

doi:10.3799/dqkx.2012.00

利用石油包裹体微束荧光光谱判别塔北碳酸盐岩油气藏油气充注期次

方欣欣¹, 甘华军², 姜华³, 刘伟³, 张永超⁴

1. 中国地质大学能源学院, 北京 100083

2. 中国地质大学资源学院, 湖北武汉 430074

3. 中国石油勘探开发研究院, 北京 100083

4. 中国石油冀东油田公司, 河北唐山 063000

摘要: 有机包裹体特别是石油包裹体的荧光颜色是鉴定有机包裹体和指示油气成熟度的有效手段。基于石油的荧光性, 通过荧光光谱分析方法, 对石油包裹体的荧光光谱进行量化描述, 利用其主峰波长(λ_{\max})、荧光强度及红绿商等属性参数, 开展油气充注期次的判别。通过偏光显微镜、荧光显微镜等技术手段, 对塔北隆起鹰山组——一间房组 38 个样本的石油包裹体进行了荧光颜色、显微光谱谱形和红绿商值的研究。样品中检测到黄绿色荧光、绿色荧光和蓝白色荧光 3 类石油包裹体, 且这 3 类石油包裹体的同生盐水包裹体温度具有可区分的温度范围, 对应的盐水包裹体平均温度分别是: 56.5、88.3、130.1 °C。综合地球化学方面的研究成果, 结合主峰波长、荧光强度、红绿商以及石油包裹体同生的盐水包裹体温度等参数分析认为, 研究区储层中的原油至少经历了来源于 2 个不同烃源的 3 期油气充注, 具有多源多期充注的成藏特征。

关键词: 塔北地区; 石油包裹体荧光光谱; 红绿商(Q); 油气充注期次。

中图分类号: P618

文章编号: 1000-2383(2012)03-0000-07

收稿日期: 2011-07-21

Analyzing Hydrocarbon-Charging Periods of Carbonate Reservoir in North Tarim by Micro Fluorescence Spectrum of Petroleum Inclusions

FANG Xin-xin¹, GAN Hua-jun², JIANG Hua³, LIU Wei³, ZHANG Yong-chao⁴

1. School of Energy Resources of China University of Geosciences, Beijing 100083, China

2. Faculty of Resources of China University of Geosciences, Wuhan 430074, China

3. PetroChina Research Institute of Petroleum Exploration & Development, Beijing 100083, China

4. Petrochina Jidong Oilfield Company, Tangshan 063000, China

Abstract: Fluorescence intensity of organic inclusion, especially petroleum inclusions, is an effective means to identify organic inclusions and indicate oil mature of petroleum inclusions. Based on fluorescence of petroleum, using fluorescence spectrum analysis method, oil and gas charging period could be studied by analyzing main peak value(λ_{\max}), fluorescence intensity (I_{\max}) and fluorescence spectrum Q quotient. Thirty-eight samples coming from Yijianfang-yingshan formation of North Tarim have been studied through polarizing optical microscopy and fluorescence microscopy, etc. Through fluorescence color, microscopical spectrum figure and fluorescence spectrum Q quotient, three kinds of petroleum inclusions have been divided and they show three fluorescence: they color are yellow-green, green and blue-white, these syngenetic brine inclusions temperatures are 56.5, 88.3, 130.1 respectively. According to earth chemistry methods and main parameters, such as fluorescence intensity, fluorescence spectrum Q quotient and syngenetic brine inclusions temperatures, it is concluded that there are at least three periods oil and gas chargings which coming from two different source rock in reservoir in study area, and they are showed reservoir features with multi-source and multi-period hydrocarbon-charging.

Key words: area of North Tarim; fluorescence features of petroleum inclusions; fluorescence spectrum (Q); hydrocarbon-charging period.

基金项目: 国家自然科学基金项目(No. 41072084).

作者简介: 方欣欣(1981-), 女, 博士研究生, 研究方向为盆地分析和储层沉积学. E-mail: freestarxin@163.com

0 引言

近年来包裹体技术在石油地质领域中得到广泛的应用,成为剖析油气成藏动力学过程和油气成藏史研究的重要手段.有机包裹体特别是石油包裹体荧光颜色是鉴别油气包裹体和指示油气成熟度的有效方法(George *et al.*, 2001, 2002; Goldstein *et al.*, 2001; Munz, 2001).石油之所以具有荧光性是其液态烃中芳烃共轭 π 键体系和 C=O 官能团密切相关的,而与饱和烃无关.传统实验观察结果认为,液态烃的荧光可反映有机质的演化程度,即随着有机质从低成熟度向高成熟度演化,其荧光颜色由褐色→橘黄色→浅黄色→蓝色→蓝白色(Peters and Moldowan, 1993; Stasiuk and Snowdon, 1997; Oxtoby, 2002; Okubo, 2005; Przyjalowski *et al.*, 2005; 郝雪峰等, 2006).然而,仅凭肉眼镜下观察的荧光颜色判断烃类的成熟度的方法被不少学者质疑,如何消除不同观察者鉴定荧光颜色的差别成为一个突出的问题.随着技术的发展,基于石油的荧光性,通过常规荧光光谱分析,对石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参数综合分析油气充注史成为一种重要而有效的油气成藏研究方法(柳少波和顾家裕, 1997; 吕修祥等, 2007; 丰勇等, 2009).

本文将根据采集的塔里木盆地塔北南斜坡区 50 块碳酸盐岩岩脉样品制成的双面抛光包裹体薄片,在紫外激发光波长 330~380 nm 和配备美国 maya2000 微束($\leq 2 \mu\text{m}$)荧光光谱分析仪、Linkam THMS G600 冷/热台+100 倍 8 mm 长焦工作物镜的 E400Nikon 双通道荧光显微镜下,观察石油包裹

体荧光颜色,测量其微束荧光光谱,在此基础上尝试对塔北南斜坡区碳酸盐岩油气藏的油气充注期次进行研究.

1 地质概况

塔北隆起南斜坡区位于塔里木盆地轮台凸起以南,南邻满加尔凹陷,是海相油气的指向区,区域位置十分优越(何登发, 2007),勘探面积达 4 000 多 km^2 (图 1).一间房—鹰山组的岩溶储层是该地区最主要的储集体,具有“整体含油,局部富集”的特点.其南部的满加尔凹陷是重要的供烃凹陷,具有下奥陶一中上寒武、中上奥陶两套重要的烃源岩.同时受塔里木盆地多幕构造运动影响,塔北地区具有多源混合、多期生排烃和多期油气充注的特点,具有极为复杂的油气成藏历史.

针对塔北南斜坡区一间房—鹰山组岩溶油气藏的成藏期次问题,在分布于坡区 7 口井储层段共采集 38 块方解石脉样本,通过双面抛光制成流体包裹体薄片,进行石油包裹体检测及相应的荧光光谱测定.

2 石油包裹体荧光及光谱分析

石油包裹体荧光光谱特征是在观察石油包裹体荧光颜色的基础上对荧光强度和光谱特征进行更加精确的测量,以便获得更多的与油气相关的信息.随着光谱主峰值的减少,其荧光存在“蓝移”现象,石油包裹体成熟度增加;反之,主峰值增大,荧光“红移”,石油包裹体成熟度减少(Dumke and Teschner,

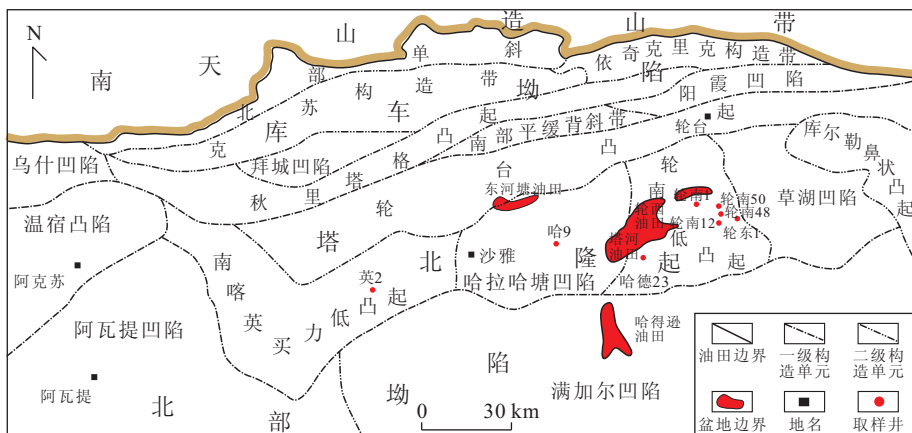


图 1 塔里木盆地塔北地区构造格局

Fig. 1 Tectonics framework of north of Tarim basin

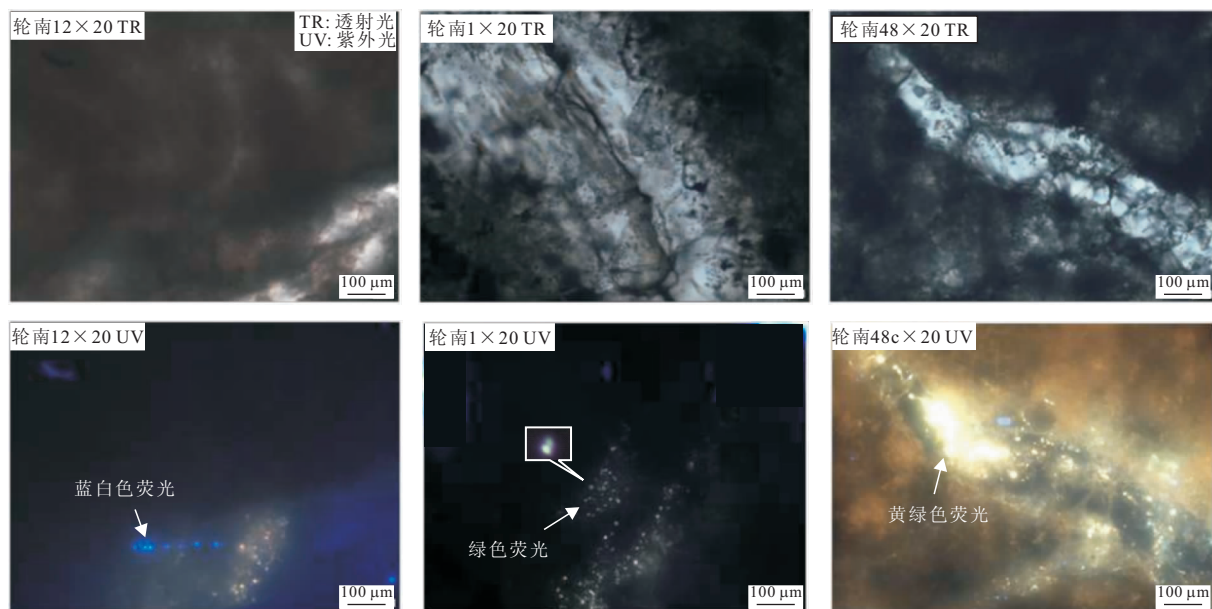


图 2 一间房—鹰山组典型石油包裹体典型荧光特征

Fig. 2 Typical fluorescence features of petroleum inclusions of Yijianfang-Yingshan formation in Ordovician

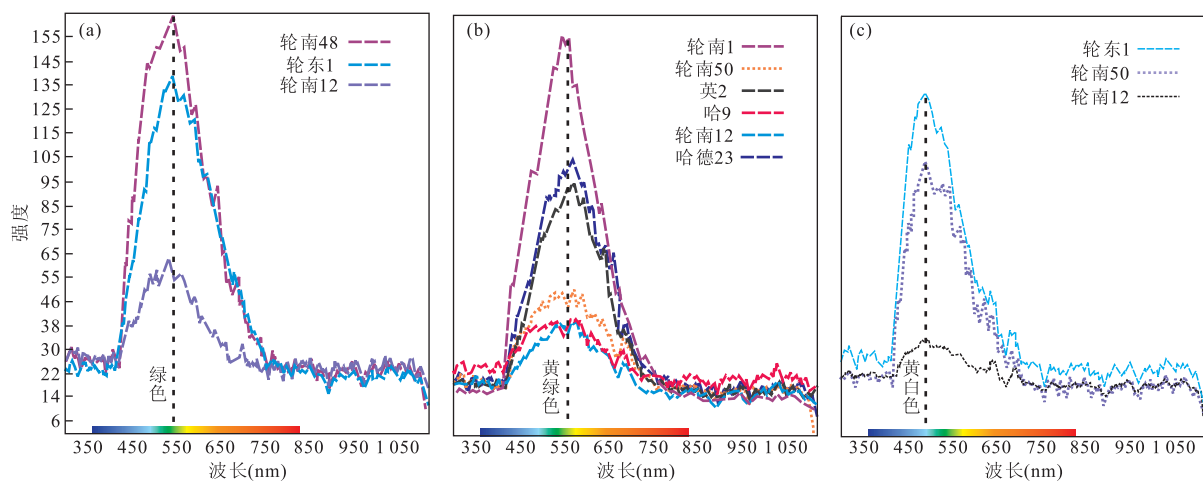


图 3 一间房—鹰山组典型石油包裹体荧光光谱

Fig. 3 Typical fluorescence spectrum of petroleum inclusions of Yijianfang-Yingshan formation in Ordovician

1988; Kihle, 1995). 本次研究中 38 块流体包裹体双面剖光薄片的镜下观察表明,在岩溶储层段灰岩的方解石脉体晶格缺陷中均发现石油包裹体,其紫外光下主要发绿色荧光、黄绿色荧光和蓝白色荧光(图 2). 利用 maya2000 微束($\leq 2 \mu\text{m}$)荧光光谱分析仪,通过 365 nm 的激发光对单个石油包裹体进行显微光谱测定,获得的典型石油包裹体微束荧光光谱. 通过对比可知,同种荧光的光谱形态和结构相似,具有近似的主峰波长(λ_{max}),通过对比可知研究目的区主要发育 3 期石油包裹体(荧光颜色分别为蓝白色、绿色和黄绿色),其主峰波长分别为 505 nm、550 nm

和 490 nm 左右(图 3).

2.1 石油包裹体荧光光谱的主峰波长(λ_{max})与荧光强度(I_{max})的关系

石油包裹体的荧光强度与包体中石油的密度等密切相关,不同时期充注和来自于不同油源的油,其荧光强度有可能存在较大差异,因此常用荧光强度的差异来定性判断石油包裹体中油的性质(杨杰和陈丽华, 2002; 吕海涛等, 2008; 赵艳军和陈红汉, 2008). 本次研究中,3 种荧光颜色所对应的荧光强度(I_{max})分布范围都比较大(图 4a),蓝白色荧光光谱(主峰波长位于 447.1~492.0 nm 之间)的 I_{max} 集

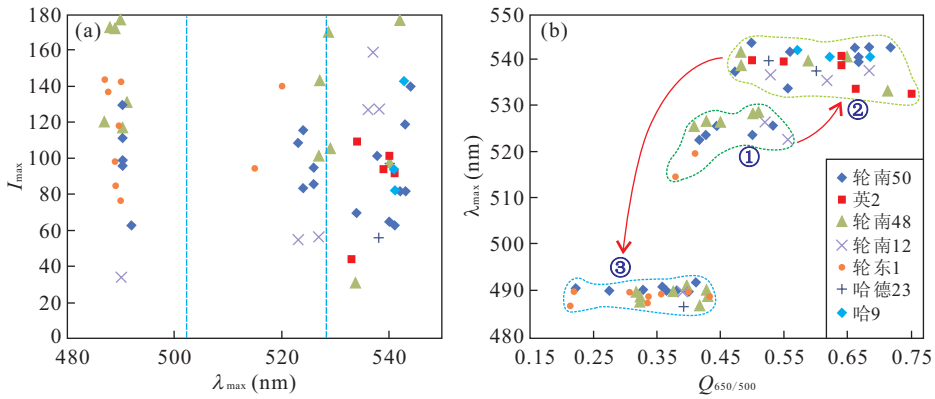


图 4 一间房—鹰山组典型石油包裹体微束荧光光谱主峰波长(λ_{\max})与荧光强度(I_{\max})、红绿商($Q=I_{650}/I_{500}$)的关系

Fig. 4 Diagram of relationship of main peak value (λ_{\max}) with fluorescence intensity (I_{\max}) and fluorescence spectrum Q quotient of petroleum inclusions of Yijianfang-Yingshan formation in Ordovician

中分布于 63.5~143.8 之间,绿色荧光光谱(主峰波长位于 515~526 nm 之间)的 I_{\max} 集中分布于 81.3~142.5 之间,黄绿色荧光光谱(主峰波长位于 533~544 nm 之间)的 I_{\max} 集中分布于 50.3~135.2 之间. I_{\max} 广泛的分布范围充分说明了该区油气多源多期充注以及在油气运移和聚集过程中因分馏、氧化等导致的成分的相对变化,同时,也应注意 I_{\max} 受影响因素较多,在判断油气充注期次的运用中必须结合其他相关参数.

2.2 石油包裹体荧光光谱的红绿商($Q=I_{650}/I_{500}$)与主峰波长(λ_{\max})的关系

石油包裹体荧光光谱的红绿商($Q=I_{650}/I_{500}$)是光谱谱形的一种定量描述,它能够更加准确地反映油的成分及其含量的变化,其意义是指示荧光颜色中红色部分与绿色部分的比值(图 5). 红绿商(比值)的方法在国外 20 世纪 80 年代已经有较为成熟的应用,而在我国将其用于油源对比的报道较少. I_{650} 值越大反映包裹体内原油中含有越多的大分子组分,成熟度低;而 I_{500} 值越大则反映包裹体油中含有更多的小分子组分,原油成熟度越高;所以红绿商(Q)越大则包裹体中原油的成熟度越低,反之,则包裹体中原油的成熟度越高.

如图 4b 所示,3 种荧光光谱对应的红绿商(Q)表现为 3 个数据团,其中蓝白色荧光光谱的红绿商 Q 集中分布于 0.21~0.45 之间,绿色荧光光谱的红绿商 Q 集中分布于 0.38~0.57 之间,黄绿色荧光光谱的红绿商 Q 集中分布于 0.47~0.75 之间. 结合石油包裹体的微束荧光光谱主峰波长 λ_{\max} 特征,以及 I_{\max} - λ_{\max} 相关分析和 λ_{\max} - Q 相关分析,可以判定塔北南斜坡区在地质历史时期至少经历了 3 期油

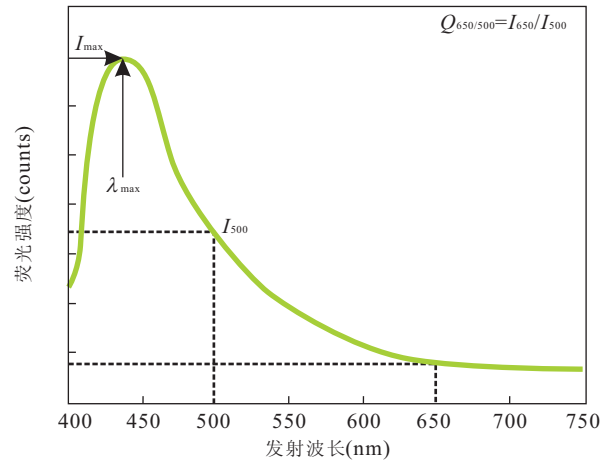


图 5 红绿商参数的定义(据 Munz, 2001)

Fig. 5 Definitions of fluorescence emission parameter of the $Q_{650/500}$

气充注.

3 成藏期次的讨论

λ_{\max} - Q 相关分析中的 3 个数据团代表了 3 期不同成熟度的油气充注,其中黄绿色荧光石油包裹体成熟度最低,且分布广泛,而成熟度最高的蓝白色荧光石油包裹体主要分布于轮古地区的样品中,成熟度介于两者之间的绿色石油包裹体在轮南 12 井以东地区样品中普遍存在,这在大体上可以说明 3 期油气充注的范围.

为了进一步确定油气运移的期次和充注时间,对石油包裹体及其与之共生的盐水包裹体的均一温度进行了测量:黄绿色石油包裹体共生的盐水包裹体温度主要为 54.2~60.9 $^{\circ}\text{C}$,平均温度为 56.5 $^{\circ}\text{C}$;

表 1 典型井包裹体荧光颜色与成藏期次

Table 1 Petroleum inclusions fluorescence color and reservoir epochs of typical wells

井名	井深(m)	岩性	石油包裹体色谱荧光颜色	同生盐水包裹体平均均一化温度(°C)	成藏时期
英 2	6053	泥晶灰岩	黄绿色	54.2,55.6,55.8,58,58.2,60.5	海西晚期
			绿色	58.3,60.2,62.5,63.8,69	加里东晚期—海西早期
轮南 50	5624.5	泥晶灰岩	黄绿色	86.5,92.2,93.5,95.5,96.3,98,100.2,102.1,106.3	海西晚期
			蓝白色	118.2,123.6,127.5,128.1,129.8,134	喜山期

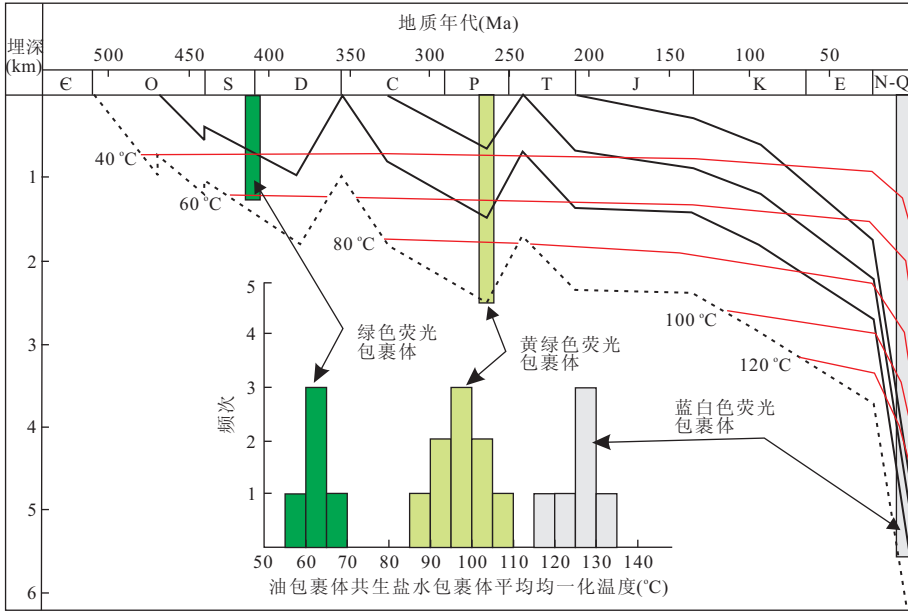


图 6 轮南 50 井埋藏—热演化史与成藏期次

Fig. 6 Burial and thermal history and oil charge epoch for well LN50

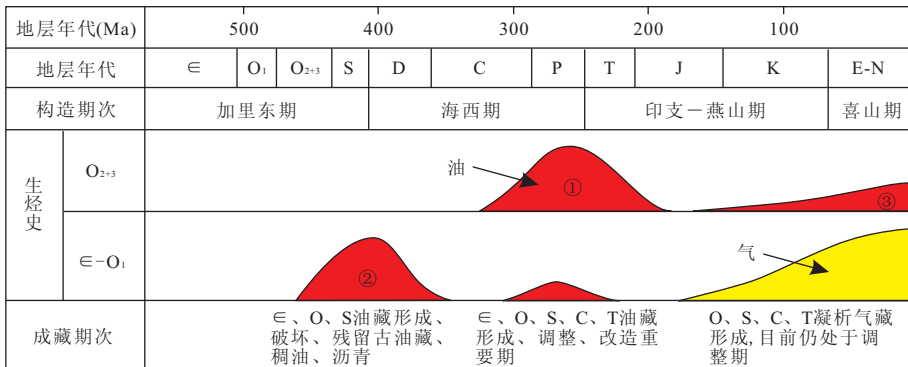


图 7 奥陶统一间房—鹰山组储层油气充注史

Fig. 7 Hydrocarbon-charging history for reservoir of Yijianfang-Yingshan formation in Ordovician

绿色石油包裹体共生的盐水包裹体温度主要为 61.6~118.3 °C,平均温度为 88.3 °C;蓝白色石油包裹体共生的盐水包裹体温度主要为 121.7~132.3 °C,平均温度为 130.1 °C,具有明显的 3 期油气充注(表 1)。应用 PETROMOD 软件进行了各井埋藏史的模拟,以轮南 50 井为例(图 6),将包裹体

温度投影到埋藏史中,可发现该井经历了 3 期构造演化,分别对应加里东晚期—海西早期、海西晚期、喜山期,这一观点与吕海涛等(2008)3 期成藏的观点相一致。此外,塔里木油田在 2009 年通过油源对比(塔里木油田内部报告,2009。塔里木盆地主要烃源岩及成藏史研究),确定英 2 井所产原油源自海西

晚期中—上奥陶统。因此其所在的黄绿色石油包裹体数据团与其(图 4b)具有相同的油源和捕获时间,即海西晚期,这与本次研究的结果相符。

因此,塔北南斜坡区的成藏演化史应为 3 期成藏,其成藏史与包裹体荧光光谱演化特征为(图 4b 和图 7,两图中标号①~③代表期次相对应):加里东晚期—海西早期中上寒武—下奥陶统原油成藏,并形成大量绿色荧光包裹体,其分布范围至少为轮南 12 井以东地区;海西晚期中上奥陶统开始生油,在该时期储层中捕获了黄绿色荧光包裹体,分布广泛,遍及整个南斜坡区;在喜山期,中上奥陶统继续生烃,并在地层中形成代表高成熟的蓝白色荧光包裹体,该期成藏范围局限于轮南低凸起及以东地区。

4 结论

结合构造背景分析,通过对塔北南斜坡区鹰山—一间房组储层中石油包裹体的检测,应用荧光颜色和荧光光谱进行对比分析得出如下认识:

(1)塔北南斜坡区具有中下寒武—下奥陶统、中上奥陶统两套烃源岩供烃,储层中石油包裹体具有 3 种主要的荧光颜色,分别是黄绿色、绿色和蓝白色,显示了多源多期充注的成藏特征。

(2)红绿商(Q)消除了因人为等问题所造成的荧光强度(I_{\max})的偏差,是分析油气成分和成熟度差异性更准确和有效的参数。本次研究中在 $I_{\max}-\lambda_{\max}$ 相关性显示特征不明显,运用 $\lambda_{\max}-Q$ 相关性并结合石油包裹体同生盐水包裹体温度分析确定出 3 期油气充注的成藏过程。

(3)由于塔里木盆地属于构造叠合盆地,具有多套烃源岩和多期成藏特点,因此不能简单按照荧光颜色确定成藏序列。本区中代表中等成熟度的绿色荧光石油包裹体形成于晚加里东—早海西期,代表低成熟度的黄绿色荧光石油包裹体形成于海西晚期,代表高成熟度的蓝白色荧光石油包裹体形成于喜山期。绿色荧光石油包裹体和黄绿色荧光石油包裹体形成时间序列上的反转在于其两者之间来源于两套不同的烃源岩,这种现象的产生与两期烃源岩的组分特征有关,更与复杂的构造活动相关。

References

Dumke, I., Teschner, M., 1988. Application of fluorescence spectroscopy to geochemical correlation problems. *Organic Geochemical*, 13(4-6): 1067-1072. doi: 10.

1016/0146-6380(88)90290-2

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).

George, S. C., Ruble, T. E., Dutkiewicz, A., et al., 2001. Assessing the maturity of oil trapped in fluid inclusions using molecular geochemistry data and visually-determined fluorescence colours. *Applied Geochemistry*, 16(4): 451-473. doi: 10.1016/S0883-2927(00)00051-2

George, S. C., Ruble, T. E., Dutkiewicz, A., et al., 2002. Reply to comment by Oxtoby on "Assessing the maturity of oil trapped in fluid inclusions using molecular geochemistry data and visually-determined fluorescence colours". *Applied Geochemistry*, 17(10): 1375-1378. doi: 10.1016/S0883-2927(02)00027-6

Goldstein, R. H., 2001. Fluid inclusions in sedimentary diagenetic systems. *Lithos*, 55(4): 159-193. doi: 10.1016/S0024-4937(00)00044-X

Hao, X. F., Chen, H. H., Gao, Q. L., et al., 2006. Microcharging processes of hydrocarbon in the Niuzhuang lentoid sandy reservoirs, Dongying depression. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 31(2): 182-190 (in Chinese with English abstract).

He, D. F., 2007. Structure of unconformity and its control on hydrocarbon accumulation. *Petroleum Exploration and Development*, 34(2): 142-149 (in Chinese with English abstract).

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, S. B., Gu, J. Y., 1997. Analytical methods of fluid inclusions and applications to the study of oil and gas. *Petroleum Exploration and Development*, 24(3): 29-33 (in Chinese with English abstract).

Lu, H. T., Zhang, W. B., Zhang, D. J., 2008. Fluorographic geochemical analysis and its application. *Petroleum Geology and Experiment*, 30(6): 547-551 (in Chinese with English abstract).

Lv, X. X., Zhou, X. Y., Li, J. J., et al., 2007. Hydrocarbon accumulation characteristics of the carbonate rock in the northern uplift of the Tarim basin. *Acta Geologica Sinica*, 81(8): 1057-1064 (in Chinese with English abstract).

Munz, I. A., 2001. Petroleum inclusions in sedimentary ba-

- sins; systematics, analytical methods and applications. *Lithos*, 55 (1-4): 195-212. doi: 10.1016/S0024-4937(00)00045-1
- Okubo, S., 2005. Effects of thermal cracking of hydrocarbons on the homogenization temperature of fluid inclusions from the Niigata oil and gas fields, Japan. *Applied Geochemistry*, 20 (2): 255-260. doi: 10.1016/j.apgeochem.2004.09.001
- Oxtoby, N. H., 2002. Comments on: assessing the maturity of oil trapped in fluid inclusions using molecular geochemistry data and visually-determined fluorescence colours. *Applied Geochemistry*, 17 (10): 1371-1374. doi: 10.1016/S0883-2927(02)00026-4
- Peters, K. E., Moldowan, J. M., 1993. The biomarker guide, interpreting molecular fossils in petroleum and ancient sediments. Englewood Cliffs, Prentice Hall, New Jersey.
- Przyjalowski, M. A., Ryder, A. G., Feely, M., et al., 2005. Analysis of hydrocarbon-bearing fluid inclusions (HCFI) using time-resolved fluorescence spectroscopy. *Optical Sensing and Spectroscopy*, 5826: 173-184. doi: 10.1117/12.605035
- Stasiuk, L. D., Snowdon, L. R., 1997. Fluorescence microspectrometry of synthetic and natural hydrocarbon fluid inclusion: crude oil chemistry, density and application to petroleum migration. *Applied Geochemistry*, 12(3): 229-241. doi: 10.1016/S0883-2927(96)00047-9
- 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).
- 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

- 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.
- 郝雪峰, 陈红汉, 高秋丽, 等, 2006. 东营凹陷牛庄砂岩透镜体油气藏微观充注机理. 地球科学——中国地质大学学报, 31(2): 182-190.
- 何登发, 2007. 不整合面的结构与油气聚集. 石油勘探与开发, 34(2): 142-149.
- 柳少波, 顾家裕, 1997. 流体包裹体成分研究方法及其在油气研究中的应用. 石油勘探与开发, 24(3): 29-33.
- 吕海涛, 张卫彪, 张达景, 等, 2008. 塔里木盆地塔河油田奥陶系油气成藏演化过程研究. 石油实验地质, 30(6): 547-551.
- 吕修祥, 周新源, 李建交, 等, 2007. 塔里木盆地塔北隆起碳酸盐岩油气成藏特点. 地质学报, 81(8): 1057-1064.
- 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.