

doi:10.3799/dqkx.2012.090

单个油包裹体组分预测及其在油气成藏研究中的应用

平宏伟¹, 陈红汉^{1, 2}, 宋国奇³, Thiéry Régis⁴

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. 中国科学院地质与地球物理研究所兰州油气资源研究中心, 甘肃兰州 730000
3. 中国石化胜利油田分公司, 山东东营 257015
4. 帕斯卡大学岩浆与火山实验室, 法国克莱蒙费朗 63000

摘要: 了解单个石油包裹体详细的组分信息不仅有助于微观上定量认识油气充注过程中其成熟度的演化, 还对精细刻画油气成藏过程中动力演化具有重要意义。根据石油包裹体热力学原理, 利用10个成熟度依次增大的已知组分的原油在匹配其饱和压力和改进气、液相摩尔体积计算前提下, 建立了捕获不同组分原油的包裹体均一温度(Th_{oil})与其在室温下(20℃)气泡充填度(F_v)关系的标准图版, 从而通过对实测的 Th_{oil} 和其室温下 F_v 与标准 $Th_{oil}-F_v$ 图版, 反推出油包裹体近似等效流体组分。对东营凹陷北带民丰深层油包裹体进行系统荧光分析、显微测温和包裹体体积3D重构等一系列的测定。结果表明丰8井和丰深1井各发生过两幕油气充注, 其中丰8井第一幕油气充注(甲烷摩尔含量位于31%~35%之间)对其油气成藏贡献最大; 而丰深1井第二幕充注的油气(甲烷摩尔含量大于60%)控制丰深1井凝析油藏成藏。从而为进一步厘定北带深层油气充注PVT_{xt}史奠定基础。

关键词: 包裹体; 均一温度; 热力学; 东营凹陷; 石油地质。

中图分类号: TE122

文章编号: 1000-2383(2012)04-0815-10

收稿日期: 2012-03-22

Individual Oil Inclusion Composition Prediction and Its Application in Oil and Gas Accumulation Studies

PING Hong-wei¹, CHEN Hong-han^{1,2}, SONG Guo-qi³, Thiéry Régis⁴

1. Key Laboratory of Tectonics and Petroleum Resources of Ministry of Education, China University of Geosciences, Wuhan 430074, China
2. Lanzhou Center for Oil and Gas Resources, Institute of Geology and Geophysics, Chinese Academy of Sciences, Lanzhou 730000, China
3. Shengli Oilfield Company, SINOPEC, Dongying 257015, China
4. Clermont Université, Université Blaise Pascal, Laboratoire Magmas et Volcans, Clermont-Ferrand 63000, France

Abstract: The composition information of individual oil inclusion is not only important for quantitatively understanding the maturity evolution of petroleum during the petroleum charging, but also significant for the precise depiction of the dynamic evolution during petroleum accumulation. However, it is very difficult to obtain the detailed composition of individual petroleum inclusion directly by experimental methods. Petroleum inclusions thermodynamics method is an easy and fast indirect method for obtaining the individual petroleum inclusion composition which has been well developed in last ten years. Ten oil composition data with different maturity are used to build the standard relation diagram of oil inclusions homogenization temperature (Th_{oil}) and the degree of gaseous filling (F_v) at room temperature (20℃) using petroleum inclusions thermodynamics method on condition that firstly, match the saturation pressure and improvement of the gas and liquid mole volume calculations, then the equivalent composition can be determined by comparing the measured homogenization temperature and the degree of gaseous filling at room temperature (20℃) with the standard $Th_{oil}-F_v$ diagram. The compositions of petroleum inclusions with different maturity are quantified by a series of measurements on oil inclusions in the deeply buried reservoir in Minfeng area in North Dongying depression including fluorescence analysis, microthermometry and 3D reconstruction of the oil inclusions volume. The results show that both of the well Feng 8 and well Fengshen 1 happened two episodes of petroleum charging events. The

first episode oil charging whose methane mole percent content is between 31%—35% contributed to the petroleum accumulation of well Feng 8, and the second episode oil whose methane mole percent content is more than 60% controlled the gas condensate accumulation of well Fengshen 1. The composition prediction results facilitates further establishing the oil and gas charging PVT_{txt} history in the deeply buried reservoir in Minfeng area in North Dongying depression.

Key words: inclusions; homogenization temperature; thermodynamics; Dongying depression; petroleum geology.

0 引言

通过油藏流体荧光特征和其 API 度关系可以外推古油气充注时期捕获的油包裹体 API 度。尽管油包裹体 API 度分析可以提供重要的关于古油气流体的成熟度演化及古油气充注成藏贡献度信息(平宏伟和陈红汉, 2011), 然而, 由于缺乏详细的组分数据, 对油气充注史还只能停留在定性的认识上。原油在运移过程中被成岩矿物捕获的油包裹体保存了捕获时的温度、压力和组分等对成藏研究非常重要的信息, 包裹体油的组分一直是流体包裹体研究中的热点和难点。油包裹体组分分析主要分为群包裹体组分和单包裹体组分分析, 群包裹体组分主要是通过将含烃类包裹体的矿物颗粒压碎后利用热解气相色谱—质谱(GC-MS)(Horsfield and McLimans, 1984; George *et al.*, 1997; Munz *et al.*, 1999)或高精度的液相色谱(Pang *et al.*, 1998)等获得, 这些方法不能获得不同期次油包裹体组分; 通过显微降温观察油包裹体的低温相变过程, 可以识别单个油包裹体的类型(Grimmer *et al.*, 2003); 利用荧光光谱(Kihle, 1995; Stasiuk and Snowdon, 1997; Przyjalgowski *et al.*, 2005)、傅立叶转换红外光谱(Guilhaumou *et al.*, 1990; Pironon and Barres, 1990a, 1990b)等分析可获得单个油包裹体组分定性信息; 利用激光剥蚀和 GC-MS 联用方法可以对单个油包裹体组分进行分析, 但是依然存在可检测化合物范围受限制问题(Volk *et al.*, 2010; 饶丹等, 2010; 张志荣等, 2011)。以上方法由于受实验条件、包裹体大小和组分解析精度不够等诸多条件限制, 并不能快速、有效地获取在矿物中捕获的多期充注的油包裹体的详细组分信息。

Pironon *et al.*(1998)利用激光共聚焦扫描显微镜成功重构了单个油包裹体的体积。Aplin *et al.*(1999)同样利用激光共聚焦扫描显微镜获得单个油包裹体体积参数, 结合油包裹体均一温度, 应用流体包裹体热力学恢复了油包裹体捕获时的物理和化学条件。经历十多年发展, 结合油包裹体均一温度(T_{h})和室温下(20 °C)的气泡充填度(F_v), 利用石

油包裹体热力学理论重构石油包裹体的组分及捕获压力已成为有效且成熟的手段(Aplin *et al.*, 1999; Thiéry *et al.*, 2000, 2002; Tseng and Potterf, 2002; Liu *et al.*, 2003; Bourdet *et al.*, 2008, 2010)。然而这种方法重构石油包裹体组分依赖于专业的模拟软件(Aplin *et al.*, 1999; Thiéry *et al.*, 2000)。Bourdet *et al.*(2008)利用 PIT 软件(Thiéry *et al.*, 2000)建立了不同类型原油包裹体均一温度和室温下(20 °C)气泡充填度的关系模板, 以期更加简单直观地判别油包裹体的类型及其捕获后可能发生的次生变化。理论上, 由于油包裹体均一温度和气泡充填度 2 个参数变化主要受控于 C₇₊ 组分含量(Ping *et al.*, 2011), 因此这 2 个参数不能唯一确定油包裹体组分(Thiéry *et al.*, 2002)。实际上, 随着源岩成熟度的增加, 烃源岩生成油气成熟度也越来越高, 原油组分上则表现为 C₇₊ 重组分含量减少, 甲烷等轻组分含量增大的过程。假设单个幕次原油在充注过程中其组分受其他因素的影响(水洗、生物降解等)较小, 那么原油中 C₇₊ 摩尔组分含量与甲烷摩尔含量则应呈负相关关系(Ping *et al.*, 2011, 式(17))。本文在以上假设条件下, 人工选择 10 种成熟度依次增大的正常原油, 近似代表烃源岩生油阶段所生成的不同成熟度的原油; 然后通过匹配原油饱和压力和改进气、液相摩尔体积计算, 最终建立了不同成熟度原油油包裹体均一温度和其室温下(20 °C)气泡充填度的关系模板。相比 Bourdet *et al.*(2008)利用 PIT 软件(Thiéry *et al.*, 2000)建立的模板, 本文计算的油包裹体室温下气泡充填度值更准确。需要注意的是, 本文预测油包裹体组分前提条件是假设原油组分变化主要受控于烃源岩的成熟度变化, 因此, 本文预测的油包裹体组分可以称为等效油包裹体组分。

1 石油包裹体组分预测原理及方法

1.1 石油包裹体组分预测原理

石油是一种由众多组分组成的复杂地质流体。通过现有的技术手段还不能完全识别出石油中所有

的组分,然而,通常只需要一些特定的组分就可以较好地表征石油流体的物理化学特征(密度、饱和压力、摩尔体积等),例如C₁、C₂、C₃、C₄、C₅、C₆和C₇₊组分。石油包裹体是地质历史时期捕获的石油流体,其显微相变同样受控于其流体组分。给定组分的石油流体相变行为可以通过温度—压力(*P-T*)相图表示。*P-T*相图由泡点线和露点线组成,临界点位于泡点线和露点线交点。泡点线和露点线限定了给定组分的石油流体的相态变化,泡点线和露点线上方为单相区域,以下为气、液两相区域。石油包裹体通常在单相区域捕获,捕获后根据等容路径过渡到两相区域。从单相到两相的过渡点即为石油包裹体的均一温度。根据过渡点位置,石油包裹体可以均一到液相,也可以均一到气相。均一到液相时过渡点位于泡点线上,均一到气相时过渡点位于露点线上。由过渡点到室温(20℃)条件下,石油包裹体的相变依然受等容路径约束,随着温度的逐渐降低,包裹体内压逐渐降低,气相体积变大(图1a)。通常可以测定室温(20℃)下包裹体的气相体积百分含量即气泡充填度(*F_v*)和其均一温度(*Th*)。在组分一定的条件下,随着均一温度的增大,室温下(20℃)气泡充填度(*F_v*)与均一温度(*Th*)呈正相关关系,均一温度越大,室温下(20℃)气泡充填度(*F_v*)就越大(图1b)。显然,随着组分的变化,同一均一温度对应的室温下(20℃)气泡充填度(*F_v*)也会随着组分的变化而变化,那么根据油包裹体均一温度(*Th_{oil}*)和室温下(20℃)气泡充填度(*F_v*)2个参数就可以指示油包裹体组分信息。

本文主要根据石油包裹体热力学方法,采用正演方法根据不同类型原油组分计算*Th_{oil}*与*F_v*的关系,从而再根据实测油包裹体均一温度(*Th_{oil}*)和室温下(20℃)气泡充填度(*F_v*)的关系反推油包裹体组分,从而达到间接预测封闭体系下单个石油包裹体组分的目的。

1.2 石油包裹体组分预测方法及计算过程

由图1可知,给定石油组分、均一温度(*Th_{oil}*)及其对应室温下(20℃)气泡充填度(*F_v*)这3个参数是石油流体包裹体组分预测的主要变量。石油组分和均一温度(*Th_{oil}*)可以通过预先设定给出,则其对应的室温下(20℃)气泡充填度(*F_v*)为唯一待求量。给定石油组分条件下,*F_v*主要受控于石油流体*P-T*相图重构的精度,换句话说就是饱和压力计算是否准确和石油流体在不同*P-T*条件下气相和液相摩尔体积预测的精度。

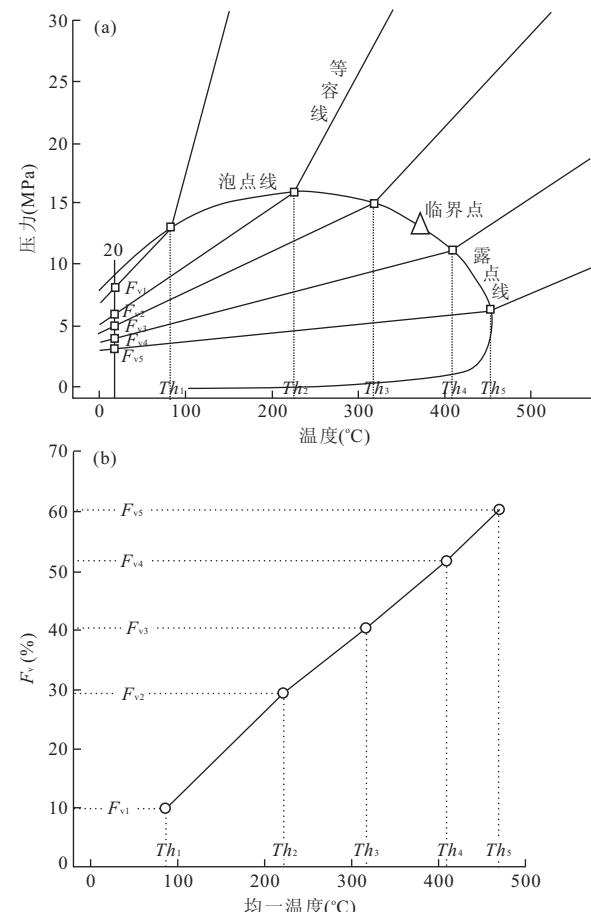


图1 石油包裹体组分预测原理示意(据 Bourdet *et al.*, 2008 修改)

Fig. 1 The schematic diagram of petroleum inclusion composition prediction

a. 黑油的*P-T*相图及5个不同的等容路径(*Th₁*、*Th₂*、*Th₃*、*Th₄*和*Th₅*)和所对应的室温下(20℃)气/液相体积比(*F_{v1}*、*F_{v2}*、*F_{v3}*、*F_{v4}*和*F_{v5}*);b. 虚拟的黑油包裹体不同均一温度与室温下(20℃)气泡充填度(*F_v*)关系

在给定流体组分及均一温度条件下,其室温下(20℃)气泡充填度是唯一确定的(平宏伟和陈红汉,2011),但是利用热力学方程计算的气泡充填度的精度主要依赖于石油饱和压力及其气、液相摩尔体积预测的精度(Ping *et al.*, 2011)。Bourdet *et al.*(2008)利用PIT软件(Thiéry *et al.*, 2000)计算了从黑油到凝析气8种不同类型石油流体捕获的石油包裹体在室温下(20℃)的气泡充填度(*F_v*)与其均一温度(*Th_{oil}*)的关系。然而,要保证室温下(20℃)气泡充填度(*F_v*)计算准确性,必须满足2个条件:(1)必须保证给定流体组分的饱和压力计算准确,因为饱和压力准确与否直接影响到油包裹体两相区域的等容路径,从而影响室温下(20℃)气泡充填度(*F_v*)值;(2)必须保证给定石油流体气相和

液相摩尔体积计算的精度,显然,气、液相摩尔体积是否准确直接影响室温下(20 °C)气泡充填度(F_v)的准确与否。Bourdet *et al.* (2008)利用几种石油流体对应的 α 、 β 组分作为输入组分计算的 F_v 是不准确的。原因在于,一方面, α 、 β 组分与真实流体组分具有一定的偏差;另一方面,PIT软件本身并没有对气、液相摩尔体积做任何修正。结果,Bourdet *et al.* (2008)计算的石油包裹体室温下(20 °C)气泡充填度(F_v)会有较大偏差。

针对以上2个前提条件,本文结合石油流体热力学理论,利用微调组分来匹配饱和压力、校正气、液相摩尔体积等一系列方法来保证更加准确地计算给定石油流体的气、液相体积属性。通过微调组分及相应的动力学参数匹配石油流体实测饱和压力(Thomassen *et al.*, 1987; Zurita and McCain, 2002; Al-Meshari *et al.*, 2007)以及利用体积转换方法(Jhaveri and Youngren, 1988)校正石油流体气液相摩尔体积是流体相平衡计算领域较常用的方法。计算流程如下。

(1)利用Ahmed *et al.* (1985)方法将 C_{7+} 组分到 C_{45+} ,单个碳数的临界属性(临界温度和临界压力)根据Cavett (1962)关系,偏心因子据Riazi and Al-Sahhaf (1996),然后利用Kay (1936)混合准则分别重组 $C_{11} \sim C_{25}$ 、 $C_{26} \sim C_{45+}$ 组分中单个碳数组分为 C_{n1} 和 C_{n2} 两个假组分,包括临界属性和偏心因子等参数。

(2)根据重组后的组分(N_2 、 CO_2 、 H_2S 、 $C_1 \sim C_{10}$ 、 C_{n1} 和 C_{n2})计算饱和压力,将计算结果与实验结

果比较,如果不在预先设定的精度(0.1 MPa)内,则开始调整组分,具体调整过程可参考Zurita and McCain (2002),直到计算得到的饱和压力与实验压力在设定精度内,最终得到微调后的流体组分。由于实验室石油流体摩尔组分是根据重量百分含量换算得来的,通常可能会有5%~20%的实验误差(Thomassen *et al.*, 1987; Zurita and McCain, 2002; Al-Meshari *et al.*, 2007),因此通过微调组分使计算结果与实验结果保持一致是合理的。

(3)应用体积转换方法(Jhaveri and Youngren, 1988)利用实验实测体积数据(Jaubert *et al.*, 2002)校正热力学方程计算的气、液相摩尔体积结果。

(4)Peng-Robinson状态方程(Peng and Robinson, 1976)被用来计算石油流体的物理化学参数(压缩因子、逸度等),计算过程中所需的组分相互作用因子(K_{ij})据Zurita and McCain (2002),单个碳数($C_7 \sim C_{45}$)的分子量(MW)和泡点温度(T_b)据Katz and Firoozabadi (1978),单个碳数($C_7 \sim C_{45}$)的密度(ρ)计算根据Whitson (1984)。

为了使计算结果可以应用于大部分石油流体,本文优选了10种甲烷含量由低到高的油藏流体作为计算油包裹体均一温度(T_{oil})与室温下(20 °C)气泡充填度(F_v)的参照流体(表1)。如表1所示,流体F1~F10甲烷摩尔组分含量范围为5.82%~60.51%, C_{7+} 摩尔组分含量范围为83.20%~16.29%,分别代表了除凝析油以外的重油、黑油和挥发油等不同原油组分。另外,流体F1~F10甲烷

表1 用于石油包裹体热力学计算的最初流体组分

Table 1 The untuned crude oil composition using for petroleum inclusions thermodynamics

No.	F1	F2	F3	F4	F5	F6	F7	F8	F9	F10
N_2	0.24	0.29	0.25	0.53	0.00	0.00	0.41	0.32	0.74	1.67
CO_2	0.39	0.46	2.19	0.12	2.13	0.77	0.44	2.80	2.01	2.18
H_2S	0.00	0.49	1.16	0.00	0.00	0.00	0.00	1.49	0.00	0.00
C_1	5.82	10.75	16.33	22.80	31.28	36.20	40.48	45.29	51.30	60.51
C_2	0.84	1.11	6.29	6.45	7.51	9.74	7.74	9.11	10.67	7.52
C_3	0.43	1.58	7.48	8.51	6.93	6.75	8.20	5.50	7.12	4.74
C_4	1.14	3.68	6.09	6.60	6.26	4.96	5.45	4.13	3.61	4.12
C_5	3.01	4.03	4.36	4.71	4.74	3.89	3.64	3.06	2.20	2.97
C_6	4.92	4.75	3.58	4.24	4.37	3.29	2.83	2.38	1.83	0.00
C_{7+}	83.20	72.86	52.27	46.04	36.78	34.40	31.42	25.92	20.52	16.29
GR. C_{7+}	942.00	861.00	880.00	864.00	851.05	849.18	845.00	838.06	805.00	789.00
MW. C_{7+}	304.00	261.00	249.00	242.00	232.88	216.89	210.00	215.89	192.35	181.00

注:F1据Elsharkawy (2003);F2和F4据Wu and Rosenegger (1999);F3据Moharam and Fahim (1995);F5、F6和F8据Jaubert *et al.* (2002);F7据Pedersen *et al.* (1988);F9据Neau *et al.* (1993);F10据Jacopy and Berry (1958)。GR. C_{7+} 为 C_{7+} 组分比重;MW. C_{7+} 为 C_{7+} 组分分子量(kg/mol)。

表2 用于石油包裹体热力学计算的调整后的流体组分

Table 2 The tuned crude oil composition using for petroleum inclusions thermodynamics

No.	F1	F2	F3	F4	F5	F6	F7	F8	F9	F10
N ₂	0.23	0.29	0.25	0.53	0.00	0.00	0.41	0.32	0.74	1.66
CO ₂	0.37	0.46	2.21	0.12	2.12	0.77	0.44	2.83	2.02	2.17
H ₂ S	0.00	0.49	1.17	0.00	0.00	0.00	0.00	1.51	0.00	0.00
C ₁	5.55	10.74	16.46	22.76	31.14	35.84	40.33	45.80	51.53	60.13
C ₂	0.80	1.11	6.34	6.44	7.48	9.64	7.71	9.21	10.72	7.47
C ₃	0.41	1.58	7.54	8.49	6.90	6.68	8.17	5.56	7.15	4.71
C ₄	1.09	3.68	6.14	6.59	6.23	4.91	5.43	4.18	3.63	4.09
C ₅	2.87	4.03	4.40	4.70	4.72	3.86	3.63	3.09	2.21	2.95
C ₆	4.69	4.75	3.61	4.23	4.35	3.26	2.82	2.41	1.84	0.00
C ₇₊	83.99	72.89	51.89	46.14	37.06	35.05	31.07	25.08	20.16	16.81
GR. C ₇₊	898.06	860.15	887.08	862.36	847.33	840.70	846.96	847.55	808.64	784.09
MW. C ₇₊	287.12	260.65	252.86	241.01	230.14	210.71	211.57	225.64	196.66	174.30

表3 表1中流体匹配饱和压力后的组分变化

Table 3 The composition change of petroleum fluids in table 1 after match of the saturation pressure

	F1	F2	F3	F4	F5	F6	F7	F8	F9	F10	AAD%
											AD%
N ₂	4.17	—	0.00	—	—	—	—	—	—	0.60	1.59
CO ₂	5.13	—	0.91	—	0.47	—	—	1.07	0.50	0.46	1.42
H ₂ S	—	—	0.86	—	—	—	—	1.34	—	—	—
C ₁	4.64	0.09	0.80	0.18	0.45	0.99	0.37	1.13	0.45	0.63	0.97
C ₂	4.76	0.00	0.79	0.16	0.40	1.03	0.39	1.10	0.47	0.66	0.98
C ₃	4.65	0.00	0.80	0.24	0.43	1.04	0.37	1.09	0.42	0.63	0.97
C ₄	4.39	0.00	0.82	0.15	0.48	1.01	0.37	1.21	0.55	0.73	0.97
C ₅	4.65	0.00	0.92	0.21	0.42	0.77	0.27	0.98	0.45	0.67	0.94
C ₆	4.67	0.00	0.84	0.24	0.46	0.91	0.35	1.26	0.55	—	1.03
C ₇₊	0.95	0.04	0.73	0.22	0.76	1.89	1.11	3.24	1.75	3.19	1.39
GR. C ₇₊	4.66	0.10	0.80	0.19	0.44	1.00	0.23	1.13	0.45	0.62	0.96
MW. C ₇₊	5.55	0.13	1.55	0.41	1.18	2.85	0.75	4.52	2.24	3.70	2.29

注: AD = $\left| \frac{x^{\text{tun}} - x^{\text{exp}}}{x^{\text{exp}}} \right|$; AAD = $\frac{1}{N} \sum_{i=1}^N \left| \frac{x^{\text{tun}} - x^{\text{exp}}}{x^{\text{exp}}} \right|$, 其中 x^{exp} 和 x^{tun} 分别为调整前和调整后的组分或者分子量和密度, N 为个数。

表4 根据表2中调整后组分计算的石油包裹体不同均一温度对应室温下(20℃)气泡充填度值(F_v)Table 4 The degree of gaseous filling (F_v) under room temperature (20℃) calculated according to the tuned fluid composition shown in table 2 under different homogenization temperatures of petroleum inclusion

No.	F1	F2	F3	F4	F5	F6	F7	F8	F9	F10	F _v (20℃) (%)
Th _{oil} (℃)	20	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00	0.00
	30	0.21	0.38	0.58	0.68	0.96	1.20	1.42	1.93	3.15	6.05
	40	0.63	0.85	1.21	1.45	1.98	2.40	2.80	3.75	5.96	10.39
	50	0.97	1.25	1.84	2.23	2.95	3.61	4.22	5.47	8.47	13.97
	60	1.29	1.77	2.49	3.03	4.02	4.85	5.65	7.09	10.82	16.95
	70	1.79	2.30	3.16	3.78	5.03	6.06	7.01	8.66	12.97	19.71
	80	2.13	2.71	3.84	4.64	6.13	7.37	8.43	10.20	14.97	22.19
	90	2.49	3.27	4.65	5.51	7.18	8.64	9.83	11.67	16.91	24.61
	100	3.24	3.85	5.37	6.42	8.33	9.93	11.22	13.08	18.74	26.95
	110	3.43	4.44	6.11	7.26	9.43	11.26	12.60	14.48	20.56	29.01
	120	3.82	5.05	6.87	8.24	10.63	12.54	14.01	15.82	22.35	31.13
	130	4.43	5.68	7.78	9.14	11.78	13.93	15.41	17.18	24.04	33.39
	140	4.85	6.36	8.58	10.15	12.94	15.27	16.84	18.57	25.76	35.67
	150	5.35	7.03	9.40	11.19	14.22	16.64	18.26	19.95	27.50	37.89
	160	5.81	7.72	10.37	12.17	15.45	18.06	19.70	21.27	29.25	40.11
	170	6.52	8.43	11.23	13.27	16.69	19.48	21.12	22.66	30.98	42.33
	180	7.05	9.16	12.25	14.40	17.96	20.94	22.56	24.05	32.71	44.55
	190	7.56	9.91	13.15	15.45	19.25	22.34	23.98	25.41	34.44	46.77
	200	8.35	10.68	14.22	16.64	20.56	23.85	25.42	26.78	36.17	48.99

摩尔组分含量平均间隔为 5% 左右, 更加细分了不同成熟度的原油, 从而保证以较高精度标定油包裹体组分。

从表 1 与表 2 调整前后组分对比来看(表 3), 组分微调后各组分变化的平均绝对偏差(AAD%)在 1.60% 以内, C_{7+} 的分子量和密度平均绝对偏差分别为 0.96% 和 2.29%。调整后组分变化结果完全在 5%~20% 实验误差的允许范围内(Thomassen *et al.*, 1987; Zurita and McCain, 2002; Al-Meshari *et al.*, 2007)。由表 4 可知, 同一均一温度条件下, 室温下(20°C)气泡充填度(F_v)值随着石油流体由重变轻逐渐增大, 也就是说, 对于表 1 中给定的组分, 任意给定均一温度和室温下(20°C)气泡充填度(F_v)值可以唯一确定油组分。

2 实例应用——以东营凹陷北带民丰深层为例

东营凹陷北带民丰洼陷位于东营凹陷中央隆起带以北, 东临青坨子凸起, 西部紧靠利津—胜陀地区, 北靠陈家庄凸起, 南接牛庄洼陷。民丰深层主要指沙河街组沙四段的沙四下亚段层位。近几年来, 随着民丰地区丰深 1 井首次在盐下深层低孔、低渗的储层中获得高产油气流, 东营北带深层油气勘探取得了前所未有的重大突破。因此, 厘定民丰地区深层油气充注史对深层油气勘探具有重要意义。

根据研究目标重点采集了民丰地区丰深 1 井和丰 8 井 3 块深层流体包裹体样品进行深层油气充注史分析。Nikon E400 双通道荧光显微镜用于流体包裹体岩相学观测、紫外激发光为多色激发, 激发波长为 330~380 nm、荧光微束光谱由 Ocean Optics Inc. 公司的 Maya 2000 Pro 光谱仪记录, Yuanao 显微光谱分析系统用于接收和处理光谱数据、Linkam THMS G600 冷/热台用于流体包裹体均一温度和盐度测试。为了获得东营凹陷北带深层石油包裹体组分, 需要测定一系列的石油包裹体均一温度和室温下(20°C)气泡充填度(F_v)数据对。石油包裹体体积重构利用 Proscan II 超高精度显微镜电动平台系统(Prior Scientific, Inc.)完成, 该显微电动平台系统可以提供精确快速的 Z 轴方向微米级移动, 通过 Auto-Montage ProVersion 5.01 专业软件可以较准确的合成石油包裹体 3D 影像。包裹体内气相体积可以通过等效成球形获得。由于包裹体大小和形态

对包裹体 3D 影像的重构有较大影响, 因此在选择石油包裹体时不仅要考虑包裹体产状及荧光特征, 还要尽量考虑包裹体大小和形态。通常要求包裹体大小要在 $8\sim10 \mu\text{m}$ 以上, 包裹体形态最好为椭圆形, 包裹体越大, 椭圆的长轴与短轴比越大, 重构的包裹体体积精度越高。

图 2 为丰深 1 井和丰 8 井流体包裹体样品石油包裹体荧光照片, 由图 2 可知, 丰 8 井油包裹体荧光颜色主要以淡黄色—白色荧光为主, 丰深 1 井油包裹体荧光颜色主要以淡黄色、蓝白色和蓝色荧光为主。油气充注成藏贡献度分析表明, 丰 8 井 3 943~4 195.1 m 经历了两幕原油充注, 第一幕油对应的峰值 API 度范围为 $37^{\circ}\sim38^{\circ}$, 第二幕油对应峰值 API 度范围为 $41^{\circ}\sim42^{\circ}$ 。原油油藏原油 API 度(37.4°)与第一幕充注的油 API 度较一致, 表明第一幕原油充注对现今油藏贡献度最大, 主成藏时期应该为 API 度为 $37^{\circ}\sim38^{\circ}$ 的原油充注所对应的时期(平宏伟等, 2012)。丰深 1 井在 4 321.7 m 检测到两幕油充注, 第一幕原油大量充注时对应油包裹体 API 度范围为 $38^{\circ}\sim41^{\circ}$, 充注高峰时油 API 度为 $39^{\circ}\sim40^{\circ}$; 第二幕原油充注对应的 API 度为 $49^{\circ}\sim50^{\circ}$, 油包裹体为富气相凝析油。丰深 1 井油藏原油 API 度(50°)与现今油藏油 API 度一致, 表明第二幕油充注对现今丰深 1 井凝析油气藏形成起决定作用(平宏伟等, 2012)。

表 5 为最终测试的 6 对油包裹体均一温度与室温下(20°C)气泡充填度(F_v)数据, 包裹体产状、荧光颜色、API 度及充注幕次都具有代表性。图 3 是将表 5 中测定结果中均一温度与室温(20°C)下气泡充填度(F_v)数据对与表 3 中 10 个不同组分的参照流体的均一温度与室温(20°C)下气泡充填度(F_v)数据对对比图。由图 3 可知, 民丰地区深层石油包裹体类型分布较广, 其等效流体组分从 F5 类型流体到 F10 类型流体都有分布, 主要分布在 F5~F9 类型流体之间, 甲烷摩尔百分含量在 31%~52% 之间, C_{7+} 摩尔百分含量在 37%~20% 之间。民丰地区丰 8 井 3 943.0 m 泥岩中方解石脉捕获的油包裹体 1、2 的 API 度位于第一幕油充注范围, 这 2 个油包裹体荧光颜色为淡黄色~白色, 成熟度较低。对比图 3 中其他包裹体, 丰 8 井第一幕充注的原油成熟度最低, 其等效流体组分相当于参考流体 F5~F6 组分, 对应甲烷摩尔含量位于 31%~35% 之间。丰 8 井 4 195.1 m 石英加大边中的油包裹体 3 成熟度与包裹体 2 相当, 其等效流体组分大致相当于参

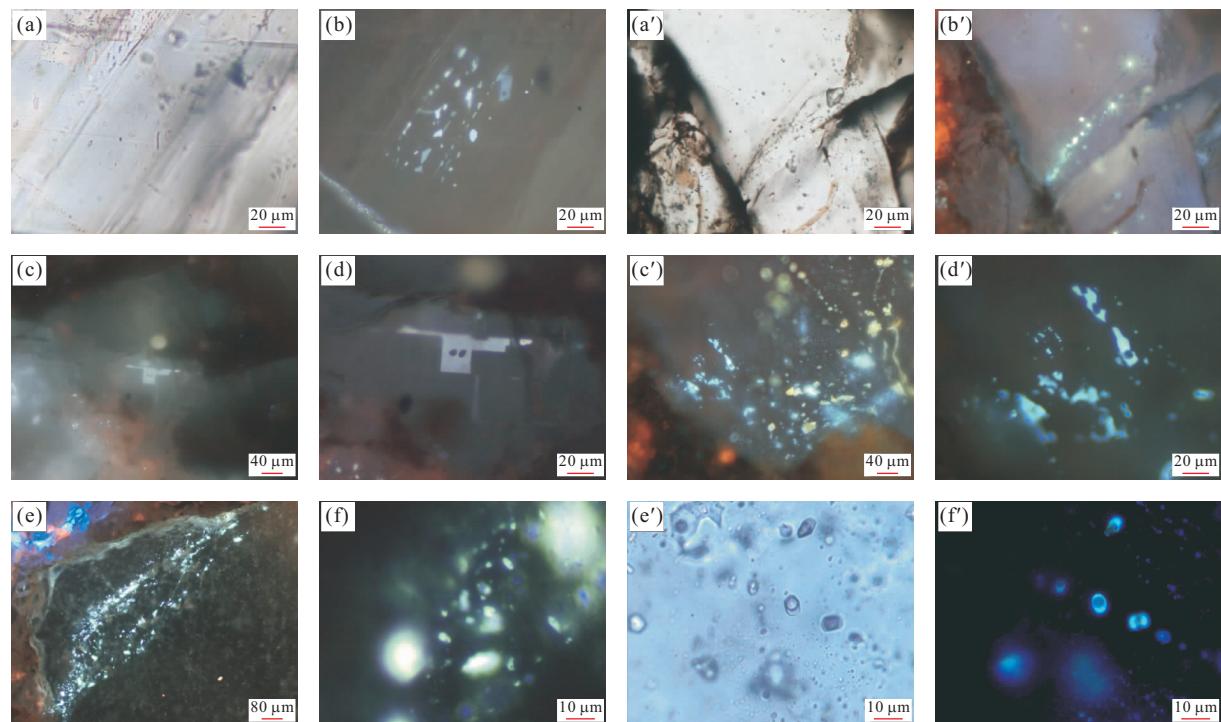


图2 东营凹陷北带民丰地区丰8井和丰深1井石油包裹体荧光照片

Fig. 2 Photomicrographs of petroleum inclusions from well Feng 8 and well Fengshen 1 in Minfeng area in North Dongying depression
a,a' and e'为透射光,其他为荧光。丰8井,3 943.0 m,泥岩裂缝充填方解石脉中见大量淡黄—白色荧光油包裹体(a~d);丰8井,4 195.12 m,石英颗粒加大边中见大量淡黄—白色荧光油包裹体(e~f);丰深1井,4 321.7 m,在穿石英颗粒裂纹中见大量淡黄色荧光油包裹体(a'~b'),蓝白色荧光油包裹体(c'~d')及富气相蓝色荧光凝析油包裹体(e'~f')

表5 东营凹陷北带深层油包裹体均一温度(Th_{oil})与室温下(20℃)气泡充填度(F_v)数据

Table 5 The data of homogenization temperature (Th_{oil}) and the degree of gaseous filling (F_v) under room temperature (20℃) of petroleum inclusions in the deep reservoir in North Dongying depression

包裹体编号	井号	深度(m)	产状	成因	荧光颜色	API°	Th_{oil}	F_v (%)	$Th_{aqueous}$	幕次	包裹体类型
1	丰8	3 943.0	方解石脉	原生	淡黄—白色	33.8	47.5	3.1	134.3	第一幕	油
2	丰8	3 943.0	方解石脉	原生	淡黄—白色	36.1	76.0	6.2	145.9	第一幕	油
3	丰8	4 195.1	石英加大边	原生	淡黄—白色	37.3	102.5	10.5	156.7	第一幕	油
4	丰深1	4 321.7	穿石英颗粒裂纹	次生	淡黄色	38.7	128.6	16.9	151.6	第一幕	油
5	丰深1	4 321.7	穿石英颗粒裂纹	次生	蓝白色	42.4	139.3	25.6	156.7	第一幕	油
6	丰深1	4 321.7	穿石英颗粒裂纹	次生	蓝色	49.0	150.3	72.5	178.7	第二幕	凝析油
7	丰深1	4 321.7	穿石英颗粒裂纹	次生	不发荧光				161.0~176.0	第三幕	天然气

考流体F6组分,甲烷摩尔含量在35%左右。丰深1井4 321.7 m主要经历了两幕原油充注,其中表4中包裹体4~7分别对应这几幕油气充注。由图3所示,早期充注的原油成熟度较大,等效流体组分大致与参照流体F8~F9组分相当,甲烷摩尔含量位于46%~52%;第二幕凝析油包裹体组分已经超出了表4中流体范围,其甲烷摩尔组分要大于参照流体F10(>60%)。总体上,丰深1井油气充注成熟度要远高于丰8井油气充注成熟度,可能反映丰8井为早期低成熟油气充注主要方向而丰深1井为晚期高成熟油气充注主要方向。

3 结论

(1)本文利用石油包裹体热力学理论,对10种不同类型的原油流体热力学参数通过匹配饱和压力、微调组分和校正气、液相摩尔体积等一系列方法来保证更加准确地计算给定石油流体气、液相体积属性,从而保证室温下(20℃)气泡充填度(F_v)计算的准确性。最后再根据实测石油包裹体均一温度和实测室温下(20℃)气泡充填度(F_v)的关系反推油包裹体组分。

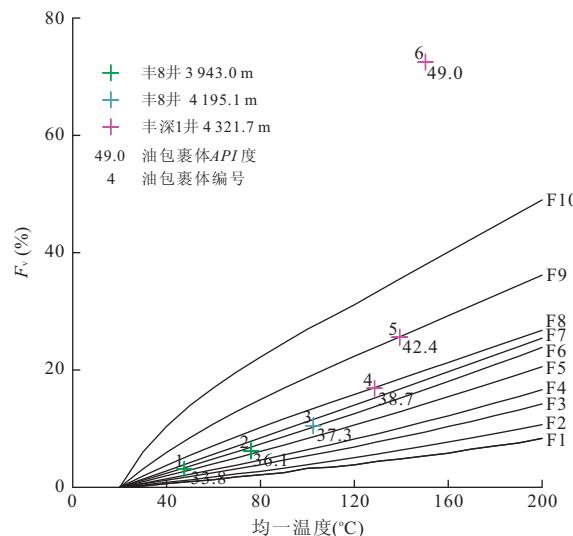


图3 东营凹陷北带民丰深层油包裹体均一温度与室温(20℃)下气泡充填度(F_v)关系

Fig. 3 The relational graph of homogenization temperature and the degree of gaseous filling (F_v) under room temperature (20℃) of petroleum inclusions in the deep reservoir in Minfeng area in North Dongying depression

(2)本文方法是建立在单幕充注的油气成熟度主要取决于其烃源岩的热演化程度的前提下,另外,原油中各组分含量变化主要与其源岩成熟度有关,不同类型干酪根生成的油气组分含量变化趋势是一致的,即随着源岩成熟度增大,原油中重组分含量减少,轻组分含量增大。因此,本文建立的均一温度和气泡充填度模板可以适用于不同类型干酪根生成的油气。

(3)对东营凹陷北带民丰深层石油包裹体均一温度和室温下(20℃)气泡充填度进行系统的测试分析,表明东营凹陷北带民丰深层石油包裹体成熟度较高,其中丰深1井油气充注成熟度整体上高于丰8井油气充注成熟度,油包裹体组分定量预测结果表明丰8井第一幕充注的油包裹体甲烷摩尔含量位于31%~35%之间,第一幕油气充注晚期(甲烷摩尔含量≈35%)决定丰8井油气成藏;丰深1井主要经历了两幕原油充注,第一幕充注油气甲烷摩尔含量位于46%~52%,第二幕充注油气甲烷摩尔含量要高于60%,第二幕油气充注控制丰深1井凝析油藏成藏。

(4)石油包裹体荧光颜色对油气成熟度分辨率低,利用本文石油包裹体组分预测方法可以定量地表征地质历史时期充注的油气成熟度演化,从而可以有效并直观地区分相似荧光颜色油包裹体总体组

分的差异,进而为精细刻画油气充注压力—体积—温度一组分—时间(PVT_{xt})史提供依据。

References

- Ahmed, T. H. , Cady, G. V. , Story, A. L. , 1985. A generalized correlation for characterizing the hydrocarbon heavy fractions. In: SPE 60th annual technical conference. SPE, Las Vegas, 14266. doi: 10.2118/14266-MS
- Al-Meshari, A. A. , Aramco, S. , MaCain, W. D. , 2007. Validation of splitting the hydrocarbon plus fraction: first step in tuning equation of state. In: Middle east oil and gas show and conference. SPE, Kingdom of Bahrain, 104631. doi: 10.2118/104631-MS
- Aplin, A. C. , Macleod, G. , Larter, S. R. , et al. , 1999. Combined use of confocal laser scanning microscopy and PVT simulation for estimating the composition and physical properties of petroleum in fluid inclusions. *Marine and Petroleum Geology*, 16(2): 97—110. doi: 10.1016/S0264-8172(98)00079-8
- Bourdet, J. , Pironon, J. , Levresse, G. , et al. , 2008. Petroleum type determination through homogenization temperature and vapour volume fraction measurements in fluid inclusions. *Geofluids*, 8(1): 46—59. doi: 10.1111/j.1468-8123.2007.00204.x
- Bourdet, J. , Pironon, J. , Levresse, G. , et al. , 2010. Petroleum accumulation and leakage in a deeply buried carbonate reservoir, Nispero field (Mexico). *Marine and Petroleum Geology*, 27(1): 126—142. doi: 10.1016/j.marpetgeo.2009.07.003
- Cavett, R. , 1962. Physical data for distillation calculations: vapor-liquid equilibria. In: Proc. 27th Annual Meeting. American Petroleum Institute, Dallas, 351—366.
- Elsharkawy, A. M. , 2003. An empirical model for estimating the saturation pressures of crude oils. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 38(1): 57—77. doi: 10.1016/S0920-4105(03)00035-4
- George, S. C. , Krieger, F. W. , Eadington, P. J. , et al. , 1997. Geochemical comparison of oil-bearing fluid inclusions and produced oil from the Toro sandstone, Papua New Guinea. *Organic Geochemistry*, 26(3): 155—173. doi: 10.1016/S0146-6380(97)00004-1
- Grimmer, J. O. W. , Pironon, J. , Teinturier, S. , et al. , 2003. Recognition and differentiation of gas condensates and other oil types using microthermometry of petroleum inclusions. *Journal of Geochemical Exploration*, 78—79: 367—371. doi: 10.1016/S0375-6742(03)00137-7
- Guilhaumou, N. , Szydlowski, N. , Pradier, B. , 1990. Characterization of hydrocarbon fluid inclusions by infra-red

- and fluorescence microspectrometry. *Mineralogical Magazine*, 54(375): 311—324. doi: 10.1180/minmag.1990.054.375.17
- Horsfield, B. , McLimans, R. K. , 1984. Geothermometry and geochemistry of aqueous and oil-bearing fluid inclusions from Fateh field, Dubai. *Organic Geochemistry*, 6: 733—740. doi: 10.1016/0146-6380(84)90094-9
- Jacopy, R. H. , Berry, Jr. V. J. , 1958. A method for predicting pressure maintenance for reservoirs producing volatile oil. *Petrol. Trans. AIME*, 213: 59—65.
- Jaubert, J. N. , Avaultee, L. , Souvay, J. F. , 2002. A crude oil data bank containing more than 5 000 PVT and gas injection data. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 34(1—4): 65—107. doi: 10.1016/S0920-4105(02)00153-5
- Jhaveri, B. S. , Youngren, G. K. , 1988. Three-parameter modification of the Peng-Robinson equation of state to improve volumetric predictions. *SPE Reservoir Engineering*, 3(3): 1033—1040. doi: 10.2118/13118-PA
- Katz, D. L. , Firoozabadi, A. , 1978. Predicting phase behavior of condensate/crude-oil systems using methane interaction coefficients. *Journal of Petroleum Technology*, 30(11): 1649—1655. doi: 10.2118/6721-PA
- Kay, W. B. , 1936. Gases and vapors at high temperature and pressure-density of hydrocarbon. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 28(8): 1014—1019. doi: 10.1021/ie50321a008
- Kihle, J. , 1995. Adaptation of fluorescence excitation-emission micro-spectroscopy for characterization of single hydrocarbon fluid inclusions. *Organic Geochemistry*, 23(11—12): 1029—1042. doi: 10.1016/0146-6380(95)00091-7
- Liu, D. H. , Xiao, X. M. , Mi, J. K. , et al. , 2003. Determination of trapping pressure and temperature of petroleum inclusions using PVT simulation software: a case study of Lower Ordovician carbonates from the Lunnan low uplift, Tarim basin. *Marine and Petroleum Geology*, 20(1): 29—43. doi: 10.1016/S0264-8172(03)00047-3
- Moharam, H. M. , Fahim, M. A. , 1995. Prediction of viscosity of heavy petroleum fractions and crude oils using a corresponding states method. *Ind. Eng. Chem. Res.*, 34(11): 4140—4144. doi: 10.1021/ie00038a061
- Munz, I. , Johansen, H. , Johanse, I. , 1999. Characterisation of composition and PVT properties of petroleum inclusions: implications of reservoir filling and compartmentalisation. *Society of Petroleum Engineers*, 56519: 1—7. doi: 10.2118/56519-MS
- Neau, E. , Jaubert, J. N. , Rogalski, M. , 1993. Characterization of heavy oils. *Industrial & Engineering Chemistry Research*, 32(6): 1196—1203. doi: 10.1021/ie00018a027
- Pang, L. S. K. , George, S. C. , Quezada, R. A. , 1998. A study of the gross compositions of oil-bearing fluid inclusions using high performance liquid chromatography. *Organic Geochemistry*, 29(5—7): 1149—1161. doi: 10.1016/S0146-6380(98)00135-1
- Pedersen, K. S. , Thomassen, P. , Fredenslund, A. , 1988. On the dangers of “tuning” equation of state parameters. *Chem. Eng. Sci.*, 43(2): 269—278. doi: 10.1016/0009-2509(88)85039-5
- Peng, D. R. , Robinson, D. B. , 1976. A new two-constant equation of state. *Industrial & Engineering Chemistry Fundamentals*, 15(1): 59—64. doi: 10.1021/i160057a011
- Ping, H. W. , Chen, H. H. , 2011. Main controlling factors on oil inclusion homogenization temperatures and their geological significance. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 36(1): 131—138 (in Chinese with English abstract).
- Ping, H. W. , Chen, H. H. , Song, G. Q. , et al. , 2012. Contributions degree of petroleum charging to oil and gas accumulation and its significance. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 37(1): 163—170 (in Chinese with English abstract).
- Ping, H. W. , Thiéry, R. , Chen, H. H. , 2011. Thermodynamic modeling of petroleum inclusions: the prediction of the saturation pressure of crude oils. *Geofluids*, 11(3): 328—340. doi: 10.1111/j.1468-8123.2011.00343.x
- Pironon, J. , Barres, O. , 1990a. FT-IR microanalysis of hydrocarbon fluid inclusions. *Chemical Geology*, 84(1—4): 224—226. doi: 10.1016/0009-2541(90)90220-2
- Pironon, J. , Barres, O. , 1990b. Semi-quantitative FT-IR microanalysis limits: evidence from synthetic hydrocarbon fluid inclusions in sylvite. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 54(3): 509—518. doi: 10.1016/0016-7037(90)90348-O
- Pironon, J. , Canals, M. , Dubessy, J. , et al. , 1998. Volumetric reconstruction of individual oil inclusions by confocal scanning laser microscopy. *Eur. J. Mineral.*, 10(6): 1143—1150.
- Przyjalgowski, M. A. , Ryder, A. G. , Feely, M. , et al. , 2005. Analysis of hydrocarbon-bearing fluid inclusions (HCFI) using time-resolved fluorescence spectroscopy. In: Proceedings of SPIE. International Society Optical Engineering, 5826: 173—184.
- Rao, D. , Qin, J. Z. , Zhang, Z. R. , et al. , 2010. Composition analyses of individual hydrocarbon inclusion. *Petroleum Research*, 32(6): 1196—1203. doi: 10.1021/ie00018a027

- Geology & Experiment*, 32(1): 67—70 (in Chinese with English abstract).
- Riazi, M. R., Al-Sahhaf, T. A., 1996. Physical properties of heavy petroleum fractions and crude oils. *Fluid Phase Equilibria*, 117(1): 217—224. doi: 10.1016/0378-3812(95)02956-7
- 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
- Thiéry, R., Pironon, J., Walgenwitz, F., et al., 2000. PIT (petroleum inclusion thermodynamic): a new modeling tool for the characterization of hydrocarbon fluid inclusions from volumetric and microthermometric measurements. *Journal of Geochemical Exploration*, 69—70: 701—704. doi: 10.1016/S0375-6742(00)00085-6
- Thiéry, R., Pironon, J., Walgenwitz, F., et al., 2002. Individual characterization of petroleum fluid inclusions (composition and $P-T$ trapping conditions) by microthermometry and confocal laser scanning microscopy: inferences from applied thermodynamics of oils. *Marine and Petroleum Geology*, 19(7): 847—859. doi: 10.1016/S0264-8172(02)00110-1
- Thomassen, P., Pedersen, K. S., Fredenslund, A., 1987. Adjustment of C_{7+} molecular weights in the characterization of petroleum mixtures containing heavy hydrocarbons. SPE, 16036—MS.
- Tseng, H. Y., Pottorf, R. J., 2002. Fluid inclusion constraints on petroleum PVT and compositional history of the greater Alwyn-South Brent petroleum system, northern North Sea. *Marine and Petroleum Geology*, 19(7): 797—809. doi: 10.1016/S0264-8172(02)00088-0
- Volk, H., Fuentes, D., Fuerbach, A., et al., 2010. First on-line analysis of petroleum from single inclusion using ultrafast laser ablation. *Organic Geochemistry*, 41(2): 74—77. doi: 10.1016/j.orggeochem.2009.05.006
- Whitson, C. H., 1984. Effect of C_{7+} properties on equation-of-state predictions. *Soc. Pet. Eng. J.*, 24(6): 685—696. doi: 10.2118/11200-PA
- Wu, R., Rosenegger, L., 1999. Intergrated oil PVT data characterization—lessons from four case histories. *J. Can. Petrol. Technol.*, 38(Spec1.13): 97—105.
- Zhang, Z. R., Zhang, Q., Xi, B. B., et al., 2011. On-line analysis of oil-bearing fluid inclusions with laser ablation GC-MS. *Petroleum Geology & Experiment*, 33(4): 437—440 (in Chinese with English abstract).
- Zurita, R. A. A., McCain, Jr. W. D., 2002. An efficient tuning strategy to calibrate cubic EOS for compositional simulation, SPE annual technical conference and exhibition, SPE, San Antonio, Texas, 77382. doi: 10.2118/77382-MS

附中文参考文献

- 平宏伟,陈红汉,2011.影响油包裹体均一温度的主要控制因素及其地质涵义. 地球科学——中国地质大学学报, 36(1):131—138.
- 平宏伟,陈红汉,宋国奇,等,2012.油气充注成藏贡献度及其意义. 地球科学——中国地质大学学报, 37(1): 163—170.
- 饶丹,秦建中,张志荣,等,2010.单体烃包裹体成分分析. 石油实验地质, 32(1): 67—70.
- 张志荣,张渠,席斌斌,等,2011.含油包裹体在线激光剥蚀色谱—质谱分析. 石油实验地质, 33(4): 437—440.