

松辽盆地西部图牧吉油砂地球化学特征

李宁熙¹, 黄海平^{1,2}, 孙晶晶¹, 刘梅¹, 张海峰¹, 蒋文龙¹

(1. 中国地质大学 能源学院, 北京 100083; 2. 卡尔加里大学 地球科学系, 阿尔伯塔 卡尔加里 T2N 1N4)

摘要:油砂是重要的非常规油气资源,对油砂的地球化学研究可以更好地指导油砂资源潜力评价。收集了13件松辽盆地西部图牧吉农场的油砂样品,并做了含油率、族组成以及色谱-质谱(GC-MS)分析。实验结果显示图牧吉油砂含油率较高,族组分中以非烃含量为最高。GC-MS分析饱和烃和芳香烃馏分中大部分化合物被降解,其中正构烷烃、藿烷和甾烷系列均受到不同程度降解,三环萜烷抗降解能力较强未受影响。芳烃化合物中萘和菲等化合物都已消失,三芳甾系列较完整。油砂中没有出现25-降藿烷系列,降解程度为6~8级,通过抗降解能力较强的化合物判断,原油基本来自同一油源。

关键词:生物降解;地球化学;非常规油气;油砂;图牧吉;松辽盆地

中图分类号:TE122.1

文献标识码:A

Geochemical characteristics of Tumuji oil sands in western Songliao Basin

Li Ningxi¹, Huang Haiping^{1,2}, Sun Jingjing¹, Liu Mei¹, Zhang Haifeng¹, Jiang Wenlong¹

(1. School of Energy Resource, China University of Geosciences, Beijing 100083, China; 2. Department of Geoscience, University of Calgary, 2500 University Drive NW, Calgary, AB, T2N 1N4, Canada)

Abstract: Being one of the important unconventional oil resources, oil sand is well worth of geochemical study so as to better guide its resource assessment. Thirteen oil sand samples were collected from Tumuji ranch in western Songliao Basin and analyzed for oil yield, bulk composition and GC-MS. The result shows that the oil yield of oil sand is high, and non-hydrocarbon components dominate the bulk composition. Most compounds in saturated and aromatic hydrocarbon fractions were largely biodegraded. The n-alkanes, isoprenoid alkanes, hopanes and steranes were all degraded in varying degree except for tricyclic terpanes. No 25-norhopane series has been detected in the studied sample suite. The naphthalene and phenanthrene series were all destroyed but the triaromatic steroids are intact. These oils are derived from single source rock system on the basis of biodegradation resistant compound signatures.

Key words: biodegradation, petroleum geochemistry, unconventional oil resource, oil sand, Tumuji, Songliao Basin

我国的油砂资源分布较广,在准噶尔、柴达木、松辽和四川盆地等都发现了油砂的分布^[1]。但我国的油砂工业起步相较于西方国家晚,尚处于普查和初步研究阶段^[2-3]。在松辽盆地的西坡图牧吉农场发现了大面积的油砂矿分布区。刘兴兵等^[4]对图牧吉地区油砂发育主要地质影响因素进行了初步研究,认为图牧吉地区油砂矿的形成与松辽盆地的构造演化、地层发育以及油气聚集都有很大关系;拜文华等^[5]对图牧吉油砂的油质进行了分析,油砂的烷烃含量为38.5%~58.4%,芳烃含量为12.4%~22.1%,沥青质含量为1.3%~4%,非烃+沥青质含量为15.5%~42.3%,油质局部因氧化或地下水侵蚀、细菌分解等作用变差,粘稠度增高;邹才能等^[6]通过对比西斜坡稠油和坳陷内原油,认为西斜坡稠油来自盆地中央坳陷,经长距离运移且遭受生物降解等次生蚀变而成。

在松辽盆地北部的西部斜坡已经发现富拉尔基稠油油田,有可能由北向南形成较大规模的稠油聚集带^[7-9],这将是保持油田的长期稳产的重要后备勘探和储量接替地区,本文针对油砂的地球化学特征深入探讨进而为下一步勘探提供依据。

1 地质概况

松辽盆地是中国最大的陆相含油气盆地,发育中-新生地地层,面积约为 $26 \times 10^4 \text{ km}^2$ (图1)^[10-12]。图牧吉油砂位于盆地西部边缘超覆带上,出露地层不同于盆地内部,主要发育古生界下二叠统的索林组和大石寨组,中生代发育中-上侏罗统的下兴安岭组和上兴安岭组。油砂主要储存于新生界较浅的地层之

收稿日期:2015-04-15;修订日期:2015-05-20。

第一作者简介:李宁熙(1986—),男,博士生,油气地球化学。E-mail:ningxili@foxmail.com。

基金项目:国家自然科学基金项目(41273062)。

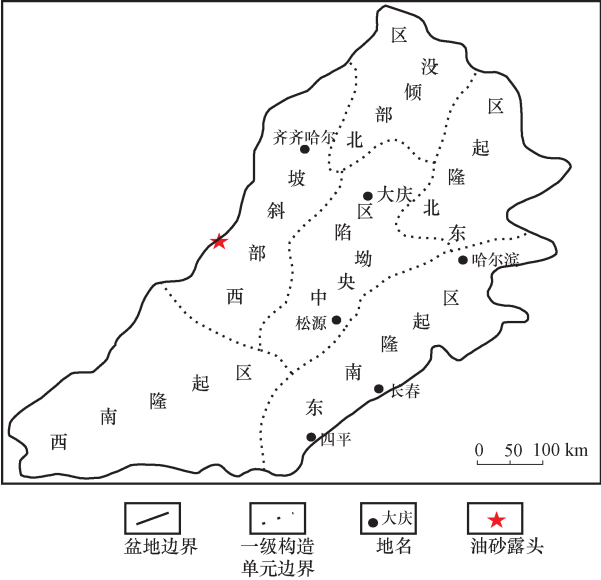


图 1 松辽盆地构造及样品位置

Fig. 1 Structural sketch map of the Songliao Basin with sample locations overlain

中。新生界广泛发育,有古近系半胶结的粘土页岩、砾岩以及新近系的松散沉积。油砂赋存于古近系,顶板为含油粉砂岩,底板为粘土岩与油砂互层,厚度 5 ~ 15 m^[13]。

2 样品及实验条件

收集的 13 件油砂样品(均为钻井样品),呈糖粒状、染手(图 2)。将油砂粉碎至 80 目后用三氯甲烷浸泡,得到抽提物通过氧化铝/硅胶柱层析分离出饱和烃、芳烃、非烃和沥青质组分,其中饱和烃和芳烃组分进行色谱-质谱分析。



图 2 松辽盆地图牧吉油砂样品

Fig. 2 Oil sand sample from Tumuji ranch in western Songliao Basin

饱和烃与芳烃色质分析通过 Agilent 6890 GC - 5975i MS 色谱-质谱联用仪,配置 DB-5 熔硅弹性毛细柱(60 m × 0.25 mm × 0.25 μm)和 NIST2.0 数据处理系统。色谱分析条件:程序升温至 80 ℃并保持恒温 1 min,以 3 ℃/min 速率升至 300 ℃,再恒温 15 min;采用氦气载气,气化室保持 300 ℃。质谱分析条件:离子源采用电子轰击(EI)方式,电离电压 70 eV,发射电流 300 μA,信号倍增电压 1 000 V,质量扫描范围为 m/z50 ~ 600。

3 结果分析

3.1 油砂抽提物及其族组分特征

油砂的含油率从 5.2% ~ 32.0% 都有分布,埋深较大的样品含油率偏低,但样品整体含油率较高,属于品质较好的油砂。从表 1 中可以看出,油砂抽提物的饱和烃组分分布在 24.8% ~ 42.3%,而盆地中心凹陷

表 1 松辽盆地油砂抽提物和原油的族组成以及含油率

Table 1 Bulk composition and oil yield and extract from oil sand samples in the Songliao Basin

编号	样品	深度/m	族组分含量/%				饱芳比	含油率/%
			饱和烃	芳烃	非烃	沥青质		
Ys1	油砂	16.0	35.3	28.1	26.0	10.7	1.3	28.4
Ys2	油砂	15.0	40.7	26.5	22.5	10.2	1.5	32.0
Ys3	油砂	13.0	32.1	25.1	30.9	12.0	1.3	20.8
Ys4	油砂	27.8	37.8	28.8	25.3	8.2	1.3	19.3
Ys5	油砂	10.1	36.1	11.0	27.7	25.1	3.3	25.2
Ys6	油砂	27.7	33.0	27.2	29.8	10.0	1.2	5.2
Ys7	油砂	17.5	41.9	26.8	21.2	10.2	1.6	25.1
Ys8	油砂	40.4	24.8	20.1	34.8	20.3	1.2	7.5
Ys9	油砂	77.8	42.3	24.6	19.2	13.9	1.7	6.2
Ys10	油砂	10.0	34.8	24.2	26.1	15.0	1.4	21.2
Ys11	油砂	38.0	38.0	29.6	22.1	10.2	1.3	26.7
Ys12	油砂	14.7	36.2	18.7	29.3	15.8	1.9	26.5
Ys13	油砂	15.4	33.0	14.2	21.7	31.1	2.3	16.1
南 2 - 5 - 225	原油	1 152.0	76.5	12.3	9.7	0.0	6.2	—
敖 17	原油	1 165.0	76.7	14.1	8.8	0.0	5.4	—
古 148	原油	1 202.0	76.6	12.6	10.2	0.0	6.1	—
古 605	原油	1 239.0	78.7	12.1	8.4	0.0	6.5	—

里的正常油分布在 76.5% ~ 78.7%, 油砂饱和烃含量明显较低。芳烃组分分布在 11.0% ~ 29.6%, 相比正常油的 12.1% ~ 14.1% 要高一些。饱和烃是对生物降解作用最敏感的化合物系列^[14-15], 油砂的饱和烃比松辽盆地正常原油显著偏低, 非烃和沥青质比正常油明显偏高, 认为是受到了生物降解作用的影响。饱和烃与沥青质的含量呈反比, 说明生物降解消耗饱和烃产生了极性化合物。

3.2 链烷烃特征

图 3 是代表样品的饱和烃总离子流 (TIC) 以及 m/z 85 质量色谱图, 与盆地中央南 2-5-2225 井正常原油比较, 可以看出油砂受到了不同程度的降解, 饱和烃 TIC 中大部分化合物都被消耗掉, 二环倍半萜、三环萜、五环萜和甾烷分布都有不同程度的改变, 有些样品中 C_{29} 藿烷明显高于 C_{30} 藿烷。在 m/z 85 质量色谱图上, 正烷烃和异戊二烯烃基本消失, 图谱上基线大幅度隆起, 形成 UCM, 这些都反映了强烈生物降解特征。盆地中央凹陷的正常油样品各个化合物系列分布完整, 显示没有遭受降解的影响。

3.3 甾烷和萜烷分布特征

从图 4 中可以看到油砂样品重排甾烷系列较规则, 甾烷相对含量低, 规则甾烷抗降解能力中等, 因此分布

也受到了一定影响。 C_{28} 甾烷的含量相对较低, 且 $C_{27} > C_{28} \ll C_{29}$, 呈反“L”型的分布。甾烷的抗生物降解能力与碳数有关, 总体上, 碳数越高抗降解能力越强。正常原油的常规甾烷中 C_{27} 为主峰, 且 $C_{27} \gg C_{28} < C_{29}$, 呈正“L”型的分布。油砂与正常原油 C_{27} , C_{28} 和 C_{29} 甾烷相对丰度差异正好反映了生物降解作用的影响。甾烷不同异构体的抗生物降解能力并不相同, 其中生物构型 (aaaR) 甾烷对生物降解影响最敏感。在成熟度参数上, C_{29} 甾烷 $\beta\beta/(\alpha\alpha + \beta\beta)$ 反映油砂为成熟原油, 而 C_{29} 甾烷 $20S/(20S + 20R)$ 参数反映为高成熟原油, 其原因是 $20R$ 异构体比其它异构体更易降解。从油砂和正常原油的甾烷系列谱图对比来看, 除规则甾烷相对含量和分布有明显差异外, 孕甾烷和重排甾烷间的对比性较好, 反映相似的成熟特征和来源。

原油中三环萜烷抗降解能力较强, 是重要的生物标志物系列^[16]。其分布范围从 C_{19} 到 C_{26} 比较完整, 以 C_{21} 三环萜烷和 C_{23} 三环萜烷为主峰 (图 5), 明显区别于海相原油, 认为生油母质来自湖相沉积有机质, C_{24} 四环萜烷丰度较高也证明了这个观点。由于三环萜烷比藿烷和重排甾烷的抗降解能力更强, 且没受到任何影响, 从其和正常油的谱图对比可以看到峰型极为一致, 应为同源产物。

油砂样品的藿烷系列化合物从 C_{27} — C_{35} 都有分布, 升藿烷系列相对含量通常随碳数增加而降低, C_{35} 升藿

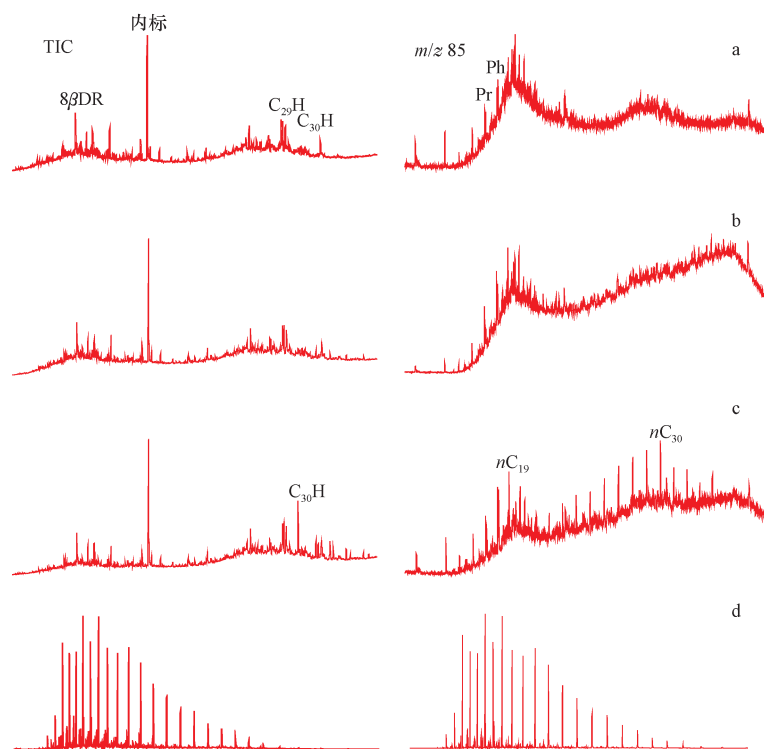


图 3 松辽盆地油砂和原油样品饱和烃 TIC 和 m/z 85 质量色谱

Fig. 3 Saturate hydrocarbon TIC and m/z 85 mass chromatogram of oil and oil sand samples in the Songliao Basin

a. Ys1; b. Ys7; c. Ys10; d. 南 2-5-225 井

8βDR: 8β 甾满烷; Pr: 姥鲛烷; Ph: 植烷; $C_{29}H$: C_{29} 藿烷; $C_{30}H$: C_{30} 藿烷; nC_{19} : C_{19} 正构烷烃; nC_{30} : C_{30} 正构烷烃

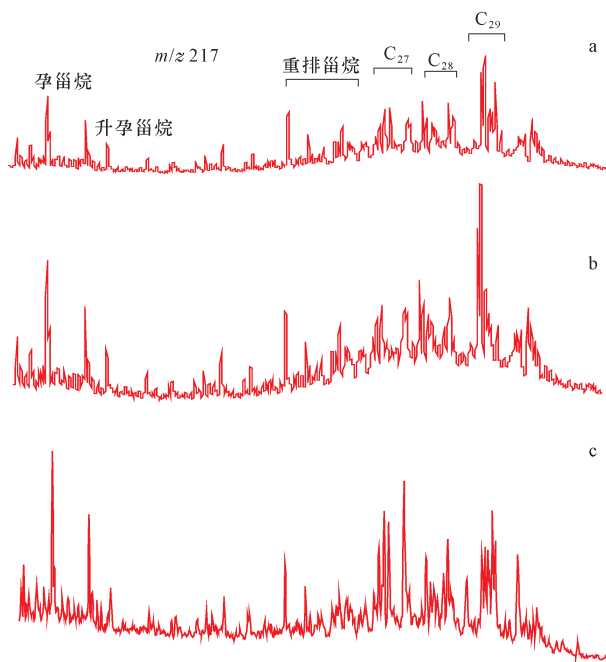


图4 松辽盆地油砂和原油样品饱和烃 m/z 217 质量色谱

Fig. 4 Representative m/z 217 mass chromatograms of oil and oil sands from saturated hydrocarbon fraction in the Songliao Basin

a. Ys7; b. Ys1; c. 南2-5-225井

C_{27} 、 C_{28} 、 C_{29} : C_{27} 规则甾烷、 C_{28} 规则甾烷、 C_{29} 规则甾烷

烷异常升高认为与强还原条件或水体分层有关^[17]。有关升藿烷生物降解顺序存在两种情形,如果降解从藿

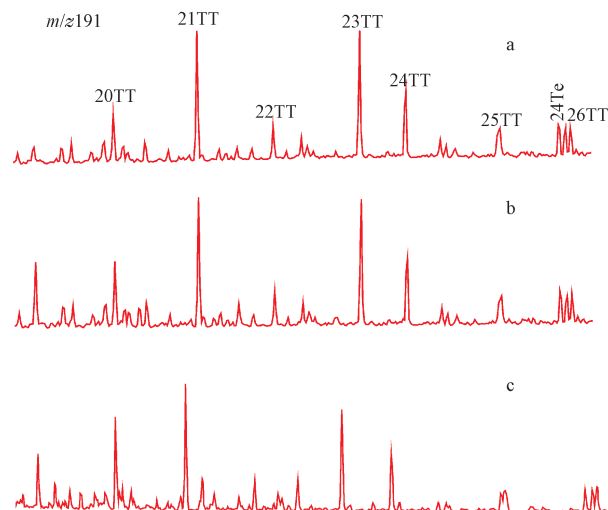


图5 松辽盆地油砂与原油样品三环藿烷质量色谱

Fig. 5 Tri-cyclic terpane mass chromatogram of oil and oil sand sample in the Songliao Basin

a. Ys11; b. Ys12; c. 南2-5-225井

20-26TT: C_{20} -26 三环藿烷; 24Te: C_{24} 四环藿烷

烷核心开始, C_{35} 升藿烷比其它升藿烷降解慢, 如果降解从藿烷侧链开始, C_{35} 升藿烷比其它升藿烷降解快, 样品中 C_{35} 升藿烷相对于其他升藿烷系列浓度低, 表明松辽盆地油砂藿烷降解从侧链开始。 C_{30} 藿烷比 C_{29} 藿烷降解速度要快, 在降解程度较低的样品中, C_{30} 藿烷的相对含量较高, 与正常油样品的谱图有很好的对比性; 而降解程度较高的样品 C_{29} 藿烷的相对含量较高(图6), 表现为

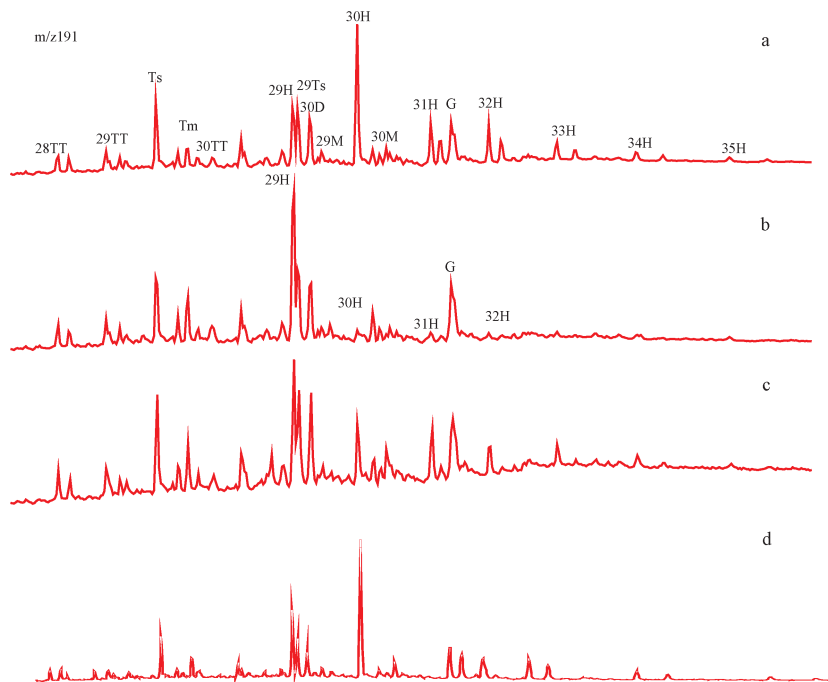


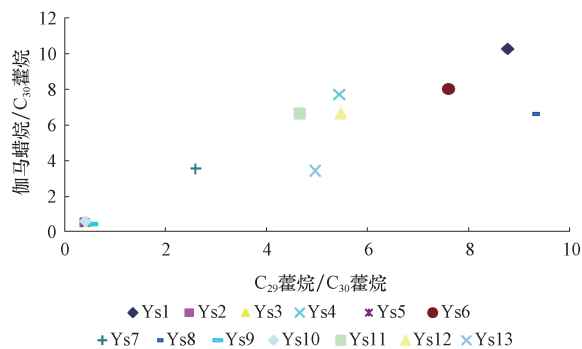
图6 松辽盆地油砂与原油样品藿烷质量色谱

Fig. 6 Representative m/z 191 mass chromatograms of oil and oil sands from saturated hydrocarbon fraction in the Songliao Basin

a. Ys12; b. Ys11; c. Ys13; d. 南2-5-225井

28-30TT: C_{28} -30 三环藿烷; Ts: 18α -22, 29, 30 三降藿烷; Tm: 17α -22, 29, 30 三降藿烷; 29-35H: C_{29} -35 藿烷;

29Ts: 18α , 21 β (H)-30 降新藿烷; 30D: C_{30} 重排藿烷; 29-30M: C_{29} -30 莫烷; G: 伽马蜡烷

图7 松辽盆地 C_{29} 藿烷/ C_{30} 藿烷与伽马蜡烷/ C_{30} 藿烷相关图Fig. 7 Correlogram between C_{29} Hopane/ C_{30} Hopane and gammacerane/ C_{30} Hopane ratio in the Songliao Basin

C_{29} 藿烷/ C_{30} 藿烷比值随生物降解程度升高而增大。伽马蜡烷是高盐度以及水体分层的标志。前人研究表明伽马蜡烷的抗降解能力比藿烷要强^[18],从伽马蜡烷/ C_{30} 藿烷比值可以看出这个趋势(图7)。根据五环三萜分布特征,松辽盆地油砂至少遭受过6级左右生物降解程度的影响,但样品中没有检测到25-降藿烷系列,这可能与样品所经历的降解路径或氧化还原条件有关,25-降藿烷只能在厌氧条件下产生,氧化条件下的藿烷降解不会产生25-降藿烷。

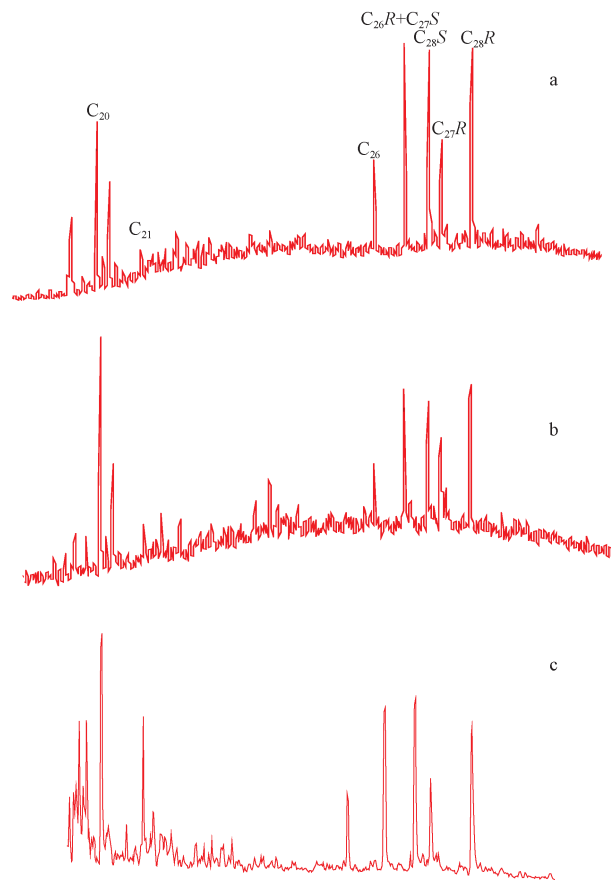
3.4 芳烃分布特征

油砂样品芳烃馏分中烷基苯、 C_{20} — C_{25} 烷基萘系列、 C_{20} — C_{22} 烷基二苯并噻吩和 C_{20} — C_{23} 烷基菲系列化合物都已消失,萤蒎和芘等四环芳烃也已被消耗,只有三芳甾系列保存的比较完整,与盆地中心正常油的峰型一致,具有较低的 C_{26} TAS 含量以及含量较高的 C_{28} TAS。(图8)。

大部分可用于评价成熟度的指标在受降解程度较高的油砂样品中已无法应用。而三芳甾的分布可以从另一个角度反映成熟度^[19-21]。其中一个参数是短侧链三芳甾比长侧链三芳甾 $[C_{21}/(C_{21} + C_{28})]$,但这个参数也受到了降解作用的影响,因为 C_{20} 和 C_{21} 三芳甾的抗生物降解能力较弱。另外一个参数是甾烷的芳构化参数 $[TAS/(TAS + MAS)]$ (TAS 是全部三芳甾系列而 MAS 是全部 C_{27} — C_{29} 单芳甾系列),当成熟度升高时,单芳甾浓度会相对下降,而生物降解作用没有影响到这个参数。0.4~0.8 的分布范围显示样品总体的成熟度较高。 $Ts/(Ts + Tm)$ 的比值为 0.61~0.73,同样反映了高成熟的特点。

3.5 生物降解的程度

根据 Peters 和 Moldowan 的生物降解分级^[16],图牧吉油砂遭受到了6~8级不同程度的降解。几乎所有样品的正烷烃和类异戊二烯烃都已被消耗,所以油

图8 松辽盆地原油和油砂样品三芳甾 ($m/z231$) 质量色谱Fig. 8 Representative $m/z231$ mass chromatogram of oil and oil sands from aromatic fraction in the Songliao Basin

a. Ys1; b. Ys7; c. 南2-5-225井

 C_{20-28} : C_{20-28} 三芳甾

砂样品至少遭受了5级以上生物降解程度的影响。从 $m/z217$ 质量色谱图中可以看到,与同源的正常原油相比,孕甾烷和重排甾烷都没有受到降解作用的影响,而常规甾烷中,油砂中 C_{27} 甾烷的浓度明显低于未降解原油,且按照降解的难易顺序 $C_{27} > C_{28} > C_{29}$ 甾烷,说明 C_{27} 甾烷遭受了降解,降解级别达到了6级。从藿烷系列的图谱中可以看到,部分样品的藿烷系列和正常油一致,而部分样品的 C_{30} 藿烷相对含量要低很多,且 C_{29} 降藿烷的浓度较高。说明部分油砂样品的藿烷系列也遭受了降解,降解程度达到了7~8级。

4 结论

1) 松辽盆地西斜坡的油砂来源于湖相有机质,油砂为成熟正常原油遭受生物降解所致。油砂含油率较高,品质较好。

2) 原油分子组成可以反映生物降解作用影响程度,饱和烃中正烷烃、类异戊二烯烷烃都被降解,藿烷和甾烷系列被部分降解,三环萜烷抗降解能力较强未受影

响。芳烃中萘系列、菲系列和二苯并噻吩等都被降解,只有芳甾系列较为完整,认为降解程度较高,达到6~8级。根据抗降解化合物分析认为油砂为同源产物。

致谢:中国石化石油勘探开发研究院卞建军教授给本文提出了建设性的修改意见,特此感谢。

参 考 文 献

- [1] 胡见义,牛嘉玉. 中国重油沥青资源的形成与分布[J]. 石油与天然气地质,1994,15(2):105-112.
Hu Jianyi, Niu Jiayu. Formation and distribution of heavy oil bitumen resources in China[J]. Oil & Gas Geology, 1994, 15(2): 105-112.
- [2] 单玄龙,车长波,李剑,等. 国内外油砂资源研究现状[J]. 世界地质,2007,26(4):459-464.
Shan Xuanlong, Che Changbo, Li Jian, et al. Present status of oil sand resources at home and abroad[J]. Global Geology, 2007, 26(4): 459-464.
- [3] 刘亚明,谢寅符,马中振,等. Orinoco 重油带重油成藏特征[J]. 石油与天然气地质,2013,34(3):315-322.
Liu Yaming, Xie Yinfu, Ma Zhongzhen, et al. Heavy oil accumulation characteristics of the Orinoco heavy oil belt[J]. Oil & Gas Geology, 2013, 34(3): 315-322.
- [4] 刘兴兵,黄文辉. 内蒙古图牧吉地区油砂发育主要地质影响因素[J]. 资源与产业,2008,10(6):83-86.
Liu Xingbing, Huang Wenhui. Geological controls of oil sands in Tumuji, Inner Mongolia[J]. Resources & Industries, 2008, 10(6): 83-86.
- [5] 拜文华,刘人和,李凤春,等. 中国斜坡逸散型油砂成矿模式及有利区预测[J]. 地质调查与研究,2009,33(3):228-235.
Bai Wenhua, Liu Renhe, Li Fengchun, et al. Formation model and prospect of the slope spill-scattered type oil-sand in China[J]. Geological Survey and Research, 2009, 33(3): 228-235.
- [6] 邹才能,王兆云,徐冠军. 松辽盆地西斜坡稠油特征及成因[J]. 沉积学报,2004,22(4):700-705.
Zou Caineng, Wang Zhaoyun, Xu Guanjun. Characteristics and genesis of the western slope thick oils in Songliao Basin[J]. Acta Sedimentologica Sinica, 2004, 22(4): 700-705.
- [7] 冯子辉,廖广志,方伟,等. 松辽盆地北部西斜坡区稠油成因与油源关系[J]. 石油勘探与开发,2003,30(4):25-27.
Feng Zihui, Liao Guangzhi, Fang Wei et al. Formation of heavy oil and correlation of oil-source in the western slope of the northern Songliao Basin[J]. Petroleum exploration and development, 2003, 30(4): 25-27.
- [8] 张妍,杨辉,文百红,等. 松辽西斜坡超覆带油藏重力异常特征[J]. 石油地球物理勘探,2005,40(5):591-593.
Zhang Yan, Yang Hui, Wen Baihong, et al. Gravitational anomaly feature of reservoir in overlap zone of Songliao west slope[J], Oil Geophysical Prospecting, 2005, 40(5): 591-593.
- [9] 牛军平,关淑妍,吴东铭,等. 应用化探方法在松辽盆地西部地带确定油砂[J]. 吉林地质,2009,28(1):64-68.
Niu Junping, Guan Shuyan, Wu Dongming, et al. Application of geochemical exploration technology in oil sand exploration of western clinof orm of Songliao Basin[J]. Jinlin Geology, 2009, 28(1): 64-68.
- [10] Ren, J, Tamaki. Late Mesozoic and Cenozoic rifting and its dynamic setting in Eastern China and adjacent areas[J]. Tectonophysics. 2002;344,175-205.
- [11] Feng. Z Q, Jia C Z, Xie X N, et al. Tectonostratigraphic units and stratigraphic sequences of the nonmarine the Songliao Basin, northeast China[J]. Basin Research, 2010, 22: 79-95.
- [12] 何坤,张水昌,王晓梅,等. 松辽盆地白垩系湖相 I 型有机质生烃动力学[J]. 石油与天然气地质,2014,35(1):42-49.
He Kun, Zhang Shuichang, Wang Xiaomei et al. Hydrocarbon generation kinetics of type - I organic matters in the Cretaceous lacustrine sequences, Songliao Basin [J]. Oil & Gas Geology, 2014, 35(1): 42-49.
- [13] 中国地质矿业内蒙古公司. 内蒙古自治区扎赉特旗图牧吉牧场含油砂石详查报告[R]. 内蒙古国土信息院. 2006.
Chinese mining geology Inner Mongolia Company. Report of oil-sand in Zhalaite banner Tumuji, Inner Mongolia[R]. The Information Institute of Inner Mongolia Land and Resources. 2006.
- [14] Connan J. Biodegradation of crude oils in reservoirs[M]. London: Academic Press, 1984, 299-335.
- [15] 国朋飞,何生,朱书奎,等. 泌阳凹陷生物降解油“基线鼓包”成因及化合物组成[J]. 石油与天然气地质,2014,35(3):317-325.
Guo Pengfei, He Sheng, Zhu Shukui, et al. Genesis and composition of ‘baseline hump’ in biodegraded oil samples from Biyang Depression [J]. Oil & Gas Geology, 2014, 35(3): 317-325.
- [16] Peters K E, Moldowan J M. The Biomarker Guide: Interpreting Molecular Fossils in Petroleum and Ancient Sediments[M]. New Jersey: Prentice Hall, Englewood Cliffs, 1993.
- [17] Larter, S R, Wilhelms A, Head I, et al. The controls on the composition of biodegraded oils in the deep subsurface: (Part1) Biodegradation rates in petroleum reservoirs[J]. Organic Geochemistry, 2003: 34, 601-613.
- [18] Seifert, W K, Moldowan J M, Demaison G J. Source correlation of biodegraded oils[J]. Organic Geochemistry, 1984, 6: 633-643.
- [19] Seifert W K, Moldowan J M. The effect of thermal stress on source-rock quality as measured by hopane stereochemistry[J]. Physics and Chemistry of the Earth, 1980, 12: 229-237.
- [20] Sinninghe Damsté J S, Kenig F, Koopmans M P. Evidence for gammacerane as an indicator of water column stratification[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1995, 59: 1895-1900.
- [21] Lafargue, E, Barker C. Effect of water washing on crude-oil compositions[J]. AAPG Bulletin, 1988, 72(3): 263-276.

(编辑 张玉银)