

文章编号 :1000-0550(2001)01-0060-06

塔中地区志留系烃类侵位对成岩作用的影响^①

蔡春芳^{1,3} 顾家裕² 蔡洪美³

(中国科学院地质与地球物理研究所 北京 100029)

① 石油勘探开发研究院 北京 100083) ③ 江汉石油学院 湖北荆州 434102)

摘 要 塔中地区志留系具有较广的沥青分布,为研究烃类侵位对矿物成岩作用的影响提供了良好的实例。通过岩矿观察,并综合油田水化学、氢氧锶同位素和流体包裹体均一化温度等资料,提出该区志留系烃类侵位后因淡水注入而使烃类被氧化,所产生的有机酸促进了钾长石、石英等矿物的溶解,导致了次生孔隙的发育,并为石英次生加大提供所必需的 Si 的来源。Si 的质量转移可能是因浓度梯度而引起的扩散作用进行的。烃类侵位还使成岩介质还原性增强,使得胶结物富含还原的 2 价铁,但未能阻滞石英的次生加大。

关键词 烃类侵位 石英的次生加大 淡水注入 塔中地区

第一作者简介 蔡春芳 男 1966 出生 博士 副教授 储层地质与地球化学

中图分类号 TE122.2 P588.2 文献标识码 A

1 研究现状与地质背景

含烃储层成岩作用已有较长的研究历史,要么将含烃储层的成岩作用和孔隙演化与不含烃储层等同看待,要么认为无机成岩作用随烃类侵位而终止^[1]。八十年代中期以来的研究表明,烃类注入到油藏中以后,不仅改变了原流体的性质,而且,烃类本身是一弱还原剂,有可能直接或间接地参与矿物的成岩作用之中,从而导致储层孔隙度、渗透率和原油物性的变化^[2-7]。因而成为了国内外活跃的研究领域。目前国际上主要集中于以下几方面的研究:

(1) 与含油饱和度变化有关的问题

- ① 烃类侵位能否阻滞石英次生加大;
- ② 烃类侵位是否抑制了伊利石生长和粘土矿物的转化;
- ③ 烃类侵位对矿物生长速率的影响;
- ④ 限定油气侵位的时间;

(2) 与储层烃类弱还原性有关的问题

- ⑤ 烃类侵位对矿物稳定性或溶解度的影响;
- ⑥ 烃类能否生成羧酸及其产生的机理;
- ⑦ 含烃储层的“漂白”作用;
- ⑧ 烃类氧化—微生物硫酸盐还原(BSR)和/或热化学硫酸盐还原(TSR)

其中,有关烃类侵位能否阻滞石英次生加大作用,存在较大的争议。Saigal 等^[2]以北海中部 Fulmar 储层

砂岩为例,主要通过研究流体包裹体的均一化温度,发现石油侵位后,石英胶结作用仍可发生,但是油饱和带中加大石英和钠长石化的长石含量低于含水带的储层。石英的加大和钾长石的钠长石化的作用速率减弱。Nedkvitne 等^[3]对北海 Ula 油田储层进行了流体包裹体的微地温测量,并分析了包体中烃类的色谱,认为尽管尚不能确定油藏的含油饱和度和矿物的反应速率,然而,他们观察到,石油注入以后成岩作用仍在继续。Bjørlykke 等^[4]进一步推论石英加大作用可在饱和油、完全封闭的体系中发生, Si 可来自石英的压溶作用。Franks^[5]则指出在灌满原油的岩心柱子的模拟实验研究结果已表明,石英加大作用不再发生。国内这类成果报道^[5]较少。本文拟基于对塔中地区志留系砂岩薄片、扫描电镜观察、有机包裹体测温资料,分析烃类侵位后,储层成岩作用的变化。

塔中地区志留系已进行过储层沥青成因^{[8]③}、沉积相和油气成藏期分析,被认为是陆表海碎屑潮坪相沉积^[9]、具有三期油气注入^[10]。这为本项研究提供了基础。按岩性,志留系可分为上砂岩段、红泥岩段和下砂岩段。其中下砂岩段具有稳定的沥青分布、局部具有工业性重油流产出。砂岩中石英含量介于 40% ~ 85%,岩屑和云母含量为 10% ~ 50%,长石含量多低于 10%,最高可达 13%。主要为岩屑砂岩、岩屑质石英砂岩,成分成熟度较低。下砂岩段上部砂岩含碳酸盐岩岩屑,是近源、气候较干旱环境下形成的。

① 国家自然科学基金(批准号:49773198)和中国石油天然气集团公司中青年创新基金联合资助项目

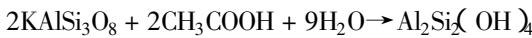
② Franks S D. 碎屑岩储层评价(江汉石油学院讲座材料). 1996

③ 刘洛夫等. 塔里木盆地志留系沥青砂岩成因及作为烃源岩的可能性(国家科技攻关 96-111-01-03-04 阶段报告. 1997

2 成岩作用

志留系上部泥岩呈棕色、棕褐色,多缺乏高岭石。而下部高岭石分布较广、含量也较高。这与下砂岩段砂岩中粘土矿物含量变化是一致的。而绿泥石含量则随埋深而降低,伊利石和伊/蒙混层没有明显的变化。一般认为,形成高岭石要求介质呈弱酸性。赵杏媛等^①将盆地内不同层系有机酸测试数据^[7]与砂岩中高岭石的含量作了相关研究,发现富含有机酸的层段高岭石含量高,被认为与其沉积环境潮湿、水介质呈弱酸性有关。成岩介质条件可很大程度受沉积环境的影响。据此可认为,志留纪由早至晚,古气候由潮湿向干旱、由酸性向碱性过渡,含盐度由低变高。砂岩中伊/蒙间层中蒙脱石多占 30%,可低至 25%。地层测试地温 107~130℃,已进入了晚成岩 A₂ 阶段。

TZ11 井碎屑矿物和自生矿物含量变化显示,碎屑钾长石含量低处对应于高的高岭石或加大石英含量。油田水中还检测出了甲酸、乙酸、丙酸,总量最高值为 338 mg/L,实测油田水的 pH 以 5.5~6.5 为主,具备了弱酸性这一条件。岩石薄片常见长石溶解(图版 I-1)岩屑选择性溶解。颗粒被溶后只残余粘土膜。扫描电镜下,常见书页状的高岭石,石英次生加大可达 III 级。这些特征表明,钾长石已向高岭石发生了转化。

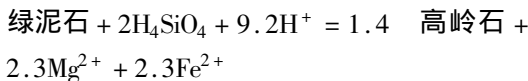


(高岭石) + 2K⁺ + 4H₄SiO₄

另一成岩反应是斜长石的钠长石化作用。扫描电镜下,可观察到上砂岩段砂岩中自生的钠长石充填于次生孔隙的空间中,充填后仍有剩余孔隙。反应式中需要 Na⁺ 的补给,要求成岩介质呈弱碱性—碱性。反应式:



而随埋深的增大,砂岩中降低的绿泥石含量可能与其已向高岭石转化有关。反应式:



该反应为白云石沉淀提供了所必需的 Mg²⁺ 的来源。Fe²⁺ 可以铁方解石、铁白云石、黄铁矿的形式沉淀下来。但是,胶结物中所富含的 Fe²⁺ 应主要来自褐铁矿的“漂白”作用。岩心观察发现,沥青砂岩多呈灰色、深灰色、甚至黑色。而上砂岩段及下砂岩段上部不含沥青的砂岩为棕褐色、富含褐铁矿包壳,两者之间是突变的,说明沥青砂岩已被“漂白”,使得三价铁被还原。

还常见早期形成的方解石被溶解,晚期碳酸盐胶结物晶形完好。碎屑石英和早期形成的加大边被溶解

了(图版 I-2)。

薄片中心沥青的分布特征是,在相对粗粒的砂岩颗粒表面具有沥青的薄膜(图版 I-3),颗粒的边缘具有明显的溶蚀现象,面孔率高,次生孔隙与固体沥青空间分布紧密相关,说明次生孔隙的产生是在油膜包裹颗粒之后。

与沥青伴生的是普遍发育石英的次生加大边。可见加大边与颗粒之间具有沥青,加大边发育在沥青膜

表 1 塔中北斜坡志留系砂岩石英加大边中的有机包裹体分布及均一温度(据塔指,1996)

Table 1 Distribution of organic inclusions in sandstones and their homogenization temperatures

井深/m	油气包裹体分布	均一温度
塔中 11	未见	
4 314.0	未见	
4 409.4	未见	
4 419.2		62, 64, 65, 63.5
4 423.7		72, 74, 103
4 428.6		62, 66, 68
4 433		125, 135, 188, > 200
4 447.5		67, 69, > 150
4 461.8	未见	
塔中 12		
4 387.6		76, 82, 138, > 150
4 400.6		72, 76, 125, 195, > 200
4 409.6		59.5, 64, 65, 70, 115, > 150

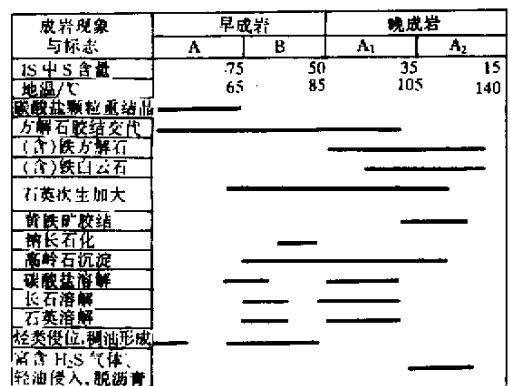


图 1 塔中志留系成岩序列

Fig. 1 Diagenetic sequence of Silurian sandstone in Central Tarim

较薄之处(图版 I-3)。而无加大部分,沥青膜较厚。有机包裹体均一温度分析显示,较浅的层段如 TZ11 井埋深低于 4 417 m,未见任何油气包裹体。说明烃类侵

① 赵杏媛等,塔里木盆地粘土矿物特征及应用(内部报告),1996

位和早期蚀变应比石英的加大作用略早些。而在相对细粒的砂岩中稠油或沥青分布于孔隙中央(图版 I-4) 颗粒表面未见沥青包壳, 油气注入的地温相当于有机包裹体均一化温度 59.5 ~ 82°C(表 1)。稠油或沥青是第三期注入的富含气体的轻质油气洗的产物。经改造后而呈明显的双峰。第三期油气注入的地温相当于有机包裹体均一化温度 103 ~ 125°C, 与目前的井底温度接近, 油气是喜山期注入的^[9]。根据以上石英中有机包裹体均一化温度及石英次生加大达 III 级, 可以

认为石英的加大作用持续至今, 没被油气的侵位所阻滞。志留系主要的成岩序列归纳如图 1 所示。

3 水化学和⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 证据

Br 被认为是相对守恒的元素, Br 与 Ca、Mg、Sr、Cl、CF(CF = Ca + Mg + Sr - SO₄ - HCO₃, 毫克当量/升)(表 2)的关系被用来反映相对于海水蒸发曲线的化学演化趋势^[11]。与 Cl 关系显示, 油田水投点紧邻

表 2 志留系油田水的常量元素、微量元素、 δD 、 $\delta^{18}O$ 和⁸⁷Sr/⁸⁶Sr

Table 2 Concentrations of major, trace elements, δD , $\delta^{18}O$ and⁸⁷Sr/⁸⁶Sr of oilfield waters from Silurian reservoir

井号	深度	$\delta^{18}O$	δD	⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	SiO ₂	Br	K	Sr	Na	Mg	Ca	有机酸	Cl
TZ11	4301 - 4307	-2.28	-32.0	0.71150			261	340	22472	617	340		46085
TZ11	4357 - 4370						540	203	21450	154	3512		39172
TZ11	4417 - 4435	-4.85	-30.3	0.71183	23.15	219	395	58	24008	308	4276	338	46431
TZ11	4440 - 4450	-4.40	-31.6		17.87	154	441	270	25162	555	4479	12	48159
TZ11	4462 - 4479	-4.75	-27.8	0.71145	5.00	53	683	21	22369	432	3767	265	48504
TZ12	4330 - 4343	-4.55	-34.6	0.71072									
TZ12	4374 - 4392						73	7	28465	2469	9366		66247
TZ12	4410 - 4414	-4.90	-40.5	0.71101					30665	1420	9617		67399
TZ14	4475 - 4750	-4.89	-35.1		5.20	280	785	442	39874	432	10791	158	81225
TZ16	4125 - 4129			0.71044			202	15					
TZ161	4178 - 4181	-10.10	-50.7	0.71111	20.00	68	653	385	28403	1320	48092		130785
TZ23	4770 - 4780	-4.05	-34.3	0.71057			236	6					6399
TZ30	4117 - 4127	-0.86	-33.0	0.71161			600	274	30360	309	7330		60371
TZ35	4946 - 4951	-2.22	-41.3	0.71258	26.56	73	392	240	21853	859	6357		46900

注 δD , $\delta^{18}O$ 的单位为‰(SMOW); ⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 无量纲, 其它为 mg/L。有机酸为甲酸 + 乙酸 + 丙酸, 用毛细管等束电泳仪分析

海水蒸发曲线分布(仅一点例外), 表明其形成于暴露蒸发作用。而相对富集 CF 表明矿物的溶解作用对水化学影响甚大。而导致油田水相对富集 Ca、Sr、K 而贫 Mg, 可能系钾长石溶解、方解石白云化和斜长石的钠长石化解的产物。油田水⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 测量值介于 0.71044 ~ 0.71258(表 2), 远高于志留纪海水, 表明水-岩反应对油田水化学影响甚大。从岩性上分析, 砂岩仅含 Sr 20×10^{-6} ^①, 单一的由砂岩中矿物的溶解不足以提供油田水中所检测到的 442×10^{-6} 的 Sr 浓度。溶滤实验结果^[12]表明, 对⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 为 0.75472 的页岩, 用两种不同的浸出试剂进行实验, 浸出物⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 为 0.71229 和 0.71178。而 TZ11 和 TZ12 井砂岩全岩的测量值为 0.71481 和 0.71263, 油田水中高的⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 不大可能完全来自砂岩。泥页岩中平均含 Sr 450×10^{-6} , 因⁸⁷Rb 的衰变而使之相对富含⁸⁷Sr。因而可以认为毗邻的泥页岩对油田水高的⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 比值具有一定

的贡献。

矿物的⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 比值上看, 云母⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 值大于 0.80, 钾长石、伊利石⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 分别大于 0.730 和 0.710; 而斜长石⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 小于 0.710^[13]。在海水中沉淀下来的硬石膏、方解石、白云石, 其⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 也低于 0.710^[13, 14]。由此可见, 钾长石、伊利石、云母这些矿物的溶解或蚀变导致油田水⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 比值增大。然而云母含量低, 未见伊利石被溶解或交代现象, 且在剖面上也未见其含量具有相应的变化。储层油田水中增高的⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 比值只能由泥页岩和砂岩中钾长石提供。

综上所述, 油田水化学和⁸⁷Sr/⁸⁶Sr 比值指示砂岩中发生了钾长石溶解、方解石白云石化和斜长石的钠长石化作用。

① 顾家裕等, 1995. 塔里木盆地岩相古地理与沉积发展史研究(85-101 研究成果报告)

4 石油侵位未能阻止石英次生加大的机理分析

如果原油侵位后储层的含油饱和度很高,成岩体系与外界完全隔绝,没有与外界进行离子交换,化学平衡不易被打破。在这种情形下,石英的次生加大作用将很弱或根本就不发生,因为 Si 只能由石英颗粒间的压溶作用提供。研究区未见明显的压溶现象,却具有普遍的石英加大现象,只能归因于储层含油饱和度低。水湿石英表面 SiO_2 的沉淀后而产生的浓度梯度导致了扩散作用的发生。扩散作用可源源不断地从油层以外的水体中迁移来 Si,使得次生加大持续进行。油田水 δD — $\delta^{18}\text{O}$ 关系可说明储层受过淡水淋滤,因而降低了含油饱和度。

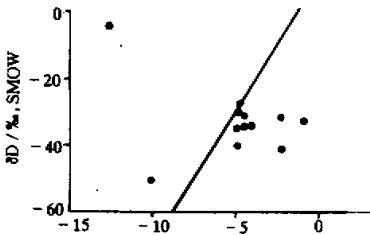


图 2 油田水 δD 、 $\delta^{18}\text{O}$ 关系(图上横坐标的轴名)

Fig. 2 Relationship between δD and $\delta^{18}\text{O}$ of oilfield water

已研究表明^[11]塔中石炭系油田水为海水蒸发残余与淡水混合的产物。志留系具有类似的成因。除三水样投点于淡水线上或上方外,其它数据点将分布在雨水线的右方,且大体上具有向淡水线下倾的趋势。考虑到志留纪古海水 $\delta^{18}\text{O}$ 可能比现代的标准海水低约 5.5‰ (SMOW)^[6],那么全球的雨水线将向左平移,除 TZ161 井外,其它数据点将分布在雨水线的右方,且大体上具有向淡水线下倾的趋势(图 2),并与之相交,表明仍曾与淡水混合过。其演化途径应是,沉积封存水(海水)暴露蒸发使 δD 和 $\delta^{18}\text{O}$ 都增大,之后出现一拐点^[6],并都降低到一定程度后,因与大气水或地表水混合,使得 δD 和 $\delta^{18}\text{O}$ 降低。而许多数据点分布并不具备很好的线性回归关系,应是显著的氧同位素漂移的结果,是水—岩相互作用的产物。这些水—岩相互作用既可来自表生成岩作用,也可来自深埋成岩条件下不稳定矿物向稳定矿物转化。而从 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比值分析,泥页岩成岩作用所提供的地层水对储层砂岩具有重要的影响。

综上所述,油田水的演化历程是沉积封存的海水暴露蒸发后,遭受到了淡水的淋滤作用。淡水注入而

携带的喜氧细菌使得最早侵位到储层砂岩中的原油发生生物降解,产生有机酸,促使了石英和钾长石等矿物发生溶解,提供了加大作用所需的 SiO_2 ,并导致次生孔隙的发育和沥青沉淀。原油侵位后,成岩环境仍具有 SiO_2 的补给,因而未能阻止石英的次生加大作用。

参 考 文 献

- Howseknacht D W. Assessing the relative importance of compaction processes and cementation to reduction of porosity in sandstones[J]. AAPG Bull., 1987, 71(6): 633 ~ 642
- Saigal G C, Bjørlykke K and Larter S. The effects of oil emplacement on diagenetic processes—Examples from the Fulmar reservoir sandstones, Central North Sea[J]. AAPG. Bull., 1992, 76(7): 1 024 ~ 1 032
- Nedkvitne T, Karlsen D A, Bjørlykke K *et al.* Relationship between reservoir diagenetic evolution and petroleum emplacement in the Ula Field, North Sea [J]. Marine and Petroleum Geology, 1993, 10: 255 ~ 270
- Bjørlykke K, Aagaard P, Egeberg P K *et al.* Geochemical constraints from formation water analyses from the North Sea and the Gulf Coast Basins on quartz, feldspar and illite precipitation in reservoir rocks[A]. In: Cubitt J M, England W A, eds. The Geochemistry of Reservoirs[C]. Geological Society Special Publication, No. 86, 1994. 33 ~ 50
- 王琪,史基安,肖力新等.石油侵位对碎屑储集岩成岩作用序列的影响及其与孔隙演化的关系——以塔西南石炭系石英砂岩为例[J].沉积学报, 1998, 16(3): 97 ~ 101
- 蔡春芳,梅博文,马亭等.塔里木盆地不整合面附近成岩改造体系烃—水—岩相互作用[J].科学通报, 1995, 40(24): 1 253 ~ 1 256
- 蔡春芳,梅博文,马亭等.塔里木盆地流体—岩石相互作用研究[M].北京:地质出版社, 1997. 1 ~ 155
- 蔡春芳,张敏,徐中一等.塔里木盆地储层沥青成因探讨[A].见:有机地球化学研究进展[C].江汉石油学院地球化学研究中心,重庆:重庆大学出版社, 1996. 14 ~ 20
- 侯会军,王伟华,朱筱敏.塔里木盆地塔中地区志留系沉积相模式探讨[J].沉积学报, 1997, 15(3): 41 ~ 47
- 肖中尧,张水昌,赵孟军等.简析塔中斜坡 A 井志留系油气藏成藏期[J].沉积学报, 1997, 15(2): 150 ~ 153
- 蔡春芳,梅博文,马亭等.塔里木盆地油田水的成因和演化[J].地质论评, 1997, 43(6): 650 ~ 657
- Stueber A L, Purhkar P, Hetherington E A. A strontium isotopic study of formation waters from the Illinois basin, U. S. A[J]. Applied Geochemistry, 1987, 2: 477 ~ 494
- Faure G. Principles of Isotope Geology (2nd Edn) [M]. New York: John Wiley & Sons, Inc., 1986. 1 ~ 589
- Stueber A, Purhkar P, Hetherington E A. A strontium isotopic study of Smackover brines and associated solids, southern Arkansas[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1984, 48, 1: 637 ~ 1 649
- Connolly C, Walter L M, Baadsgaard H, *et al.* Origin and evolution of formation waters, Alberta Basin, Western Canada Sedimentary Basin. II. Isotope systematics and water mixing[J]. Applied Geochemistry, 1990, 5: 397 ~ 413
- Knauth L P, Beeunas M A. Isotope geochemistry of fluid inclusions in Permian halite with implications for the isotopic history of ocean water and origin of saline formation waters[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1986, 50: 419 ~ 433

Effect of Hydrocarbon Emplacement on Diagenesis of Silurian Sandstone of Central Tarim Basin

CAI Chun-fang^{1,3} GU Jia-yu² CAI Hong-mei³

(Institute of Geology and Geophysics, CAS, Beijing 100029)

(Petroleum Exploration and Development Institute, CNPC, Beijing 100083) (Jiangnan Petroleum Institute, Jingzhou, Hubei 434102)

Abstract

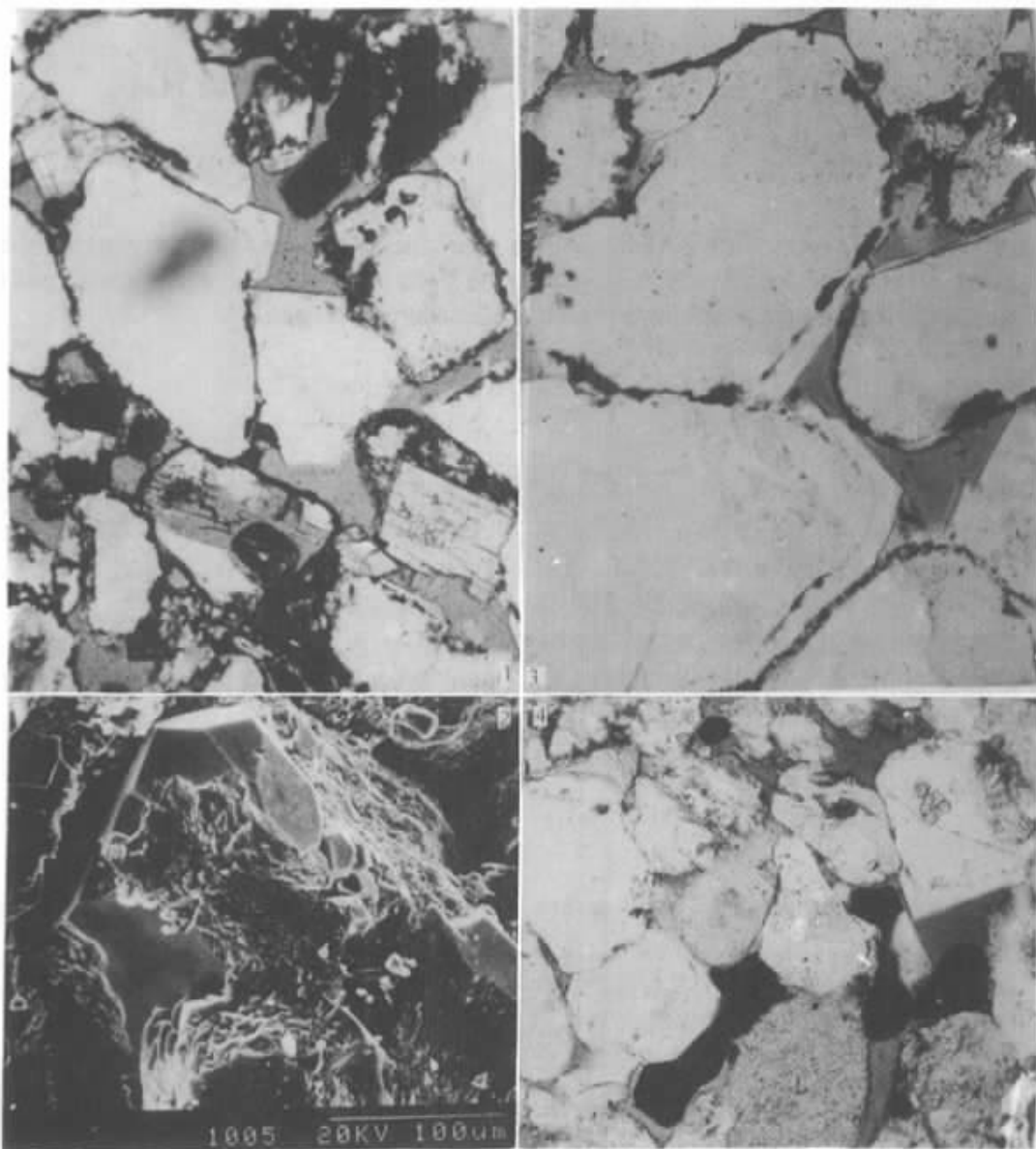
Silurian bitumen-bearing sandstones in Central Tarim are shown to be a good case to study influence of hydrocarbon emplacement on diagenesis. We have carried it out by means of observation of thin sections, SEM of sandstones in conjunction with analysis of water chemistry, organic acid anions and δD , $\delta^{18}O$, $^{87}Sr/^{86}Sr$ of oilfield water and homogenization temperatures of fluid inclusions of the sandstones.

It can be found that quartz secondary overgrowth coexists with reservoir bitumen. Bitumen may occur between quartz overgrowth and grains in coarser sandstones or occlude in the centre of pore in finer sandstones. Homogenization temperatures of organic inclusions are divided into 2 groups: $59.5 \sim 82^{\circ}C$ and $103 \sim 125^{\circ}C$, suggestive of at least 2 phases of oil emplacement. The latter is close to the present temperatures of the bore hole bottom, indicating that the late oil and gas emplacement took place in the late Yanshan to early Himalaya Orogeny and quartz overgrowth is not inhibited by oil emplacement and cementation continued to present day.

Relationships between Br and Ca, Mg, Sr, Cl, CF (CF = Ca + Mg + Sr - SO₄ - HCO₃, meq/L) show that oilfield water is evolved by subaerial evaporation of seawater and subsequent mixing with meteoric water evidenced by relationship between δD and $\delta^{18}O$. Relative enrichment of Ca, Sr, K and depletion of Mg is explained to be a result of dissolution of K-feldspar, dolomitization of calcite and albitization of feldspar. $^{87}Sr/^{86}Sr$ of 14 water samples range from 0.71044 to 0.71258, much larger than Silurian seawater, indicating that Rb-enriched detrital minerals such as K-feldspar, mica and illite from sandstone or mudstone contribute significant amount of ^{87}Sr to oilfield waters.

It is proposed that organic acids and anions, hydrocarbons be generated by as a result of meteoric water influx after oil emplacement. Organic acids enhance dissolution of minerals such as K-feldspar, quartz, leading to generation of secondary porosity and supply additional Si necessary for quartz overgrowth. Si mass transport is through diffusion due to concentration difference as a result of Si precipitation on detrital quartz. And this is the reason why quartz overgrowth was not inhibited. And Fe II in authigenic minerals such as Fe-dolomite, Fe-calcite and pyrite is mainly derived from reduction of Fe₂O₃ due to low Eh resulting from hydrocarbon emplacement. It can be found that bitumen-bearing sandstone is grey, dark grey, even black in comparison with color brown in most non-bitumen-bearing sandstone, suggesting that the former was bleached.

Key words hydrocarbon emplacement quartz secondary overgrowth meteoric water influx central Tarim basin



图版 I 说明 1. 碎屑长石被溶, 而晚期碳酸盐矿物晶形完好. 铸体(单) $\times 10$, TZ11 S, 4 430.32 m 2. 早期加大石英被溶, TZ12 S (65/83), SEM 3. 沥青分布在石英颗粒与加大边之间, 石英颗粒边缘被溶. 铸体(单) $\times 10$, TZ11 S, 4 457.78 m 4. 沥青分布在孔隙中央, 无包壳沥青, 砂粒较细, 含绿泥石包体. 铸体(单) $\times 10$, TZ12 S, 4 151 m