中国科学: 地球科学 2013 年 第 43 卷 第 11 期: 1819 ~ 1827
www.scichina.com earth.scichina.com
《中国科学》杂志社
SCIENCE CHINA PRESS

论 文

川东北长兴-飞仙关组原油裂解型气藏成藏史分析

刘岩[①②], 钟宁宁[①*], 陈践发[①], 田永晶[①③], 齐雯[①④], 唐友军[①⑤]

① 中国石油大学油气资源与探测国家重点实验室, 北京 102249;
② 中国石油大港油田勘探开发研究院, 天津 300280;
③ 中国石化华东石油分公司勘探开发研究院, 南京 210036;
④ 中国石油勘探开发研究院西北分院, 兰州 730020;
⑤ 长江大学地球化学系, 荆州 434023
* 联系人, E-mail: rocklauyem@163.com

收稿日期: 2012-11-24; 接受日期: 2013-05-06; 网络版发表日期: 2013-10-30
国家自然科学基金项目(批准号: 40472076)和国家重点基础研究发展计划(编号: 2006CB202303)资助

摘要 采用储层流体包裹体、固体沥青有机岩石学与 ^{13}C-NMR(CP/MAS)谱分析, 结合盆地模拟技术, 对川东北普光地区油气成藏历史进行了分析. 根据固体沥青包裹体特征、储层固体沥青双反射和高芳碳率特征, 证实了川东北长兴-飞仙关组储层固体沥青的为高演化阶段的原油裂解形成的焦沥青, 天然气具有原油裂解成因. 通过单井热史、生烃史的盆地模拟, 结合流体包裹体均一化温度及构造演化历史分析, 本人认为川东北飞仙关组天然气藏经历了三期的油气充注过程: 第一期油气充注发生于 185~180 Ma 的早侏罗世中晚期, 主要是下志留统烃源岩的大量生烃, 对应包裹体均一化温度在 80~110℃, 代表了燕山早期阶段初始油藏的形成过程; 第二期油气充注在 165~138 Ma, 代表了燕山中期快速沉降阶段二叠系烃源岩大量生油阶段的油气充注过程, 对应充注温度在 120~155℃; 第三期油气充注发生在 110~65 Ma, 主要代表了储层原油裂解生气过程, 对应充注温度 160~210℃. 喜马拉雅期的调整改造造就了现今气田的分布面貌.

关键词
充注期次
原油裂解生气
流体包裹体
固体沥青
长兴-飞仙关组
川东北

天然气聚集成藏是各种地质条件演化的最终结果(刘德汉等, 2009). 与原油相比, 天然气分子小, 组成相对简单, 丧失了大部分的烃类早期充注与进入储集层后的各种演变信息(戴金星等, 1992). 而储集层中存在的沥青和矿物包裹体记录了油气藏形成、演化的很多共同特征(刘德汉等, 2004), 记录了大量油气产生后所经历的各种地质与地球化学作用, 可提供大量的有关油气来源与成藏历史的证据或有益信息(王铜山等, 2008).

流体包裹体形成后一般没有与外界进行物质交换, 而记录了地质过程中成矿流体的各种物理化学信息(如温度、压力、pH、Eh、化学组成、矿化度、同位素组成和热力学特征等), 经常被当作成矿"流体化石"样品, 来研究成矿相关地质作用(张文淮和陈紫英, 1993; 卢焕章等, 2004). 20 世纪 90 年代以来广泛应用于石油地质领域, 在研究储层各类成岩矿物的形成温度、时间, 并推断流体的成因(刘德汉等, 2004, 2007; 赵靖舟等, 2002); 推测油气运移通道和古油水

中文引用格式: 刘岩, 钟宁宁, 陈践发, 等. 川东北长兴-飞仙关组原油裂解型气藏成藏史分析. 中国科学: 地球科学, 2013, 43: 1819–1827
英文引用格式: Liu Y, Zhong N N, Chen J F, et al. Accumulation history of the Changxing-Feixianguan oil cracked gas reservoirs in northeastern Sichuan (in Chinese). Scientia Sinica Terrae, 2013, 43: 1819–1827

界面(George 等, 1997; Liu 和 Eadington, 2005; 王飞宇等, 2004); 研究古地温, 重建热演化史, 并估算成熟度(王飞宇等, 2004; Tobin 和 Claxton, 2000); 与储层埋藏史和热演化史相结合, 研究烃类的运聚时间和充注期次等油气成藏年代学信息(Eadington 等, 1991; 王飞宇等, 2002; 肖贤明等, 2002), 包裹体成分和介质条件研究来确定成藏过程中烃类组分、相态和介质环境信息等(George 等, 1997; Karlsen 等, 1993)方面获得广泛应用.

固体沥青往往与天然气具有成因上的密切联系(刘德汉等, 2009; 王铜山等, 2008; 李艳霞和钟宁宁, 2007; 徐国盛等, 2007), 其赋存状态、显微结构、组成特征和有机组分等有机岩石学与有机地球化学特征, 蕴含着大量的油气成藏演化相关信息, 可以为气藏的成藏作用和成因判识提供重要的科学依据(刘德汉等, 2009; 王铜山等, 2008; 肖贤明等, 2000). 固体沥青反射率也常被用做成熟度指标(Jacob, 1985; 丰国秀和陈盛吉, 1988; 刘德汉等, 1994, 2009; 徐国盛等, 2007)、来判断油气成因并追索油气来源(杨家静等, 2002; 王一刚等, 2002; 朱光有等, 2004; 李艳霞和钟宁宁, 2007; 张水昌等, 2007)、恢复古油水界面并判断油气成藏期(George 等, 1997; 王飞宇等, 2006; 邹华耀等, 2008)、天然气的再生来源及原油裂解气资源评价等等(赵文智等, 2005, 2008, 2011; 刘文汇等, 2007; 王铜山等, 2007).

本文通过对川东北地区长兴-飞仙关组储层流体包裹体分析, 从包裹体产状、相态和均一化温度等方面的测试和鉴定, 利用储层固体沥青有机岩石学分析及储层固体沥青 ^{13}C-NMR(CP/MAS)谱特征分析天然气的成因, 并结合盆地模拟技术, 重建本区长兴-飞仙关组油气藏的成藏演化过程.

1 地质背景

四川盆地是一个在前震旦系变质岩基底上沉积了巨厚震旦纪至中三叠世海相碳酸盐岩和晚三叠世至始新世陆相碎屑岩的大型叠合盆地, 面积逾 19×10^4 km^2. 研究区位于川东北高陡构造带, 本区飞仙关组目前勘探面积约 3750 km^2, 主要集中在北西向大巴山前缘褶皱带、北东东向的温泉井构造带以及北北东向的黄金口构造带之间(图 1). 1995 年以来, 该区飞仙关组勘探取得了重大进展, 相继发现了渡口河、铁山坡、罗家寨、滚子坪和普光等一批大中型气田, 截至 2005 年底天然气累计探明储量达 3000×10^8 m^3 以上(马永生等, 2007). 尤其是普光气田等一批大中型气田的发现, 显示出作为川东石炭系接替

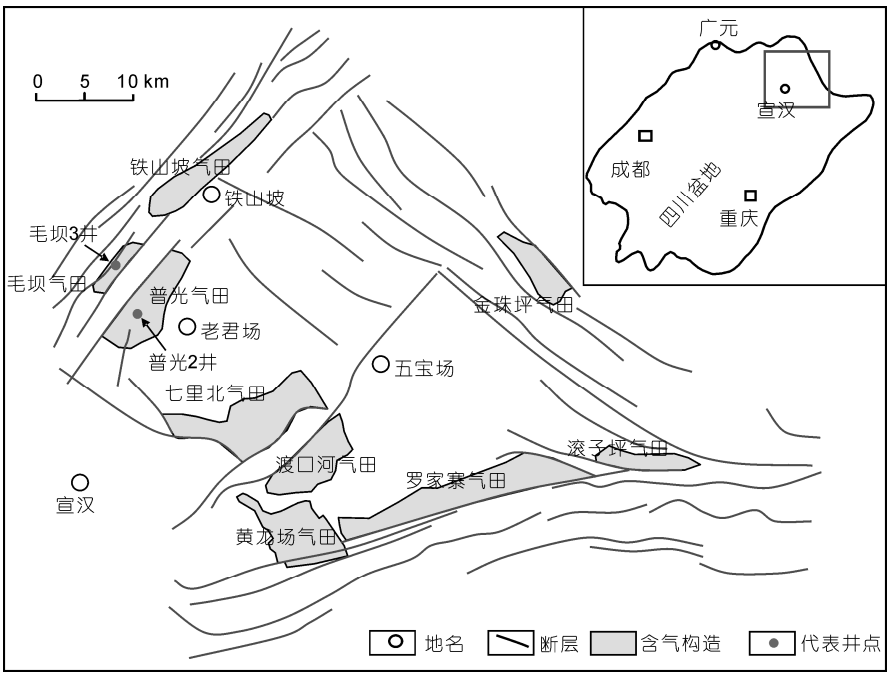

图 1 研究区位置示意图

层系的飞仙关组具有良好的勘探前景.

川东北地区海相组合主要发育下寒武统、下志留统龙马溪组和上二叠统龙潭组三套高丰度优质烃源岩(朱光有等, 2006), 具备形成大中型气田的物质基础. 气源对比结果表明, 本区飞仙关组天然气主要来源于上二叠统龙潭组煤系源岩和下志留统龙马溪组泥页岩(朱光有等, 2004, 2006; 张水昌等, 2007).

2 技术方法

包裹体分析方面, 研究了川东北普光气田和毛坝气田 5 口井长兴-飞仙关组储层白云岩和灰岩样品 23 块. 重点选择了方解石脉、孔洞充填方解石和白云石, 磨制成双面抛光包裹体薄片. 实验仪器采用 Leica DMR XP 偏光/荧光显微镜和 Linkam THM600 冷、热台组成测温系统, 测定误差为±0.1℃. 实验流程为, 首先在 Leica DMR XP 偏光和荧光显微镜下, 采用透射光和荧光显微镜相对照的方法, 区分含烃包裹体与盐水包裹体, 再以冷冻-回温法识别均相与非均相捕获流体包裹体, 选取与烃类包裹体相伴生的盐水包裹体或含烃盐水包裹体进行测试. 对选定的气液两相或三相包裹体在镜下进行气液比(G/L)的估测, 在冷热台上加热升温, 至气泡刚好消失时的温度为均一化温度(Th), 经过压力校正即可得到捕获温度. 盐度测量时首先将包裹体样品液氮条件下冷却至过冷却状态, 使包裹体完全冻结, 然后加热至冰晶完全融化, 冰晶完全消失时的温度即为冰点温度(Tm).

同时本文采集 3 口井岩芯、岩屑样品 142 块, 储层固体沥青样品(含薄片)69 样, 进行有机岩石学分析及镜质体反射率与固体沥青反射率测定. 镜质体反射率采用德国 Leitz MPV-3 型显微光度计, 分析方法依据 SY/T-5124-1995《沉积岩中镜质组反射率测定方法》标准进行测定.

^{13}C-NMR(CP/MAS)谱实验在北京化工大学进行, 采用 BRUKER-AV300 超导核磁共振波谱仪(瑞士). ^{13}C-NMR(CP/MAS)采用 300 MHZ 高磁场, 工作频率为 75.476 MHz, 转速为 9.5 KHz, 交叉极化时间为 3 ms, 循环延迟 5 s, 数据采集 4096 点, 测试温度为室温, 偶极相移时间 t 为 0 μs. 实验样品为粉末状 150 μm 以下, 样品量为 100~300 mg, 实验样品均采用锌粒和浓盐酸进行处理, 祛除磁性矿物.

地层沉积-埋藏史、热演化生烃史采用法国 IFP 的 GENEX 单井模拟软件进行模拟.

3 讨论与结果

3.1 储层流体包裹体特征

3.1.1 储层流体包裹体类型及特征

川东北长兴-飞仙关组储层发育有流体包裹体, 主要赋存于灰色粉晶-泥晶白云岩、灰质白云岩、鲕粒灰岩/云岩、泥晶灰岩裂缝中次生方解石脉、白云岩晶体、方解石脉微裂纹、溶蚀孔、缝中的方解石、石膏充填物中. 镜下观察与显微测温结果表明, 川东北普光地区长兴-飞仙关组储层捕获有 5 种不同类型的有机流体包裹体: (1) 含烃盐水包裹体; (2) 单一气态烃包裹体; (3) 单一液态烃包裹体; (4) 含沥青包裹体; (5) 三相包裹体. 其中有机流体包裹体以含可溶烃盐水两相包裹体、富气态烃盐水两相包裹体及单一天然气相包裹体为主, 亦可见少量的固体沥青包裹体.

(1) 含烃盐水包裹体. 此类包裹体最多, 约占包裹体总数的 30%~40%, 多呈串珠状分布于方解石晶间, 石膏晶间, 大多数包裹体个体较小(<5 μm), 一般介于 3~10 μm, 可见四边形、方形、菱形、圆形椭圆形及不规则状, 气液比在 1%~10%, 包裹体壁较厚, 常呈褐色-浅褐色, 可见到单个包裹体从中心到边缘依次为气态烃相-液态烃相-盐水相. 荧光下可见到液态烃相呈蓝白色或淡黄色荧光, 气态烃和盐水相不发荧光(图 2(a), (b)和(f)).

(2) 单一气态烃包裹体. 单一气相包裹体在本区较为常见, 是仅次于含烃盐水包裹体的一类包裹体, 约占总数的 25%~35%. 此类包裹体与含烃盐水包裹体分布相类似, 在透射光照射下由于气体分子对光的散射作用而呈现黑色, 荧光下发微弱白色荧光(图 2(c)).

(3) 单一液态烃包裹体. 单一液态烃包裹体发育较少, 常与方解石脉和黑色固体沥青脉相伴生, 多呈串珠状, 沿方解石晶间或解理缝分布, 大小在 1~10 μm, 呈正方形、菱形、圆形、椭圆形到不规则状, 透射光下呈褐色-黑褐色-黑色, 多数无荧光, 少数包裹体荧光下发弱蓝白色荧光, 常与固体沥青包裹体相伴生(图 2(d)和(e)).

(4) 含沥青包裹体. 此类包裹体分布较为不均, 并与固体沥青含量具有一定的相关性, 发现固体沥青包裹体的样品沥青含量往往较高, 通常 7%~15%,

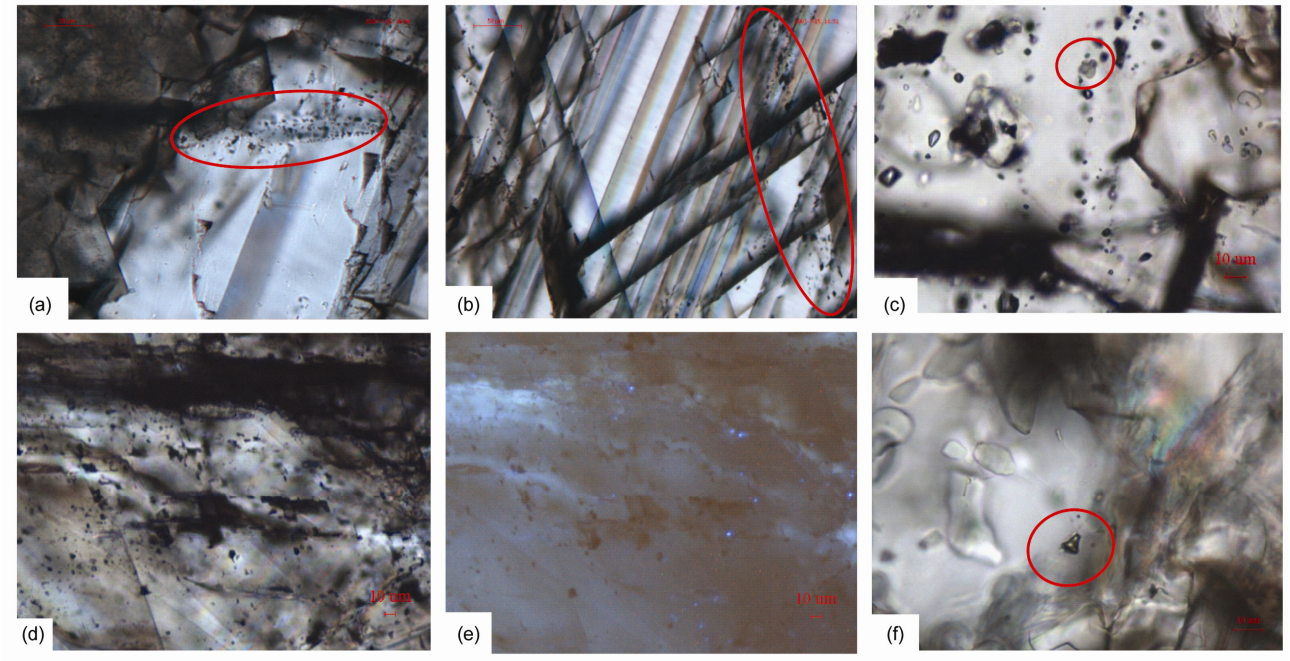

图 2　川东北长兴-飞仙关组储层流体包裹体显微照片

(a) 溶孔方解石中含烃盐水包裹体, 普光 2 井, T_1f^2; (b) 鲕粒溶孔白云岩方解石晶间含烃盐水包裹体, 普光 2 井, T_1f^2; (c) 方解石脉中气态烃包裹体, 普光 5 井, P_2ch; (d) 方解石晶间液态烃包裹体与沥青包裹体, 普光 5 井, P_2ch;(e) 方解石脉中液态烃包裹体与沥青包裹体, 荧光(视域同(d)), 普光 5 井, P_2ch; (f) 方解石脉中含烃包裹体与三相包裹体, 毛坝 3 井, T_1f^4

高可达 30%; 呈群体散布在白云石晶间或者裂隙中, 并与液态烃相包裹体和单一气态烃相包裹体相伴生, 大小为 3~15 μm, 最大可达 20 μm 以上, 形状为不规则形状为主, 也可见四不规则四边形和椭圆形, 包体壁厚且呈黑色的固体包裹体, 透射光下呈褐色-黑色, 反射光下呈灰白色-亮白色. 从储层温度演化历史可以看出, 长兴-飞仙关组储层温度经历过超过 200℃以上的高温, 因此, 这些包裹体及单一气态烃包裹体可能是油裂解后形成的. 含沥青包裹体的存在证实了先期捕获的油包裹体在高温下发生了裂解或泄漏(图 2(c)~(e)).

(5) 三相包裹体. 此类包裹体数量较少, 且仅有部分样品可见, 多属非均相捕获包裹体, 常分布于粗晶方解石中, 并与沥青脉和液态烃相包裹体伴生, 呈串珠状分布于方解石晶间, 大小约为 5~10 μm, 形态多样, 多呈四边形、圆形和椭圆形, 常呈棕色, 无荧光(图 2(f)).

3.1.2　流体包裹体均一化温度

本区含烃盐水包裹体与盐水包裹体、纯气相包裹体、沥青包裹体共存, 而沥青包裹体推测为含油包裹体裂解后的产物. 由于在整个生烃演化各个阶段均有天然气的生成, 储层中发生油气充注活动时, 油包裹体与含烃盐水包裹体可能而且应该是同时被捕获. 因此, 可用含烃盐水包裹体均一化温度来表示油气充注时的温度. 在测试过程中发现一些均一化温度达到甚至远超过 200℃的盐水包裹体, 降温至−100℃仍未结冰, 主要存在于方解石微裂缝中, 认为是非均相捕获包裹体, 在分析油气充注期次时将其剔除.

考虑到不同深度样品所受热史差异会对充注期次造成的影响, 本文仅选用普光构造带长兴-飞仙关组获得有效测试值的 13 个样品结果进行分析. 样品深度范围在 4775.9~4934.9 m, 共测得含烃盐水包裹体均一化温度有效值 78 个. 从包裹体均一化温度测试分析发现(图 3), 普光构造带长兴-飞仙关组储层含烃盐水包裹体均一化温度可明显的分成三期: 第一期包裹体主要存在于白云石晶体中, 均一化温度 87.5℃, 本期包裹体可测温的较少, 推测原因可能是由于储层经历过 200℃以上高温, 早期形成的包裹体大部分被破坏掉了; 第二期包裹体主要存在于方解

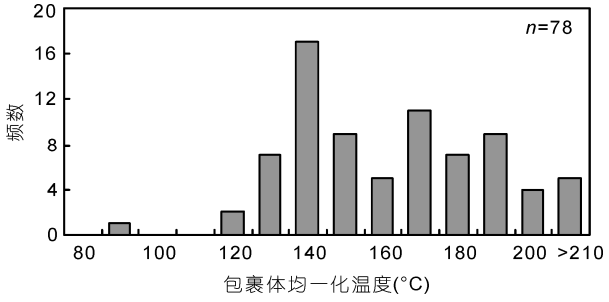

图 3　普光构造带飞仙关组储层流体包裹体均一化温度分布直方图

石脉和白云石晶体中, 均一温度范围 118.3~155.3℃, 平均 137.0℃; 第三期包裹体主要存在于方解石脉和白云石晶体中, 均一温度范围 160.1~206.3℃, 平均 183.5℃.

3.2　储层固体沥青有机岩石学特征

3.2.1　储层固体沥青有机岩石学特征

储层固体沥青成因复杂, 其中有相当部分固体沥青是烃类生成与演化的产物, 可以提供大量油气成因与来源的地球化学信息. 热演化成因沥青与生物降解沥青和沉淀沥青质有明显的不同, 如沥青形态、光学显微结构、成熟度等(Hwang 等, 1998; Huc 等, 2000; 肖贤明等, 2002; 刘德汉等, 2009; 王铜山等, 2008). 热演化成因沥青(焦沥青、碳沥青)是由各向同性的原油受到高温裂解-催化作用过程中形成的一些具有各向异性的光性小球体变形, 逐步向片状非均质结构转化形成的, 往往表现出一些特殊的光性结构与光学现象, 如边缘清晰的多角状、失去荧光性、强烈的光学各向异性、双反射现象、微粒镶嵌结构或"中间相焦沥青"结构等等(刘德汉等, 1994, 2009; 王铜山等, 2008). 当沥青反射率>1.5%后, 沥青开始呈现出明显的反射率各向异性, 而且不同光性结构沥青反射率存在明显差异(付小东等, 2009). 因此, 理论上沥青反射率可以作为地层热成熟度指标, 但因其化学结构与组成与镜质体具有一定的差异, 需要建立其反射率值与镜质体反射率之间的相关关系. Jacob(1985)提出了将固体沥青反射率(BR_o)换算为等效镜质体反率(EqVR_o)的经验公式(EqVR_o=0.618BR_o+0.4). 国内外学者也曾对此做过进一步深入的研究, 并提出了一系列的公式(丰国秀和陈盛吉, 1988; 刘德汉和史继扬, 1994; 钟宁宁和秦勇, 1995; 肖贤明等, 1995). 但总体来看, 基本上是按照 Jacob 公式的形式, 对其系数进行了微调, 这也说明了 Jacob 公式的适用性. 为了便于和国际上进行对比, 本文后续部分中涉及固体沥青的反射率值全部根据 Jacob 公式计算得到的等效镜质体反射率(EqVR_o).

川东北长兴-飞仙关组储层普遍含有沥青. 本区长兴-飞仙关组储层固体沥青产出形态多样, 主要存在于碳酸盐岩溶蚀孔、洞(图 4(a))、裂缝、以及晶间孔、粒间孔内(图 4(c)~(e)), 呈黑色固态物质产出, 具有边缘清晰的多角状特征(图 4(b)). 显微镜下观察表明, 普光构造带长兴-飞仙关组气藏中主要存在于鲕晶间和粒间孔隙中, 在长兴组中主要充填在溶洞(孔)内; 而毛坝构造带气藏中大量沥青存在于裂缝里. 现今这些沥青近乎不溶, 用二氯甲烷浸泡萃取的可溶抽提物极少. 普光构造带长兴-飞仙关组储层中固体沥青在显微镜下呈浸染状、块状、粒状及片状镶嵌结构, 沿裂隙分布(图 4(c)和(d)), 无荧光性, 具有较高的反射率和强烈的各向异性(图 4(f)), 双反射率 ΔR_o 最高可达 2.67%. 本区固体沥青等效 R_o 也在 1.02%~4.62%, 大部分在 1.50%~3.00%(图 5). 在长兴-飞仙关组主力储层段沥青反射率比围岩镜质体反射率分布范围更宽, 上下波动范围超过 0.50%, 尤其是高值可明显比围岩高约 1%(图 5), 这种 R_o 测量值的离散应是固体沥青强烈的各向异性造成的. 根据镜质体反射率表征有机质热演化的原理和方法, 最大反射率更能反映有机质热演化过程的化学成分与结构演化, 长兴-飞仙关组地层真实的热演化程度应该更接近于沥青的最大反射率. 从实测储层固体沥青反射率及其换算的等效 R_o 来看, 长兴-飞仙关组地层已达到过成熟演化阶段.

3.2.2　储层固体沥青 ^{13}C NMR(CP/MAS)特征

同干酪根热降解生气过程一样, 原油裂解生气也是一个歧化反应, 在生成大量小分子天然气的同时, 产生具有高聚合度的固体沥青. 在固体沥青的结构组成中, 稠环化合物结构组成具有特殊的稳定性, 拥有较强的抗氧化、抗演化能力. 随着演化程度的增大, 固体沥青会表现出环化、芳香化程度会不断的增加, 脂碳含量不断降低的演化趋势. 固体沥青的 ^{13}C NMR(CP/MAS)谱也可发现, 固体沥青已经基本完全的芳构化(图 6), 芳碳率 *fa* 全在 0.95 以上, 是高演化阶段的产物, 已经完全丧失了生烃能力. 据前人研究,

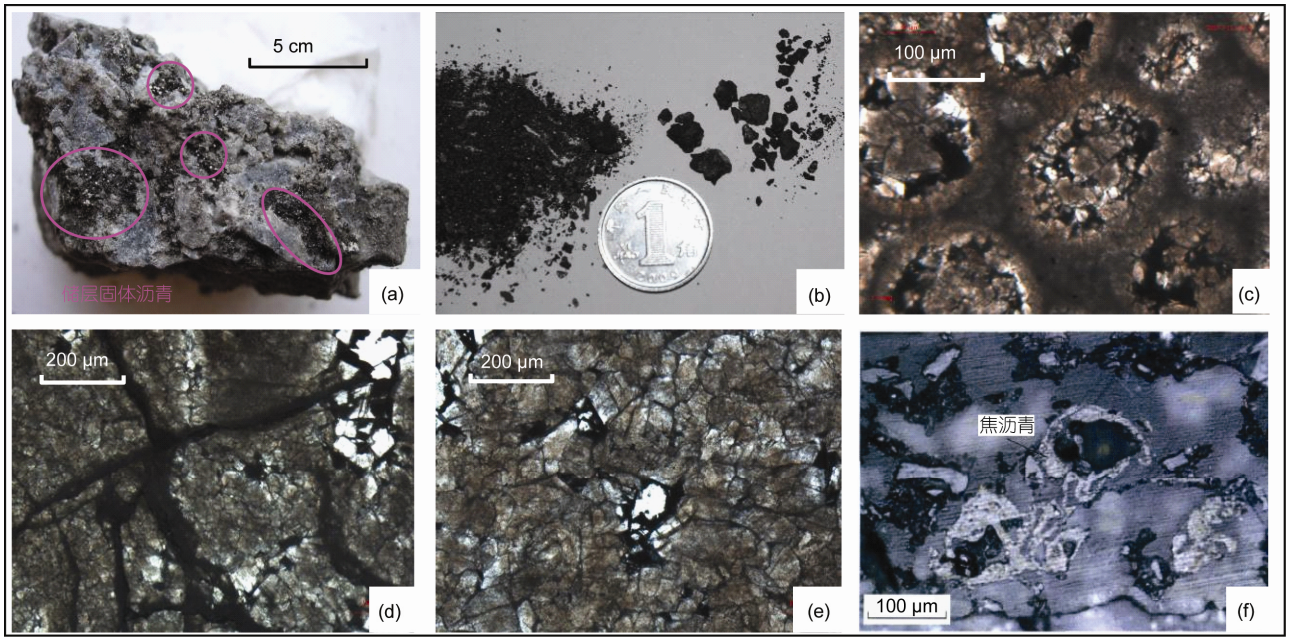

图 4　川东北长兴-飞仙关组储层固体沥青赋存状态与光学特征

(a) 普光 2 井, T_1f^3; (b) 普光 2 井, P_2ch, 5304 m; (c) 普光 2 井, T_1f^2, 4934.9 m; (d) 毛坝 3 井, P_2ch, 4347 m ; (e) 毛坝 3 井, P_2ch, 4344.5 m; (f) 普光气田. 引自刘德汉等(2009)

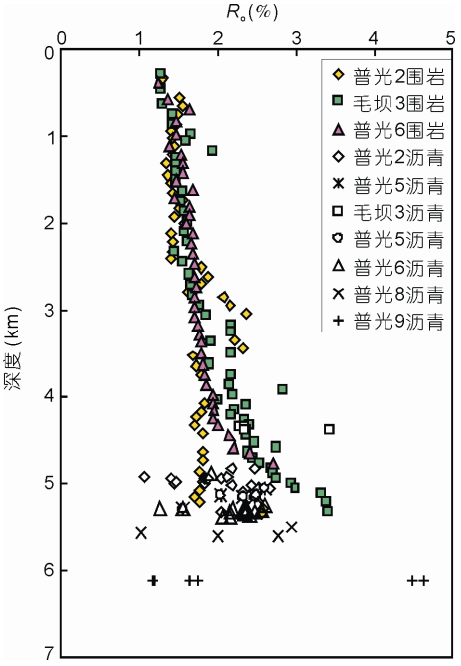

图 5　川东北普光构造带固体沥青反射率与深度关系

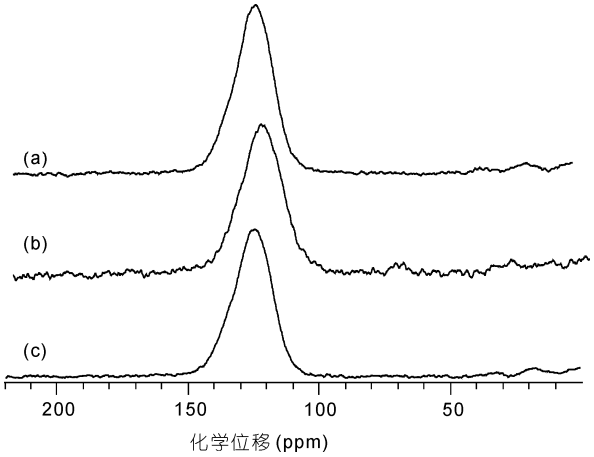

图 6 普光构造带储层固体沥青 ^{13}C NMR (CP/MAS)谱图

(a) 普光 2 井, 残余鲕粒白云岩中固体沥青, T_1f^4; (b) 普光 5 井, 溶孔白云岩中固体沥青, T_1f; (c) 普光 6 井, 溶孔白云岩中固体沥青, T_1f^1

原油发生裂解的温度一般在 160℃以上(Waples, 2000), 而长兴-飞仙关组储层经历过 200℃以上高温演化, 完全有可能发生原油裂解而生成此类固体沥青.

因此, 从固体沥青的赋存状态、荧光性、光学显微结构、反射率特征、不可抽提性及 ^{13}C NMR (CP/MAS)谱特征来看, 川东北长兴-飞仙关组固体沥青是古油藏原油经高温裂解作用的产物, 属于后生-储层沥青, 在成因上为焦沥青类, 前人关于沥青高演化程度的结论(王一刚等, 1996. 谢增业等, 2004)也与

本文观点相一致.

3.3　油气充注期次与成藏历史重建

根据本区钻井地质分层数据, 结合本区不整合面剥蚀数据(杜春国等, 2006), 同时参考前人热史演化成果(卢庆治等, 2005; 邱楠生等, 2008), 利用 Genex 单井盆地模拟软件模拟计算了本区的埋藏史与热史(图 7). 在热史基础上利用目前最常用的 Easy%R_o 模型(Sweeney 和 Burnham, 1990)计算成熟度史. 从模拟结果来看, 实测 R_o 数据(包括固体沥青折算等效 R_o)与模拟计算 Easy%R_o 相关性良好(图 8), 表明了模拟结果是可靠的. 从储层固体沥青的演化及供烃能力评价(钟宁宁等, 2010; 赵喆等, 2006), 结合储层流体包裹体测温结果就可以恢复本区油气充注历史与重建油气成藏过程(图 7). 可以看出, 本区存在着三期明显的油气充注过程: 第一期油气充注发生在早侏罗世中晚期(约 185~180 Ma). 燕山运动使得在盆地内部形成宽缓背斜, 由于排烃过程中的富有机酸流体溶蚀, 形成前期埋藏溶蚀孔, 使得部分鲕粒岩成为有利孔隙性储层(马永生等, 2005). 从烃源岩生烃史和包裹体测温结果分析可知, 本期油气充注主要为下志留统烃源岩生油高峰期生成油气及上二叠统烃源岩早期生成的油, 此阶段下三叠统地层温度约为 80~110℃. 第二期油气充注发生在晚侏罗世到早白垩世早期(约 165~138 Ma). 燕山中期持续的沉降、深埋过程, 使得上二叠统烃源灶开始发育, 并大规模的供给油气, 本期油气充注代表着二叠系烃源岩, 特别是上二叠统烃源岩生油高峰时对应的油气充注过程. 第三期油气充注发生在中、晚白垩世(约 110~70 Ma). 这时志留系烃源岩 R_o 已达 3%以上, 已经不具备生气能力, 二叠系烃源岩 R_o 也基本达到了 2%, 干酪根热裂解生气能力已经非常有限. 而飞仙关组储层本身温度已经超过 160℃, 储层中原油已经开始大规模裂解. 在飞仙关组储层温度演化历史模拟结果基础上, 采用典型海相原油裂解动力学参数(E=59 kcal mol^{-1}, σ=1.5 kcal mol^{-1}, A=1.78×10^{14}S^{-1}) (Waples, 2000), 对飞仙关组原油热裂解程度进行了定量计算. 计算结果表明, 飞仙关组储集层原油热裂

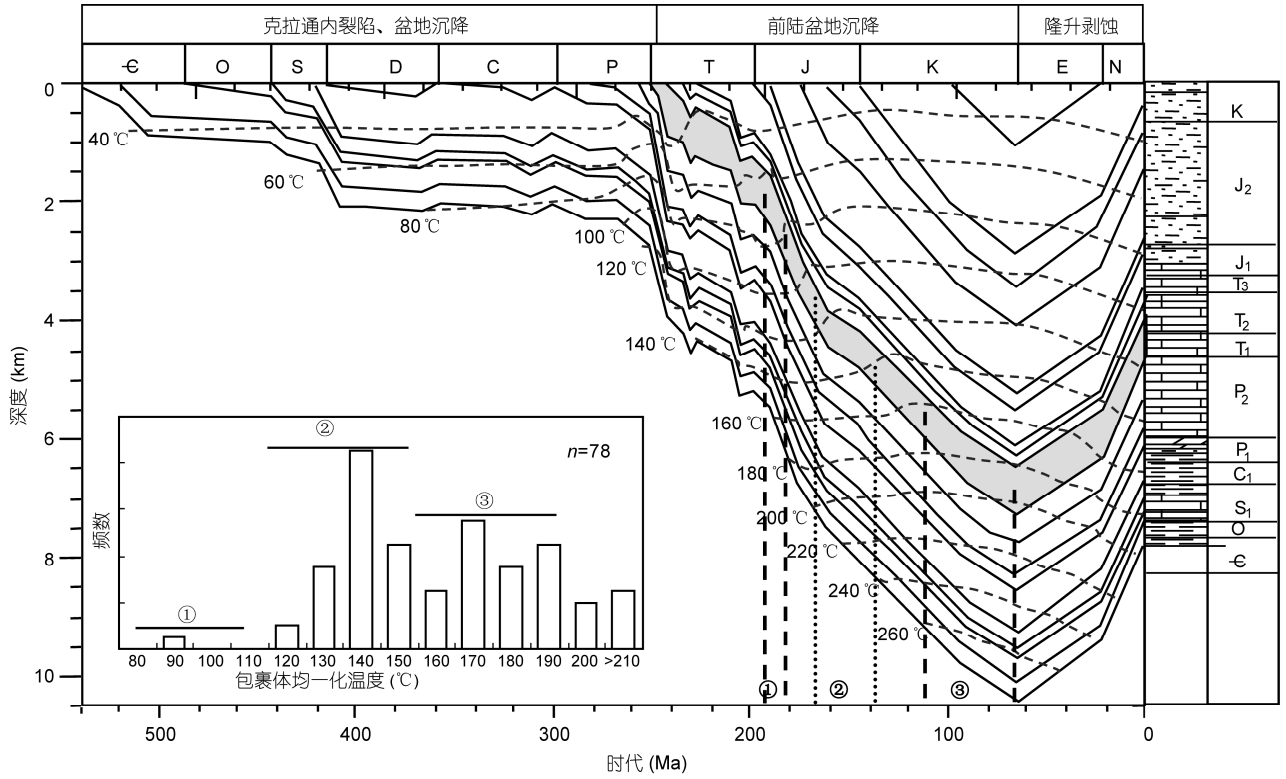

图 7　普光构造带沉积埋藏史-热史模拟及油气成藏期次划分

以普光 2 井为例

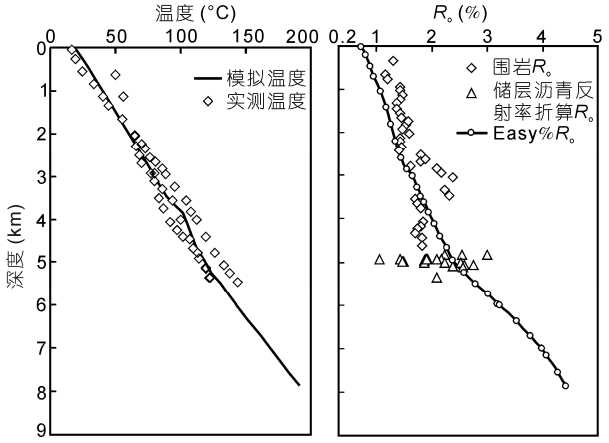

图 8　普光构造带热史模拟与实测数据对比图

以普光 2 井为例

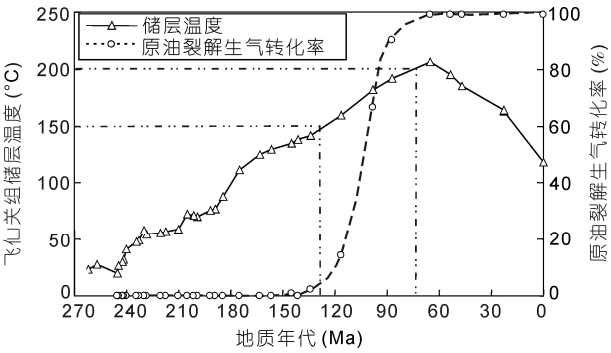

图 9　飞仙关组储层温度史与原油裂解转化率对应关系图

解的温度及时间与本期流体包裹体测温所代表的油气充注温度与时间相一致(图 9). 因此, 本期的油气充注过程代表了飞仙关组原油的裂解成气过程. 喜马拉雅期的强烈隆升对原有的气藏进行强烈的调整改造, 造就了现今油气田的分布面貌.

4　结论

川东北长兴-飞仙关组天然气藏中广泛存在固体沥青, 根据固体沥青的高反射率、明显的双反射特征、强烈的各向异性及高芳碳率的核磁共振 ^{13}C NMR(CP/MAS)谱特征, 确认了固体沥青为热蚀变成因, 是古油藏原油裂解产物.

长兴-飞仙关组储层流体包裹体类型多样, 但极少发现单一液相油包裹体, 并发现大量的固体沥青包裹体, 应该是早期捕获油包裹体在后期埋藏过程中受热裂解, 残余部分形成固体沥青包裹体.

根据地质背景和储层固体沥青特征, 采用盆地模拟技术, 结合流体包裹体分析及均一化温度分布特征, 重建了本区的油气成藏历史. 可明显的分为三期油气充注过程: 第一期在早侏罗世中晚期(185~180 Ma), 对应早燕山期下志留统烃源岩的主供油期, 油气充注温度约为 80~110℃, 形成初始的油藏; 第二期对应晚侏罗世到早白垩世(165~138 Ma), 代表着二叠系烃源岩生油高峰时对应的油气充注过程, 油气充注温度约为 120~155℃, 大量油气充注形成大型古油藏; 第三期充注发生晚燕山期(110~65 Ma), 对应油气充注温度约为 160~210℃, 代表了晚期长兴-飞仙关组储层原油裂解过程, 古油藏发生裂解, 形成大量的天然气. 喜马拉雅期的调整改造造就了现今油气田的分布面貌.

致谢　审稿专家对本文初稿提出诸多有益建议和修改意见, 法国 Beicip-Franlab 公司提供 Genex™ 盆地模拟软件, 在此一并表示衷心的感谢.

参考文献

戴金星, 裴锡古, 戚厚发. 1992. 中国天然气地质学. 北京: 石油工业出版社. 225–235
杜春国, 郝芳, 张树林, 等. 2006. 川东北宣汉-达县地区地层剥蚀厚度恢复. 煤田地质与勘探, 34: 1–5
丰国秀, 陈盛吉. 1988. 岩石中沥青反射率与镜质体反射率之间的关系. 天然气工业, 8: 20–25
付小东, 秦建中, 腾格尔, 等. 2009. 固体沥青——反演油气成藏及改造过程的重要标志. 天然气地球科学, 20: 167–173
李艳霞, 钟宁宁. 2007. 川东石炭系气藏中固体沥青形成机理探讨. 石油实验地质, 29: 401–403
刘德汉, 史继扬. 1994. 高演化碳酸盐烃源岩非常规评价方法探讨. 石油勘探与开发, 21: 113–115
刘德汉, 付金华, 郑聪斌, 等. 2004. 鄂尔多斯盆地奥陶系海相碳酸盐岩生烃性能与中部长庆气田气源成因研究. 地质学报, 78: 542–550
刘德汉, 卢焕章, 肖贤明. 2007. 油气包裹体及其在石油勘探和开发中的应用. 广州: 广东科技出版社. 1–135
刘德汉, 肖贤明, 田辉, 等. 2009. 应用流体包裹体和沥青特征判别天然气的成因. 石油勘探与开发, 36: 375–382
刘文汇, 张建勇, 范明, 等. 2007. 叠合盆地天然气的重要来源——分散可溶有机质. 石油实验地质, 29: 1–6

卢焕章, 范宏瑞, 沈昆, 等. 2004. 流体包裹体. 北京: 北京科学技术出版社. 3–46
卢庆治, 胡圣标, 郭彤楼, 等. 2005. 川东北地区异常高压形成的地温场背景. 地球物理学报, 48: 1110–1116
马永生, 傅强, 郭彤楼, 等. 2005. 川东北地区普光气田长兴-飞仙关气藏成藏模式与成藏过程. 石油实验地质, 27: 455–461
马永生, 蔡勋育, 郭彤楼. 2007. 四川盆地普光大型气田油气充注与富集成藏的主控因素. 科学通报, 52: 149–155
邱楠生, 秦建中, Brent I A M, 等. 2008. 川东北地区构造-热演化探讨——来自(U-Th)/He 年龄和 Ro 的约束. 高校地质学报, 14: 223–230
王飞宇, 金之钧, 吕修祥, 等. 2002. 含油气盆地成藏期分析理论和新方法. 地球科学进展, 17: 755–760
王飞宇, 张水昌, 梁狄刚. 2004. 塔中 4 油田油气水界面的变迁与成藏期. 新疆石油地质, 25: 560–562
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: 12–18
王铜山, 耿安松, 熊永强, 等. 2007. 海相原油裂解生气实验产物的物质平衡计算: 一个基于储层固体沥青分析的原油裂解气资源量预测模型. 科学通报, 52: 1–7
王铜山, 耿安松, 孙永革. 2008. 川东北飞仙关组储层固体沥青地球化学特征及其气源指示意义. 沉积学报, 26: 340–346
王一刚, 刘志坚, 文应初. 1996. 川东石炭系储层有机包裹体、储层沥青与烃类运聚关系. 沉积学报, 14: 77–83
王一刚, 窦立荣, 文应初, 等. 2002. 四川盆地东北部三叠系飞仙关组高含硫气藏 H_2S 成因研究. 地球化学, 31: 1–7
肖贤明, 吴治君, 刘德汉, 等. 1995. 早古生代海相烃源岩成熟度的有机岩石学评价方法. 科学通报, 13: 112–119
肖贤明, 刘德汉, 傅家谟, 等. 2000. 应用沥青反射率推算油气生成与运移的地质时间. 科学通报, 45: 2123–2127
肖贤明, 刘祖发, 刘德汉, 等. 2002. 应用储层流体包裹体信息研究天然气气藏的成藏时间. 科学通报, 47: 957–960
谢增业, 魏国齐, 李剑, 等. 2004. 川东北飞仙关组鲕滩储层沥青与天然气成藏过程. 天然气工业, 24: 17–19
徐国盛, 袁海峰, 马永生. 2007. 川中-川东南地区震旦系-下古生界沥青来源及成烃演化. 地质学报, 81: 1143–1151
杨家静, 王一刚, 王兰生, 等. 2002. 四川盆地东部长兴组-飞仙关组气藏地球化学特征及气源探讨. 沉积学报, 20: 349–352
张水昌, 朱光有, 陈建平, 等. 2007. 四川盆地川东北部飞仙关组高含硫化氢大型气田群气源探讨. 科学通报, 52: 86–94
张文淮, 陈紫英. 1993. 流体包裹体地质学. 武汉: 中国地质大学出版社. 4–16
赵靖舟. 2002. 油气包裹体在成藏年代学研究中的应用实例分析. 地质地球化学, 30: 83–88
赵文智, 王兆云, 张水昌, 等. 2005. 有机质“接力成气”模式的提出及其在勘探中的意义. 石油勘探与开发, 32: 1–7
赵文智, 王兆云, 张水昌, 等. 2007. 不同地质环境下原油裂解生气条件. 中国科学 D 辑: 地球科学, 37(增刊Ⅱ): 63–68
赵文智, 王兆云, 王红军, 等. 2011. 再论有机质“接力成气”的内涵与意义. 石油勘探与开发, 38: 129–135
赵喆, 钟宁宁, 李艳霞. 2006. 天然气成藏过程的充注效率研究——以川东石炭系为例. 天然气工业, 26: 68–71
钟宁宁, 秦勇. 1995. 碳酸盐岩有机岩石学——显微组分特征、成因、演化及其与油气关系. 北京: 科学出版社. 45–115
钟宁宁, 赵喆, 李艳霞, 等. 2010. 论南方海相层系有效供烃能力的主要控制因素. 地质学报, 84: 149–158
朱光有, 张水昌, 李剑, 等. 2004. 中国高含硫化氢天然气的形成及其分布. 石油勘探与开发, 31: 18–21
朱光有, 张水昌, 梁英波, 等. 2006. 四川盆地天然气特征及其气源. 地学前缘, 13: 234–248
邹华耀, 郝芳, 李平平, 等. 2008. 叠合盆地油气富集/贫化机理的思考. 高校地质学报, 14: 231–236
Eadingon P J, Hamilton P J, Bai G P. 1991. Fluid history analysis-A new concept for prospect evaluation. APEA J, 31: 202–294
George S C, Krieger F W, Eadington P J, et al. 1997. Geochemical comparison of oil-bearing fluid inclusions trapped in quartz grains and live oil from the Tom Sandstone, Papua New Guinea. Org Geochem, 26: 155–173
Huc A Y, Nederlof P, Debarrc R, et al. 2000. Pyrobitumen occurrences and formation in a Cambro-Ordovician sandstone reservoir, Fahud Salt Basin, North Oman. Chem Geol, 168: 99–112
Hwang R J, Teerman S C, Carlson R M. 1998. Geochemical comparison of reservoir solid bitumens with diverse origins. Org Geochem, 29: 505–517
Jacob H. 1985. Disperse solid bitumens as an indicator for migration and maturity in prospecting for oil and gas. Erdol Kohle-Erdgas, 38: 365
Karlsen D A, Nedkvitne T, Larter S R, et al. 1993. Hydrocarbon composition of antigenic inclusions: Application to elucidation of petroleum reservoir filling history. Geochim Cosmochim Acta, 57: 3641–3659
Liu K Y, Eadington P J. 2005. Quantitative fluorescence techniques for detecting residual oils and reconstructing hydrocarbon charge history. Org Geochem, 36: 1023–1036
Sweeney J J, Burnham A K. 1990. Evaluation of a sample method of vitrinite reflectance based on chemical kinetics. AAPG Bull, 74: 1559–1570
Tobin R C , Claxton B L. 2000. Multidisciplinary thermal maturity studies using vitrinite reflectance and fluid inclusion microthermometry: A new calibration of old techniques. AAPG Bull, 84: 1647–1665
Waples D W. 2000. The Kinetics of in-reservoir oil destruction and gas formation: Constrains from experimental and empirical data, and from thermodynamics. Org Geochem, 31: 553–576
Zhao W Z, Wang Z Y, Zhang S C, et al. 2008. Cracking conditions of crude oil under different geological environments. Sci China Ser D: Earth Sci, 51: 77–83