

doi:10.3799/dqkx.2010.080

利用油包裹体微束荧光光谱判识油气充注期次

李纯泉¹, 陈红汉¹, 刘惠民²

1. 中国地质大学构造与油气资源教育部重点实验室, 湖北武汉 430074

2. 中石化胜利油田分公司地质科学研究院, 山东东营 257015

摘要: 基于石油的荧光性, 通过常规荧光光谱方法, 对油包裹体的荧光光谱进行定量化描述, 利用其主峰波长、最大荧光强度及红/绿商等属性参数, 根据主峰波长与最大荧光强度、主峰波长与红/绿商的相关关系特征, 可以便捷而有效地开展油气充注期次的判识。民丰洼陷沙三段岩性油气藏储层的15块流体包裹体样品检测结果表明, 发黄色荧光的油包裹体荧光光谱结构和形态相似, 其主峰波长一致; 而发蓝白色荧光的油包裹体荧光光谱具有2种类型, 一类与黄色荧光油包裹体荧光光谱结构和形态相似, 主峰波长一致, 表现出同源特征; 另一类明显发生“蓝移”, 表现出异源特征。主峰波长与最大荧光强度, 以及主峰波长与红/绿商的相关关系均表现出3种特征类型。因此, 可判定民丰洼陷沙三段岩性油气藏在其地质历史时期共经历了3期油气充注。

关键词: 油包裹体; 荧光光谱; 石油地质; 民丰洼陷。

中图分类号: P618.13

文章编号: 1000-2383(2010)04-0657-06

收稿日期: 2009-11-06

Identification of Hydrocarbon Charging Events by Using Micro-Beam Fluorescence Spectra of Petroleum Inclusions

LI Chun-quan¹, CHEN Hong-han¹, LIU Hui-min²

1. Key Laboratory of Tectonics and Petroleum Resources of Ministry of Education, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China

2. Geological Research Institute of Shengli Oilfield Branch Co. SinoPec, Dongying 257015, China

Abstract: Based on the fluorescence property of petroleum, conventional fluorescence spectroscopy was employed to quantify the fluorescence spectra of petroleum inclusions. According to the characteristics of the main peak wavelength ($\lambda_{\max}$), the maximum fluorescence intensity ($I_{\max}$), the red-green quotient ($Q_{650/500}$), and the relationship between them, the hydrocarbon charging events can be identified easily and effectively. The study of 15 fluid inclusion samples from the Es₃ Member of the Shahejie Formation in Minfeng sag indicates that the main peak wavelength of fluorescence spectra for petroleum inclusions with yellow fluorescence colors is consistent, and that of petroleum inclusions with white bluish fluorescence colors falls into two types: one is the same as that of the yellow fluorescence petroleum inclusions, and the other is obviously blue shifted. In addition, the relationship between $\lambda_{\max}$ and $I_{\max}$, and the relationship between $\lambda_{\max}$ and $Q_{650/500}$ both display 3 specific types, which indicates that the lithologic reservoirs of the Es₃ Member of the Shahejie Formation in Minfeng sag underwent 3 hydrocarbon charging events in the geological history.

Key words: petroleum inclusion; fluorescence spectra; petroleum geology; Minfeng sag.

0 引言

油气充注期次的确定, 对剖析油气成藏动力学过程, 深入认识油气成藏机理具有十分重要的意义。

油包裹体作为油气运聚事件的直接记录, 它所包裹的石油是地质历史时期烃类的原始样品, 保存了大量油气活动的 PVT_{x-t} 信息 (Munz, 2001), 在油气勘探与开发领域得到越来越多的应用 (李纯泉等,

基金项目: 国家自然科学基金项目 (No. 40702022); 湖北省自然科学基金计划创新群体项目 (No. 2007ABC013); 武汉市青年科技晨光计划项目 (No. 200750731295)。

作者简介: 李纯泉 (1974—), 男, 副教授, 主要从事油气地质方面的教学和科研工作。E-mail: tiger_lcq@163.com

2005; Mark *et al.*, 2005; 王飞宇等, 2006; 丰勇等, 2009; 李华明等, 2009). 石油具有在紫外光激发下产生 400~700 nm 可见范围内发射光的荧光特性, 这一特性通过荧光光谱量化后体现出重要的实用意义(王河新等, 1987; 李佩珍和郭志刚, 1988; 李荣西等, 1998; 陈银节等, 2005; Liu and Eadington, 2005), 被广泛用于油气源对比(杨杰和陈丽华, 2002; 程军等, 2004)和油气运移(Stasiuk and Snowdon, 1997; 汤玉平等, 2000)研究, 而利用荧光光谱开展油气充注期次的研究则少有报道. 理论和实验都表明, 不同性质的原油具有不同的荧光及荧光光谱(宋继梅和唐碧莲, 2000; 刘伟等, 2004), 而油气的多期充注将导致多种荧光颜色的烃类包裹体出现(Eadington *et al.*, 1991), 因此利用油包裹体的荧光光谱信息判识油气充注期次在理论上是可行的. 本文将在不具备同步荧光和三维荧光设备的情况下, 尝试以常规的荧光光谱方法, 开展东营凹陷民丰洼陷沙三段岩性油气藏的油气充注期次研究.

1 荧光光谱属性参数

常规荧光光谱是在指定激发波长下测定样品不同发射波长处的荧光强度所获得的光谱. 该方法对设备要求不高, 简便易行. 对常规荧光光谱的量化描述, 国内外学者提出了多种属性参数, 确定油气充注期次主要涉及以下 2 个荧光光谱属性参数.

1.1 主峰波长(λ_{max})

主峰波长(λ_{max})是指最大荧光强度(I_{max})所对应的发射波长(图 1a). 荧光光谱虽不能识别出石油中单个的化合物, 但油包裹体所包裹油的荧光是其成分及成熟度的重要指纹(Hagemann and Holler-

bach, 1986; Munz, 2001; Chang and Huang, 2008; 赵艳军和陈红汉, 2008). 随着小分子成分含量增加, 成熟度增大, 其荧光会发生明显“蓝移”, 光谱主峰波长减小; 反之, 光谱主峰波长增大. 对于同源同期充注的烃类, 其成分及成熟度一致, 因此其荧光光谱主峰波长应表现出一致性; 对不同源的烃类, 其主峰波长表现出不一致性(杨杰和陈丽华, 2002).

1.2 红/绿商(QF_{535} 和 $Q_{650/500}$)

石油的荧光颜色随成分及其含量而变化, 从而在荧光光谱上表现出不同的形态和结构. 红/绿商被用来量化描述荧光光谱形态和结构, 代表了荧光颜色中红色部分与绿色部分的比值(Hagemann and Hollerbach, 1986; Guilhaumou *et al.*, 1990; Stasiuk and Snowdon, 1997; Chang and Huang, 2008). QF_{535} 被定义为发射波长 535~750 nm 范围内的积分面积 $A_{(535\sim750)}$ 与发射波长 430~535 nm 范围内的积分面积 $A_{(430\sim535)}$ 之比(图 1b). $Q_{650/500}$ 被定义为 650 nm 波长处荧光强度 I_{650} 与 500 nm 波长处荧光强度 I_{500} 的比值(图 1a). 相比而言, $Q_{650/500}$ 更为常用, 其 I_{650} 越大, 反映包裹体所包裹油中含有越多的大分子组分, 成熟度低; 而 I_{500} 越大则反映包裹体所包裹油中含有越多的小分子组分, 成熟度高. 因此, $Q_{650/500}$ 值越大, 反映了油的成熟度越低; 反之, 油的成熟度越高. 该参数更加准确地反映了微观油的成分信息.

2 地质背景及样品

民丰洼陷构造位置处于东营凹陷东北部, 北抵陈家庄凸起, 南达中央隆起带, 西邻胜坨油田, 东接永安镇油田, 面积约 200 km²(图 2). 洼陷的形成和

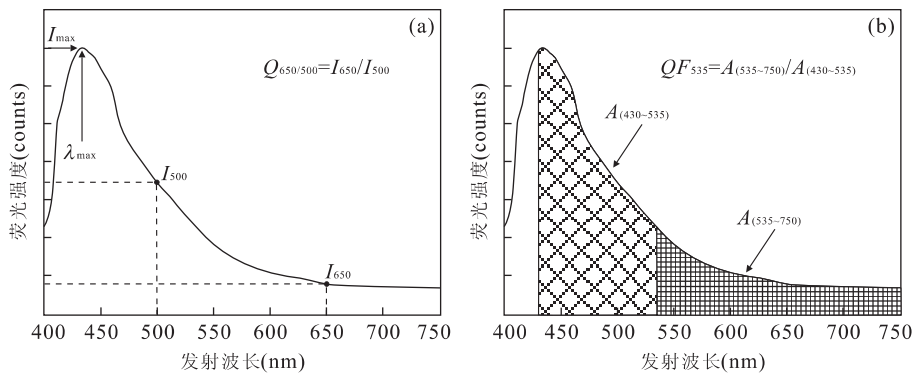


图 1 荧光光谱量化属性参数

Fig. 1 Property parameters for the quantification of fluorescence spectra

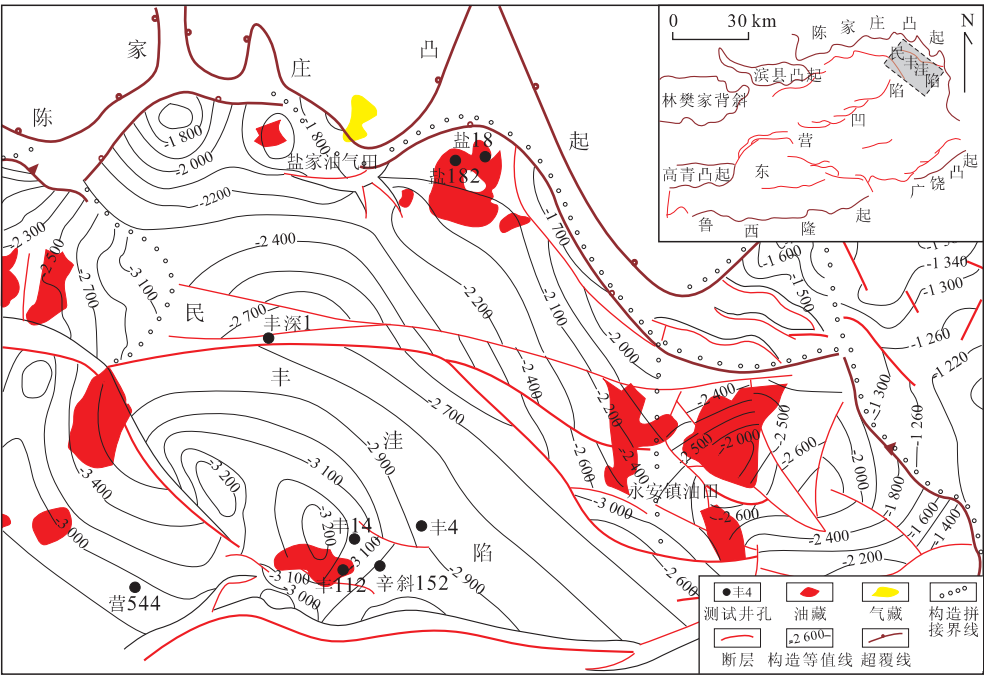


图 2 民丰洼陷构造位置及样品测试井孔分布(等值线单位:m)

Fig. 2 Structural location of Minfeng sag and the distribution of sample tested wells

演化受三组断裂体系控制,其内沙河街组三、四段沉积了巨厚的生油岩系,具备形成隐蔽岩性油气藏的潜力和可能性,主要含油层系为古近系沙河街组三段.近年来随着丰 14 井的钻探成功,证实了沙三段岩性油气藏的巨大潜力,成为胜利油田“十一·五”期间增储上产的重要目标之一.

针对沙三段岩性油气藏的成藏期次问题,在由洼陷中心向洼陷边缘分布的 8 口井中共采集 15 块样品,均为沙三段岩性体取心砂岩样品(图 2).通过双面抛光制作成流体包裹体薄片,进行油包裹体检测及相应的荧光光谱测定.

3 油包裹体荧光及光谱分析

15 块流体包裹体双面抛光薄片的镜下观察表明,石英次生加大边、石英颗粒内裂纹及穿石英颗粒裂纹中均发育油包裹体,其紫外光下主要发蓝白色荧光和黄色荧光,以及少量介于二者之间的过渡荧光色.利用美国 Ocean Optics 公司的 SD2000 型光谱仪,通过 365 nm 的激发光对单个油包裹体进行显微光谱测定,获得的典型油包裹体微束荧光光谱见图 3.通过对比可知,黄色荧光的光谱形态和结构相似,具有一致的主峰波长(λ_{max1});而蓝白色荧光的光谱存在 2 种类型:一种类型主峰波长与黄色荧光的

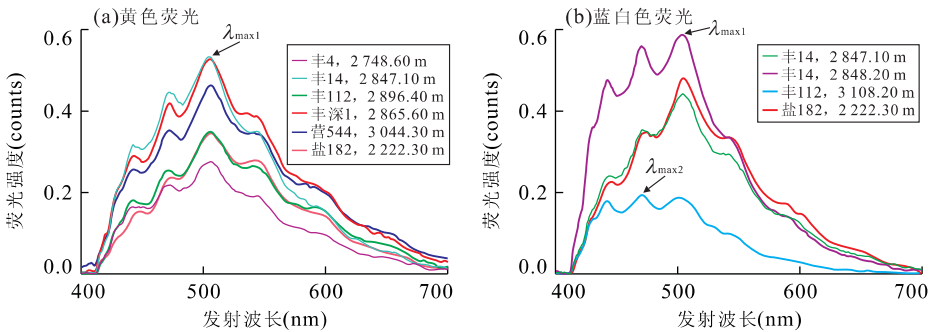


图 3 民丰洼陷沙三段典型油包裹体微束荧光光谱

Fig. 3 Representative micro-beam fluorescence spectra of petroleum inclusions from the Es₃ Member of the Shahejie Formation, Minfeng sag

光谱主峰波长一致($\lambda_{\max 1}$),具有同源特征;而另一种类型主峰波长明显发生蓝移($\lambda_{\max 2}$),二者在光谱形态和结构上明显不同,具有异源特征.由此,可初步判定民丰洼陷沙三段岩性油气藏具有多源多期充注的特点.

3.1 $\lambda_{\max}$ 与 $I_{\max}$ 相关关系

对民丰洼陷沙三段储层中油包裹体微束荧光光谱的定量化描述表明,荧光光谱主峰波长位于469~509 nm 之间,主要分布在 501~509 nm;光谱主峰对应的最大荧光强度范围为 0.016~1.778,主要分布于 0~0.8 之间.从表明 $\lambda_{\max}$ 与 $I_{\max}$ 相关关系的图 4 可以看出,不同荧光的油包裹体可划分出 3 种类型区域:蓝白色荧光 A 区域 $\lambda_{\max}$ 位于 469~470 nm, $I_{\max}$ 位于 0~0.2;蓝白色荧光 B 区域 $\lambda_{\max}$ 位于 502~507 nm, $I_{\max}$ 位于 0.3~0.8;黄色荧光 C 区域 $\lambda_{\max}$ 位于 501~509 nm, $I_{\max}$ 位于 0~0.6. 由于 $I_{\max}$ 的人为影响因素较多,从而可能造成图 4 中 $I_{\max}=1.778$ 数据点为异常,因而,此 3 分区特征须作进一步的参数判识.

3.2 $\lambda_{\max}$ 与 $Q_{650/500}$ 相关关系

民丰洼陷沙三段岩性油气藏储层油包裹体微束荧光光谱的 $\lambda_{\max}-Q_{650/500}$ 相关关系亦表现出 3 种类型,其特征分别为:(Ⅰ)蓝白色荧光区域,其 $Q_{650/500}$ 值位于 0.035~0.038 之间, $\lambda_{\max}$ 位于 469~470 nm;(Ⅱ)蓝白色荧光区域,其 $Q_{650/500}$ 值分布域较窄,位于 0.049~0.125 之间, $\lambda_{\max}$ 位于 502~507 nm;(Ⅲ)黄色荧光区域,其 $Q_{650/500}$ 值分布域较广,位于 0.064~0.233 之间, $\lambda_{\max}$ 位于 501~509 nm(图 5).从区域Ⅲ→区域Ⅱ→区域Ⅰ,荧光光谱 $Q_{650/500}$ 值逐

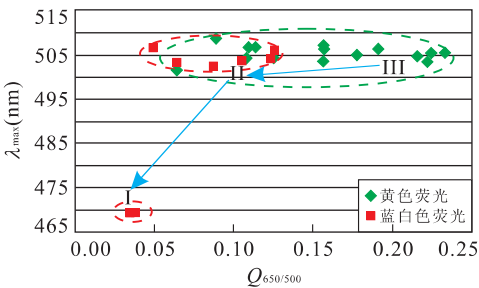


图 5 民丰洼陷沙三段油包裹体微束荧光光谱 $\lambda_{\max}$ 与 $Q_{650/500}$ 相关关系

Fig. 5 Relationship between $\lambda_{\max}$ and $Q_{650/500}$ of micro-beam fluorescence spectra of petroleum inclusions from the E_3 Member of the Shahejie Formation, Min-feng sag

渐降低,反映了油包裹体所包裹油的成熟度逐渐增大.低成熟度油其表征成分信息的参数 $Q_{650/500}$ 值分布范围广(Ⅲ区域),反映出低成熟油中大小分子混杂,而演化到较高成熟度后,其分子趋于均匀化的小分子(Ⅱ区域).

4 油气充注期次

从获得的油包裹体微束荧光光谱的形态及结构出发,综合不同荧光色油包裹体的微束荧光光谱 $\lambda_{\max}$ 特征,以及 $\lambda_{\max}-I_{\max}$ 相关关系和 $\lambda_{\max}-Q_{650/500}$ 相关关系均展现出的 3 类型特征,可以综合判定,民丰洼陷沙三段岩性油气藏在地质历史时期经历了三期油气充注,其中两期为不同演化阶段的同源油充注,一期为异源油充注.

5 结论

(1)油包裹体作为油气运聚事件的直接记录,通过对其常规荧光光谱进行检测及定量化描述,可利用其属性参数特征及属性参数间的相关关系特征有效地进行油气充注期次的研究,且该方法简便易行.

(2)民丰洼陷沙三段岩性油气藏储层 15 块流体包裹体双面抛光片中,黄色荧光油包裹体的荧光光谱主峰波长一致,而蓝白色荧光油包裹体的荧光光谱具有两种类型.荧光光谱主峰波长与最大荧光强度,以及主峰波长与红/绿商相关关系均表现出 3 类型特征.因此,民丰洼陷沙三段岩性油气藏在地质历史时期共经历了 3 期(次)油气充注.这一结论与更为详尽的流体包裹体显微测温结果一致(刘惠民,2009).

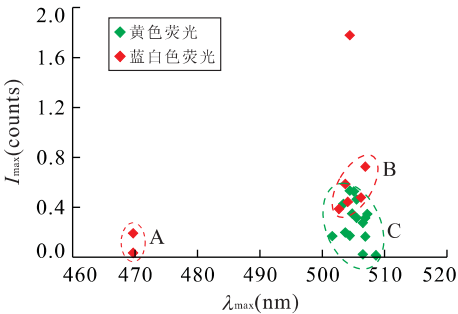


图 4 民丰洼陷沙三段油包裹体微束荧光光谱 $\lambda_{\max}$ 与 $I_{\max}$ 相关关系

Fig. 4 Relationship between $\lambda_{\max}$ and $I_{\max}$ of micro-beam fluorescence spectra of petroleum inclusions from the E_3 Member of the Shahejie Formation, Min-feng sag

References

- Chang, Y. J., Huang, W. L., 2008. Simulation of the fluorescence evolution of "live" oils from kerogens in a diamond anvil cell; application to inclusion oils in terms of maturity and source. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72(15):3771—3787. doi:10.1016/j.gca.2008.05.041
- Chen, Y. J., Miao, J. J., Zhang, Z. Y., 2005. Three-dimensional fluorescence spectrum and its implication for hydrocarbon. *Natural Gas Geoscience*, 16(1):69—72 (in Chinese with English abstract).
- Cheng, J., Liu, W., Cheng, Z. F., et al., 2004. Elementary research of near-the earth-surface fluorescence spectrum character and its relation to hydrocarbon fountain rock taking Hefei basin as example. *Geology of Anhui*, 14(4):277—281 (in Chinese with English abstract).
- Eadington, P. I., Hamilton, P. I., Bai, G. P., 1991. Fluid history analysis—a new concept for prospect evaluation. *The APEA Journal*, 31(1):282—294.
- Feng, Y., Chen, H. H., Ye, J. R., et al., 2009. Reservoir-forming periods and accumulation process of Chaluhe fault depression of Yitong basin. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 34(3):502—510 (in Chinese with English abstract).
- Guilhaumou, N., Szydlowski, N., Pradier, B., 1990. Characterization of hydrocarbon fluid inclusions by infra-red and fluorescence microspectrometry. *Mineralogical Magazine*, 54(375):311—324.
- Hagemann, H. W., Hollerbach, A., 1986. The fluorescence behaviour of crude oils with respect to their thermal maturation and degradation. *Organic Geochemistry*, 10(1—3):473—480. doi:10.1016/0146—6380(86)90047—1
- Li, C. Q., Chen, H. H., Zhang, X. M., et al., 2005. Fluid inclusions analysis of the Ordovician reservoir in Tahe oil-field. *Acta Petrolei Sinica*, 26(1):42—46 (in Chinese with English abstract).
- Li, H. M., Chen, H. H., Zhao, Y. J., 2009. The hydrocarbon charging events and ages in the volcanic reservoir of Santanghu basin. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 34(5):785—791 (in Chinese with English abstract).
- Li, P. Z., Guo, Z. G., 1988. Measurement of kerogen algalite fluorescence spectrum red-green quotient (Q value) and its applications. *Journal of Huainan Institute of Technology*, 8(1):6—8 (in Chinese with English abstract).
- Li, R. X., Jin, K. L., Liao, Y. S., 1998. Analysis of organic inclusions using micro-FT. IR and fluorescence microscopy and its significance. *Geochimica*, 27(3):244—250 (in Chinese with English abstract).
- Liu, H. M., 2009. Pressure response to the hydrocarbon charging events in the Es₃ Member of Minfeng sub-sag. *Xinjiang Petroleum Geology*, 30(4):483—485 (in Chinese with English abstract).
- Liu, K. Y., Eadington, P., 2005. Quantitative fluorescence techniques for detecting residual oils and reconstructing hydrocarbon charge history. *Organic Geochemistry*, 36(7):1023—1036. doi:10.1016/j.orggeochem.2005.02.008
- Liu, W., Hu, B., Yu, D. Y., et al., 2004. Three dimensional fluorescence character of heavy oil in China and its geological significance. *Geophysical & Geochemical Exploration*, 28(2):123—125 (in Chinese with English abstract).
- Mark, D. F., Parnell, J., Kelley, S. P., et al., 2005. Dating of multistage fluid flow in sandstones. *Science*, 309(5743):2048—2051. doi:10.1126/science.1116034
- Munz, I. A., 2001. Petroleum inclusions in sedimentary basins: systematics, analytical methods and applications. *Lithos*, 55(1—4):195—212. doi:10.1016/S0024—4937(00)00045—1
- Song, J. M., Tang, B. L., 2000. Study on the characteristic and significance of three dimensional fluorescence spectra of petroleum samples. *Spectroscopy and Spectral Analysis*, 20(1):115—118 (in Chinese with English abstract).
- Stasiuk, L. D., Snowdon, L. R., 1997. Fluorescence microspectrometry of synthetic and natural hydrocarbon fluid inclusions: crude oil chemistry, density and application to petroleum migration. *Applied Geochemistry*, 12(3):229—241. doi:10.1016/S0883—2927(96)00047—9
- Tang, Y. P., Tang, Y. L., Hu, B., et al., 2000. Application of fluorescence spectrum to studies of hydrocarbon micro-migration in vertical direction. *Oil & Gas Geology*, 21(4):370—371 (in Chinese with English abstract).
- Wang, F. Y., Shi, Y. L., Zeng, H. S., et al., 2006. To identify paleo-oil reservoir and to constrain petroleum charging model using the abundance of oil inclusion. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 25(1):12—18 (in Chinese with English abstract).
- Wang, H. X., Zhu, Y. H., Zhang, L. M., et al., 1987. Fluorescence analysis of shallow ground water and its significance in petroleum prospecting. *Geochimica*, 16(2):191—198 (in Chinese with English abstract).
- Yang, J., Chen, L. H., 2002. Fluorographic geochemical analysis and its application. *Petroleum Exploration and Development*, 29(6):69—71 (in Chinese with English abstract).

stract).

Zhao, Y. J., Chen, H. H., 2008. The relationship between fluorescence colors of oil inclusions and their maturities. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 33(1): 91—96 (in Chinese with English abstract).

附中文参考文献

- 陈银节, 缪九军, 张宗元, 2005. 三维荧光光谱的油气指示意义. *天然气地球科学*, 16(1): 69—72.
- 程军, 刘伟, 程正发, 等, 2004. 近地表荧光光谱特征及其与烃源岩关系初探——以合肥盆地为例. *安徽地质*, 14(4): 277—281.
- 丰勇, 陈红汉, 叶加仁, 等, 2009. 伊通盆地岔路河断陷油气成藏过程. *地球科学——中国地质大学学报*, 34(3): 502—510.
- 李纯泉, 陈红汉, 张希明, 等, 2005. 塔河油田奥陶系储层流体包裹体研究. *石油学报*, 26(1): 42—46.
- 李华明, 陈红汉, 赵艳军, 2009. 三塘湖盆地火山岩油气藏油气充注幕次及成藏年龄确定. *地球科学——中国地质大学学报*, 34(5): 785—791.
- 李佩珍, 郭志刚, 1988. 干酪根藻质体荧光光谱红/绿商(Q

值)的测量方法及其应用. *淮南矿业学院学报*, 8(1): 6—8.

- 李荣西, 金奎励, 廖永胜, 1998. 有机包裹体显微傅里叶红外光谱和荧光光谱测定及其意义. *地球化学*, 27(3): 244—250.
- 刘惠民, 2009. 民丰洼陷沙三段岩性油气藏油气充注事件的压力响应. *新疆石油地质*, 30(4): 483—485.
- 刘伟, 胡斌, 于敦源, 等, 2004. 我国重质油的三维荧光特征及其地质意义. *物探与化探*, 28(2): 123—125.
- 宋继梅, 唐碧莲, 2000. 原油样品的三维荧光光谱特征研究. *光谱学与光谱分析*, 20(1): 115—118.
- 汤玉平, 唐艳玲, 胡斌, 等, 2000. 荧光光谱在烃类垂向微运移研究中的应用. *石油与天然气地质*, 21(4): 370—371.
- 王飞宇, 师玉雷, 曾花森, 等, 2006. 利用油包裹体丰度识别古油藏和限定成藏方式. *矿物岩石地球化学通报*, 25(1): 12—18.
- 王河新, 朱永豪, 章立民, 等, 1987. 浅层水体荧光光谱分析法及其石油勘探意义. *地球化学*, 16(2): 191—198.
- 杨杰, 陈丽华, 2002. 利用荧光光谱进行原油测定及对比的方法. *石油勘探与开发*, 29(6): 69—71.
- 赵艳军, 陈红汉, 2008. 油包裹体荧光颜色及其成熟度关系. *地球科学——中国地质大学学报*, 33(1): 91—96.