能生成沥青质含量较高的重质油^[22],这些重质油比正常原油更易于裂解。同时有研究者认为,干酪根晚期产生的天然气很有可能并不直接来自于干酪根,而是来自于这些低熟油的裂解^[23]。因此对白云凹陷中心恩平组下部和文昌组烃源岩中沥青的进一步分析,有助于深入研究恩平组和文昌组烃源岩的生烃特征。

4.2 气洗成因

根据前述的石油蚀变特征,研究区出现氧化和生物降解作用的可能性并不大,因为地层埋藏史恢复结

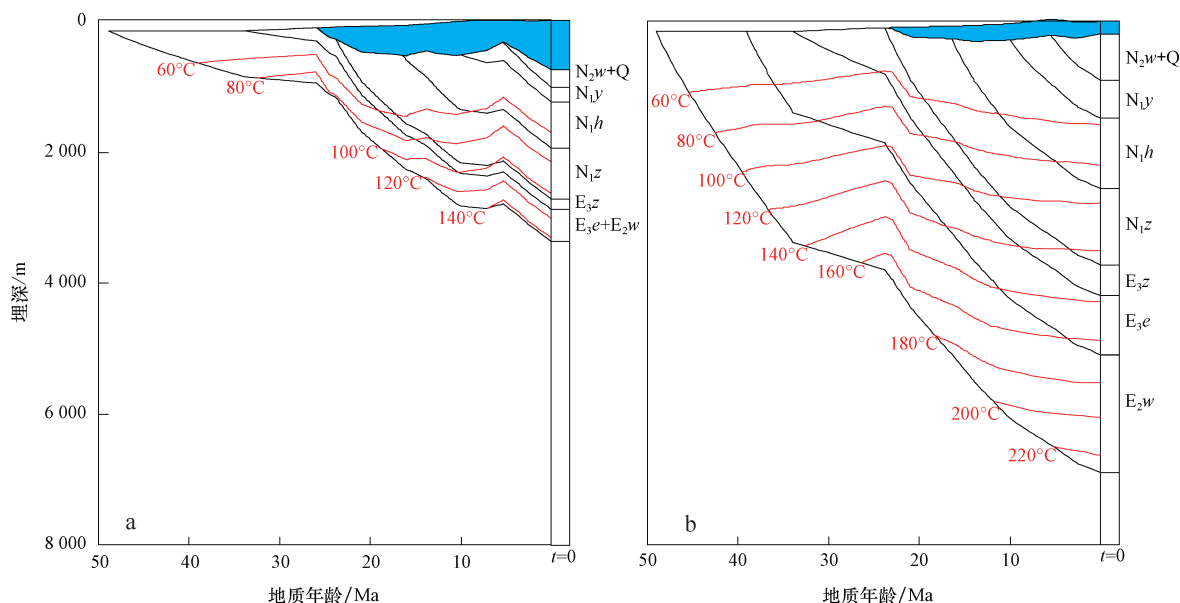


图6 白云凹陷含储层沥青代表性井和埋藏史-热史关系

Fig. 6 The reconstructed burial and thermal histories for representative wells bearing reservoir bitumen in Baiyun Sag

a. H29-1井; b. P33井

N_2w+Q . 第四系+万山组; N_1y . 粤海组; N_1h . 韩江组; N_1z . 珠江组; E_3z . 珠海组; E_3e . 恩平组; E_2w . 文昌组

果显示研究区储层没有经历大幅度的抬升剥蚀,或者遭受大气淡水的林滤(图6),而气洗作用可能是储层沥青形成的主要原因。

气洗作用是指大量轻烃进入储层,极性较强的沥青质组分由于石油中轻重组分差异的增大而发生沉淀^[24]。埋藏史研究结果表明,研究区文昌组和恩平组烃源岩都已经达到了生气阶段(图6)。裂解作用和干酪根晚期生气作用形成的凝析油和天然气很可能对珠海组、珠江组中充注的正常石油形成气洗,同时形成少量的沥青。这些沥青的形成并没有经过高温裂解作用,因此沥青和正常石油相比只是成分产生了变化,而反射率和各向异性并没有增加,这也与研究区的实际情况以及沥青的观察结果相符。

对含沥青储层的抽提物分析显示,白云西区 P33 井恩平组底部泥岩观测到有沥青富集,抽提物中沥青质含量高达 53%。正构烷烃分布表现为前峰型,主峰碳数为 18,无明显生物降解特征,与上部珠海组、珠江组及典型恩平组煤系泥岩正构烷烃分布均存在较大的差异。白云凹陷珠江组储层沥青主要分布于白云东,其正构烷烃高碳数部分丰度较高, Pr/nC_{17} 介于 0.62~1.87,无明显 UCM 鼓包,可能受到了气洗作用的影响。白云北坡及白云西区珠海组观察到有沥青分布, P35, P33 珠海组砂岩抽提物,均无明显生物降解特征。因此,研究区储层中的沥青可能主要由于气洗作用造成。

图7是位于P33井附近的P34井和位于东部的H19井的正构烷烃摩尔浓度和碳数分布关系图,可以明显看出,轻烃部分由于遭受了明显的损失,前人研究认为这种特征是原油气洗作用造成的^[25]。研究人员在塔里木盆地库车凹陷^[26-27]、塔中地区^[28]以及鄂尔多斯盆地^[29]等都发现了气洗作用造成的储层沥青,前人的研究成果也报道过白云凹陷原油的气洗作用^[30],表明气洗作用是白云凹陷油藏次生改造和调整的重要因素之一。

5 沥青成因研究对油气藏调整改造的启示

根据图6代表性井埋藏史图分析,如果珠海组和珠江组中的沥青源于早期运移石油的裂解,那么这些早期运移石油只可能来自于文昌组烃源层。如果文昌组具有优质烃源岩并生成了大量石油,那么这些石油在恩平组和珠海组开始大量生油之前就进入储层。同样如果这些早期运移石油在恩平组和珠江组中形成了古油藏,并保存至该储层进入裂解温度窗,那么这些早期石油会发生大规模裂解并产生大量沥青和天然气。但是实际上,恩平组和珠海组的砂岩储层中发现的沥青非常有限,而且前人的研究表明古油藏的大规模裂解往往会生成干气为主的次生气藏^[31],这并不符合研究区储层中主要保存凝析气的事实。由此可见,珠海组和珠江组可能并没有在早期大量生成油气并形成古

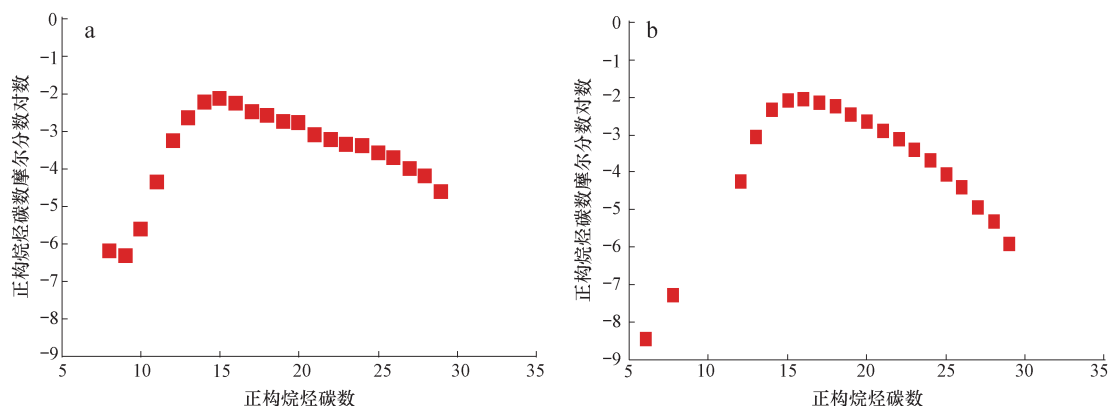


图7 白云凹陷 P34 井(a)和 H19 井(b)正构烷烃摩尔浓度分布和碳数关系

Fig. 7 The relationship between molar concentration of n -alkanes and its carbon number for the oils from Well P34(a) and Well H19(b)

油藏。埋藏史分析结果也表明,真正进入石油裂解温度区间的地层只有恩平组底部以及文昌组,烃源岩和原油裂解可能为上部储层提供了气源。而这些天然气在构造沉降的影响下,进入上部储层并对储层中的原油进行气洗并形成储层沥青。

白云凹陷沥青的形成过程说明,富含烃源岩和储层的含油气盆地,不同层位的油气在纵向上会由于盆地热沉降作用的影响而调整改造^[32-33]。早期形成的原油在较浅的地层中虽然不会受到裂解作用的影响而形成沥青和天然气,但深部烃源岩晚期生成的天然气可能会向上运移进入浅部储层,对浅部的油气藏进行气洗从而调整改造油气藏特征和油气性质,进而形成大量轻质油、凝析油以及挥发油藏等特殊油气藏。

6 结论

1) 珠江口盆地白云凹陷古近系部分储层样品中发现了储层沥青,零星分布于中部和东部部分井中,在靠近盆地中心的井中较深的地层(文昌组和恩平组)中相对较多。

2) 高温热裂解和生物降解作用都不是储层沥青形成的主要原因。绝大部分储层沥青均没有显示出明显的各向异性,而且沥青反射率普遍较低,均小于2.0%,生物标志物组成特征也未显示出明显的生物降解作用。

3) 白云凹陷浅层储层中的沥青主要为气洗作用成因,深层储层中的沥青可能遭受了一定程度的热裂解作用,深部烃源岩晚期生成的天然气,向上运移至浅层储层中并对储层进行气洗,形成沥青,同时气洗作用导致浅部储层中的正常原油调整为轻质油、挥发油等特殊油藏类型。

参 考 文 献

- [1] 庞雄,陈隽,戴一丁,等. 珠江口盆地白云西-开平凹陷油气聚集及勘探目标研究[J]. 中国海上油气, 1995, 9(4): 237-245.
Pang Xiong, Chen Jun, Dai Yiding, et al. Study on hydrocarbon accumulation and exploration targets in west Baiyun-Kaiping Sag of Pearl Mouth Basin [J]. China Offshore Oil and Gas (Geology), 1995, 9(4): 237-245.
- [2] 赵中贤,周蒂,廖杰. 珠江口盆地第三纪古地理及沉积演化[J]. 热带海洋学报, 2009, 28(6): 52-60.
Zhao Zhongxian, Zhou Di, Liao Jie. Tertiary paleogeography and depositional evolution in the Pearl River Mouth Basin of the northern South China Sea [J]. Journal of Tropical Oceanography, 2009, 28(6): 52-60.
- [3] Jacob H. Classification, structure, genesis and practical importance of natural solid oil bitumen ("migrabitumen") [J]. International Journal of Coal Geology, 1989, 11(1): 65-79.
- [4] Lomando A J. The influence of solid reservoir bitumen on reservoir quality [J]. AAPG Bulletin, 1992, 76(8): 1137-1152.
- [5] Schoenherr J, Littke R, Urai J L, et al. Polyphase thermal evolution in the infra-cambrian ara group (south oman salt basin) as deduced by maturity of solid reservoir bitumen [J]. Organic Geochemistry, 2007, 38(8): 1293-1318.
- [6] Barton D. Evolution of gulf coast crude oil [J]. AAPG Bulletin, 1937, (7): 914-946.
- [7] Landis C R, Castaño J R. Maturation and bulk chemical properties of a suite of solid hydrocarbons [J]. Organic Geochemistry, 1995, 22(1): 137-149.
- [8] Gentzis T, Goodarzi F. A review of the use of bitumen in hydrocarbon exploration with examples from melville island, arctic canada [J]. Rocky Mountain, 1990, 23-36.
- [9] Milner C W D. Petroleum transformations in reservoirs [J]. Journal of Geochemical Exploration, 1977, 7(2): 101-153.
- [10] Rogers M A, Mcalary J D, Bailey N J L. Significance of reservoir bitumens to thermal-maturation studies, western canada basin [J]. AAPG Bulletin, 1974, 58(9): 1806-1824.

- [11] Mcauliffe C. Solubility in water of paraffin, cycloparaffin, olefin, acetylene, cycloolefin, and aromatic hydrocarbons[J]. *Journal of Physical Chemistry*, 1966, 70(4): 1267–1275.
- [12] Price LC. Crude oil degradation as an explanation of the depth rule[J]. *Chemical Geology*, 1980, 28(3): 1–30.
- [13] 凡元芳. 储层沥青的研究进展及存在问题[J]. *石油地质与工程*, 2009, 23(6): 35–38.
Fang Yuanfang. Advances and main problems in reservoir bitumen research[J]. *Petroleum Geology and Engineering*, 2009, 23(6): 35–38.
- [14] 胡守志, 付晓文, 王廷栋, 等. 储层中的沥青沉淀带及其对油气勘探的意义[J]. *天然气地球科学*, 2007, 18(1): 99–103.
Hu Shouzhi, Fu Xiaowen, Wang Tingdong, et al. Bitumen-sealed belt in reservoirs and its implication to petroleum exploration[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2007, 18(1): 99–103.
- [15] 吴景富, 杨树春, 张功成, 等. 南海北部深水盆地地壳历史及烃源岩热演化研究[J]. *地球物理学报*, 2013, 56(1): 170–180.
Wu Jingfu, Yang Shuchun, Zhang Gongcheng, et al. Geothermal history and thermal evolution of the source rocks in the deep-water area of the northern South China Sea[J]. *Chinese Journal of Geophysics*, 2013, 56(1): 170–180.
- [16] 杨海长, 陈莹, 纪沫, 等. 珠江口盆地深水区域构造演化差异性对油气勘探意义[J]. *中国石油勘探*, 2017, 22(6): 59–67.
Yang Haichang, Chen Ying, Ji Mo, et al. Structural evolution difference and the significance for oil and gas exploration in the deep water area of the Pearl River Mouth Basin[J]. *China Petroleum Exploration*, 2017, 22(6): 59–67.
- [17] 刘岩, 钟宁宁, 田永晶, 等. 中国最老古油藏—中元古界下马岭组沥青砂岩古油藏[J]. *石油勘探与开发*, 2011, 38(4): 503–512.
Liu Yan, Zhong Ningning, Tian Yongjing, et al. The oldest oil accumulation in China: Meso-proterozoic Xiamaling Formation bituminous sandstone reservoirs[J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2011, 38(4): 503–512.
- [18] 秦建中, 付小东, 刘效曾. 四川盆地东北部气田海相碳酸盐岩储层固体沥青研究[J]. *地质学报*, 2007, (8): 1065–1071, 1161.
Qin Jianzhong, Fu Xiaodong, Liu Xiaozeng. Solid bitumens in the marine carbonate reservoir of gas field in the northeast area of the Sichuan Basin[J]. *Acta Geologica Sinica*, 2007, 81(8): 1065–1071, 1161.
- [19] 田兴旺, 胡国艺, 李伟, 等. 四川盆地乐山—龙女寺古隆起地区震旦系储层沥青地球化学特征及意义[J]. *天然气地球科学*, 2013, 24(5): 982–990.
Tian Xingwang, Hu Guoyi, Li Wei, et al. Geochemical characteristics and significance of sinian reservoir bitumen in Leshan-Longnvsi paleo-uplift area, Sichuan Basin[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2013, 24(5): 982–990.
- [20] Waples D W. The kinetics of in-reservoir oil destruction and gas formation: Constraints from experimental and empirical data, and from thermodynamics[J]. *Organic Geochemistry*, 2000, 31(6): 553–575.
- [21] Yang C, Ni Z, Li M, et al. Pyrobitumen in south china: Organic petrology, chemical composition and geological significance[J]. *International Journal of Coal Geology*, 2018, 188: 51–63.
- [22] 王铁冠, 钟宁宁, 侯读杰, 等. 低熟油气形成机理与分析[M]. 石油工业出版社, 1995.
- Wang Tieguan, Zhong Ningning, Hou Dujie, et al. Formation mechanism and analysis of low-mature oil and gas[M]. *Petroleum Industry Press*, 1995.
- [23] Lewan M D, Spiro B, Illich H, et al. Evaluation of petroleum generation by hydrous pyrolysis experimentation and discussion[J]. *Philosophical Transactions of the Royal Society of London*, 1985, 315(1531): 123–34.
- [24] 卢双舫. 油气地球化学[M]. 石油工业出版社, 2008.
Lu Shuangfang. *Petroleum geochemistry* [M]. *Petroleum Industry Press*, 2008.
- [25] Losh S, Cathles L. Phase fractionation and oil-condensate mass balance in the South Marsh Island Block 208–239 area, offshore Louisiana[J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2010, 27(2): 467–475.
- [26] 卓勤功, 赵孟军, 谢会文, 等. 库车前陆盆地大北地区储层沥青与油气运聚关系[J]. *石油实验地质*, 2011, 33(2): 193–196.
Zhuo Qingong, Zhao Mengjun, Xie Hui wen, et al. Relationship between reservoir bitumen and hydrocarbon migration in Dabe region, Kuqa Foreland Basin[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2011, 33(2): 193–196.
- [27] 张斌, 黄凌, 吴英, 等. 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[J]. *地学前缘*, 2010, 17(4): 270–279.
Zhang Bin, Huang Ling, Wu Ying, et al. Quantitative evaluation of crude oil composition changes caused by strong gas washing: A case study of natural gas pool in Kuqa Depression[J]. *Earth Science Frontiers*, 2010, 17(4): 270–279.
- [28] Yang C P, geng A S, Liao Z W, et al. Quantitative assessment of gas washing of oils in the Tazhong area of the Tarim Basin, Northwest China[J]. *Science in China*, 2009, 52(1): 12–21.
- [29] 陈世加, 姚泾利, 路俊刚, 等. 储层沥青成因及其对油气运聚的影响—以鄂尔多斯盆地华庆地区长8油层组1砂组为例[J]. *石油与天然气地质*, 2012, 33(1): 37–44.
Chen Shijia, Yao Jingli, Lu Jurgang, et al. Reservoir bitumen genesis and its impacts on hydrocarbon migration and accumulation: A case study from Chang 81 of Yangchang Formation in Huaqing area, the Ordos Basin[J]. *Oil & Gas Geology*, 2012, 33(1): 37–44.
- [30] 陈涛, 侯读杰, 米巨磊, 等. 白云凹陷原油气洗作用[J]. *东北石油大学学报*, 2015, 39(3): 60–66.
Chen Tao, Hou Dujie, Mi Julei, et al. Study on gas washing of crude oils in Baiyun sag[J]. *Journal of Northeast Petroleum University*, 2015, 39(3): 60–66.
- [31] Liu Q, Zhu D, Jin Z, et al. Coupled alteration of hydrothermal fluids and thermal sulfate reduction (tsr) in ancient dolomite reservoirs—an example from sinian dengying formation in sichuan basin, southern china[J]. *Precambrian Research*. 2016, 285: 39–57.
- [32] Li Y, Jiang Z, Jiang S, et al. Heat flow and thermal evolution of a passive continental margin from shelf to slope—a case study on the Pearl River Mouth Basin, Northern South China Sea[J]. *Journal of Asian Earth Sciences*, 2017, doi. org/10. 1016/j. jseae. 2017. 12. 011
- [33] Tang X, Yang S, Hu S. Thermal-history reconstruction of the Baiyun Sag in the deep-water area of the Pearl River Mouth Basin, northern South China Sea[J]. *Frontiers of Earth Science*, 2018, 12(3): 532–544.