

文章编号: 1001-6112(2006)04-0386-05

# 一种快速检测油包裹体的新方法

## ——颗粒包裹烃定量荧光分析技术及其初步应用

李素梅<sup>1,2</sup>, 庞雄奇<sup>1,2</sup>, 刘可禹<sup>3</sup>, 付秀丽<sup>1,2</sup>

(1. 中国石油大学 石油天然气成藏机理教育部重点实验室, 北京 102249; 2. 中国石油大学 盆地与油藏研究中心, 北京 102249; 3. CSIRO Petroleum, P. O. Box 1130, Bentley WA 6102, Australia)

**摘要:**选取海拉尔盆地 18 个以砂岩为主的储集岩样品进行储层颗粒吸附烃和非烃定量荧光(QGF-E, Quantitative Grain Fluorescence on Extract)、颗粒包裹烃定量荧光(QGF, Quantitative Grain Fluorescence)分析,用于储层含油气性分析与包裹体鉴定。实验表明,该方法简单、快速且精确度高。QGF-E 结果反映分析样品所在的储层多数曾经有油气经过,是油气运移通道和/或是古/今储层;QGF 的测试确认分析样品多数未能形成包裹体,可能反映该区储层不利于形成包裹体。研究结果表明,碎屑岩储层的定量荧光分析是快速识别油层、干层与油气运移通道,鉴定储层油包裹体及进行油气化学成分分析的有效途径,是油气成藏过程研究的重要手段。

**关键词:**包裹体; QGF-E; QGF; 荧光分析; 碎屑岩储层; 海拉尔盆地

**中图分类号:** TE135

**文献标识码:** A

储层中的油包裹体往往记录了油气成藏过程的重要信息,是揭示油气成藏期次与时间<sup>[1~3]</sup>、油气运移通道、储层均一化温度与盐度的重要途径,包裹体成分的检测则可在某种程度上重现油气充注某一时期的烃类流体特征,可应用于高成熟探区及次生稠油区等特殊烃类原始特征与成因的研究。包裹体的形成取决于诸如岩性、油气充注速率与时间等多种因素,目前包裹体样品的选择具有盲目性,实验中包裹体难以检测时有发生,给进一步的包裹体均一化温度测试等研究带来了不便。近年,澳大利亚联邦科学工业研究院石油资源部率先将荧光扫描技术应用于包裹体及相关成藏过程研究,取得了较好的应用成效。荧光扫描技术的应用由来已久<sup>[4,5]</sup>,该技术已广泛应用于油气化探<sup>[6,7]</sup>、石油污染鉴别<sup>[8]</sup>,指示油气运移与含油气属性<sup>[9,10]</sup>,但迄今国内极少用于油气成藏方面的研究。本文以海拉尔盆地碎屑岩储层样品为例,阐明该方法相关的实验过程及初步的应用。

## 1 实验方法与样品

### 1.1 实验方法

实验流程如图 1。取少量碎屑岩储层样品(岩心或岩屑)研磨过筛,取近 2 g 的 24~80 目粒径的砂粒,用 20 mL 二氯甲烷(DCM)浸泡,用超声波振荡 10 min,倒掉溶剂;待溶剂挥发干,加 40 mL 浓

度为 10% 的双氧水( $H_2O_2$ ),超声波振荡 10 min,静置 40 min,再振荡 10 min,用蒸馏水洗净;加入 40 mL 浓度为 3.6% 的盐酸,放置 20 min,其间不时搅拌,然后用蒸馏水洗净;干燥器烘干( $<60\text{ }^\circ\text{C}$ );显微镜下观察样品是否为单个粒径适中的颗粒,并进行

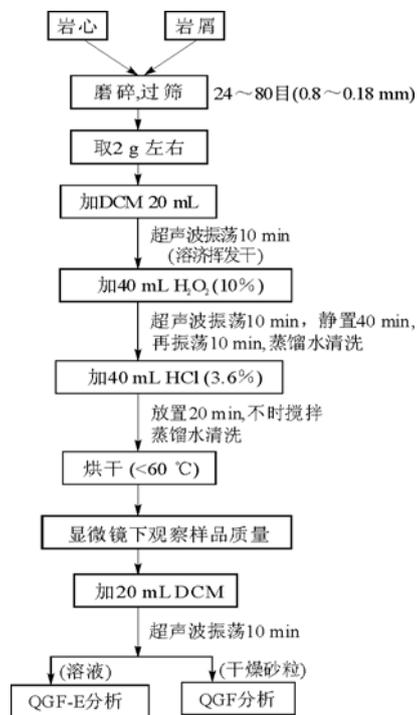


图 1 QGF-E 和 QGF 分析流程

Fig. 1 Procedure for QGF-E and QGF analysis

收稿日期: 2005-09-01; 修订日期: 2006-07-13。

作者简介: 李素梅(1968—), 女(汉族), 江苏海安人, 副教授, 主要从事油气地质地球化学教学和科研工作。

表1 海拉尔盆地储层样品 QGF-E 和 QGF 主要参数

Table 1 Basic parameters of QGF-E and QGF of the reservoir sand samples from the Hailaer Basin

样品 编号	井号	埋深/m	层位	岩性	QGF-E 参数 <sup>1)</sup>		QGF 参数 <sup>1)</sup>			
					QGF-E/ pc	$\lambda_{\max}$ / nm <sup>2)</sup>	QGF Index <sup>3)</sup>	QGF <sub>max</sub> / pc <sup>4)</sup>	$\Delta\lambda$ / nm <sup>5)</sup>	$\lambda_{\max}$ / nm
1	Su20	2 078.50	K <sub>1</sub> t	灰白色粉砂岩	62.1	371	2.7	0.60	236.0	404.9
2	W26	1 818.88	K <sub>1</sub> d <sup>2</sup>	浅白色砂岩	8.3	369	0.8	0.60	161.7	320.4
3	Bei40	2 215.69	K <sub>1</sub> n <sup>1</sup>	灰色粉砂岩	349.4	372	5.6	0.20	207.7	423.4
4	XW4	2 781.05	K <sub>1</sub> n	深灰色砂岩	309.2	376	47.9	3.60	158.2	435.4
5	Bei19	1 412.02	K <sub>1</sub> d <sup>2</sup>	灰白色粉砂岩	119.3	364	4.6	0.20	115.3	407.9
6	Su35	2 393.50	K <sub>1</sub> n <sup>1</sup>	白色细砂岩	48.1	369	11.4	2.90	191.9	416.8
7	Su27	1 204.30	K <sub>1</sub> n <sup>2</sup>	浅色砂岩	302.9	376	8.9	0.50	208.3	412.2
8	Ba1	1 798.38	K <sub>1</sub> n	浅灰色砂岩	473.9	376	3.9	0.20	195.9	444.5
9	Su27	1 740.11	K <sub>1</sub> n <sup>1</sup>	灰白色细砂岩	330.8	371	5.3	1.40	253.7	437.8
10	Su21	1 202.89	K <sub>1</sub> t	灰白色砂岩	225.7	374	8.7	0.70	192.9	416.3
11	Su16	1 720.12	K <sub>1</sub> n <sup>2</sup>	浅白色砂岩	28.4	370	2.9	1.40	153.7	364.6
12	Bei20	1 907.70	K <sub>1</sub> t	灰白色砂岩	81.1	379	5.0	0.40	129.3	406.2
13	Bei29	1 969.66	K <sub>1</sub> t	深灰色凝灰质砂岩	361.5	370	5.3	0.40	67.7	356.6
14	Bei38	2 299.12	K <sub>1</sub> n <sup>1</sup>	浅灰色砂岩	155.8	374	15.7	0.80	214.8	467.5
15	W18	2 742.10	K <sub>1</sub>	深灰色凝灰质砂岩	296.8	372	22.4	0.92	153.4	439.9
16	Bei28	1 656.20	K <sub>1</sub> n <sup>1</sup>	灰白色砂岩	462.5	372	7.1	0.40	197.6	434.4
17	Huo1	1 620.00 ~1 630.00	K <sub>1</sub> d <sup>2</sup>	黄白色细砂岩	11.1	316	4.8	0.30	113.9	418.5
18	Bei12	1 564.00	K <sub>1</sub> n <sup>1</sup>	灰色粉砂岩	290.3	369	4.8	0.20	93.3	406.5

1) QGF-E、QGF 参数为经均一化等计算的结果。

2)  $\lambda_{\max}$  为最大荧光波长。

3) QGF Index 为最高荧光强度与波长 300 nm 处荧光强度的比值。

4) QGF<sub>max</sub> 为 QGF 最高荧光强度。5)  $\Delta\lambda$  为 QGF 半荧光强度峰间的宽度。

选择;加入 20 mL 二氯甲烷,超声波振荡 10 min,将溶液部分及溶剂挥发干的砂粒分别进行储层颗粒吸附烃和非烃定量荧光分析(QGF-E)和颗粒包裹烃定量荧光分析(QGF)。所用仪器为 Varian Cary-Eclipse 荧光光度仪。

## 1.2 样品

18 个分析样品取自海拉尔盆地的贝尔、乌尔逊凹陷,主要为中生界碎屑岩储集岩(表 1)。

## 2 结果与讨论

### 2.1 QGF-E 分析

QGF-E 为一种最新开发的主要用于识别古油柱、现今与古油水界面的技术<sup>[11]</sup>。QGF-E 不同于对砂岩样品的抽提,需要首先除去颗粒表面的污染或可溶油、铁氧化物、矿物的氢氧化合物及碳酸盐矿物,以确保作对比研究的碎屑岩颗粒的荧光不受岩石表面吸附有机化合物量的变化的干扰(其与矿物的岩性及孔隙结构有关)。储层岩层表面的有机吸附物主要是通过物理与化学作用吸附在矿物表面<sup>[12,13]</sup>,主要为吸附能力较强的极性化合物、脂肪烃和芳烃。不同的芳烃与极性化合物具有不同的光谱特征,单环芳烃如苯主要发射光谱峰为 287

nm,二环芳烃主发射峰波长为 320~325 nm;三环有 2 个发射峰,波长分别为 320,365 nm;四环的双峰波长分别为 320,365 nm;极性化合物主发射峰波长为 370 nm。稀释原油的主要发射峰分别位于 320,365 nm 处,代表芳烃和极性馏分。

QGF-E 分析主要有 2 个参数,即 QGF-E 强度(1.2 g 样品在 20 mL DCM 中萃取物的最高荧光强度值)及与之相对应的发射光波长  $\lambda_{\max}$ 。本次分析样品的主峰  $\lambda_{\max}$  位于 370~376 nm 附近(表 1,图 2),显示主要为极性化合物峰,其次有微弱的芳烃峰。样品的 QGF-E 强度值具有较大的差异,分布范围为 8.3~473.9 nm,其中,8,16 号最高,QGF-E 值分别为 473.9,462.5 pc(photometer counts)。2,17 号最低,对应值分别为 8.31,11.1 pc(表 1,图 2),表明不同颗粒表面吸附烃的能力不等和/或储层含油饱和度有所差异。样品 QGF-E 强度的高低是原油/有机化合物浓度的反映。对其它地区 13 口井 182 个样品的分析结果统计表明,现今油层的 QGF-E 值一般为 40~1 000 pc,水层样品一般为 4~21 pc,低一个数量级。由此推测,本研究分析的 2 个低值样品(2,17 号)极可能为干层/水层。

在剖面上,一口井的连续取样样品的 QGF-E 值与电阻率曲线、伽马测井曲线相结合,可用于现

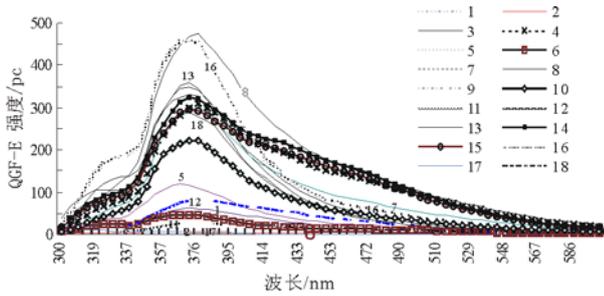


图 2 海拉尔盆地储层砂质岩 QGF-E 与波长关系谱图已均一化为 1.2 g 的样品在 20 mL DCM 中萃取物的荧光值, 峰值为 QGF-E 值, 曲线代码同表 1 样品编号, 下同。

Fig. 2 QGF-E intensity of reservoir sand in the Hailaer Basin verse wave length

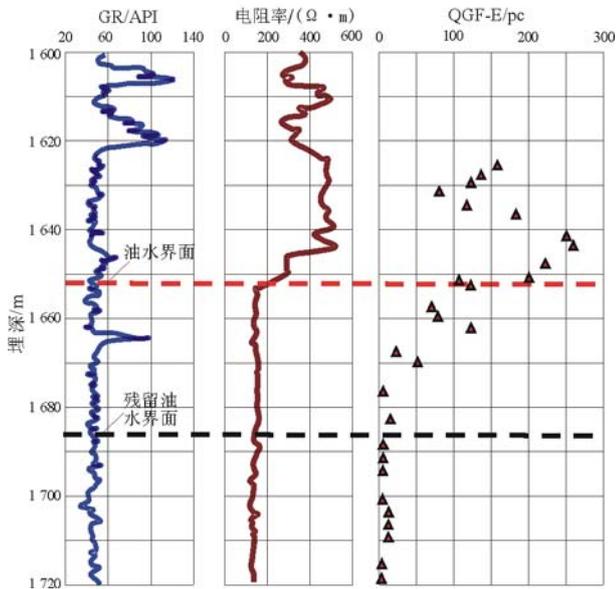


图 3 应用 QGF-E 确定油水界面示意

Fig. 3 Application of QGF-E to identify oil-water contact (OWC) and residual oil-water contact (ROWC)

今与油水界面、残留油水界面的确定。一般地, 油水界面的特征是 QGF-E 值的急剧降低并伴随电阻率值的降低, 残留油水界面的特征是 QGF-E 值降低至一稳定值, 如小于 20 pc 的基线值(图 3)。与之相对应, 伽马测井值亦较低。

### 2.2 QGF 分析

砂体颗粒表面吸附有烃类的样品未必都能形成包裹体。其形成需要有利的环境条件, 包括好的储层质量和较高的含油饱和度等。将碎屑岩储层进行 QGF-E 处理后, 即除去单体颗粒表面污染烃、吸附烃与非烃后, 将固体颗粒用荧光进行扫描, 此时所测值主要为包裹烃及少量吸附性极强的有机化合物的荧光。QGF 表示基本去除表面吸附与污染烃后的固体颗粒的定量荧光, 利用 QGF 分析

已大致可确认样品中包裹烃/包裹体是否存在。若要较为精确地确定包裹烃的存在及对包裹烃的荧光指纹特征进行分析, 需彻底清洁外层吸附性极强的有机物。处理方法是, 将经 QGF-E 处理后的样品进一步用王水(Aqua Regia),  $H_2O_2$ , DCM 和甲醇的混合试剂进行处理。QGF 分析 300~600 nm 的荧光光谱, QGF 经常在 375~475 nm 间有一荧光强度高峰, 半高峰一般出现在 100~165nm 处。QGF 有 4 个重要参数:  $\lambda_{max}$ , QGF 指数,  $\Delta\lambda$ ,  $QGF_{max}$ 。QGF 除可用于识别包裹烃外, 主要用于确认古油水界面, 沿古油水界面向上, QGF 指数有增加趋势, 而  $\Delta\lambda$  有降低趋势。

本研究对海拉尔盆地样品的 QGF 测试结果表明, 该区多数储层样品中未见包裹烃, 18 个样品中绝大部分未见较强的荧光, 仅见轻微的基底值(表 1, 图 4)。其中 4, 6 号样品具有明显的荧光,  $QGF_{max}$  值分别为 3.6, 2.9 pc(表 1), 其次为 9, 11, 15 号样品。QGF 指数相对较高的是 4, 6, 14, 15 号样品(表 1)。以上分析表明, 海拉尔盆地储层包

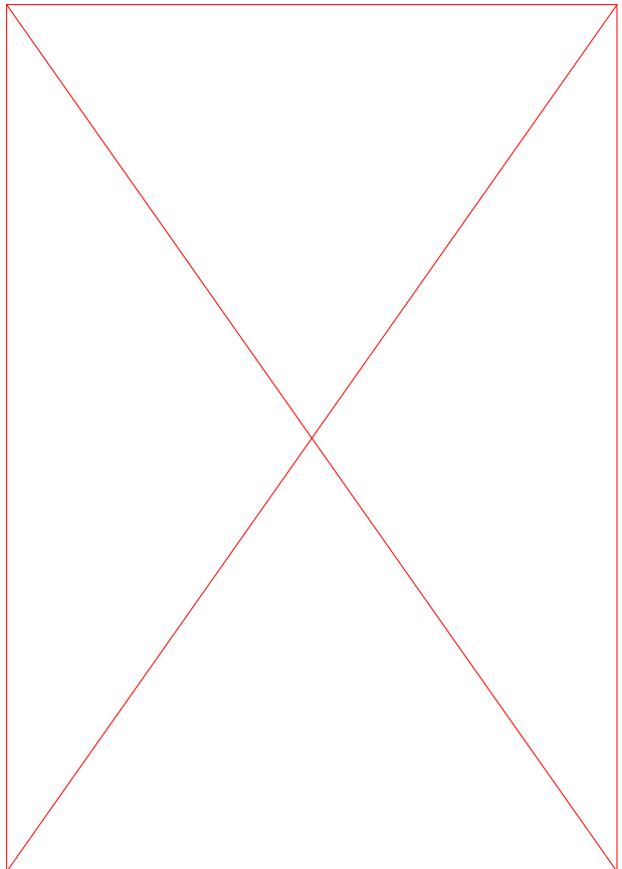


图 4 海拉尔盆地储层样品 QGF 荧光强度与波长相关性原始谱图

Fig. 4 Original spectra show relationship between QGF intensity and wave length of the reservoir sand from the Hailaer Basin

裹体总体可能不甚发育,反映磨制包裹体薄片并进行均一化温度与古盐度测试的样品需有所选择,QGF 测试为此提供了极好的途径。海拉尔盆地储层 QGF 分析结果与镜下观测结果基本一致,镜下观测表明,该区包裹体数量少且形态小。

图 4 中单个样品有多条曲线,系仪器分析时将 2 g 左右的样品进行均分(一般分为 16 份)然后对每一份进行扫描(对应一条曲线)的结果,由于样品的非均一性导致了不同曲线的差异。可将图 4 所示的原始分析结果进行均一化处理(即相同波长处取荧光强度均值),每个样品则可得一条曲线(图 5),该曲线更能体现样品的一般特性。固体颗粒的荧光特性需用表 1 中的 QGF 参数进行定量。QGF  $\lambda_{max}$  可用于反映包裹烃的成分,不同的化学成分有不同的官能团,对应不同的波长。QGF 指数与  $\Delta\lambda$  可用于代替反映 QGF 强度<sup>[14]</sup>。对比图 2,5,6 可发现,QGF-E 与 QGF 之间不太有相关性,说明该区油气经过或储存过的储层未必能形成包裹烃。作进一步包裹烃古温度等分析时,应选用 QGF 强度值较高的样品。对比还显示,QGF 的  $\lambda_{max}$  普遍高于 QGF-E 的  $\lambda_{max}$ (表 1),反映包裹烃的成分不同于吸附烃。QGF 参数的相关关系及其石油地质意义需结合不同地区的大量样品进行对比分析。

值得提出的是,某些矿物可能也有一定的荧光,从而可能对检测结果产生干扰。因此,较为精确的做法是在进行分析测试之前在显微镜下进行矿物的筛选,除去杂矿物。与 QGF-E 相似,QGF 可用于古油柱、油气运移通道及古、今油水界面的分析<sup>[14]</sup>。在含油带,QGF 往往有一明显的峰,以较高的 QGF 指数和较低的  $\Delta\lambda$  为特征。

### 3 结论

1) QGF-E, QGF 是一种经济、快速且相对精确

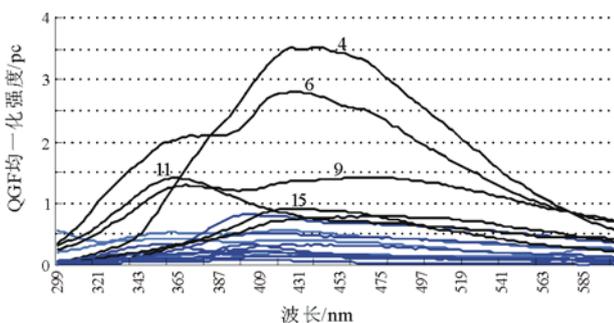


图 5 海拉尔盆地储层样品均一化 QGF 均一化强度与波长关系

Fig. 5 Normalized QGF intensity verse wave length for the reservoir sand from the Hailaer Basin

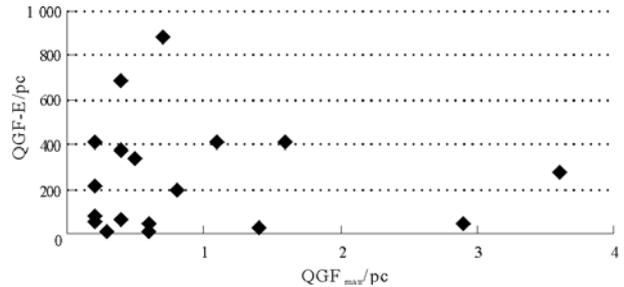


图 6 海拉尔盆地储层样品 QGF<sub>max</sub> 与 QGF-E 关系

Fig. 6 Relationship between QGF<sub>max</sub> and QGF-E intensity for the reservoir sand from the Hailaer Basin

的识别储层包裹烃、储层含油气性与油气运移路径的重要手段,在古油柱识别、古今油水界面的厘定等方面具有广泛的应用前景,值得推广与应用。

2) QGF-E 与 QGF 技术在海拉尔盆地贝尔—乌尔逊地区的初步应用表明,分析样品所在的层位曾经或目前为油气运移通道和/或油气储集层;研究区储层中包裹烃含量不高;包裹烃与吸附烃量间无明显的相关性。QGF 可为该区包裹体制片与显微镜测定提供可靠的筛选手段。

3) QGF-E 与 QGF 参数的相关性及其石油地质意义以及在油气成藏方面的应用有待结合不同地区、不同成因类型油气藏的具体情形进行深入研究。

#### 参考文献:

- 1 张枝焕,曾艳涛,张学军等. 渤海湾盆地沾化凹陷渤南洼陷原油地球化学特征及成藏期分析[J]. 石油实验地质,2006,28(1): 54~58
- 2 张忠民,周瑾,郭兴威. 东海盆地西湖凹陷中央背斜带油气运移期次及成藏[J]. 石油实验地质,2006,28(1):30~37
- 3 秦建中,钱志浩,曹寅等. 油气地球化学新技术新方法[J]. 石油实验地质,2005,27(5):519~528
- 4 雍克岚. 三维荧光指纹技术及其在石油地球化学勘探中的应用[J]. 石油实验地质,1992,4(11): 432~441
- 5 朱桂海,James M. Brooks. 三维全扫描荧光光谱在海洋石油勘探中的应用[J]. 石油实验地质,1987,3(4): 240~248
- 6 宋继梅,吴杰颖,王凌峰. 荧光分析法在油气化探中的应用[J]. 物探与化探,2002,26(5): 347~349
- 7 宋继梅,胡刚. 芳烃分析在油气化探中的作用和意义[J]. 物探与化探,2003,27(2):97~100
- 8 周长征,李秀云,宋延博. 三维荧光法在石油污染鉴别中的应用[J]. 光谱学与光谱分析,1998,18(4):500
- 9 陈银节,缪九军,张宗元. 三维荧光光谱的油气指示意义[J]. 天然气地球科学,2005,16(1): 69~72
- 10 慈兴华,向巧玲,陈方鸿等. 定量荧光分析技术在原油性质判别方面的应用探讨[J]. 石油实验地质,2004,26(1):100~102
- 11 Liu Keyu, Peter Eadington. Quantitative fluorescence techniques for detecting residual oils and reconstructing hydrocarbon charge history [J]. Organic Geochemistry, 2005, 36:

- 1023~1036
- 12 Li M, Larter S R, Stoddart D, et al. Practical liquid chromatographic separation schemes for pyrrolic and pyridinic nitrogen aromatic heterocycle fractions from crude oils suitable for rapid characterisation of geochemical samples[J]. Analytical chemistry, 1992,64:1337~1344
- 13 李素梅, 庞雄奇, 金之钧等. 沉积物中 NSO 杂环芳烃的分布特征及其地球化学意义[J]. 地球化学, 2001,30 (4):347~352
- 14 Liu K, Kurusingal J, Eadington P J, et al. Quantitative Grain Fluorescence (QGF), A technique to detect (palaeo-) oil zones by measuring trace fluorescence from reservoir grains [R]. CSIRO Petroleum unrestricted report, 2001.01~001

## A NEW APPROACH TO DISCRIMINATE OIL FLUID INCLUSIONS QUICKLY —QUANTITATIVE GRAIN FLUORE SCENCE (QGF) TECHNIQUES AND ITS APPLICATION

Li Sumei<sup>1,2</sup>, Pang Xiongqi<sup>1,2</sup>, Liu Keyu<sup>3</sup>, Fu Xiuli<sup>1,2</sup>

(1. Key Laboratory for Hydrocarbon Accumulation Mechanism, Ministry of Education, China University of Petroleum, Beijing 102249, China; 2. Basin and Reservoir Research Center, China University of Petroleum, Beijing, 102249, China; 3. CSIRO Petroleum, P. O. Box 1130, Bentley WA 6102, Australia)

**Abstract:** A new approach utilizing fluorescence scanning technique to analyze adsorbed hydrocarbons and non-hydrocarbons, identify oil inclusion and fluorescence fingerprint was introduced, and the Hailaer Basin was selected as a case study. Totally 18 samples collected mainly from Mesozoic clastic rock reservoir from the basin were chosen to perform QGF-E (Quantitative Grain Fluorescence on Extract) and QGF (Quantitative Grain Fluorescence) analysis. It was proved that the experimental procedure of QGF-E and QGF analysis is a simple, quick and low cost way. The results of QGF-E showed that the intervals where the samples were collected were once to be pathways of oil migration and/or transited carrying bed of hydrocarbons. The results of QGF indicated that only a little oil inclusions were formed in the reservoir analyzed for some reasons. This study suggests that QGF-E and QGF are able to readily delineate current and paleo-oil column, oil migration pathway, current oil-water and residual oil-water contacts as well as identifying existence of oil inclusions, which would be helpful in reconstructing process of hydrocarbons accumulation.

**Key words:** oil inclusion; QGF-E; QGF; fluorescence analysis; classic rock reservoir; the Hailaer Basin

在横向上则呈现多种型的结构。正是这样的盆地整体,特别是大型盆地,表现出结构上的多样性,生储组合的多相性和盆地不同部位油气聚集条件的可变性,因此必须进行各阶段的结构分析。由此,我们可以从盆地各种结构中按照不同的盆地沉降作用及其组成实体的演化关系划分出若干个单一的结构单元,而每一种结构都是同某一阶段沉降动力机制相关。这种单一的结构单元是一种构造形式,也是一个沉积实体。我们称之为盆地的‘原型’,并认为按地球动力学机制来区分和类比的应当是这些原型,而不是它们的组合——盆地”。何登发、贾承造、童晓光等(2004)的盆地概念为:“相应于盆地发展的某一个阶段(相当于一个构造层的形成时间),有相对稳定的大地构造环境(如构造背景与深部热体制),有某种占主导地位的沉降机制,有一套沉积充填组合,有一个确定的盆地边界(虽然此边界常常难以恢复),这样的盆地实体可以称作该阶段的‘盆地原型’(prototype)或‘原型盆地’”。

目前多数学者已认为:盆地原型是指单一的结构单元,是一种构造形式,也是一个沉积实体,而不是它们的组合——盆地。因此笔者建议:应使用盆地原型(basin prototype)一词,而不使用原型盆地一词,这样概念清晰,免去一些混乱。

(无锡石油地质研究所 高长林)