

<http://www.geojournals.cn/georev/ch/index.aspx>

利用自生伊利石 K-Ar 定年分析 烃类进入储集层的时间

王飞宇 何 萍

(石油大学地球科学系, 北京)

张永昌 赵孟军

雷加锦

(石油勘探开发科学研究院地质所, 北京) (中国科学院地质研究所, 北京)

内容提要 烃类流体注入储层聚集成藏导致储层中自生矿物形成的抑制或中止, 成岩矿物同位素地质年代学分析提供了成岩矿物形成的准确时间, 成岩事件年代学研究可用于定量分析油气藏形成时间。砂岩储层中自生伊利石仅在流动的富钾孔隙水介质环境下才能形成, 烃类流体注入储层后伊利石形成便会中止, 因此, 烃类流体进入储层时间不可能早于自生伊利石的形成时间。利用 K-Ar 同位素地质年代学方法分析塔里木盆地塔中 4 区、塔北东河塘石炭系油藏和吉拉克三叠系凝析气藏 3 个砂岩储层的自生伊利石形成时间, 分别为 246—278Ma、24.3—31.8 Ma 和 44.3—49.2Ma, 反映前者第一期成藏时间为晚二叠世, 后两者的成藏时间在老第三纪。

关键词 自生伊利石 K-Ar 定年 油气藏形成期 砂岩储层 塔里木盆地

油气藏的形成是烃类流体从源岩到圈闭的运聚过程, 油气系统研究的目标则是为了揭示这一地质过程和历史, 油气藏形成时期分析是油气勘探评价的重要内容。我国多旋回复合含油气盆地存在多个油源区、多套烃源岩、烃源层的分区分期成熟, 具有多期油气生成, 多期油气成藏同时又遭受多期破坏的特点, 准确认识现今油气藏的形成时间对于勘探部署意义重大。目前我国主要根据生、储、盖、运、聚、保各项参数有效配置, 根据构造演化史、圈闭形成史与烃源岩生排烃史来大致确定油气成藏时间。利用自生矿物(主要是伊利石)同位素年代学分析烃类进入储集层的时间是国际上 80 年代后期逐步发展起来的新技术, 并成功地应用于分析北海油田等地区烃类成藏时间^[1-6], 但在国内尚未见报道。这一方法的学术思想与矿床学中利用自生和蚀变矿物同位素年代学确定矿化年龄相似, 其基本原理在于砂岩储集层中自生伊利石是烃类充填储集层前最晚形成的, 储层中自生伊利石仅在流动的富钾水介质环境中形成, 油气进入储层后伊利石形成过程便会停止^[3,4], 因此, 可用自生伊利石的年龄来判断储层中油气藏形成年龄。本文根据塔里木盆地塔北和塔中 3 个油气藏砂岩储层样品的分析结果, 讨论自生伊利石 K-Ar 定年分析烃类成藏时间的方法, 并展示了它在油气勘探评价中的重要意义。

1 样品

分析岩芯样品采自塔里木盆地塔中和塔北 3 个油气藏, 一是塔中 4 区 2 口井的石

注: 本研究得到国家自然科学基金(编号 49302028)和中国石油天然气总公司中青年创新基金的资助。
本文 1996 年 8 月收到, 1997 年 4 月改回, 郝梓国编辑。

炭系 C₁ 油组砂岩,包括了油层和水层,岩性主要为中细粒石英砂岩;二是塔北东河塘区 2 口井中的石炭系 C₁ 油组储油砂岩,其岩性为中细粒石英砂岩,石英含量达 85% 以上;三是塔北吉拉克区 1 口井三叠系凝析气藏的 T₁ 油组储气砂岩和含水砂岩,其岩性为粗粒—细粒岩屑石英砂岩。

2 实验方法

2.1 粘土矿物分离

岩芯经清洗后粗碎至约几个厘米级别,氯仿浸泡 24h 除去可溶烃类,砂岩中粘土矿物分离方法类似于文献[7]。沉降分离获得的粘土包括 <0.1, 0.1—0.5 和 0.5—1.0 μm 各组分。

2.2 仪器分析

每个粘土组分作 XRD 和 SEM 分析确定其矿物组成。利用原子发射光谱分析粘土组分中钾的含量。主要由伊利石组成的粘土组分 Ar 同位素分析在 MM-1200 质谱仪上进行。K-Ar 同位素定年的理论和方法见文献[8],伊利石 K-Ar 定年的适用性见文献[3—5]。本文采用 K-Ar 稀释法确定自生伊利石年龄,年龄计算方法为:

$$t = \frac{1}{\lambda} \ln \left(1 + \frac{\lambda}{\lambda_e} \frac{{}^{40}\text{Ar}^*}{{}^{40}\text{K}} \right)$$

其中 λ 为 ${}^{40}\text{K}$ 的总衰变常数 ($5.543 \times 10^{-10} \text{a}^{-1}$), λ_e 为 ${}^{40}\text{K}$ 衰变成 ${}^{40}\text{Ar}$ 的衰变常数 ($0.581 \times 10^{-10} \text{a}^{-1}$)。

3 结果和讨论

3.1 自生伊利石的分离提纯

自生伊利石 K-Ar 定年的准确性的关键在于样品的代表性,分析样品中的矿物是否为纯净的自生伊利石? 一般来说,成岩矿物和碎屑矿物大小不同,小于 2 μm 的组分中富集自生粘土矿物。表 1 列出根据 XRD 分析得到的不同粒级粘土样品的矿物组成,样品中不仅含有少量来源于碎屑成分的石英、长石,而且在粘土矿物组成上,以伊利石和伊利石/蒙脱石混层矿物为主,也包括了高岭石和绿泥石。样品中所含的少量碎屑成分主要来源于制样过程中碎屑颗粒进一步破碎,长石中钾含量较高,因此,碎屑矿物的存在对样品 K-Ar 测试结果有明显影响,具体表现为含长石和云母含量高的 K-Ar 年龄较老。分析数据中排除碎屑矿物的影响的途径有两方面:一是剔除碎屑矿物含量较高(>5%)的样品;二是建立 K-Ar 视年龄与样品中碎屑矿物(如长石)含量的相关关系,按这种关系外推至碎屑矿物含量为零时的 K-Ar 年龄为实际 K-Ar 年龄。Liewig 等^[9]针对北海侏罗系 Brent 砂岩储层建立 K-Ar 视年龄与钾长石/伊利石数量比值的相关关系,针对某一区域储层大量样品的分析可以建立类似的这种关系。在粘土矿物分离时采用冷冻-加热分离法(Freezing-heating disaggregation method),可防止碎屑矿物的混入。

伊利石和伊/蒙混层是所分析的粘土样品的主要组成矿物,在 SEM 下,伊利石一般呈卷曲片状和丝发状。分析的粘土样品中也存在不同数量的高岭石和绿泥岩,由于高岭石和绿泥石并不含 K,因此高岭石和绿泥石的存在对 K-Ar 年龄影响不大。表 1 和前人的工作^[3—5]均证明这一点。

值得指出的是,必须对分离获得的各个粒级的粘土样品进行 XRD 和 SEM 分析,了解其矿物成分组成和大小、分布,判断样品是否适合同位素年代学分析,是否存在其它含 K 和

Ar 矿物的污染。XRD 和 SEM 分析资料是伊利石同位素定年解释的基础。当样品存在过剩氩和大气氩污染时,通过等时线、年龄谱和坪年龄等方法处理,仍能获得可靠的年龄。

3.2 伊利石的 K-Ar 年龄和烃类成藏时间

砂岩储层成岩作用过程,特别是自生矿物形成,很大程度上是流动的孔隙水与岩石相互作用引起。成岩过程中自生伊利石的形成主要有两种方式,一是高岭石、蒙脱石和伊蒙混层粘土矿物伊利石化形成;二是地层水通过化学沉淀形成新生的丝发状伊利石。自生伊利石的形成总是与流动的富钾水介质条件有关,油气注入储层导致自生矿物形成的抑制(次生石英)和中止(自生伊利石、钾长石的钠长石化)^[10]。理论上,如果在自生伊利石形成阶段油气注入储层,随储层中油气饱和度的增加,自生伊利石形成便会中止。储层中自生伊利石形成于一定的成岩阶段或者多个成岩时期,即自生伊利石形成经历了较长的地质时间。一般来说,早期形成的伊利石粒径较大,晚期形成的粒径小,多呈丝发状,这使得伊利石 K-Ar 年龄与样品粒径大体存在着正相关关系。对于解释油气藏形成期比较有意义的是最小粒径($<0.1\mu\text{m}$)伊利石的同位素年龄,它反映的是最晚形成伊利石的地质时间。

储层流体介质性质的重大变化是导致自生伊利石形成中止的原因,但油气注入仅是使得储层流体介质性质发生变化的一个重要原因,自生伊利石生成中止未必就意味着烃类注入。以油气充注储层初始时间为界,自生伊利石形成的中止发生在油气充注储层过程之中,或发生在油气充注储层过程之前,后者自生伊利石形成的中止与油气成藏作用无关。无论何种情况,储层自生伊利石年龄均反映了油气充满储层的最早时间,形成油气藏后不可能再有自生伊利石形成,因此,伊利石同位素年龄给出了油气藏形成期的最大地质年龄。从国外油气盆地和笔者分析的国内实例成岩作用与油气成藏关系研究结果来看,一般来说油气成藏时间略滞后于伊利石同位素年龄或基本同步。

针对一个油气藏,正常情况下砂岩储层自生伊利石年龄油气层大于或等于水层,油气层自生伊利石年龄小于水层的情况较少见,后一种情况反映了其它流体控制伊利石形成,如热流体沿断裂向上运移进入储层,伊利石形成于油气注入储层之前^[7]。

3.3 塔北东河塘石炭系油藏和吉拉克三叠系凝析气藏

塔北东河塘石炭系油藏和吉拉克三叠系凝析气藏样品分析结果和数据列于表 1。东河塘石炭系 C₁ 油组油藏储油砂岩 $<0.1\mu\text{m}$ 伊利石 K-Ar 同位素年龄在 24.3—31.8Ma,反映成藏期在渐新世。吉拉克三叠系 T₁ 油组凝析气藏储气砂岩和含水砂岩不同粒径伊利石 K-Ar 年龄变化如图 1 所示,储气砂岩伊利石 K-Ar 年龄(44.3—49.2Ma)较含水砂岩 K-Ar 伊利

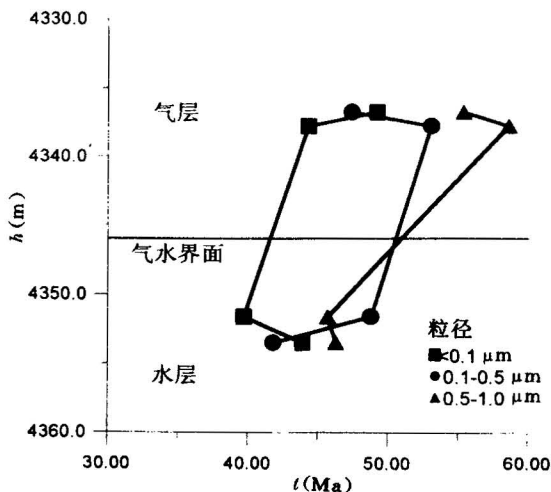


图 1 储气砂岩层和含水砂岩层自生伊利石 K-Ar 年龄的变化

Fig. 1 Variation in K-Ar age of illite with depth in sandstone reservoir from hydrocarbon zone to water zone

石年龄(39.7—43.9Ma)要大,这可能反映了在始新世气体注入储层后气水界面的降低,气水界面以上的储气砂岩自生伊利石形成已中止,而气水界面以下的含水砂岩伊利石形成仍持续了一段时间。这种气藏自上而下伊利石年龄的差异与西北欧格罗宁根气田二叠系赤底统砂岩储层情况相似,赤底统砂岩伊利石 K-Ar 年龄介于 119.3—151.4Ma 之间,推断天然气约在 150Ma 前开始充注储层,直至 120Ma 储层被气体充满,自生伊利石形成才被完全中止^[1,2]。

表 1 分析样品特征和 K-Ar 稀释法年龄数据

Table 1 Sample characteristics and K-Ar isotopic dilution age analytical data

地区	样品	粒径 (μm)	矿物组成 ^①				K (%)	⁴⁰ Ar* % ($\times 10^{-10}\text{mol/g}$)	年龄 (Ma)
			I	K	C	O			
东河塘区 石炭系 C ₁ 油组储油 砂岩	DH ₁ 井	1.0—0.5	90	—	10	—	6.45	3.156	28.2
		0.5—0.1	94	—	6	—	6.14	2.904	27.1
		<0.1	98	—	2	—	6.35	2.694	24.3
	DH ₂ 井	1.0—0.5	84	10	4	2	6.87	4.076	33.8
		0.5—0.1	90	10	0	0	6.92	4.254	35.1
		<0.1	95	5	0	0	7.48	4.173	31.8
吉拉克区 三叠系凝析 气藏的 T ₁ 油组储 气砂岩和 含水砂岩	J ₁₀₅₋₈ 4336.8m (气层)	1.0—0.5	—	—	—	6.55	6.40	55.4	
		0.5—0.1	78	17	0	5	5.88	5.54	47.4
		<0.1	85	15	0	0	6.05	5.24	49.2
	J ₁₀₅₋₉ 4337.8m (气层)	1.0—0.5	—	—	—	—	6.14	6.34	58.6
		0.5—0.1	75	20	0	5	6.28	5.87	53.1
		<0.1	80	20	0	0	6.53	5.08	44.3
	J ₁₀₅₋₆ 4351.6m (水层)	1.0—0.5	—	—	—	—	6.12	4.92	45.7
		0.5—0.1	73	24	3	0	6.09	5.23	48.8
		<0.1	65	30	5	0	6.10	4.25	39.7
	J ₁₀₅₋₇ 4353.5m (水层)	1.0—0.5	—	—	—	—	5.87	4.78	46.3
		0.5—0.1	81	14	5	0	6.34	4.56	41.8
		<0.1	72	13	10	5	5.91	4.56	43.9

①I—伊利石和伊利石/蒙脱石混层矿物;K—高岭石;C—绿泥石;O—其它矿物。

东河塘区石炭系油藏构造剖面揭示该油藏主要封盖层为侏罗系,则油气藏形成期在侏罗系盖层形成之后,自生伊利石 K-Ar 年龄则说明该油藏主要形成于渐新世。对吉拉克区构造演化史、圈闭形成期、生油岩排烃史以及油气运聚期地质综合对比分析表明,三叠系凝析气藏背斜圈闭形成于喜马拉雅早期运动,此时盆地中上奥陶统烃源岩进入生油门限,可能形成油藏;至喜马拉雅晚期,下古生界烃源岩达高过成熟阶段,以生成天然气为主,天然气再次注入圈闭,先形成气顶,随圈闭埋深增加,地层压力增大,形成带油环的凝析气藏,而前面的分析结果则提示烃类流体进入储层的时间应晚于 44.3—49.2Ma。

3.4 塔中 4 石炭系 C₁ 油藏

塔中 4 油田位于塔中隆起中央断垒带东段的塔中 4 构造上,储层主要有 C₁、C₂ 和 C₃ 三套,C₁ 油组储层下石炭统东河砂岩为一套成分和结构成熟度均较高的中细粒石英砂岩。东河砂岩储层中自生伊利石的同位素地质年龄为 246—278Ma(图 2),其中 0.1—1.0 μm 伊利石 K-Ar 同位素年龄略高于 <0.1 μm 伊利石 K-Ar 同位素年龄,两者相差约 10Ma。

塔中隆起主要存在两个油源区,一是满加尔凹陷寒武系饥饿盆地有机相;二是塔中隆起斜坡带中上奥陶统灰泥丘有机相,前者分布面积大,主体生油阶段在晚海西期之前,并具分区分期成熟的特点;后者分布面积相对较小有限,主体生油阶段在晚海西期之后。笔者已有的流体

历史分析工作表明,塔中4油田石炭系储层存在两期烃类流体包裹体和两期储层沥青。与烃类流体包裹体共生的盐水包裹体均一化温度分布:第1期为53—82℃,主要在60—75℃;第2期80—109℃,主要在85—100℃。塔中石炭系储层沥青反射率明显低于共生的烃源岩镜质体反射率,固体沥青反射率(BR_o)分布上主要分为两群:第1群 BR_o 小于0.4%,主要在0.1%—0.3%;第2群 BR_o 在0.6%—0.9%,主要在0.7%—0.8%。结合塔中地区构造发展史、埋藏史、热演化史分析,说明塔中4油藏石炭系 C_1 油组有两个注入期和两个调整期,第1个注入期在晚海西期,可能主要与满加尔寒武系源岩油源区有关;第2个注入期在白垩纪以后,可能主要与塔中地区中上奥陶统源岩油源区有关。根据东河砂岩储层中自生伊利石的同位素地质年龄分布,可明确塔中4油藏石炭系 C_1 油组第一期成藏的时间在晚二叠世。

3.5 油气勘探中的应用:成藏期与油气系统关键时刻

油气藏形成跨越多个构造期是我国中西部塔里木盆地、准噶尔盆地、吐哈盆地、鄂尔多斯盆地等的重要特点。这些盆地具有多期油气生成,多期油气成藏,同时又遭受多期破坏的特点。油气藏的形成、改造、调整、再聚集和保存一般都跨越了多个构造期。由于烃源岩成熟较早,各个构造期(海西期,燕山期和喜马拉雅期)

都可能成藏,而现存的油气藏到底是那期为主是勘探评价必须回答的重要问题。而仅根据构造演化史,圈闭形成史和烃源岩生排烃史分析,对现存油气藏形成时间常缺乏准确的认识。

油气系统的概念和模式已成为更好地了解油气藏形成条件和成藏规律,降低油气勘探风险的重要手段。油气系统研究的核心是揭示烃类流体从源岩到圈闭的地质过程和历史,Magoon用4幅图来反映油气系统的研究思路,其主要研究内容包括确定油气系统关键时刻、分析在关键时刻的油气系统三维展布规律、建立油气系统事件表3个方面^[11,12]。油气系统关键时刻(critical moment)指的是油气系统中大部分烃类生成—运移—聚集的时间,它主要包括了生烃期和成藏期两个方面内容,即什么时候烃类流体从源岩中生成,什么时候烃类流体进入储层或圈闭。对于多次构造运动背景下复杂含油气盆地,烃源岩主要生烃期与现存油气藏的成藏期往往不同步,常表现为主力烃源岩主生烃期较早,而现存油气藏的成藏期较晚,如何准确分析多次构造运动背景下复杂含油气盆地油气系统关键时刻,是目前面临的重要问题。

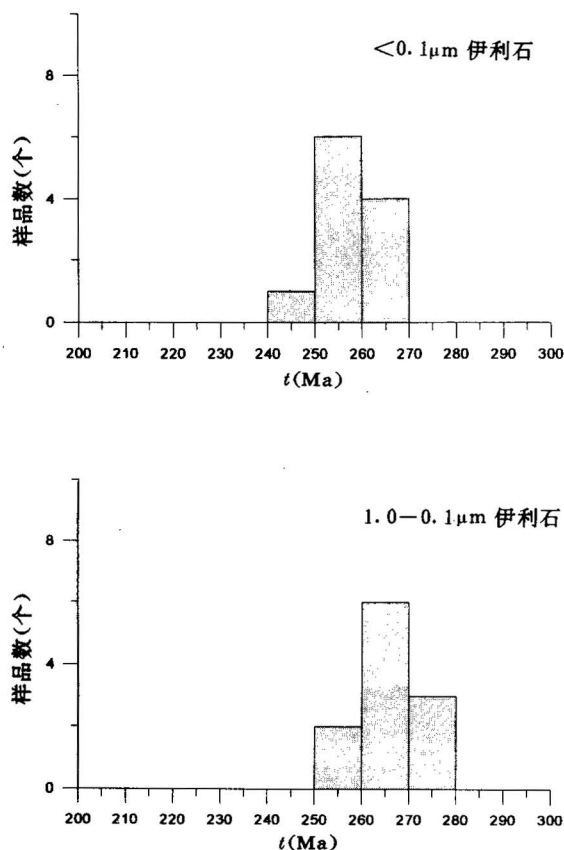


图2 塔中4油田石炭系 C_1 油组储层自生伊利石的K-Ar年龄分布

Fig. 2 Illite K-Ar ages distribution of Carboniferous C_1 sandstone reservoir, Tazhong 4 oilfield

自生伊利石同位素地质年代学为准确分析油气藏形成期和油气系统关键时刻提供了科学根据,正如矿床学中广泛应用同位素地质年代学的方法确定成矿年代,通过细致的烃类流体成藏与储层成岩作用关系研究、成岩矿物同位素地质年代学分析,应用同位素地质年代学的方法可解决油气藏形成期和油气系统关键时刻问题。笔者认为只有从储层或油气藏入手,将储层有机岩石学、成岩矿物同位素地质学、油藏地球化学 3 个方面的实验研究,与构造发展史、埋藏史、热演化史、沉积成岩史 4 个方面地质历史分析相结合,进行综合的烃类流体历史分析,将宏观和微观分析,推测和实测分析结果相互对比,才能实现油气藏成藏时间和成藏演化史分析的定量化。

4 结论

(1)砂岩储层中自生伊利石仅在流动的富钾孔隙水介质环境下才能形成,烃类流体注入储层随油气饱和度的增高,自生伊利石形成便会抑制和中止。伊利石同位素年龄指示了油气藏形成期的最大地质年龄。

(2)塔里木盆地塔中 4 石炭系 C₄ 油藏、塔北东河塘石炭系油藏和吉拉克三叠系凝析气藏 3 个砂岩储层自生伊利石的形成时间,分别为 246—278Ma、24.3—31.8Ma 和 44.3—49.2Ma,反映前者第一期成藏的时间为晚二叠世,后两者的成藏时间在老第三纪。

(3)自生伊利石同位素地质年代学为油气藏形成期和油气系统关键时刻定量分析提供了重要手段。

本研究得到石油勘探开发科学研究院周兴熙教授、顾家裕教授,中国科学院地质研究所和中国地质科学院同位素实验室的支持和帮助,特此致谢。

参 考 文 献

- 1 Lee M, Aronson J L, Savin S M. K-Ar dating of time of gas emplacement in Rotliegendes sandstone, Netherlands. *Bull. Am. Assoc. Petrol. Geol.*, 1985, 69: 1381—1385.
- 2 Lee M, Aronson J L, Savin S M. Timing and conditions of Permian Rotliegendes sandstone diagenesis, southern North Sea: K-Ar and oxygen isotopic data. *Bull. Am. Assoc. Petrol. Geol.*, 1989, 73: 195—215.
- 3 Hamilton P J, et al. Isotopic tracing of the province and diagenesis of Lower Brent Group Sand, North Sea. In: *Petroleum Geology of North West Europe* (Eds J Brooks & K W Glennie), Graham and Trotman, London, 1987. 939—949.
- 4 Hamilton P J, Kelly S, Fallick A E. Isotopic constraints on diagenetic processes. 1. Radiometric dating of illite in hydrocarbon reservoirs. *Clay Miner.*, 1989, 24: 215—231.
- 5 Hamilton P J, et al. K-Ar dating of illites in Brent Group Reservoir: A regional perspective. In: *Geology of the Brent Group* (Eds. A C Morton et al.), Spec. Pub. Geol. Soc. London, 1992, 61: 377—400.
- 6 Glasmann J R, Clarke R A, Larter S, Briedis N A, Lundegard P D. Diagenesis in the Bergen High area, North Sea: relationship to hydrocarbon maturation and fluid flow, Brent sandstone. *Bull. Am. Assoc. Petrol. Geol.*, 1989, 73: 1341—1360.
- 7 Hogg A J C, Hamilton P J, Macintyre R M. Mapping diagenetic fluid flow within a reservoir: K-Ar dating in the Alwyn area (UK North Sea). *Marine and Petroleum Geology*, 1993, 10: 279—294.
- 8 Faure G. *Principles of isotope geology*. 2nd edn, Wiley, New York, 1986. 589.
- 9 Liewig N, Clauer N, Sommer F. Rb-Sr and K-Ar dating of clay diagenesis in Jurassic sandstone oil-reservoir, North Sea. *Bull. Am. Assoc. Petrol. Geol.*, 1987, 71: 1461—1474.
- 10 Saigal G, Bjorlykke K, Larter S. The effect of oil emplacement on diagenic process-examples from the Fulmar reservoir sandstone, central north sea. *Bull. Am. Assoc. Petrol. Geol.*, 1992, 77(1): 68—80.
- 11 Magoon L B (eds). *The petroleum system -status of research and methods*. U.S. Geological Survey Bulletin, 1992, 2007: 98.

12 Magoon L B , Dow W S(eds). The petroleum system: from source to trap. AAPG Memoir 60,1994.

THE K-Ar ISOTOPIC DATING OF AUTHIGENIC ILLITES AND TIMING OF HYDROCARBON FLUID EMPLACEMENT IN SANDSTONE RESERVOIR

Wang Feiyu, He Ping

(*Petroleum University, Beijing*)

Zhang Shuichang, Zhao Mengjun

(*RIPED, CNPC, Beijing*)

Lei Jiajing

(*Institute of Geology, CAS, Beijing*)

Abstract

Authigenic illites in sandstone reservoirs form in the presence of flowing K-rich pore water. The entrance of hydrocarbon fluids into sandstone reservoirs brings a halt to the illite-forming processes, and if the last-formed illite can be isolated and its age determined, the maximum age of hydrocarbon entrance can be constrained. K-Ar isotopic chronological analysis has shown that the ages of diagenetic illites in the Carboniferous sandstone reservoir of the Donghetang area and the Triassic condensate reservoir of the Jilake area are 24.3—31.8 Ma and 44.3—49.2 Ma respectively, which reflects that the former petroleum reservoir formed in the Oligocene, while the latter in the Eocene.

Key words: authigenic illite, K-Ar isotopic dating, timing of petroleum entrance, sandstone reservoir, Tarim basin

作 者 简 介

王飞宇,男,1963年12月生。1992年于中国科学院广州地球化学研究所地球化学专业获理学博士学位。现为石油大学(北京)地球科学系副教授,从事油气和煤地质学、地球化学和有机岩石学方面的研究。通讯地址:北京昌平石油大学地球科学系,邮政编码:102200。
