

# 实际储层温压条件下成功合成碳酸盐岩烃类包裹体及其启示意义

陈勇<sup>1</sup>, 葛云锦<sup>1</sup>, 周瑶琪<sup>1</sup>, 刘超英<sup>2</sup>, 周振柱<sup>1</sup>, 毛毳<sup>1</sup>

1. 中国石油大学(华东)地球资源与信息学院, 山东 青岛 266555
2. 中石化石油勘探开发研究院, 北京 100083

Chen Yong<sup>1</sup>, Ge Yunjin<sup>1</sup>, Zhou Yaoqi<sup>1</sup>, Liu Chaoying<sup>2</sup>, Zhou Zhenzhu<sup>1</sup>, Mao Cui<sup>1</sup>

1. College of Geo-resources and Information, China University of Petroleum, Qingdao 266555, China
2. Research Institute of Petroleum Exploration & Production, SINOPEC, Beijing 100083, China

**Chen Yong, Ge Yunjin, Zhou Yaoqi, et al. Hydrocarbon-bearing inclusions synthesized in carbonate at the temperature and pressure of natural reservoir: Some important implications for the study of petroleum geology. *Earth Science Frontiers*, 2009, 16(1):011-016**

**Abstract:** We have successfully synthesized hydrocarbon-bearing inclusions in carbonate at the temperature and pressure of 150 °C and 40 MPa, which are near the condition of natural reservoir underground 4 km. All synthetic hydrocarbon-bearing inclusions have been analyzed by microscope and micro-fluorescence and fourier transform infrared spectroscopy. The results show that the synthesized hydrocarbon-bearing inclusions are very similar to those in real reservoirs. Our experiments give us four important insights, including: (1) immiscibility of oil and water is the main reason for hydrocarbon-bearing inclusions and aqueous inclusions distributed in different fractures; (2) rapid accumulation of oil and gas can be recorded by fluid inclusions; (3) the study of synthetic hydrocarbon-bearing inclusions at the temperature and pressure of real reservoir will offer references and standards for the analysis of fluid inclusions in reservoirs; (4) experiment of synthetic hydrocarbon-bearing inclusions is a good method for understanding the mechanism of oil-water-rocks inter-reaction in reservoirs.

**Key words:** synthetic hydrocarbon-bearing inclusions; carbonate reservoir; accumulation of oil and gas

**摘要:**文中报道在实际储层温压条件下(150 °C, 40 MPa, 大约 4 km 深度)成功合成了碳酸盐岩烃类包裹体。通过对合成烃类包裹体的显微观察、荧光分析和傅里叶变换红外光谱分析,证实合成了烃类包裹体,且与真实储层中的包裹体具有相似特征,探讨了油水不混溶条件下的流体包裹体捕获机制。实验研究给出 4 点重要启示:(1)油水不混溶是造成烃类包裹体和水溶液包裹体分带的主要原因;(2)油气快速成藏过程可以被流体包裹体记录;(3)实际储层温压条件下,合成烃类包裹体实验研究有望为储层包裹体分析提供依据和标准;(4)人工合成烃类包裹体为研究含油气条件下储层水-岩作用机理提供了一种有效手段。

**关键词:**人工合成烃类包裹体;碳酸盐岩;油气成藏

**中图分类号:**TE12;P59;P579 **文献标志码:**A **文章编号:**1005-2321(2009)01-0011-06

收稿日期:2008-09-27;修回日期:2008-11-30

基金项目:国家“863”计划课题(2007AA06Z210);国家自然科学基金项目(40772082);中国石油天然气集团公司石油科技中青年创新基金项目(07E1018);中国石油大学博士基金项目(y060132);山东省自然科学基金青年基金项目(Y2008E25)

作者简介:陈勇(1976—),男,博士,副教授,从事流体包裹体和油气地球化学研究工作。E-mail: yongchen@hdpu.edu.cn

自1984年Haszeldine等<sup>[1]</sup>在*Nature*上发表文章指出烃类包裹体在储层成岩作用和油气成藏期次研究中的重要应用以来,烃类包裹体的研究已有20多年的历史。由于烃类包裹体不仅记录了沉积成岩流体的成分、温度、压力等信息,同时也记录了盆地油气生成和演化信息,因而在储层成岩作用、油气运移、油气成藏、盆地分析及油藏地球化学等研究领域中有重要的理论意义和应用价值<sup>[2-3]</sup>。但是,由于烃类包裹体成分复杂,目前关于储层烃类包裹体的捕获机制还不是很清楚,使得在分析和解释储层烃类包裹体的过程中遇到了诸多问题;而人工合成流体包裹体作为流体包裹体研究及应用的重要基础,可以为流体包裹体分析提供依据和标准<sup>[4]</sup>。尽管国内外已有关于人工合成碳酸盐岩烃类包裹体的相关报道<sup>[5-9]</sup>,但是这些报道的实验条件几乎都与真实储层内部温压条件存在较大的差异。因此,本文设计了在实际储层温压条件下合成碳酸盐岩烃类包裹体实验,目的是通过实验模拟研究碳酸盐岩储层烃类包裹体的形成过程,同时可以深入了解储层烃类包裹体对油气成藏的记录功能。

## 1 实验设计

海相碳酸盐岩地层油气成藏机理研究是目前油气勘探理论与技术的重要内容之一,而海相碳酸盐岩地层也是我国未来石油勘探的重点区域。通过对碳酸盐岩烃类包裹体形成机制研究,对于深入了解海相碳酸盐岩地层的石油生成、运移及成藏等过程有重要的理论意义和实践意义。所以,本次研究选择冰洲石代替碳酸盐岩进行实验,以期获得有关碳酸盐岩储层烃类包裹体形成过程的有关信息。Liu等<sup>[6]</sup>报道的合成烃类包裹体实验条件为230~250℃,52~53 MPa,而倪培等<sup>[9]</sup>的实验温度110℃和150℃接近真实储层温度,但其实验压力均为50 MPa,这与实际环境也是不符合的,并且在该温压条件下没有合成可供观察的烃类包裹体。尽管最近Julien Bourdet和Jacques Pironon报道成功合成了烃类包裹体<sup>[7-8]</sup>,但其实验的温度和压力明显不符合常规储层的温压条件。为使实验结果能够较真实地反映实际储层中流体包裹体形成过程,我们把实验条件选定为150℃和40 MPa,大约接近常规储层4 km深度的温压条件。

## 2 实验步骤与过程

人工合成碳酸盐岩烃类包裹体实验基于Roeder等<sup>[9]</sup>提出的裂隙愈合方法人工合成流体包裹体技术,但在其基础上有所改进。实验采用较纯净的冰洲石作为主矿物,主矿物中包裹体较少。将晶体切割成尺寸合适的小四方短柱,放入去离子水中进行超声波清洗,以清除其表面的杂物,确保实验中不带入外界物质,减少干扰。再将冰洲石晶体短柱加热至290℃,恒温2 h后,迅速投入去离子水中淬火冷却使其产生微裂隙。我们多次试验发现,290℃冰洲石淬火效果最好,而且可以破坏矿物中原来的包裹体。若裂隙过少或过小,则再重复一次高温淬火过程,确保晶体上裂隙充足,利于形成包裹体。冰洲石淬火之后在烘箱里面烘干备用。选取一定长度的金管(外径5 mm,壁厚0.2 mm,长度约5 cm),一端用氧炔焊封闭后,加入原油、碳酸钙粉末及不同浓度的NaCl溶液,然后放入备好的冰洲石短柱,最后对金管进行焊封,焊封速度要快,以保证焊封过程没有物质泄漏,并称重对比。焊封完成后再对金管进行干燥1 h,然后再称重对比,观察是否泄漏。实验用的原油是由中国石油大学重质油国家重点实验室提供的重质原油,密度较大,为0.932 0 g/cm<sup>3</sup>,原油成熟度不高。装好样品后,将实验温度设定为150℃,压力设定为40 MPa,合成实验时间为15 d。实验结束后将金管洗净烘干后称重对比,分析实验过程是否有泄漏,并测试母液的pH值。合成实验条件的具体参数见表1。实验过程多次称重是为了避免泄漏现象发生,目的是为了保证合成包裹体过程母液不会失真,这是合成流体包裹体实验的关键步骤。

## 3 人工合成烃类包裹体显微镜下特征

通过显微镜下观察分析,可以了解包裹体的产状、相态、大小、形状、颜色、共生关系、荧光等特征,这是流体包裹体研究的基础工作。而烃类包裹体在受到紫外光、紫光或蓝光照射时,会在极短的时间内发射出比照射光波长更长的荧光,荧光分析成为分辨烃类包裹体和水溶液包裹体的有效方法。将制备好的包裹体薄片放在偏光显微镜和荧光显微镜下进行观察,尽管方解石的双折射现象会在一定程度上影响观察,但是在样品中均可以看到有烃类包裹体

表1 碳酸盐岩烃类包裹体合成实验条件参数

Table 1 Experimental parameters of synthetic hydrocarbon-bearing inclusions in carbonate reservoir

样品编号	金管质量/g	金管容量/mL	金管填充度/%	方解石质量/g	碳酸钙粉末质量/g	油水体积比	V <sub>油</sub> /mL	V <sub>水</sub> /mL
1#	3.214 8	0.6	50	0.196 4	0.022	2:8	0.046	0.182
2#	3.247 6	0.6	50	0.200 5	0.021 1	2:8	0.045	0.181
3#	2.904 8	0.6	50	0.202 2	0.020 4	2:8	0.045	0.18
4#	3.215 6	0.6	50	0.208 2	0.021	2:8	0.045	0.178
样品编号	金管装样后质量/g	金管焊后质量/g	金管干燥后质量/g	金管出炉后质量/g	实验温度/℃	实验压力/MPa	盐度ω(NaCl)/%	实验后母液pH值
1#	3.664 4	3.663	3.662 3	3.662 6	150	40	4	8.5
2#	3.731 2	3.725 1	3.724 8	3.725	150	40	8	9.0
3#	3.375	3.352 6	3.353 2	3.353 2	150	40	12	9.0
4#	3.707 8	3.699 4	3.689 4	3.690 3	150	40	16	9.0

形成,合成包裹体的特征描述如下:

(1)荧光分析显示,在150℃和40MPa,不同盐度实验条件下( $\omega(\text{NaCl})$ 为4%~16%),样品中均有烃类包裹体形成,如图1所示。显微观察表明,实验过程既合成了烃类包裹体,也合成了盐水包裹体。合成的烃类包裹体发黄绿色荧光,表明包裹体中的油气成熟度不高,与原油特征基本一致。包裹体形态各异,体积大小差别较大,从3 $\mu\text{m}$ 到30 $\mu\text{m}$ 不等。

(2)包裹体主要沿裂隙呈线状分布(图1c,d),有的明显可见裂隙愈合痕迹,表明在实验条件下可以通过微裂隙愈合捕获流体形成包裹体。除沿裂隙形成包裹体之外,包裹体还可以沿解理方向形成,这是包裹体形成的两种常见方式。此外,晶体生长过程的其他类型缺陷也可以形成包裹体,如体缺陷形成的包裹体一般以单个独立的包裹体形式出现。

(3)合成的含烃类包裹体相态较为复杂,既有气液两相包裹体,也有气相包裹体,还有液相包裹体,另外还有含烃水溶液包裹体;其中气液两相包裹体最常见(如图1a,b,e,f,g,h)。颜色既有无色,也有呈淡黄色,还有黄褐色,甚至可见沥青包裹体。这似乎暗示包裹体形成过程对油气有一定的分馏作用。

(4)烃类包裹体与盐水包裹体可以在同一裂隙共生(图1e,f),也可以分别呈带状沿裂隙产出(图1a,b),这种现象以前的报道曾有描述<sup>[7-8,10]</sup>,但是都未对其原因作深入分析。笔者在对大量实际储层包裹体样品分析时也常见油水包裹体共生的现象,这说明本次合成烃类包裹体可以与实际储层的包裹体进行对比研究。

#### 4 合成烃类包裹体红外光谱特征

为了进一步证实合成包裹体中含有烃类物质,我们选择光谱技术对合成包裹体进行分析。傅立叶红外光谱(FTIR)和显微拉曼技术都可以测定单个或群体包裹体中的有机成分。显微拉曼光谱技术比较成熟,但拉曼信号易被有机质发射的荧光掩蔽,而矿物包裹体中的有机物多含荧光物质,因此本次研究选择了FTIR技术对合成烃类包裹体进行分析,分析实验在山东理工大学分析测试中心完成。FTIR技术测定包裹体成分时,透射光束同时穿越主矿物和包裹体,主矿物吸收红外辐射,干扰了包裹体的成分测定,谱图表现为二者全部吸收峰的加和,如图2a所示。前人研究表明,如果可以扣除主矿物吸收峰即可得到包裹体成分的吸收谱峰<sup>[11]</sup>;因此我们对主矿物的红外吸收光谱进行了分析,其光谱特征如图2b所示。我们采用差谱法对红外信号进行了处理,就是用样品的红外吸收谱减去主矿物的红外吸收谱,就可以得到部分包裹体中成分的信息,如图2c所示。饱和烃中甲基( $-\text{CH}_3$ )和亚甲基( $-\text{CH}_2-$ )的C—H伸缩振动吸收峰的位置一般在2800~3000 $\text{cm}^{-1}$ ,红外吸收峰一般较强。如果红外分析结果在2800~3000 $\text{cm}^{-1}$ 出现吸收峰,则表明包裹体成分中存在甲基( $-\text{CH}_3$ )和亚甲基( $-\text{CH}_2-$ )基团,则可以证实包裹体中含有有机组分。我们对图2c中2800~3000 $\text{cm}^{-1}$ 区间的谱图进行放大,如图2d所示,可以清楚地看到多个有机物的甲基( $-\text{CH}_3$ )和亚甲基( $-\text{CH}_2-$ )的C—H伸缩振动吸收峰,分别出现在2863.8,2921.7和2987.2

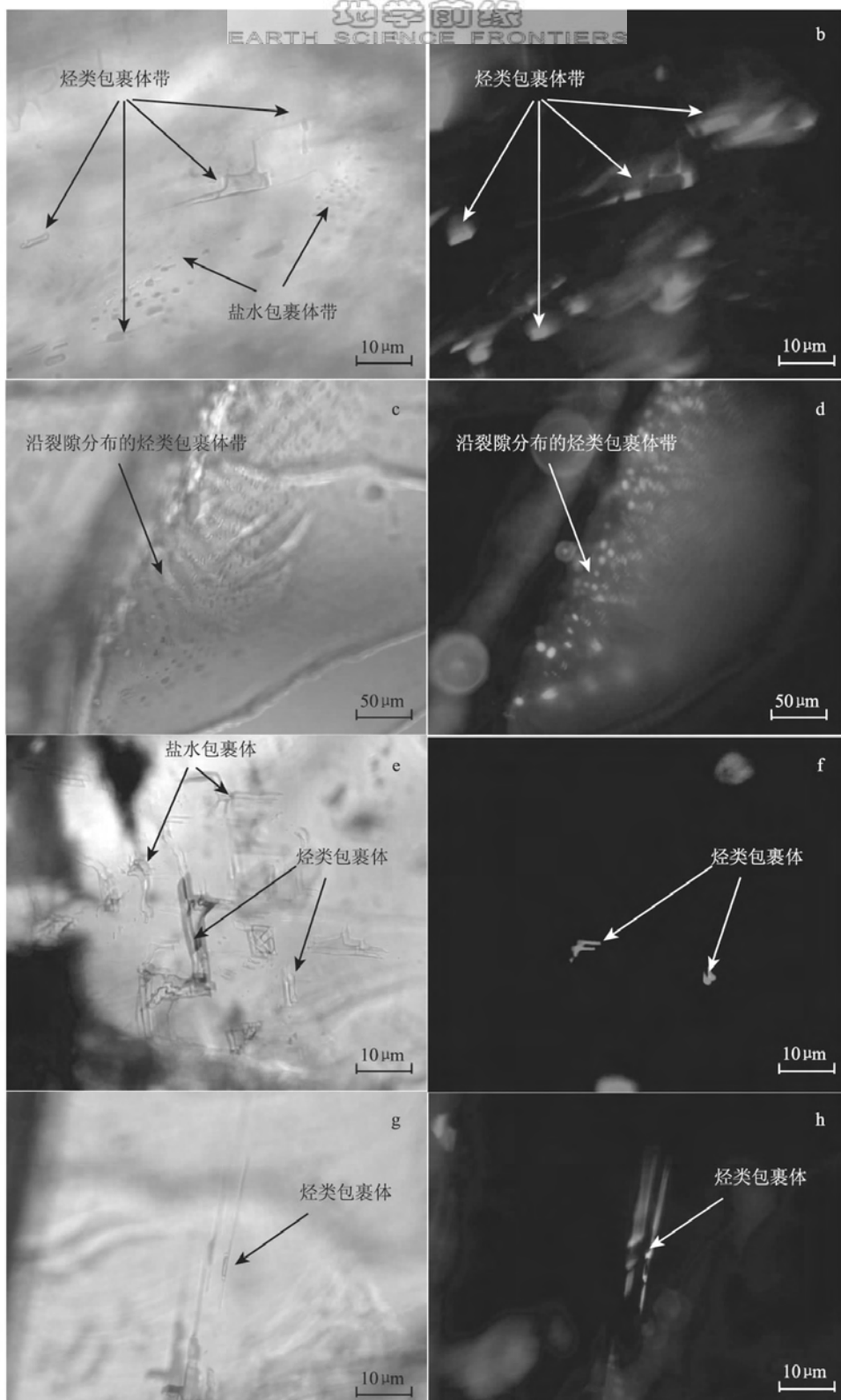


图1 冰洲石中人工合成烃类包裹体及盐水包裹体特征

Fig.1 Characteristics of synthesized hydrocarbon-bearing inclusions and aqueous inclusions in carbonate  
 a: 1# 样品中烃类包裹体与盐水包裹体分带捕获, 单偏光; b: 对应于照片 a, 荧光; c: 2# 样品中沿裂隙分布的烃类包裹体, 单偏光; d: 对应于照片 c, 荧光; e: 3# 样品中烃类包裹体和盐水包裹体共生, 单偏光; f: 对应于照片 e, 荧光; g: 4# 样品中合成的气液两相烃类包裹体, 单偏光; h: 对应于照片 g, 荧光

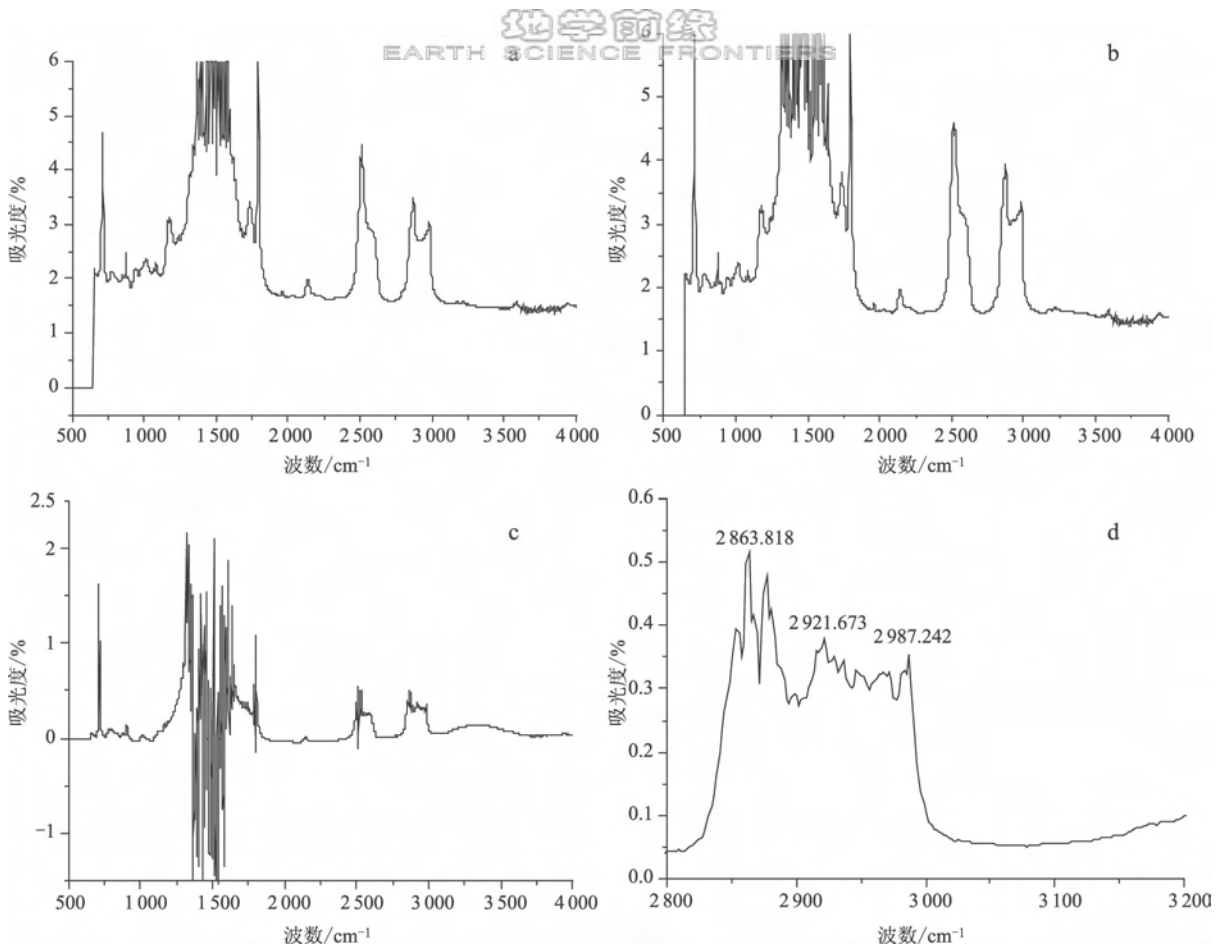


图2 人工合成烃类包裹体红外光谱

Fig.2 Fourier transform infrared spectrum of synthetic hydrocarbon-bearing inclusions

$\text{cm}^{-1}$ 等位置,这充分证实了合成包裹体中含有烃类物质。

## 5 认识与启示

实验证实可以在实际储层温压条件下成功合成烃类包裹体,实验结果给我们提供了与油气藏地质学有关的新认识和重要启示,主要体现在以下几个方面:

(1)油水不混溶是造成烃类包裹体和水溶液包裹体分带的主要原因。前已叙及油水包裹体共生现象,特别是烃类包裹体和盐水包裹体分带出现的现象在储层包裹体常见。笔者认为出现这种现象的原因主要是油水的不可混溶造成的。由于油水不可混溶,对于不同的裂隙(或晶体缺陷)就可能对应不同的相带(油相或者水相),这样就造成有的裂隙是水溶液先进入,有的裂隙是油先进入,再加上水和原油对方解石的润湿性差别不大,这样先进入的流体就容易

保留在裂隙里面被捕获形成包裹体,因此出现了盐水包裹体和烃类包裹体分带出现的现象。

(2)油气快速成藏过程可以被流体包裹体记录。在实际储层温压条件下,15 d的合成实验时间就可以合成烃类包裹体,这说明储层流体包裹体的形成并不需要太长时间。这就暗示即便是油气幕式成藏的快速过程也可以被流体包裹体记录下来。因此,我们的实验结果说明,只要成岩条件满足包裹体形成条件,那么油气成藏过程就会有包裹体记录。但是,如果油气成藏过程的成岩条件不能形成包裹体,那么成藏过程就可能缺少包裹体样品记录。然而不同储层地质条件存在差异,油气类型也是变化多样的,因此,关于流体包裹体记录油气成藏过程的问题还需要详细研究。

(3)实际储层温压条件下的合成烃类包裹体实验研究有望为储层包裹体分析提供依据和标准。尽管目前流体包裹体在油气成藏期次研究中有着广泛的应用,但是关于到底什么样的包裹体才可以真实

反映油气成藏的温压条件还有一些争议。而通过实际储层温压条件下的合成烃类包裹体实验研究及合成包裹体的捕获条件校正,可以找到恢复油气成藏温压条件的合适包裹体类型,并建立该类包裹体的判别标准。该研究是从储层流体包裹体捕获机制的基本理论入手,目的是为储层流体包裹体分析提供依据和标准,因此,进一步深入展开实际储层温压条件下的合成烃类包裹体研究是很有必要的。

(4)人工合成烃类包裹体为研究含油气条件下储层水-岩作用机理提供了一种有效手段。由于包裹体的形成过程也就是水-岩-油之间相互作用的过程,能否形成包裹体,晶体生长状况及裂隙愈合情况等受到水-岩作用的制约。通过在实际储层温压条件下的合成烃类包裹体实验不仅可以研究包裹体形成机制,同时可以研究现实储层中的成岩作用类型及其机理。通过研究可以对油气成藏过程储层成岩作用是否停止及成岩作用对储层到底是破坏还是保护等重要问题给出答案。

## References:

- [1] Pan C C, Zhou Z Y, Xie Q L. Hydrocarbon inclusions: Implications to petroleum geology and geochemistry[J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 1996, 14(4): 15-23(in Chinese).
- [2] Haszeldine R S, Samson I M, Cornford C. Dating diagenesis in a petroleum basin: A new fluid inclusion method[J]. *Nature*, 1984, 307: 354-357.
- [3] Liu D H. Fluid inclusion studies—An effective means for basin fluid investigation[J]. *Earth Science Frontiers*, 1995, 2(3-4): 149-154(in Chinese).
- [4] Bodnar R J. Synthetic fluid inclusions: A novel technique for experimental water-rock studies[J]. *Water-Rock Interaction WRI-6*, 1989: 99-102.
- [5] McLimans R K. The application of fluid inclusions to migration of oil and diagenesis in petroleum reservoirs[J]. *Appl*

- Geochem*, 1987(2): 585-603.
- [6] Liu D H, Xiao X M, Mi J K, et al. Determination of trapping pressure and temperature of petroleum inclusions using  $p$ - $V$ - $T$  simulation software—A case study of Lower Ordovician carbonates from the Lunnan Low Uplift, Tarim Basin [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2003, 20: 29-43.
- [7] Bourdet J, Pironon J. Strain response and re-equilibration of  $\text{CH}_4$ -rich synthetic aqueous fluid inclusions in calcite during pressure drops[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2008, 72: 2946-2959.
- [8] Pironon J, Bourdet J. Petroleum and aqueous inclusions from deeply buried reservoirs: Experimental simulations and consequences for overpressure estimates[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2008, 72: 4916-4928.
- [9] Ni P, Meng F W. Experimental study on synthetic oil (hydrocarbon)-bearing inclusions in carbonatite [J]. *Acta Petrologica Sinica*, 2008, 24(1): 161-165(in Chinese).
- [10] Roedder E, Kopp O C. A check on the validity of the pressure correction in inclusion geothermometry, using hydrothermally grown quartz[J]. *Fortschr Mineral*, 1975, 52: 431-446.
- [11] Sun Q, Weng S F, Zhang X. FTIR microanalysis limits of hydrocarbon fluid inclusions; Matrix minerals absorption[J]. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 1998, 23(3): 248-252(in Chinese).

## 参考文献:

- [1] 潘长春,周中毅,解启来. 油气和含油气包裹体及其在油气地质地球化学研究中的意义[J]. *沉积学报*, 1996, 14(4): 15-23.
- [3] 刘德汉. 包裹体研究——盆地流体追踪的有力工具[J]. *地学前缘*, 1995, 2(3-4): 149-154.
- [9] 倪培,孟凡巍. 碳酸盐岩中烃类包裹体的人工合成实验研究[J]. *岩石学报*, 2008, 24(1): 161-165.
- [11] 孙青,翁诗甫,张煦. 傅立叶变换红外光谱分析矿物有机包裹体的限制——基体吸收问题初探[J]. *地球科学*, 1998, 23(3): 248-252.