

DOI: 10.3969/j.issn.1006-6535.2021.02.003

沧东凹陷孔二段低熟页岩纳米 孔隙特征及主控因素

张盼盼^{1,2,3}, 刘小平^{1,2}, 关铭^{1,2}, 孙彪^{1,2}

(1. 油气资源与探测国家重点实验室, 北京 102249;
2. 中国石油大学(北京), 北京 102249; 3. 中国地质大学(北京), 北京 100083)

摘要:为深入研究湖相低熟页岩储层纳米孔隙特征和主控因素,选取黄骅拗陷沧东凹陷孔二段12块样品分别进行X衍射、有机地球化学测试、扫描电镜、低温氮气吸附等测试工作,对孔二段页岩储层进行分析。结果表明:沧东凹陷孔二段页岩总有机碳含量为0.48%~7.23%,有机质热演化程度为0.45%~0.84%,整体上处于低熟阶段;页岩纳米孔隙的晶间孔、溶蚀孔隙、有机质收缩缝发育丰度较高,有机质孔次之;纳米孔隙形态整体上呈较开放的状态,孔隙结构以中孔和宏孔为主;页岩孔体积的变化受机械压实、有机质生烃、黏土矿物转化等因素的综合影响,孔体积与黏土矿物含量和总有机碳含量呈一定的正相关性,有机质的赋存形式是页岩有机质孔发育的关键因素。该成果为湖相低熟页岩储层评价提供了理论依据,对湖相低熟页岩资源评价具有一定的参考价值。

关键词:页岩储层;影响因素;孔隙特征;低成熟;孔二段;沧东凹陷

中图分类号: TE122 **文献标识码:** A **文章编号:** 1006-6535(2021)02-0020-07

Study on Characteristics and Main Controlling Factors of Nano-pores in Low-maturity Shale Reservoirs in Member 2 of Kongdian Formation in Cangdong Sag

Zhang Panpan^{1,2,3}, Liu Xiaoping^{1,2}, Guan Ming^{1,2}, Sun Biao^{1,2}

(1. State Key Laboratory of Petroleum Resources and Prospecting
(China University of Petroleum (Beijing)), Beijing 102249, China;
2. China University of Petroleum (Beijing), Beijing 102249, China;
3. China University of Geosciences (Beijing), Beijing 100083, China)

Abstract: In order to deeply study the characteristics and main controlling factors of nano-pores in lacustrine low-maturity shale reservoirs, 12 samples was taken from the Member 2 of Kongdian Formation in Cangdong Sag, Huanghua Depression, and tested for X-ray diffraction, organic geochemical testing, electron microscopy scanning, and low-temperature nitrogen adsorption to analyze the shale reservoirs in Member 2 of Kongdian Formation. The results indicated that the total content of organic carbon of the shale in the Member 2 of Kongdian Formation in Cangdong Sag was 0.48% to 7.23%, and the thermal evolution of organic substances was 0.45% to 0.84%, indicating that the shale was in the low-mature stage as a whole; the nano-pores in the shale were developed with an abundance of intercrystal pores, dissolved pores and shrinkage joints of organic substances, followed by organic substance pores; the nano-pores were relatively open as a whole, and mainly composed of mesopores and macropores in structure; the shale pore volume was changed mainly by the comprehensive effects of mechanical compaction, hydrocarbon generation of organic substances, transformation of clay minerals, and other factors; there was a positive correlation between pore volume and mineral content in clay and total content of organic carbon; the occurrence form of

收稿日期: 2020508; 改回日期: 20201230

基金项目: 国家自然科学基金面上项目“辉绿岩侵入作用对陆相页岩油源储层系统的影响机理研究——以苏北盆地为例”(42072150)、“湖相未熟—低熟页岩油形成与聚集机理”(41372144); 国家科技重大专项“中国陆相页岩油资源潜力与地质评价研究”(2017ZX05049001-008)

作者简介: 张盼盼(1990—),女,讲师,2012年毕业于中国石油大学(北京)地质工程专业,2015年毕业于该校矿产普查与勘探专业,获硕士学位,现主要从事页岩油气调查研究工作。

通讯作者: 刘小平(1971—),男,副教授,博士生导师,1993年毕业于西南石油学院石油地质勘查专业,2002年毕业于石油大学(北京)矿产普查与勘探专业,获博士学位,现从事石油地质学教学与研究工作。

organic substances was the key factor for pore development of organic substances in shale. The results provide a theoretical basis for the evaluation of lacustrine low-maturity shale reservoirs, and serve as references for the evaluation of lacustrine low-maturity shale resources.

Key words: shale reservoirs; influencing factors; pore characteristics; low maturity; in Member 2 of Kongdian Formation; Cangdong Sag

0 引言

页岩储层孔隙特征是页岩油气资源潜力评价的关键参数之一,对油气富集规律的研究具有重要意义^[1-2]。目前,中国对页岩储集空间的研究主要聚焦于南方海相成熟、高成熟页岩^[3-4],大量研究证实有机质孔是高、过成熟页岩中的优势孔隙类型,是页岩气赋存的主要场所。然而,前人对中国东部广泛发育的湖相低熟富有机质页岩层系的研究相对较少,尤其是低熟页岩纳米孔隙及其发育演化特征的研究更少。黄骅拗陷沧东凹陷是中国东部典型的湖相富油凹陷,其中,孔二段是主要的低熟页岩层系,也是主要产油层系。前人针对沧东凹陷孔二段的研究主要集中在页岩油的形成条件和分布特征等方面,对储层纳米孔隙特征开展的研究并不多。为此,选取沧东凹陷孔二段页岩样品,运用有机地球化学测试、扫描电镜、低温氮气吸附等技术,对孔二段页岩纳米孔隙进行分析,并结合成岩演化、矿物组分、总有机碳含量和有机质赋存形式探讨了纳米孔隙发育的主控因素,为湖相低熟页岩的储层评价和勘探开发提供了参考。

1 区域地质概况

沧东凹陷是渤海湾盆地中的一个二级构造单元,为典型的富烃凹陷。现今构造由孔店、舍女寺 2 个正向构造带和南皮、孔西、孔东 3 个斜坡构造构成(图 1)。其中,孔店组二段地层为一套深湖一半深湖相泥页岩,形成于凹陷湖盆发育阶段,主要沉积了黑色油页岩、灰黑色泥岩、砂岩、白云岩等,自下而上可分为 4 个亚段。下部的第 4 亚段为三角洲沉积的砂体,上部的 3 个亚段为一大套页岩沉积系统,泥页岩的累计厚度为 400 m,并发育较多的砂岩和碳酸盐岩夹层。孔二段页岩有机质丰度高,有机质类型以 I 和 II₁ 型为主, R_o 含量为 0.40%~1.30%^[5]。近年来,沧东凹陷孔二段的勘探开发表明该区页岩油具有良好的勘探前景^[6]。

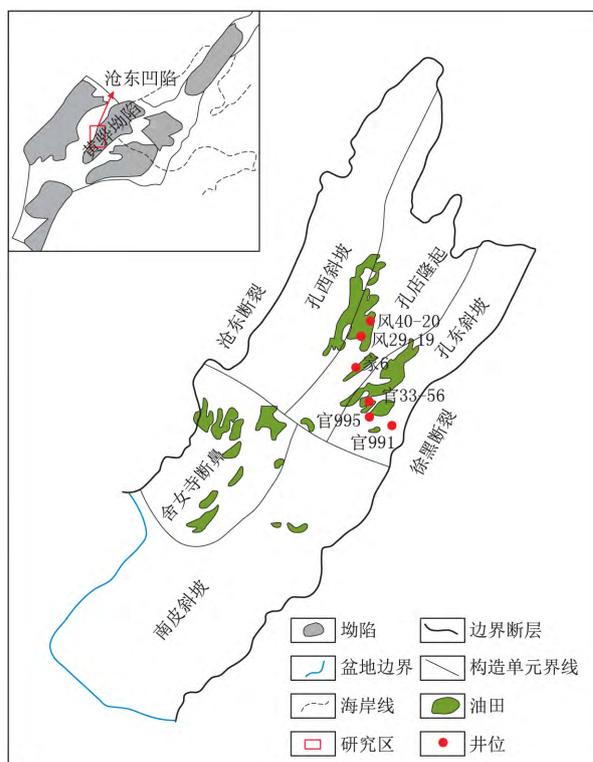


图 1 沧东凹陷构造单元划分及样品井位分布

Fig. 1 The structural unit division and sampled well location distribution in Cangdong Sag

2 样品测试及结果

以孔二段为研究对象,选取 6 口井的 12 块样品分别进行 X 衍射、有机地球化学测试、扫描电镜、低温氮气吸附等测试工作。

2.1 岩石矿物学特征

沧东凹陷孔二段页岩矿物成分主要为碎屑矿物和黏土矿物,还有少量的碳酸盐岩和黄铁矿。其中,脆性矿物含量为 25.1%~82.7%,平均为 41.6%;黏土矿物含量为 17.3%~67.2%,平均为 35.0%。

2.2 页岩有机地球化学特征

对孔二段页岩样品进行地球化学分析,测试结果表明,孔二段页岩整体上表现为高丰度、低成熟的特征。TOC 含量为 0.48%~7.23% 平均为 4.93%,

R_o 含量为 0.45%~0.84% ,处于低成熟阶段(图 2)。

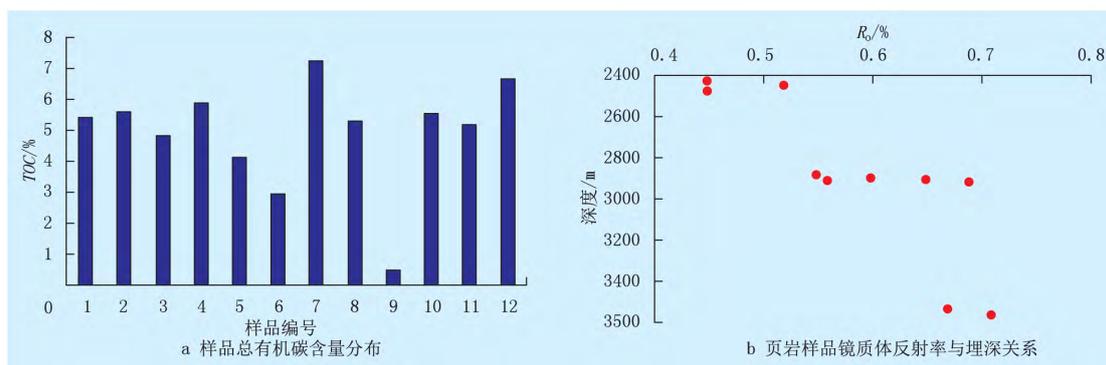


图 2 孔二段页岩样品地球化学特征

Fig. 2 The geochemical characteristics of shale samples from the Member 2 of Kongdian Formation

2.3 页岩纳米孔隙形态特征

利用氩离子抛光-场发射扫描电子显微镜对沧东凹陷孔二段页岩样品的孔隙进行详细观察和识别。研究区孔二段页岩孔隙主要为矿物基质孔隙和有机质孔,矿物基质孔隙分为粒间孔、晶间孔及溶蚀孔等,其中,晶间孔、溶蚀孔、有机质收缩缝发育丰度较高,有机质孔次之。

2.3.1 矿物基质孔隙

研究区孔二段页岩矿物基质孔隙分为粒间孔、

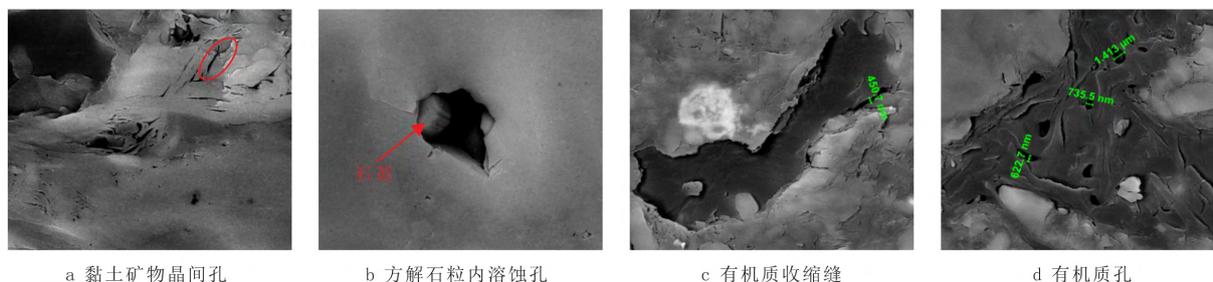


图 3 孔二段页岩储层纳米孔隙特征

Fig. 3 The characteristics of nano-pores in shale reservoirs in the Member 2 of Kongdian Formation

2.3.2 有机质孔

研究区孔二段发育湖相页岩,演化阶段处于低熟阶段,有机质孔特征与海相页岩差异较大。氩离子抛光-场发射扫描电子显微镜观察分析表明,孔二段有机质孔可以大致划分为 2 种类型:第 1 种孔隙为有机质收缩缝,其主要沿有机质与矿物基质边缘发育,呈长条形、弯片状,孔径在几百纳米到几微米之间。此类孔隙在一定程度上连通了有机质与矿物基质孔,可将有机质中生成的油气运送到矿物基质孔中保存下来,有利于页岩油气的储集,起到微裂缝的作用(图 3c)。第 2 种孔隙主要发育在有机质内部,是传统意义上的有机质孔(图 3d)。

晶间孔及溶蚀孔(图 3a、b)。粒间孔主要发育在石英、长石等脆性矿物颗粒周围,孔隙形态呈长条形、缝状,宽度一般在几百纳米到几微米左右;晶间孔一般发育在黄铁矿、方解石、石英和黏土等晶体粗大、晶形较好的矿物颗粒内,黄铁矿晶间孔、白云石晶间孔及黏土矿物晶间孔是研究区最常见的晶间孔类型,孔径一般为 400~2 000 nm;溶蚀孔常见于方解石、长石等颗粒内及颗粒间,呈锯齿、长条、椭圆等形态,孔径在几百纳米到几微米间,少数溶蚀孔被其他矿物充填。

此类有机质孔形态常呈凹坑状、不规则形,少数呈近球状、椭球状及长条形。孔径变化范围较大,以纳米级为主,孔隙直径多为 50~600 nm,个别可达 1~2 μm 。孔隙分布较分散,孔深较浅,非均质性较强。

2.4 页岩纳米孔隙结构特征

低温氮气吸附法可定量测定页岩孔隙结构、孔径大小分布及比表面积。该文通过对研究区 12 个样品进行低温氮气吸附-脱附实验,计算其比表面积及总孔体积,分析孔隙结构及孔径分布特征。

2.4.1 氮气吸附-脱附曲线特征

利用 12 个样品的吸附和脱附数据分别绘制吸

附-脱附曲线,根据曲线形态及滞后环的形状来推断样品的孔隙结构特征。参照 IUPAC 的分类标准^[7],孔二段页岩样品吸附-脱附回线整体上与 H3 型回线接近(图 4),表明孔二段页岩储层的孔隙结构总体呈一定无规则的、四周开放的平行板状

等特征。封闭性的孔隙不能产生吸附回线,且吸附线的上升速率越大说明孔隙开放的程度越大。而 12 个样品均可产生吸附回线,且吸附线上升速率一般,因此,孔二段页岩储层孔隙形态整体上呈较开放的状态,孔隙开放程度中等。

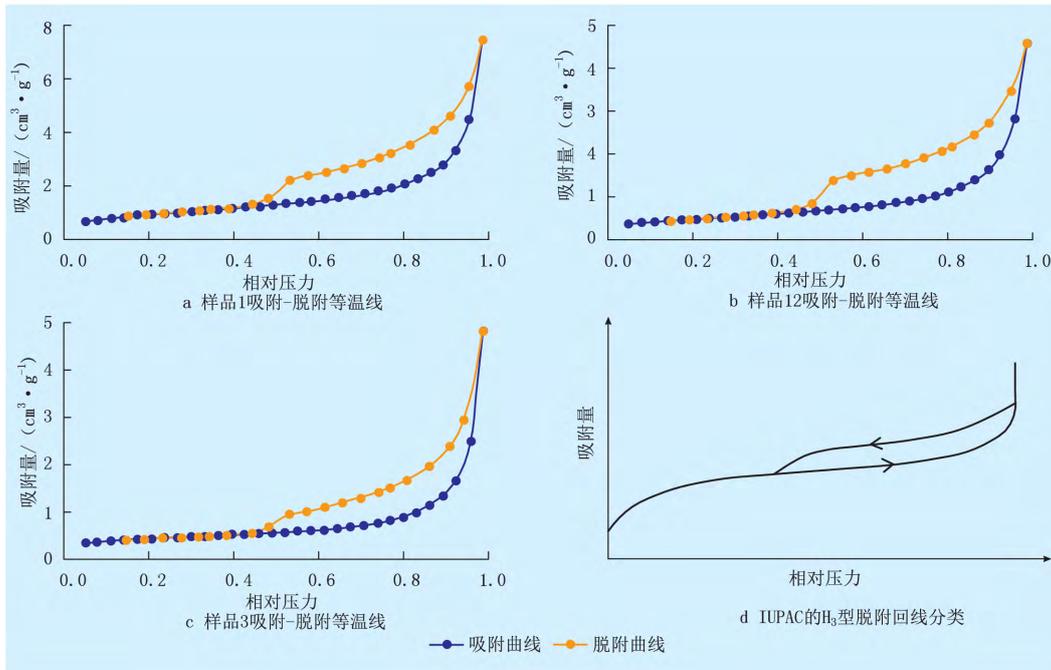


图 4 孔二段页岩样品的吸附-脱附等温线与 H₃ 型对比

Fig. 4 The comparison of adsorption-desorption isotherms of shale samples from the Member 2 of Kongdian Formation with Type H₃

2.4.2 孔隙结构特征

孔二段低熟页岩样品的比表面积为 0.040 3~18.666 0 m²/g, 平均为 2.931 0 m²/g; 总孔体积为 0.000 3~0.048 4 cm³/g, 平均为 0.009 4 cm³/g; 孔径为 6.19~20.68 nm, 平均为 11.94 nm。根据 IUPAC 的分类,将页岩样品的比表面积和孔体积按微孔(小于 2 nm)、介孔(2~50 nm)和宏孔(大于 50 nm)进行分类统计(图 5a、b)。从比表面积分布来看,微孔贡献比表面积占比为 0.094%~7.577%, 平均为 3.931%, 介孔贡献比表面积占比为 61.21%~91.54%, 平均为 78.82%, 宏孔贡献比表面积为 2.77%~38.69%, 平均为 17.25%, 宏孔和介孔贡献的总比表面积占总比表面积的 95.00% 以上; 从孔体积分布来看,微孔贡献孔体积占比为 0.005%~1.360%, 平均为 0.470%, 介孔贡献孔体积占比为 29.400%~81.110%, 平均为 50.673%, 宏孔贡献孔体积占比为 17.890%~70.490%, 平均为 48.860%, 宏孔和介孔贡献的总孔体积占总孔体积的 98.000% 以上。因此,页岩

中大于 2 nm 的宏孔和介孔提供了主要的比表面积和孔体积,是页岩油储存的主要场所。

3 影响纳米孔隙发育的主控因素

3.1 成岩演化

沧东凹陷孔二段大部分处于中成岩阶段,少量处于早成岩阶段^[8]。由图 5c 可知,孔二段页岩总孔体积随着埋深的增加呈现先减小后增大、再减小再增大的趋势。这是由于在机械压实作用为主的早成岩阶段,随着上覆压力的增加,矿物基质原生孔隙的数量和体积随粒间水排出而快速降低,导致总孔体积下降;进入中成岩期,有机质进入生烃阶段,生烃产生的有机质孔隙和有机质收缩缝增加了微孔和介孔体积,黏土矿物发生蒙脱石的伊利石化作用,该过程产生的粒内孔隙和收缩缝增加了介孔和宏孔的体积。研究表明,蒙脱石向伊利石转化的过程对有机质热演化有催化作用^[9],此时压实作用减小的孔体积小于增加的孔体积,表现为总孔体

积开始增加;随着埋藏深度的增加,压实作用减小的孔体积大于增加的孔体积,页岩的总孔体积开始减少;随着埋藏深度的增加,热成熟度的提高使得有机质不断生成 CO_2 、 H_2S 和有机酸等酸性流体,酸性流体会对长石、碳酸盐岩等矿物进行溶蚀,促

进了溶蚀孔隙的发育,有研究表明有机质热演化形成的有机酸是引起溶蚀作用的关键因素^[10],溶蚀作用在长石、方解石等矿物的内部或边缘形成孔隙,增加了介孔和宏孔体积,随着埋深的增加,溶解速率也相应加快,总孔体积开始增加。

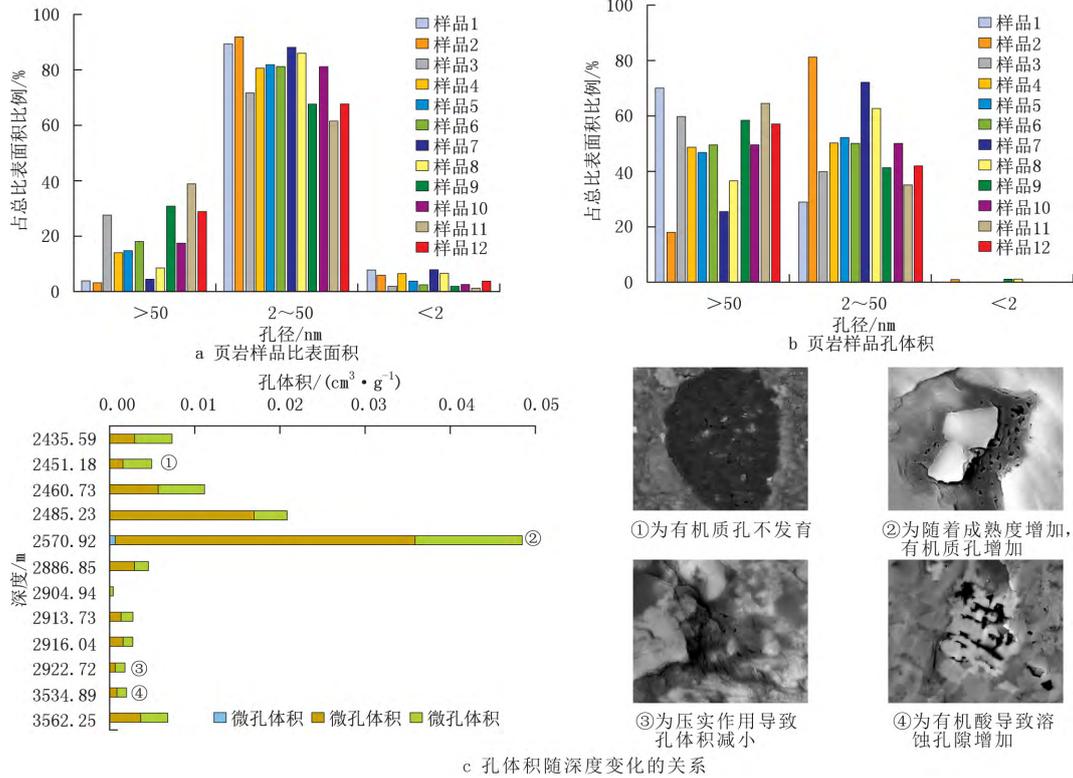


图 5 孔二段页岩孔径分布图及孔体积与埋深关系

Fig. 5 The pore size distribution diagram of shale samples from the Member 2 of Kongdian Formation and the relationship between pore volume and buried depth

3.2 矿物组分

研究区页岩样品微孔孔体积相对于介孔和宏孔孔体积非常小,因此,将微孔、介孔的孔体积之和与矿物组分关系进行相关性分析。图 6a、b 是孔二段黏土矿物含量及脆性矿物与孔隙发育情况的关系。黏土矿物含量与微孔介孔孔体积之和、宏孔孔体积、总孔体积都存在正相关关系,而脆性矿物含量与微孔介孔孔体积之和、宏孔孔体积、总孔体积相关性都不明显。黏土矿物形态常常呈絮状、层状和纤维状,形成晶层间微孔隙增加了微孔、介孔数量,其催化生作用产生的有机质孔,也提高了微孔、介孔孔体积;黏土矿物的伊利石化作用产生的孔缝,增加了介孔和宏孔的体积。因此,微孔、介孔、宏孔孔体积随着黏土矿物含量的增加而增加。

3.3 总有机质碳含量

由图 6c 可知,总有机碳含量与微孔、介孔孔体积之和、宏孔孔体积、总孔体积都存在正相关关系。有研究表明,在高成熟度页岩中总有机碳含量与纳米孔隙具有正相关关系^[11]。而在孔二段低熟页岩中,当 TOC 小于 5.00% 时,孔体积随着 TOC 含量的增加缓慢增加,当 TOC 大于 5.00% 时,孔体积随着 TOC 含量的增加快速增加。推断认为在低成熟阶段有机质处于生排烃初期,有机质孔发育主要受成熟度影响,有机质孔发育有限,表现孔体积随着 TOC 含量的增加而缓慢增加,当 TOC 大于 5.00%,有机质孔、有机质收缩缝和有机质溶蚀孔隙产生的孔体积数量增加明显,从而表现出孔体积随着 TOC 的升高而快速增加。

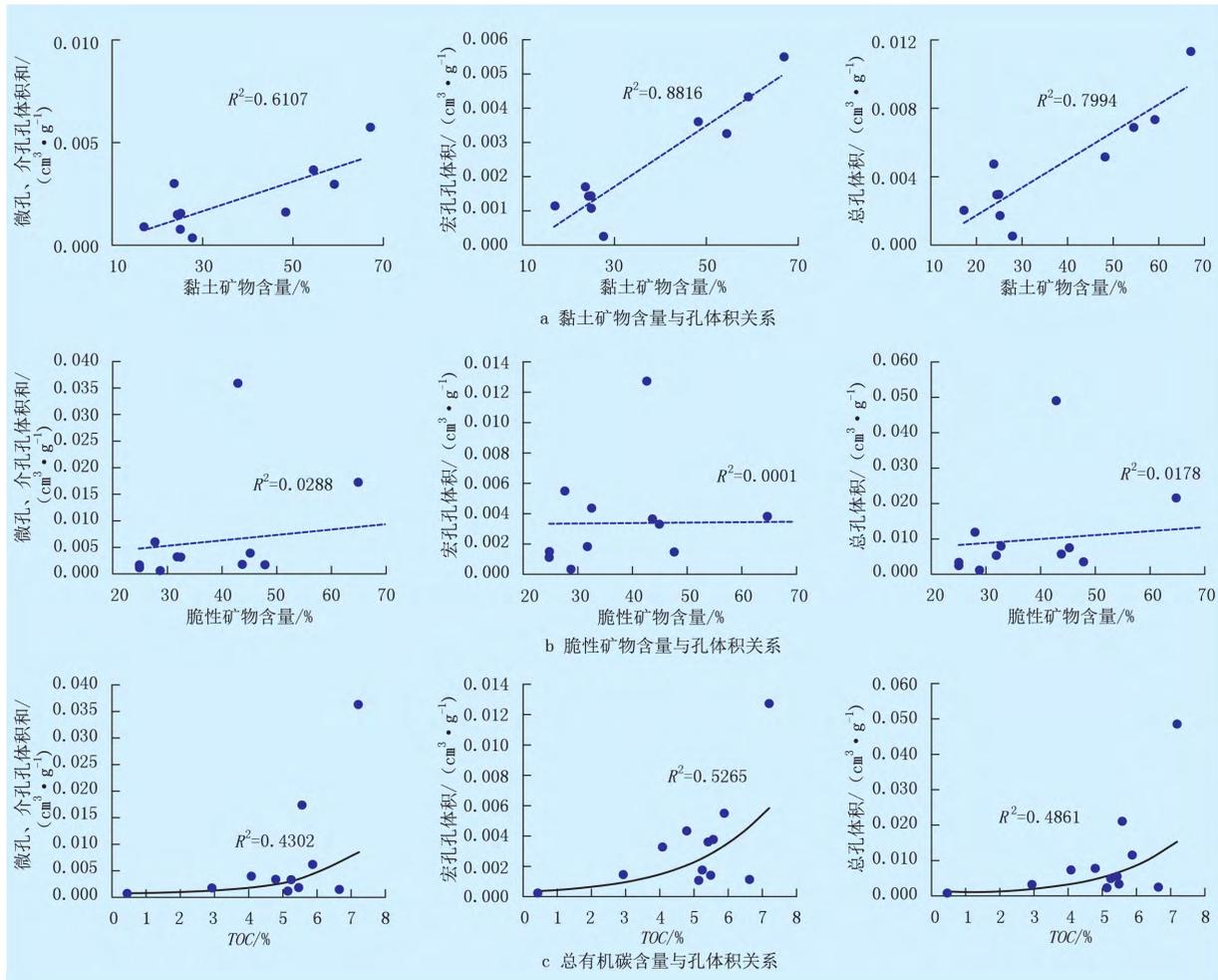


图 6 孔二段页岩孔隙与黏土矿物含量、脆性矿物含量、总有机碳含量关系

Fig. 6 The relationship between the shale pores in the Member 2 of Kongdian Formation and mineral content in clay , brittle mineral content and total content of organic carbon

3.4 有机质赋存形式

根据场发射扫描电镜下的观察结果,将孔二段页岩有机质分 2 类:①为游离态有机质,其在镜下呈片状、椭圆形、块状分布,内部基本不发育孔隙;②为粘附态有机质,是与黏土矿物呈粘附-结合态的形式存在的有机质,其在镜下颜色较游离态浅,内部发育孔隙,多呈凹坑状,且孔深较浅。图 3 显示同一样品在镜下可同时观察到游离态有机质和粘附态有机质,可以推断这 2 类有机质一定有不同的显微组成^[12]。无定形体一般与矿物紧密共生,黏土矿物本身的吸附保护作用使其成为无定形体主要的赋载体。此外,无定形体产烃能力较高,该种有机质赋存形式对页岩油气的产生具有重要意义。显微组分中的惰质组、藻类体以及镜质组通常以游离态有机质的形式存在,无定形体一般以粘

附态有机质的形式存在。结合显微组分定量分析及扫描电镜镜下观察,发现孔二段页岩腐泥形无定形体与有机质面孔率呈正相关关系。因此,沧东凹陷孔二段低熟页岩中呈粘附态且发育有机质孔的有机质显微组分主要为无定形体,这与无定形体具有早期生油的特点相吻合。无定形体可能是沧东凹陷孔二段低熟油气的主要贡献者。

4 结论

(1) 孔二段页岩表现出高丰度、低成熟特征, TOC 为 0.48%~7.23%, 平均为 4.93% R_o 为 0.45%~0.84%, 处于早期生油阶段。

(2) 孔二段页岩纳米孔隙的晶间孔、溶蚀孔隙、有机质收缩缝发育丰度较高,有机质孔次之;页岩储层纳米孔隙形态整体上呈较开放的状态,孔隙结构以介孔和宏孔为主,介孔的贡献孔体积为

29.4%~81.11%,平均为50.673%,宏孔的贡献孔体积为17.89%~70.49%,平均为48.86%,宏孔和介孔贡献的总孔体积占总孔体积的98%以上;介孔贡献比表面积为61.21%~91.54%,平均为78.82%,宏孔贡献比表面积为2.77%~38.69%,平均为17.25%,宏孔和介孔贡献的总比表面积占总比表面积的95.00%以上。页岩中大于2 nm的宏孔和介孔提供了主要的比表面积和孔体积,是页岩油储存的主要场所。

(3) 孔二段页岩总孔体积随着埋深的增加呈现先减小后增大、再减小再增大的趋势,孔体积的变化受机械压实、有机质生烃、黏土矿物转化等因素的综合影响。微孔、介孔、宏孔孔体积随着黏土矿物含量的增加而增加。在低成熟阶段,当TOC小于5.00%时,孔体积随着TOC含量的增加缓慢增加,当TOC大于5.00%时,孔体积随着TOC含量的增加快速增加。

(4) 在低熟阶段,页岩有机质的赋存形式是页岩有机质孔发育的关键因素,游离态有机质不发育有机质孔,粘附态有机质发育易有机质孔,同时,有机质孔发育程度随着无定形体含量的增加而增大。

参考文献:

- [1] SLATT E M, O'NEAL N R. Pore types in the Barnett and Woodford gas shales: contribution to understanding gas storage and migration pathways in fine-grained rocks [J]. AAPG Bulletin, 2011, 95(12): 2017-2030.
- [2] CHALMERS G R, BUSTIN R M, POWER I M. Characterization of gas shale pore systems by porosimetry, pycnometry, surface area, and field emission scanning electron microscopy/transmission electron microscopy image analyses: examples from the Barnett, Woodford, Haynesville, Marcellus and Doig units [J]. AAPG Bulletin, 2012, 96(6): 1099-1119.
- [3] 孙梦迪, 于炳松, 李娟, 等. 渝东南地区龙马溪组页岩储层特征与主控因素 [J]. 特种油气藏, 2014, 21(4): 63-66.
SUN Mengdi, YU Bingsong, LI Juan, et al. Features and major controlling factors of Longmaxi Shale Reservoir in southeastern Chongqing [J]. Special Oil & Gas Reservoirs, 2014, 21(4): 63-66.
- [4] 许露露, 张焱林, 陈程, 等. 鄂西地区黄陵背斜周缘五峰组—龙马溪组页岩气储层及含气性特征 [J]. 特种油气藏, 2019, 26(5): 26-32.
XU Lulu, ZHANG Yanlin, CHEN Cheng, et al. Shale gas reservoir and gas-bearing properties of Wufeng-Longmaxi Formations in the periphery of Huangling Anticline of western Hubei Province [J]. Special Oil & Gas Reservoirs, 2019, 26(5): 26-32.
- [5] 刘小平, 刘庆新, 刘杰, 等. 黄骅坳陷沧东凹陷孔二段富有机质泥页岩地球化学特征 [J]. 岩性油气藏, 2015, 27(6): 15-22.
LIU Xiaoping, LIU Qingxin, LIU Jie, et al. Geochemical characteristics of organic-rich shales of the second member of Kongdian Formation in Cangdong Sag, Huanghua Depression [J]. Lithologic Reservoirs, 2015, 27(6): 15-22.
- [6] 周立宏, 蒲秀刚, 肖敦清, 等. 渤海湾盆地沧东凹陷孔二段页岩油形成条件及富集主控因素 [J]. 天然气地球科学, 2018, 29(9): 1323-1332.
ZHOU Lihong, PU Xiugang, XIAO Dunqing, et al. Geological conditions for shale oil formation and the main controlling factors for the enrichment of the 2nd member of Kongdian Formation in the Cangdong Sag, Bohai Bay Basin [J]. Natural Gas Geoscience, 2018, 29(9): 1323-1332.
- [7] JAVADPOUR F, FISHER D, UNSWORTH M. Nanoscale gas flow in shale gas sediments [J]. Journal of Canadian Petroleum Technology, 2007, 46(10): 55-61.
- [8] 邓远, 蒲秀刚, 陈世悦, 等. 细粒混积岩储层特征与主控因素分析——以渤海湾盆地沧东凹陷孔二段为例 [J]. 中国矿业大学学报, 2019, 48(6): 1301-1316.
DENG Yuan, PU Xiugang, CHEN Shiyue, et al. Characteristics and controlling factors of fine-grained mixed sedimentary rocks reservoir: a case study of the 2nd member of Kongdian formation in Cangdong Depression, Bohai Bay Basin [J]. Journal of China University of Mining & Technology, 2019, 48(6): 1301-1316.
- [9] 吴林钢, 李秀生, 郭小波, 等. 马朗凹陷芦草沟组页岩油储层成岩演化与溶蚀孔隙形成机制 [J]. 中国石油大学学报(自然科学版), 2012, 36(3): 38-43.
WU Lingang, LI Xiusheng, GUO Xiaobo, et al. Diagenetic evolution and formation mechanism of dissolved pore of shale oil reservoirs of Lucaogou Formation in Malang Sag [J]. Journal of China University of Petroleum (Edition of Natural Science), 2012, 36(3): 38-43.
- [10] SURDAM R C, CROSSEY L J, HAGEN E S, et al. Organic-inorganic interactions and sandstone diagenesis [J]. AAPG Bulletin, 1989, 73(1): 1-23.
- [11] 薛冰, 张金川, 唐玄, 等. 黔西北龙马溪组页岩微观孔隙结构及储气特征 [J]. 石油学报, 2015, 36(2): 138-173.
XUE Bing, ZHANG Jinchuan, TANG Xuan, et al. Characteristics of microscopic pore and gas accumulation on shale in Longmaxi Formation, northwest Guizhou [J]. Acta Petrolei Sinica, 2015, 36(2): 138-173.
- [12] CURTIS M E, CARDOTT B J, SONDERGELD C H, et al. Development of organic porosity in the Woodford Shale with increasing thermal maturity [J]. International Journal of Coal Geology, 2012, 103(1): 26-31.

编辑 朱雅楠