

四川盆地震旦—寒武系高演化烃源岩 无机地球化学特征与评价

施春华^{1, 2, 3}, 山述娇⁴, 郝靖⁵, 罗冰⁵, 曹剑³

1. 贵州大学 资源与环境工程学院, 贵阳 550025;

2. 贵州大学 喀斯特地质资源与环境教育部重点实验室, 贵阳 550025;

3. 南京大学 地球科学与工程学院, 南京 210023;

4. 中国石油 西南油气田分公司 勘探开发研究院, 成都 610041;

5. 中国石油 西南油气田分公司 重庆气矿, 重庆 401120

摘要:高演化烃源岩评价因有机质的损耗而使得传统有机地球化学参数逐渐失效,而烃源岩中的无机元素不易受成熟度的影响。为探索无机地球化学方法在高演化烃源岩评价中的应用,以四川盆地震旦—寒武系为例,基于无机(主量、微量和稀土元素)地球化学方法,从烃源岩发育的三大控制因素(古生产力、沉积环境和沉积速率)分析入手,开展了烃源岩无机地球化学研究。结果表明,综合运用Ba和Ni元素丰度确定烃源岩古生产力, Mo_{EF} 、 U_{EF} 、Ce异常特征确定沉积水体氧化—还原条件, TiO_2/Al_2O_3 比值确定沉积速率,揭示研究区烃源岩有机质富集主要受控于沉积环境与古生产力,而受沉积速率的影响相对较小;川中与威远—资阳地区下寒武统筇竹寺组烃源岩古生产力高、沉积环境最为还原,烃源岩质量最好,属于高生产力和好保存模式。无机地球化学方法是高演化烃源岩评价的一种有效途径。

关键词:高演化烃源岩;无机地球化学;生烃能力;烃源岩评价;震旦系;寒武系;四川盆地

中图分类号: TE122.115

文献标识码: A

Inorganic geochemical characteristics and evaluation of Sinian–Cambrian post-mature source rocks in Sichuan Basin

SHI Chunhua^{1, 2, 3}, SHAN Shujiao⁴, HAO Jing⁵, LUO Bing⁵, CAO Jian³

1. College of Resources and Environmental Engineering, Guizhou University, Guiyang, Guizhou 550025, China;

2. Key Laboratory of Karst Georesources and Environment, Ministry of Education, Guizhou University, Guiyang, Guizhou 550025, China;

3. School of Earth Sciences and Engineering, Nanjing University, Nanjing, Jiangsu 210023, China;

4. Exploration and Development Research Institute, PetroChina Southwest Oil and Gas Field Company, Chengdu, Sichuan 610041, China;

5. Chongqing Gas Mine, PetroChina Southwest Oil and Gas Field Company, Chongqing 401120, China

Abstract: The evaluation of post-mature source rocks gradually invalidates by traditional organic geochemical parameters due to the decreasing of organic matter abundance. However, the inorganic elements in source rocks are not easily affected by thermal evolution. In order to explore the application of inorganic geochemical methods in the evaluation of post-mature source rocks, this paper takes the Sinian–Cambrian source rocks in the Sichuan Basin as an example to conduct an evaluation based on the inorganic (major, trace and rare earth elements) geochemistry method with three controlling factors of source rock development (paleoproductivity, sedimentary environment and sedimentary rate). The concentration of Ba and Ni, Mo_{EF} and U_{EF} and Ce anomaly, and TiO_2/Al_2O_3 ratio could be correlated with paleoproductivity, sedimentary environment and sedimentary rate, respectively. The results showed that the enrichment of organic matter was mainly controlled by sedimentary environment and paleoproductivity, but are barely effected by sedimentary rate. Source rocks in the Lower Cambrian Qiongzhusi Formation in the central Sichuan and Weiyuan–Ziyang areas have high paleoproductivity and the most reduced environment and thus are one of the best quality source rocks. Therefore, inorganic geochemistry method is an effective way to evaluate postmature source rocks.

收稿日期: 2021-09-21; 修订日期: 2022-04-28。

作者简介: 施春华 (1988—), 男, 博士, 副教授, 从事有机地球化学研究。E-mail: c.h.shi@hotmail.com。

基金项目: 国家自然科学基金青年项目(41802145)和国家自然科学基金面上项目(42172089)资助。

Key words: post-mature source rock; inorganic geochemistry; hydrocarbon generation capacity; source rock evaluation; Sinian; Cambrian; Sichuan Basin

高演化烃源岩是指烃源岩有机质进入了高成熟演化阶段($R_o > 1.3\%$),此时烃源岩中残余有机质的碳含量、可溶有机质氯仿沥青、生烃潜量等逐步降低,难以反映烃源岩中有机质的原始特征,造成基于传统有机地球化学方法的烃源岩评价碰到了很大难题^[1]。考虑到沉积物中的有机质在形成、沉积和埋藏过程中与无机元素有着密切关联^[2-4],并且无机元素相对有机质不易受成熟度影响,在高演化阶段更为稳定^[5-6],因此无机地球化学参数是高演化烃源岩评价的一个潜在补充^[2-3,7-8]。众多学者就此展开了尝试,取得了研究进展^[7-8],如腾格尔等^[8]以鄂尔多斯盆地高演化海相碳酸盐岩为例,运用微量元素(如Ba元素)和稀土元素分析碳酸盐岩烃源岩形成过程中的生物生产力、沉积环境和沉积速率,评价了碳酸盐岩烃源岩及其分布特征。

四川盆地发育震旦—寒武系高演化烃源岩,为开展高演化烃源岩的无机地球化学评价提供了良好对象。前人^[9-10]根据烃源岩的宏观地质分布,结合一些有机地球化学参数,提出下寒武统筇竹寺组

烃源岩的生烃能力最大。此外,也有学者运用无机元素对烃源岩的古生产力、沉积环境、沉积速率开展了研究^[11-16],发现烃源岩中有机质的聚集受古生产力和沉积环境作用影响较大,总体认为合适的气候有利于提高古生产力,海侵作用有利于形成还原的沉积环境,进而有机质得到良好保存与富集。本文运用元素地球化学方法,进一步分析不同地区、不同层位烃源岩的生烃能力差异,旨在更全面认识不同烃源岩的生烃控制因素及差异,为准确理解研究区高演化烃源岩成因和天然气成藏机理提供参考,进一步探索无机地球化学方法在高演化烃源岩评价中的应用。

1 地质背景

四川盆地位于我国西南部,面积约 $18 \times 10^4 \text{ km}^2$,构造上属于扬子准地台的一个次级构造单元,是在前寒武纪扬子克拉通基底之上发育的一个典型叠合含油气盆地^[17-18](图1)。其地层由老至新以上三叠统为界两分,总体下部(上震旦统一中

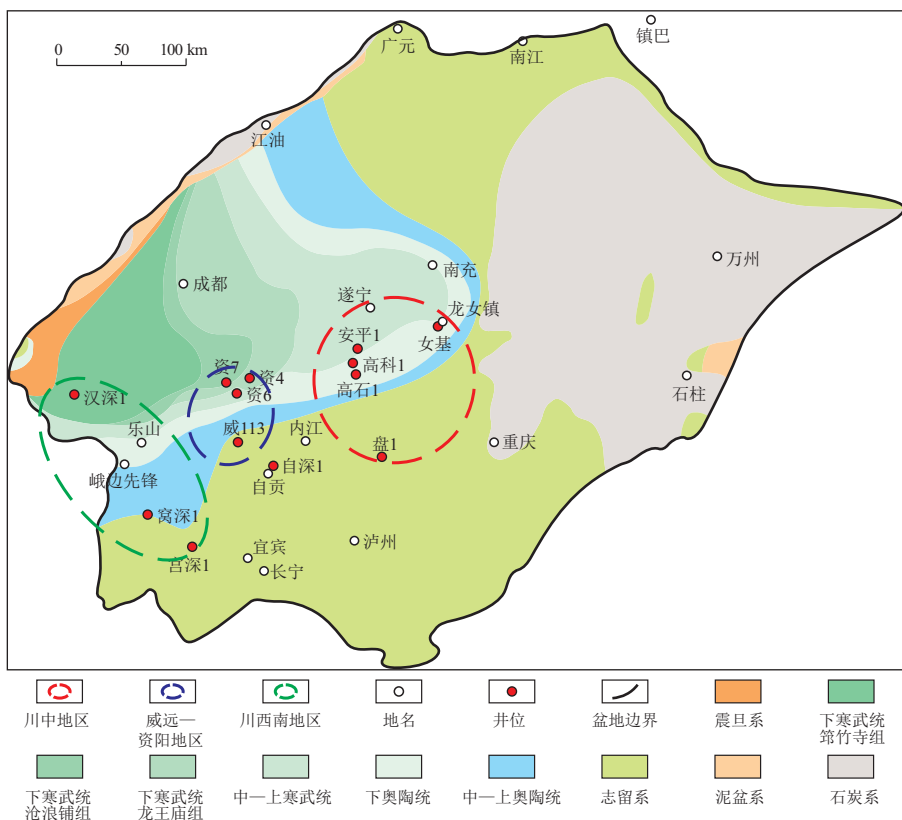


图1 四川盆地二叠系沉积前古地质图

部分修改自魏国齐等^[9]。

Fig.1 Geological map of pre-Permian sediments of Sichuan Basin

三叠统)以海相碳酸盐岩沉积为主;相比而言,上部(上三叠统至今)以陆相碎屑岩沉积为特征^[17-18]。从沉积背景看,研究区烃源岩可包括2类5套:2类指岩性包括泥质岩和碳酸盐岩;5套指层位上由老至新包括震旦系陡山沱组泥岩、震旦系灯影组藻云岩、灯影组三段(灯三段)泥岩、下寒武统麦地坪组泥质白云岩(或白云质泥岩、硅质岩)、下寒武统筇竹寺组泥页岩。这些烃源岩既有岩性差异,又有地区和时代差异,为开展对比研究奠定了良好基础。

2 样品与方法

根据2类5套潜在烃源岩的分布,结合当前勘探现状与样品积累情况,筛选了32块典型样品用于研究。其中,筇竹寺组、麦地坪组、灯影组及灯三段烃源岩样品采自盆地内部钻井岩心,陡山沱组烃源岩样品采自四川盆地西南部峨边先锋野外露头。进一步根据目前的勘探区划,将这些样品从平面上分为3个区:由北东至南西分别是川中、威远—资阳、川西南(图1)。需要说明的是,对于陡山沱组和川西南灯影组研究样品,因勘探程度低,故样品数量受到限制,后续待条件成熟可继续深化研究。

碳酸盐岩和泥页岩类样品中SiO₂含量测定使用碱熔方法,主要流程:称取100 mg样品于刚玉坩埚中,加入1 g Na₂O₂粉末,混合均匀后,加热至700℃左右熔融,冷却后经热水提取,HCl酸化,定容后使用ICP-OES测定(误差优于2%)。碳酸盐岩类样品中Si以外其余元素测定使用酸溶方法,主要流程:称取100 mg样品于离心管中,加入HNO₃超声溶解,离心后上层清液转移入另一离心管中,残渣转移入特氟龙溶样罐中,加入HF和HNO₃,185℃消解,蒸干后溶解于HNO₃中,与前述上层清液合并、定容,其中CaO与MgO含量使用EDTA络合滴定法测定(误差优于2%),其余元素使用ICP-MS测定(以Rh元素为内标,误差优于5%)。泥页岩类样品Si以外其余元素使用酸溶方法,主要流程:称取50 mg样品于特氟龙溶样罐中,加入HF后在电热板上加热除去大部分硅酸盐,加入HF和HNO₃,185℃消解,蒸干后溶解于HNO₃并定容,使用ICP-MS测定(以Rh元素为内标,误差优于5%)。以上分析在内生金属矿床成矿机制研究国家重点实验室(南京大学)完成。

3 高演化烃源岩元素地球化学特征与评价

前人研究提出古生产力、沉积环境与沉积速率

是控制烃源岩发育质量的重要因素,高生产力和还原环境有利于有机质聚集^[19]。相比而言,烃源岩沉积速率对质量的影响比较复杂,总体而言,在相同古生产力与保存条件下,沉积速率在一定范围内越大,越有利于有机质沉积、富集^[19];但在非常高的沉积速率下,由于大量碎屑物对有机质的稀释作用,尽管有机质得以保存,但大量的碎屑物降低了沉积物中有机质的丰度^[20]。此外,还有研究表明,在还原条件下,沉积速率对有机质的富集作用相对较弱,有机质富集主要受控于古生产力;而在氧化条件下,沉积速率对有机质的富集具有重要作用,有机质富集主要受控于古生产力与沉积速率^[19]。据此,本次工作在烃源岩元素地球化学分析结果的基础上,综合上述3个方面的结果评价烃源岩的质量。

3.1 古生产力特征

前人研究表明,沉积物中的Ba、Ni、P等元素含量可用来反映古生产力^[2-3],但在实际应用中需注意还会受到陆源碎屑物质和热液作用的影响,影响判识准确性^[2,21]。本次研究中,除灯影组藻云岩,其余烃源岩Eu/Eu*分布为0.83~1.02(均值0.93),Al/(Al+Fe+Mn)分布为0.25~0.85(均值0.65),反映未受热液作用影响;灯影组藻云岩中Eu/Eu*分布为1.11~2.05(均值1.52),Al/(Al+Fe+Mn)分布为0.08~0.46(均值0.18)(表1),反映存在少量热液作用。对比Ba元素、Ni元素与Eu/Eu*比值,两者均无正相关性,表明微弱的热液作用未影响Ba元素和Ni元素含量,因而本次研究中,热液作用的影响可以不考虑。

据此,本次研究中的Ba、Ni、P元素含量仅需消除陆源碎屑带来的影响。一般而言,碎屑沉积岩中,Ti与Zr元素主要来源于陆源碎屑物,不易受氧化还原作用或海水来源影响,故可以用于指示物源来源特征。本次样品Ti/Zr比值分布为7~33(均值21),依前人标准^[22],判断母岩来源为长英质源岩,故使用上地壳作为陆源碎屑来源参考。通过元素过剩量计算获得与古生产力相关的Ba、Ni和P的含量,公式为 $X_{\text{bio}} = X_{\text{样品}} - \text{Al}_{\text{样品}} \times (X/\text{Al})_{\text{陆源碎屑}}$,其中, X_{bio} 反映古生产力的指标, $X_{\text{样品}}$ 指样品中元素含量, $\text{Al}_{\text{样品}}$ 指样品中Al元素含量, $(X/\text{Al})_{\text{陆源碎屑}}$ 为陆源碎屑矿物中X元素与Al元素比值。本次研究中 $(X/\text{Al})_{\text{陆源碎屑}}$ 取上地壳的值。

3.1.1 钡元素

烃源岩的Ba元素分析结果如表1,研究区Ba_{bio}分布具有明显的层位特征。其中,陡山沱组泥

表 1 四川盆地震旦—寒武系高演化烃源岩研究样品基本信息及元素地球化学分析结果

Table 1 Sample information and element geochemical data of Sinian-Cambrian post-mature source rocks in Sichuan Basin

层位(岩性)	地区	井号	样品号	深度/m	$\omega(\text{TOC})/\%$	$\text{Al}_2\text{O}_3/\%$	$\text{Ba}/10^{-6}$	$\text{Ni}/10^{-6}$	Eu/Eu^*	$\text{Al}/(\text{Al}+\text{Fe}+\text{Mn})$	Ti/Zr	$\text{Ba}_{\text{bio}}/10^{-6}$	$\text{Ni}_{\text{bio}}/10^{-6}$	$(\text{P}_2\text{O}_5)_{\text{bio}}/\%$	Mo_{EF}	U_{EF}	Ce/Ce^*	$\text{TiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$		
筇竹寺组 (泥页岩)	川中	安平 1	1	5 030.0	1.93	11.0	727	64	0.93	0.71	21	329	50	0.10	55	10.3	-	0.076		
			2	5 031.1	2.24	11.1	926	76	0.90	0.70	20	524	61	0.10	37	10.5	-	0.071		
			3	5 033.2	1.84	13.8	863	70	0.88	0.68	22	364	52	0.06	24	7.1	-	0.058		
			4	5 035.1	1.46	14.2	799	71	0.83	0.71	20	285	52	0.04	25	6.9	-	0.057		
	威远— 资阳	资 4	5	4 224.5	1.91	12.9	1 050	140	0.97	0.68	19	583	123	0.07	24	7.1	-	0.056		
			6	4 238.1	2.36	14.4	1 140	93	0.92	0.66	19	619	74	0.06	30	7.8	-	0.055		
			7	4 265.4	1.15	9.4	723	34	0.94	0.85	21	383	22	0.00	12	9.0	-	0.049		
			8	5 103.5	0.40	14.4	918	47	0.97	0.68	27	397	28	0.08	5.3	2.0	-	0.054		
	川西南	汉深 1	9	5 106.2	0.33	14.3	937	48	0.98	0.69	27	420	29	0.06	3.8	1.8	-	0.052		
			10	5 106.9	0.42	14.2	1 060	47	0.94	0.66	25	546	28	0.05	4.5	1.7	-	0.052		
			11	5 109.1	0.33	13.6	1 090	46	0.96	0.72	22	598	28	0.04	4.4	1.8	-	0.051		
			12	5 110.5	0.52	14.6	978	47	0.91	0.72	24	450	28	0.06	7.4	2.3	-	0.055		
麦地坪组 (泥质白云岩)	威远— 资阳	资 4	13	4 296.1	0.86	0.50	416	27.3	0.95	0.45	24	398	27	6.59	-	-	-	0.086		
			14	4 341.3	1.21	0.65	131	39	0.95	0.66	19	107	38	0.53	-	-	-	0.044		
			7	3 930.9	1.40	1.81	659	27.9	0.94	0.64	20	594	26	7.68	-	-	-	0.051		
	川西南	汉深 1	16	5 128.5	0.42	8.2	689	26.4	0.90	0.64	24	392	16	7.19	1.8	5.4	-	0.054		
			17	5 130.2	0.40	5.4	380	25.4	0.93	0.61	24	185	18	2.66	7.7	3.8	-	0.044		
			18	5 131.3	0.52	0.49	33	21.1	0.95	0.25	33	15	20	0.56	-	-	-	0.050		
灯影组三段 (泥岩)	川中	高科 1	19	5 351.9	1.49	9.9	772	57	0.89	0.62	23	414	44	2.62	4.8	4.1	-	0.054		
			20	5 353.3	0.68	12.1	762	74	0.88	0.64	23	324	58	2.35	5.8	4.0	-	0.053		
			21	5 355.7	0.56	5.3	435	38	0.95	0.64	23	243	31	1.28	6.2	4.8	-	0.055		
			22	5 356.2	1.40	13.1	997	56	0.86	0.66	20	523	39	2.28	3.7	3.2	-	0.051		
			23	5 357.0	0.58	3.4	317	27.8	0.97	0.63	16	194	23	1.73	4.7	4.3	-	0.054		
			24	5 357.6	1.37	8.7	676	42	0.93	0.64	22	361	31	1.67	4.8	3.1	-	0.057		
灯影组 (藻云岩)	川中	高石 1	25	4 976.6	0.03	0.052	81	15.3	1.41	0.09	22	79	15	0.04	-	-	0.77	-		
			高科 1	26	5 150.5	0.74	0.031	128	15.9	1.11	0.11	25	127	16	0.15	-	-	0.59	-	
			安平 1	27	5 062.9	0.96	0.023	11.1	14.0	2.01	0.08	23	10	14	0.02	-	-	0.80	-	
			盘 1	28	5 620.4	1.53	0.38	163	16.1	1.22	0.46	15	149	16	0.17	-	-	0.36	-	
			威远— 资阳	资 6	29	3 678.6	0.99	0.072	36	19.7	1.38	0.11	14	33	20	0.10	-	-	0.66	-
			威 113	30	3 118.9	0.36	0.054	29.5	16.9	2.05	0.17	7	28	17	0.05	-	-	0.84	-	
川西南	自深 1	31	5 428.1	0.05	0.065	33	15.8	1.48	0.21	9	31	16	0.03	-	-	0.85	-			
陡山沱组(泥岩)	川西南	先锋 32	露头样	1.71	13.0	1 070	47	1.02	0.62	28	600	30	0.42	4.9	2.8	-	0.058			

注:有机碳含量数据引用自 SHI 等^[10];“-”表示未计算该值。

岩最高,为 600×10^{-6} ; 筇竹寺组泥页岩其次(川中地区均值为 376×10^{-6} , 威远—资阳地区均值为 528×10^{-6} , 川西南地区均值为 482×10^{-6}); 灯三段泥岩(均值为 343×10^{-6})与麦地坪组泥质白云岩(威远—资阳地区均值为 366×10^{-6} , 川西南地区均值为 197×10^{-6})第三; 而灯影组藻云岩最差(川中地区均值为 91×10^{-6} , 威远—资阳地区均值为 31×10^{-6} , 川西南地区均值为 31×10^{-6})。可见,由 Ba 元素记录的古生产力特征表现为陡山沱组与筇竹寺组最好,其次为灯三段与麦地坪组,灯影组(藻云岩层)最差。

3.1.2 镍元素

烃源岩的 Ni 元素含量分析结果见表 1, 层位上, 筇竹寺组泥页岩 Ni_{bio} 最高(川中地区均值为 54×10^{-6} , 威远—资阳地区均值为 73×10^{-6} , 川西南地区均值为 28×10^{-6}), 灯三段泥岩(均值为 38×10^{-6})、陡山沱组泥岩(均值为 30×10^{-6})与麦地坪组泥质白云岩(威远—资阳地区均值为 30×10^{-6} , 川西南地区均值为 18×10^{-6})其次, 灯影组藻云岩(川中地区均值为 15×10^{-6} , 威远—资阳地区均值为 19×10^{-6} , 川西南地区均值为 16×10^{-6})最差; 区域上, 威远—资

阳地区和川中地区好, 而川西南地区差。

与 Ba 元素特征对比, 层位上, Ba 元素含量陡山沱组最好, 筇竹寺组次之, 而 Ni 元素显示筇竹寺组最好, 陡山沱组次之, 这可能与还原的沉积环境特征有关。3.2 节中讨论发现川中与威远—资阳地区筇竹寺组最为还原, 故筇竹寺组泥页岩沉积过程中, Ba 元素可能由于强还原特征, 导致 Ba 元素溶解而含量降低^[23](图 2a)。也就是说, Ni 元素和 Ba 元素的分析认识有各自的适用条件。

区域上, Ba 元素特征显示不同区域无明显差异, 而 Ni 元素特征则显示川西南地区相对差, 这可能与沉积物中 Ni 元素的固定富集机理有关。通常认为 Ni 可以与有机质以有机结合态形式富集, 在沉积埋藏过程中, 若有机质分解, Ni 元素会从沉积物中释放并转换为离子形式, 此时需要在硫化条件下, Ni 进入硫化物矿物中, 或以硫化物形式富集固定, 否则 Ni 元素会以离子形式重新进入上层水体中, 导致无法准确指示原始有机质丰度, 即生物古生产力^[2-3, 24]。3.2 节中讨论发现, 川西南地区总体沉积体系硫化程度低, 故 Ni 元素的固定作用

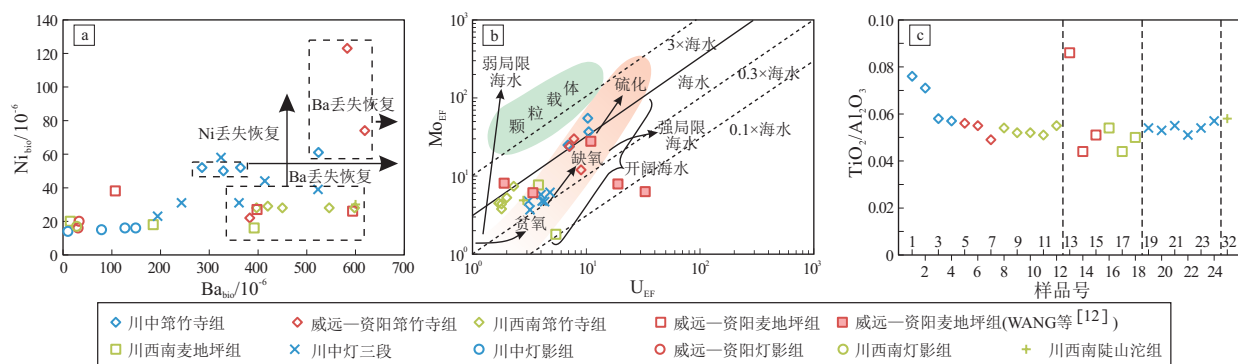


图2 四川盆地震旦—寒武系高演化烃源岩无机地球化学参数特征

a. Ba_{bio} 和 Ni_{bio} 特征; b. U—Mo 协变关系 (图版据 TRIBOVILLARD 等^[4]); c. TiO_2/Al_2O_3 比值特征

Fig.2 Inorganic geochemical parameters of Sinian-Cambrian post-mature source rocks in Sichuan Basin

受到影响,导致 Ni 元素含量相对较低(图 2a)。因而,川西南地区烃源岩古生产力比现有 Ni_{bio} 所指示特征更好,需综合分析确定研究区古生产力特征。

3.1.3 磷元素

烃源岩的 P 元素含量分析结果见表 1,结果表明 P 元素区域差异小,层位差异大。其中,麦地坪组最高,威远—资阳地区与川西南地区(P_2O_5)_{bio} 均值分别为 4.9% 和 3.5%;其次为灯三段泥岩(均值 2.0%)、陡山沱组泥岩(均值 0.42%)、筇竹寺组泥页岩(均值 0.06%)、灯影组藻云岩(均值 0.08%)。但 P 元素可能不适用于研究区烃源岩古生产力的恢复,如以含量最高的麦地坪组为例,其 P 元素以磷灰石形式存在^[25-26],寒武纪初期扬子地台西缘处于低纬度的热带、亚热带,当时上升洋流把磷元素从深部带入到古陆的边缘浅海部位,促使了这一层位磷元素的大量富集^[25],因此大量磷元素的富集并不仅仅是有机质生命活动中的富集作用。

综上所述,在前人提出的 Ba、Ni、P 等古生产力参数中,P 元素受沉积环境、后期地质演化作用最大,应用受到限制,不适用于本次研究^[3]。相比而言,Ba 和 Ni 元素都可以反映古生产力特征。Ba 元素可以指示除川中地区和威远—资阳地区筇竹寺组外的烃源岩古生产力,而 Ni 元素可以指示除川西南地区外的烃源岩古生产力。据此,综合 Ba 元素和 Ni 元素所指示的古生产力特征,认为研究区筇竹寺组和陡山沱组古生产力最高,其次为灯三段与麦地坪组,而灯影组(藻云岩层)古生产力最低;不同区域古生产力存在差异较小,以威远—资阳地区最好,川中次之,川西南相对最差。

3.2 沉积环境特征

3.2.1 Mo_{EF} 和 U_{EF} 的特征及其指示的泥质岩沉积环境

TRIBOVILLARD 等^[4] 和 ALGEO 等^[27] 提出,

Mo_{EF} — U_{EF} 协变特征可以确定黑色页岩的贫氧、缺氧或硫化特征, Mo_{EF} 和 U_{EF} 分别指 Mo 元素和 U 元素的富集系数,依据 TRIBOVILLARD 等^[4] 提出的公式 $X_{EF} = (X/Al)_{\text{样品}} / (X/Al)_{\text{PAAS}}$ 确定。如图 2b,本次研究川中地区和威远—资阳地区筇竹寺组泥页岩的 Mo_{EF} 和 U_{EF} 最高,分别为 12~55(均值 30) 和 6.9~10.5(均值 8.4),而其他地区层位低。据此,川中地区和威远—资阳地区筇竹寺组烃源岩的沉积环境主要为缺氧—硫化带。

3.2.2 铈异常特征及其指示的碳酸盐岩沉积环境

在碳酸盐岩中,可依据 Ce 元素异常特征确定碳酸盐岩形成过程中海水的氧化还原特征^[28-29]。在氧化性海水体系中,海水中 Ce^{3+} 被氧化成 Ce^{4+} ,形成不溶的 Ce 的氢氧化物或氧化物并脱离海水体系,导致海水呈现 Ce 负异常特征^[30]。研究区灯影组藻云岩中 Ce 异常(Ce/Ce^*) 为 0.36~0.85(均值 0.70),反映氧化—还原条件复杂,既有弱氧化—一次氧化,也有氧化的环境。

综上所述,可以认为灯影组(藻云岩层)在各地地区(川中、威远—资阳、川西南)均还原程度最弱,为氧化—一次氧化环境,其余层位均为还原环境。具体而言,川西南筇竹寺组和麦地坪组烃源岩为贫氧、弱局限的海水环境,川中灯三段及川西南陡山沱组烃源岩为贫氧—缺氧沉积环境,川中筇竹寺组与威远—资阳筇竹寺组烃源岩为缺氧—硫化沉积环境,硫化程度相对高。

3.3 沉积速率特征

3.3.1 TiO_2/Al_2O_3 值特征及其指示的泥质岩沉积速率

泥质岩的 TiO_2/Al_2O_3 比值可以用于表征沉积过程中沉积速率的相对强弱^[31]。这是因为 Al 元素一般赋存在黏土矿物、长石等矿物中,Ti 元素主要赋存在粉砂级颗粒重矿物中^[32],故 TiO_2/Al_2O_3

值是碎屑粒径的可靠指标,高的比值指示相对大的碎屑颗粒,而陆源碎屑的沉积速率与颗粒粒度呈正相关关系,因此可以依据 TiO_2/Al_2O_3 比值推测沉积速率的相对大小^[31],即随 TiO_2/Al_2O_3 值越大,沉积速率越大。

本次研究中泥质烃源岩 TiO_2/Al_2O_3 值的分布特征如表 1 和图 2c,总体分布相近。其中,川中地区筇竹寺组烃源岩的 TiO_2/Al_2O_3 比值最高,均值为 0.066,其次为威远—资阳地区麦地坪组和川西南地区陡山沱组烃源岩,均值分别为 0.060 和 0.058。不同地区、不同层位烃源岩的沉积速率存在一些较小差异,总体以川中地区筇竹寺组最快。

3.3.2 碳酸盐岩类沉积速率

碳酸盐岩类与泥质岩类的沉积速率存在较大差异,如本次研究的藻云岩,主要受控于藻类的生长环境和生长速率,不同于泥质岩类主要来源于碎屑物质搬运沉积成岩的特征。刘建良等^[33]通过计算模拟研究,确定台地相碳酸盐岩生长速率可达 500 m/Ma,斜坡相碳酸盐岩生长速率可达 100 m/Ma,而黑色页岩或泥岩类的沉积速率一般在数 m/Ma^[34],据此,研究区灯影组的藻云岩沉积速率应是最快的。

综上所述,研究区不同区域沉积速率差异不明显,而层位上以灯影组藻云岩沉积速率最快,其余层位差异小,以川中筇竹寺组沉积速率最快。

3.4 烃源岩质量评价

综合上述,对四川盆地震旦—寒武系高演化烃源岩从无机地球化学角度进行了综合评价,依质量高低如下:(1)川中与威远—资阳地区筇竹寺组烃源岩质量最好,表现在古生产力高、沉积环境最为还原(缺氧—硫化,硫化程度相对高)、沉积速率相对快;(2)川西南地区陡山沱组烃源岩质量好,表现在古生产力高、沉积环境还原(贫氧—缺氧)、沉积速率相对慢;(3)川中地区灯三段及威远—资阳地区麦地坪组烃源岩质量中等,表现在古生产力中等、沉积环境还原(贫氧—缺氧)、沉积速率相对慢;(4)川西南地区筇竹寺组和麦地坪组烃源岩质量差,表现在古生产力低、沉积环境还原(贫氧)、沉积速率相对慢;(5)灯影组藻云岩烃源岩质量差,表现在古生产力低、沉积环境氧化—一次氧化、沉积速率最快。

3.5 烃源岩有机质富集控制因素

分析烃源岩无机地球化学参数与有机质丰度之间的关系,以确定有机质富集的控制因素。古生产力方面,筇竹寺组和麦地坪组烃源岩中有机碳含

量与 Ni_{bio} 呈现正相关趋势(图 3a-b),灯三段泥岩和灯影组藻云岩烃源岩中有机碳含量与 Ba_{bio} 呈现正相关趋势(图 3c-d)。筇竹寺组和麦地坪组烃源岩中有机质丰度与 Ba_{bio} 无明显相关特征,反映 Ba 元素在强还原环境中由于重晶石颗粒溶解,导致 Ba 元素含量降低,因而无法准确反映古生产力特征,导致有机质丰度和 Ba 元素相关趋势弱。灯三段泥岩和灯影组藻云岩烃源岩中有机质丰度与 Ni_{bio} 无明显相关特征,反映 Ni 元素在弱还原条件下由于硫化条件弱,导致部分 Ni 元素流失,故有机质丰度与 Ni 元素相关趋势弱。综合 Ba、Ni 元素与有机质丰度的关系,认为研究区古生产力对有机质丰度具有重要的控制作用。

沉积环境方面,筇竹寺组烃源岩的有机碳含量与 Mo_{EF} 、 U_{EF} 均呈现出正相关特征(图 3e-f),麦地坪组烃源岩的有机碳含量与 Mo_{EF} 呈现出正相关特征(图 3g),表明沉积环境是控制有机质丰度的重要因素。如川西南地区筇竹寺组和麦地坪组烃源岩沉积环境还原程度相对最弱,对有机质的保存不利,因此该区烃源岩质量相对最差。灯三段泥岩烃源岩有机碳与 Mo_{EF} 、 U_{EF} 均呈现负相关特征(图 3h-i),灯影组藻云岩烃源岩有机碳含量与 Ce/Ce^* 呈现负相关特征(图 3j),这反映水体呈现弱氧化—贫氧环境时,水体中氧含量降低,限制了藻类的生长发育,降低了生物古生产力。因此,灯三段泥岩、灯影组藻云岩烃源岩的有机质丰度主要受控于古生产力。

沉积速率方面,如前所述,灯影组藻云岩烃源岩沉积速率远大于其他烃源岩,但有机质丰度却较小,反映在藻云岩体系中,沉积速率对有机质丰度并无影响,或者说是负面影响。对泥质岩的沉积速率参数和有机碳含量进行了对比,发现筇竹寺组烃源岩具有一定的正相关趋势(图 3k),反映沉积速率对筇竹寺组烃源岩的有机质丰度有一定影响。但总体而言,鉴于研究区泥质岩类沉积速率相近,说明其对有机质丰度影响程度不大。

综合上述,可以认为研究区震旦系—下寒武统 5 套烃源岩中的有机质富集主要受控于沉积环境与古生产力,而沉积速率对有机质的富集影响相对较小。不同层位烃源岩存在差异,其中,筇竹寺组和麦地坪组烃源岩的有机质富集主要受控于古生产力和沉积环境,而沉积速率作用小;灯三段泥岩和灯影组藻云岩烃源岩的有机质富集主要受控于古生产力,不受沉积速率影响,次氧化的水体环境不利于藻类繁殖,限制了古生产力。

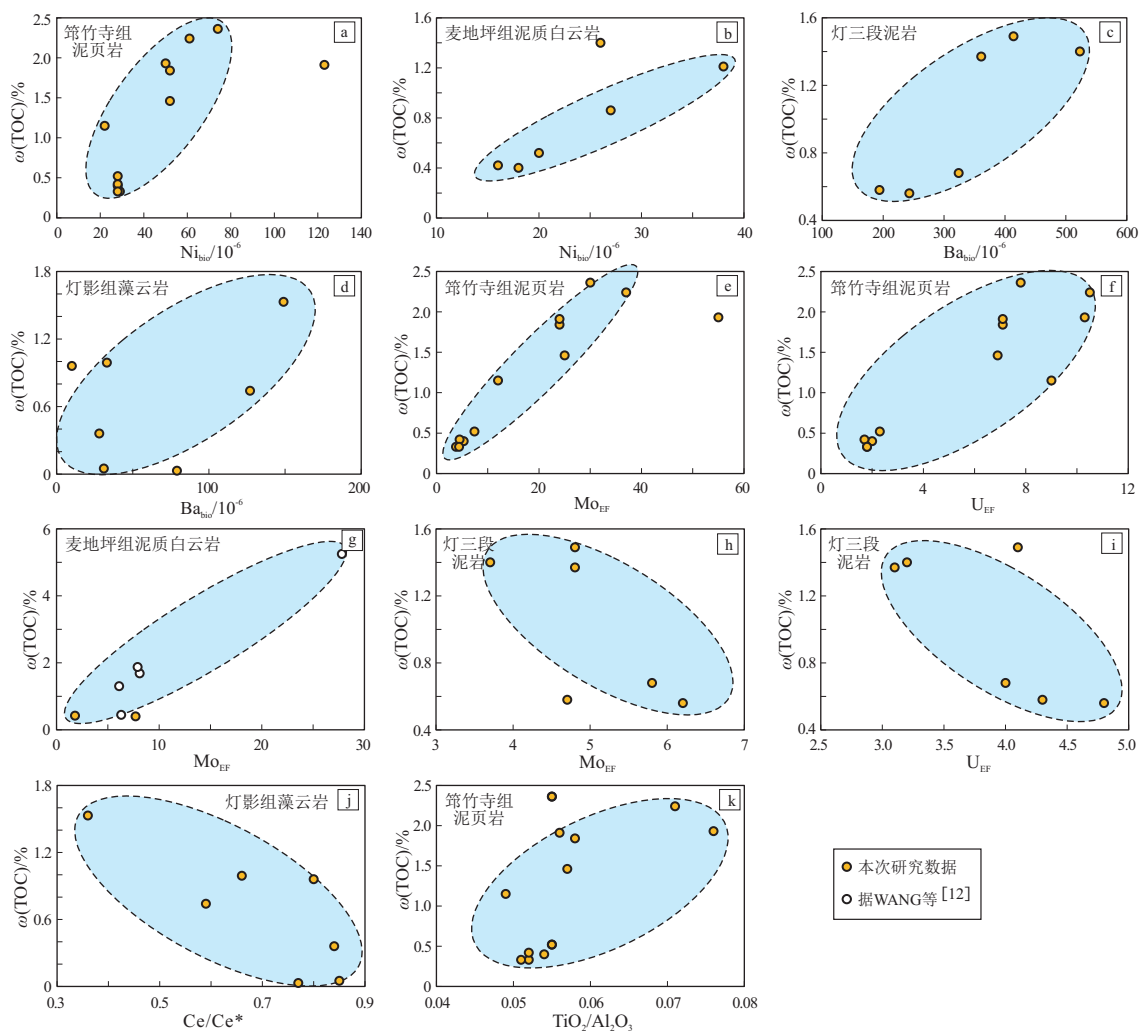


图 3 四川盆地震旦—寒武系不同层位烃源岩古生产力、沉积环境、沉积速率参数与 TOC 相关关系

Fig.3 Correlation between paleoproductivity, sedimentary environment, sedimentary rate parameters and TOC of source rocks of different formations in Sichuan Basin

4 烃源岩发育模式

基于上述烃源岩发育特征的研究结果,结合地质背景,建立了本次研究 5 套烃源岩的沉积模式(图 4)。

陡山沱组由下至上四分,其中陡一段沉积时期四川盆地为古陆,未有沉积;陡二段沉积时期,中—上扬子区广泛海侵,四川盆地总体处于滨岸—陆棚相沉积环境,以砂岩、泥页岩类沉积为主;陡三段沉积时期,四川盆地总体为局限—半局限台地环境,以碳酸盐岩沉积为主;陡四段沉积时期,四川盆地海退导致盆地内部陡四段剥蚀或未有沉积^[13,15,35]。可见,陡二段发育富有机质黑色泥页岩类(图 4a),该时期内海洋中菌藻类繁盛,古生产力高,沉积环境还原,有利于有机质的保存,在盆地内部形成黑色泥岩沉积。

灯影组与陡山沱组一样,由下至上四分,其中

灯一和灯二段沉积时期整个四川盆地主体为台地相沉积^[36](图 4b)。该时期海洋中菌藻类发育,古生产力中等,水体深度浅,呈现富氧—部分贫氧特征,藻云岩中有机质含量总体较低,主要受控于古生产力。灯二段沉积末期发生的桐湾运动 I 幕,导致区域性海退,灯二段部分遭受剥蚀^[36-37]。在灯三段沉积时期,随着拉张作用的加强,早期发生了一次大规模海侵,川中地区形成了陆棚相沉积环境^[36-37](图 4c),出现碎屑岩类沉积。该时期古生产力中等,沉积环境为贫氧—缺氧,形成富有机质的黑色泥岩,有机质丰度主要受控于古生产力。灯四段与灯一、灯二段沉积时期类似(图 4b),主体为台地相沉积,有机质富集过程及受控因素相似。灯四段沉积末期,桐湾 II 幕运动的地层抬升,导致灯四段部分遭受剥蚀,与上覆下寒武统呈假整合接触^[37]。

麦地坪组沉积时期(图 4d),四川盆地再次受

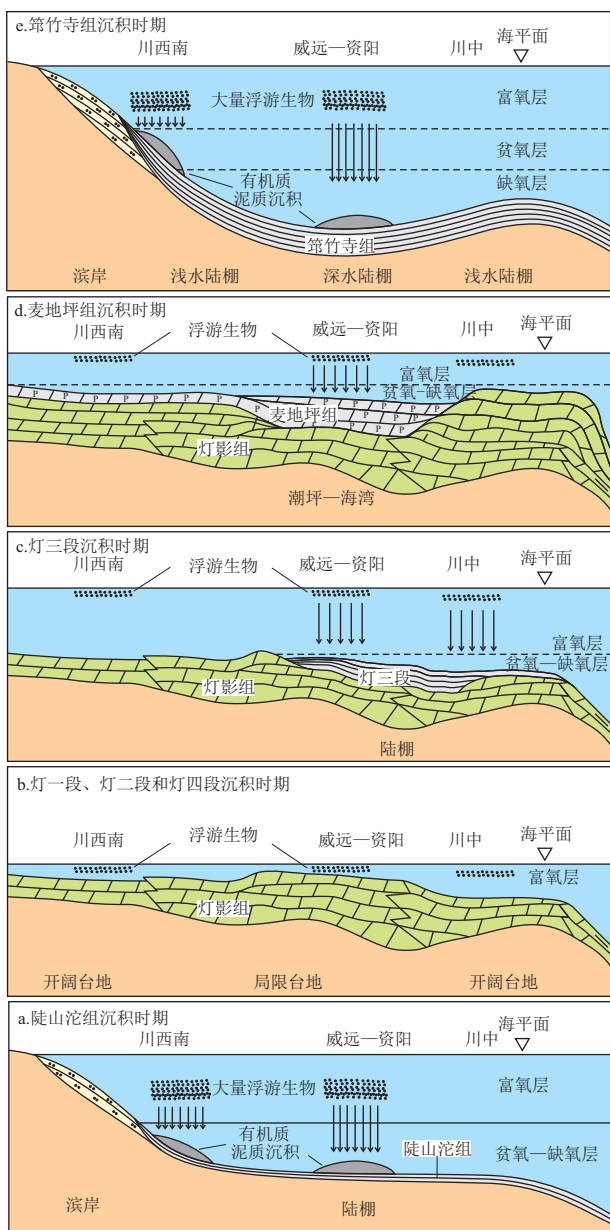


图 4 四川盆地震旦—寒武系 5 套烃源岩发育模式
沉积格架据中石油西南油气田公司资料综合编制。

Fig.4 Development models of five Sinian-Cambrian source rocks in Sichuan Basin

海侵影响,部分区域形成潮坪海湾相沉积^[36-37]。该时期海洋中菌藻类繁盛,古生产力中等,沉积环境还原,有利于有机质的保存,在盆地内部分区域形成富有机质的泥质白云岩沉积。同时,由于断裂或者海盆内带来大量磷元素,因此白云岩沉积中还含有磷结核。

在筇竹寺组沉积时期(图 4e),由于海侵作用增强,四川盆地总体处于滨岸—陆棚相沉积环境^[36-37]。该时期扬子地区处于低纬度,光照条件好,水底营养元素充足,因而水体中藻类与细菌类繁盛,古生产力高;藻类死亡形成有机质后,沉积于

水底中,与来自古陆的陆源碎屑混合,逐渐形成富有机质沉积物。沉积环境存在地区差异,川西南地区处于贫氧区域,含氧量相对高,因而不利于有机质的保存;而川中地区、威远—资阳地区处于缺氧区域,含氧量低,有利于有机质保存。

5 结论

(1)四川盆地震旦—寒武系 5 套高演化烃源岩中有机质富集主要受控于沉积环境与古生产力,相比而言,沉积速率对有机质富集的影响较小。川中和威远—资阳地区的筇竹寺组,由于古生产力高、有机质来源丰富、在后期埋藏过程中保存环境还原,使得有利于形成良好质量的烃源岩,属于高生产力加好保存模式。

(2)无机(元素)地球化学方法是高演化烃源岩评价的良好途径。在四川盆地震旦—寒武系高演化烃源岩中,该方法可用于反演烃源岩的古生产力、沉积环境和沉积速率,典型参数是古生产力的 Ba 和 Ni 元素、古环境的 Mo_{EF} 、 U_{EF} 及 Ce 异常和沉积速率的 TiO_2/Al_2O_3 比值。

参考文献:

- [1] 程克明,王兆云.高成熟和过成熟海相碳酸盐岩生烃条件评价方法研究[J].中国科学(D辑 地球科学),1996,26(6):537-543.
CHENG Keming,WANG Zhaoyun.An evaluation method of hydrocarbon generating potential of highly mature and over-mature marine carbonate[J].Science in China (Series D Earth Sciences),1997,40(1):81-90.
- [2] ALGEO T J,MAYNARD J B.Trace-element behavior and redox facies in core shales of Upper Pennsylvanian Kansas-type cyclothems[J].Chemical Geology,2004,206:289-318.
- [3] TRIBOVILLARD N,ALGEO T J,LYONS T,et al.Trace metals as paleoredox and paleoproductivity proxies: an update[J].Chemical Geology,2006,232:12-32.
- [4] TRIBOVILLARD N,ALGEO T J,BAUDIN F,et al.Analysis of marine environmental conditions based on molybdenum-uranium covariation; applications to Mesozoic paleoceanography[J].Chemical Geology,2012,324/325:46-58.
- [5] LEWAN M D.Factors controlling the proportionality of vanadium to nickel in crude oils[J].Geochimica et Cosmochimica Acta,1984,48:2231-2238.
- [6] PARNELL J.Metal enrichment in bitumens from Carboniferous-hosted ore deposits of the British Isles[J].Chemical Geology,1992,99:115-124.
- [7] 腾格尔,刘文汇,徐永昌,等.无机地球化学参数与有效烃源岩发育环境的相关研究[J].地球科学进展,2005,20(2):193-200.
TENGER,LIU Wenhui,XU Yongchang,et al.Correlative study

- on parameters of inorganic geochemistry and hydrocarbon source rocks formative environment [J]. *Advances in Earth Science*, 2005, 20(2): 193–200.
- [8] 腾格尔, 刘文汇, 徐永昌, 等. 高演化海相碳酸盐烃源岩地球化学综合判识: 以鄂尔多斯盆地为例 [J]. *中国科学 (D 辑 地球科学)*, 2006, 36(2): 167–176.
- TENGER, LIU Wenhui, XU Yongchang, et al. Comprehensive geochemical identification of highly evolved marine carbonate rocks as hydrocarbon-source rocks as exemplified by the Ordos Basin [J]. *Science in China (Series D Earth Sciences)*, 2006, 49(4): 384–396.
- [9] 魏国齐, 沈平, 杨威, 等. 四川盆地震旦系大气田形成条件与勘探远景区 [J]. *石油勘探与开发*, 2013, 40(2): 129–138.
- WEI Guoqi, SHEN Ping, YANG Wei, et al. Formation conditions and exploration prospects of Sinian large gas fields, Sichuan Basin [J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2013, 40(2): 139–149.
- [10] SHI Chunhua, CAO Jian, TAN Xiucheng, et al. Hydrocarbon generation capability of Sinian–Lower Cambrian shale, mudstone and carbonate rocks in the Sichuan Basin, southwestern China: implications for contributions to the giant Sinian Dengying natural gas accumulation [J]. *AAPG Bulletin*, 2018, 102(5): 817–853.
- [11] WANG Shufang, ZOU Caineng, DONG Dazhong, et al. Multiple controls on the paleoenvironment of the Early Cambrian marine black shales in the Sichuan Basin, SW China: geochemical and organic carbon isotopic evidence [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2015, 66: 660–672.
- [12] WANG Ning, LI Meijun, TIAN Xingwang, et al. Climate-ocean control on the depositional watermass conditions and organic matter enrichment in lower Cambrian black shale in the Upper Yangtze Platform [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2020, 120: 104570.
- [13] XIAO Wenyao, CAO Jian, LUO Bing, et al. Marinoan glacial aftermath in South China: paleo-environmental evolution and organic carbon accumulation in the Doushantuo shales [J]. *Chemical Geology*, 2020, 555: 119838.
- [14] GAO Ping, LI Shuangjian, LASH G G, et al. Stratigraphic framework, redox history, and organic matter accumulation of an Early Cambrian intraplatform basin on the Yangtze Platform, South China [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2021, 130: 105095.
- [15] XIAO Di, CAO Jian, LUO Bing, et al. Neoproterozoic postglacial paleoenvironment and hydrocarbon potential: a review and new insights from the Doushantuo Formation Sichuan Basin, China [J]. *Earth-Science Reviews*, 2021, 212: 103453.
- [16] 周国晓, 魏国齐, 胡国艺, 等. 四川盆地早寒武世裂陷槽西部页岩发育背景与有机质富集 [J]. *天然气地球科学*, 2020, 31(4): 498–506.
- ZHOU Guoxiao, WEI Guoqi, HU Guoyi, et al. The development setting and the organic matter enrichment of the Lower Cambrian shales from the western rift trough in Sichuan Basin [J]. *Natural Gas Geoscience*, 2020, 31(4): 498–506.
- [17] 杨雨, 曾云贤, 刘微. 川东北部地区飞仙关组沉积相对鲕滩储层分布的控制 [J]. *天然气勘探与开发*, 2002, 25(3): 1–9.
- YANG Yu, ZENG Yunxian, LIU Wei. The control of Feixianguan Formation's sedimentary facies to oolitic beach reservoir in northeast Sichuan Basin [J]. *Natural Gas Exploration and Development*, 2002, 25(3): 1–9.
- [18] 徐春春, 李俊良, 姚宴波, 等. 中国海相油气田勘探实例之八: 四川盆地磨溪气田嘉二气藏的勘探与发现 [J]. *海相油气地质*, 2006, 11(4): 54–61.
- XU Chunchun, LI Junliang, YAO Yanbo, et al. Cases of discovery and exploration of marine fields in China (part 8): Triassic T_{3j2} reservoir of Moxi gas field in Sichuan Basin: marine origin [J]. *Petroleum Geology*, 2006, 11(4): 54–61.
- [19] KATZ B J. Controlling factors on source rock development: a review of productivity, preservation, and sedimentation rate [J]. *SEPM Special Publication*, 2005, 82: 7–16.
- [20] TYSON R V. Sedimentation rate, dilution, preservation and total organic carbon: some results of a modelling study [J]. *Organic Geochemistry*, 2001, 32: 333–339.
- [21] DICK G J, ANANTHARAMAN K, BAKER B J, et al. The microbiology of deep-sea hydrothermal vent plumes: ecological and biogeographic linkages to seafloor and water column habitats [J]. *Frontiers in Microbiology*, 2013, 4: 124.
- [22] HUNTSMAN-MAPILA P, KAMPUNZU A B, VINK B, et al. Cryptic indicators of provenance from the geochemistry of the Okavango Delta sediments, Botswana [J]. *Sedimentary Geology*, 2005, 174: 123–148.
- [23] SCHOEPPFER S D, SHEN J, WEI H, et al. Total organic carbon, organic phosphorus, and biogenic barium fluxes as proxies for paleomarine productivity [J]. *Earth-Science Reviews*, 2015, 149: 23–52.
- [24] PIPER D Z, PERKINS R B. A modern vs. Permian black shale: the hydrography, primary productivity, and water-column chemistry of deposition [J]. *Chemical Geology*, 2004, 206: 177–197.
- [25] 马叶倩. 峨嵋高桥麦地坪组磷元素富集与小壳生物演化关系 [D]. 成都: 成都理工大学, 2008.
- MA Yeqing. Relationships between concentration of phosphorus and evolutionary of small shelly faunas from the Cambrian Maidiping Formation in Emei, Sichuan Province [D]. Chengdu: Chengdu University of Technology, 2008.
- [26] SHI Chunhua, CAO Jian, LUO Bing, et al. Major elements trace hydrocarbon sources in over-mature petroleum systems: insights from the Sinian Sichuan Basin, China [J]. *Precambrian Research*, 2020, 343: 105726.
- [27] ALGEO T J, TRIBOVILLARD N. Environmental analysis of paleoceanographic systems based on molybdenum-uranium covariation [J]. *Chemical Geology*, 2009, 268: 211–225.
- [28] WEBB G E, KAMBER B S. Rare earth elements in Holocene reefal microbialites: a new shallow seawater proxy [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2000, 64: 1557–1565.
- [29] TOSTEVIN R, SHIELDS G A, TARBUCK G M, et al. Effective use of cerium anomalies as a redox proxy in carbonate-dominated marine settings [J]. *Chemical Geology*, 2016, 438: 146–162.
- [30] TANAKA K, TANI Y, TAKAHASHI Y, et al. A specific Ce oxidation process during sorption of rare earth elements on biogenic Mn

- oxide produced by *Acremonium* sp. strain KR21-2[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2010, 74:5463-5477.
- [31] MURPHY A E, SAGEMAN B B, HOLLANDER D J, et al. Black shale deposition and faunal overturn in the Devonian Appalachian Basin: clastic starvation, seasonal water-column mixing, and efficient biolimiting nutrient recycling [J]. *Paleoceanography*, 2000, 15:280-291.
- [32] RIMMER S M, THOMPSON J A, GOODNIGHT S A. Multiple controls on the preservation of organic matter in Devonian-Mississippian marine black shales: geochemical and petrographic evidence [J]. *Palaeogeography, Palaeoclimatology, Palaeoecology*, 2004, 215:125-154.
- [33] 刘建良, 刘可禹. 碳酸盐岩地层完整性分析及其影响因素定量评价: 来自地层正演模拟的启示 [J]. *中国科学(地球科学)*, 2021, 51(1):150-158.
- LIU Jianliang, LIU Keyu. Estimating stratal completeness of carbonate deposition via process-based stratigraphic forward modeling [J]. *Science China(Earth Sciences)*, 2021, 64:253-259.
- [34] 陆扬博. 上扬子五峰组和龙马溪组富有机质页岩岩相定量表征及沉积过程恢复 [D]. 武汉: 中国地质大学, 2020.
- LU Yangbo. Quantitative characterization of lithofacies and reconstruction of the sedimentary process for Upper Yangtze Wufeng and Longmaxi organic-rich shales [D]. Wuhan: China University of Geosciences, 2020.
- [35] 汪泽成, 刘静江, 姜华, 等. 中—上扬子地区震旦纪陡山沱组沉积岩相古地理及勘探意义 [J]. *石油勘探与开发*, 2019, 46(1):39-51.
- WANG Zecheng, LIU Jingjiang, JIANG Hua, et al. Lithofacies paleogeography and exploration significance of Sinian Doushantuo depositional stage in the Middle-Upper Yangtze region, Sichuan Basin, SW China [J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2019, 46(1):41-53.
- [36] 文龙, 罗冰, 钟原, 等. 四川盆地灯影期沉积特征及槽—台体系成因模式 [J]. *成都理工大学学报(自然科学版)*, 2021, 48(5):513-524.
- WEN Long, LUO Bing, ZHONG Yuan, et al. Sedimentary characteristics and genetic model of trough-platform system during the Dengying period in Sichuan Basin, China [J]. *Journal of Chengdu University of Technology (Science & Technology Edition)*, 2021, 48(5):513-524.
- [37] 许海龙, 魏国齐, 贾承造, 等. 乐山—龙女寺古隆起构造演化及对震旦系成藏的控制 [J]. *石油勘探与开发*, 2012, 39(4):406-416.
- XU Hailong, WEI Guoqi, JIA Chengzao, et al. Tectonic evolution of the Leshan-Longnüsi paleo-uplift and its control on gas accumulation in the Sinian strata [J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2012, 39(4):436-446.

(编辑 徐文明)

(上接第 504 页)

- [39] OKAMOTO K, WATANABE N, HAGIMOTO Y, et al. Evaporation characteristics of multi-component liquid [J]. *Journal of Loss Prevention in the Process Industries*, 2010, 23(1):89-97.
- [40] MACKAY D, MATSUGU R S. Evaporation rates of liquid hydrocarbon spills on land and water [J]. *The Canadian Journal of Chemical Engineering*, 1973, 51(4):434-439.
- [41] NOBLE R A, KALDI J G, ATKINSON C D. Oil saturation in shales: applications in seal evaluation [M]//SURDAM R C. *Seals, traps, and the petroleum system*. Tulsa, Oklahoma: AAPG, 1997:13-29.
- [42] KATZ B, LIN Fang. Lacustrine basin unconventional resource plays: key differences [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2014, 56:255-265.
- [43] 李志明, 芮晓庆, 黎茂稳, 等. 北美典型混合页岩油系统特征及其启示 [J]. *吉林大学学报(地球科学版)*, 2015, 45(4):1060-1072.
- LI Zhiming, RUI Xiaoqing, LI Maowen, et al. Characteristics of typical hybrid shale-oil system in North America and its implications [J]. *Journal of Jilin University (Earth Science Edition)*, 2015, 45(4):1060-1072.
- [44] ALMANZA A. Integrated three dimensional geological model of the Devonian Bakken Formation Elm Coulee Field, Williston Basin [D]. Richland county Montana: Colorado School of Mines, 2011.

(编辑 徐文明)