

# 川南地区泸州区块五峰组—龙马溪组页岩裂缝脉体中甲烷包裹体分析及古温压恢复

潘占昆<sup>1,2</sup>, 刘冬冬<sup>1,2\*</sup>, 黄治鑫<sup>1,2</sup>, 姜振学<sup>1,2</sup>, 宋岩<sup>1,2</sup>, 郭靖<sup>1,2</sup>, 李灿星<sup>1,2</sup>

1 中国石油大学(北京)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)非常规油气科学技术研究院, 北京 102249

\* 通信作者, liudd@cup.edu.cn

收稿日期: 2019-07-20

国家科技重大专项(2017ZX05035-002)资助

**摘要** 页岩储层中甲烷包裹体的古温压恢复可为页岩气超压的形成演化和页岩气富集机理研究提供重要的地质依据。通过对四川盆地泸州区块五峰组—龙马溪组页岩裂缝脉体岩相学研究发现, 裂缝主要被石英和方解石充填, 且石英普遍早于方解石胶结。石英脉体中发现高密度甲烷包裹体, 表明裂缝的形成以及石英脉体的胶结发生在页岩产气阶段, 裂缝的开启可能与生气阶段造成的孔隙流体压力上升相关。利用甲烷包裹体的甲烷拉曼散射峰 $\nu_1(2909.97\sim 2914.23\text{ cm}^{-1})$ 计算得到甲烷包裹体密度为 $0.277\sim 0.305\text{ g/cm}^{-3}$ , 与甲烷包裹体共生的气—液两相盐水包裹体的均一温度为 $242\text{ }^\circ\text{C}\sim 258\text{ }^\circ\text{C}$  (L201井)和 $175\text{ }^\circ\text{C}\sim 206\text{ }^\circ\text{C}$  (H202井)。利用 $\text{CH}_4$ 体系的状态方程计算得到高密度纯甲烷包裹体捕获压力为 $128\sim 169\text{ MPa}$ , 对应的压力系数达到 $1.86\sim 2.65$ , 具有强超压特征。泸州区块页岩气田中高密度甲烷包裹体的发现及其形成时的异常高压和较高的温度, 指示了五峰组—龙马溪组页岩在达到最大埋深之前(即构造抬升之前或构造抬升初期)已经处于异常高压状态, 这一发现为进一步开展裂缝形成机制及其对页岩气的保存和富集的影响研究提供了重要启示。

**关键词** 甲烷包裹体; 裂缝; 五峰组—龙马溪组; 页岩; 泸州区块

## Paleotemperature and paleopressure of methane inclusions in fracture cements from the Wufeng-Longmaxi shales in the Luzhou area, southern Sichuan Basin

PAN Zhankun<sup>1,2</sup>, LIU Dongdong<sup>1,2</sup>, HUANG Zhixin<sup>1,2</sup>, JIANG Zhenxue<sup>1,2</sup>, SONG Yan<sup>1,2</sup>, GUO Jing<sup>1,2</sup>, LI Canxing<sup>1,2</sup>

1 State Key Laboratory Petroleum Resources and Prospecting, China University of Petroleum-Beijing, Beijing, 102249, China

2 Unconventional Petroleum Research Institute, China University of Petroleum-Beijing, Beijing 102249, China

**Abstract** The estimation of paleotemperatures and paleopressures from methane inclusions in shale reservoirs can provide

引用格式: 潘占昆, 刘冬冬, 黄治鑫, 姜振学, 宋岩, 郭靖, 李灿星. 川南地区泸州区块五峰组—龙马溪组页岩裂缝脉体中甲烷包裹体分析及古温压恢复. 石油科学通报, 2019, 03: 242-253

PAN Zhankun, LIU Dongdong, HUANG Zhixin, JIANG Zhenxue, SONG Yan, GUO Jing, LI Canxing. Paleotemperature and paleopressure of methane inclusions in fracture cements from the Wufeng-Longmaxi shales in the Luzhou area, southern Sichuan Basin. Petroleum Science Bulletin, 2019, 03: 242-253. doi: 10.3969/j.issn.2096-1693.2019.03.022

important clues for the study of shale gas overpressure and enrichment mechanisms. This study investigates the fracture cements from the Wufeng-Longmaxi Formation shales in the Luzhou shale gas field, Sichuan Basin. Petrographic observations show that the fractures are mainly filled with quartz and calcite. If both minerals exist, quartz predates calcite. A large number of high density methane inclusions were found in the quartz cements, suggesting that the formation of fractures and the cementation of quartz occurred during the gas generation stage. The opening of the fractures may be related to the increase of pore fluid pressure caused by gas generation. Using the methane Raman scatter peak  $\nu_1(2909.97\sim 2914.23\text{ cm}^{-1})$  of methane inclusions, the density of methane inclusions was calculated to be  $0.277\sim 0.305\text{ g/cm}^3$ . The homogenization temperatures of the coexisting two-phase gas-liquid inclusions are  $242\text{ }^\circ\text{C}\sim 258\text{ }^\circ\text{C}$  (well L201) and  $175\text{ }^\circ\text{C}\sim 206\text{ }^\circ\text{C}$  (well H202). Using the equation of state of the  $\text{CH}_4$  system, the trapping pressure for the high density pure methane inclusions was calculated to be  $128\sim 169\text{ MPa}$ , and the corresponding pressure coefficients reached  $1.86\sim 2.65$ , showing high overpressure conditions. The discovery of high density methane inclusions in the Luzhou shale gas field, and their high pressure and temperature conditions, indicate that the Wufeng-Longmaxi Formation shales had already been in an abnormally high pressure state before reaching the maximum depth (before or in the early stage of tectonic uplift). This finding provides important insights into the further development of fracture formation mechanisms and their effects on the preservation and enrichment of shale gas.

**Keywords** methane inclusions; fracture; Wufeng-Longmaxi Formation; shale; Luzhou shale gas field

**doi:** 10.3969/j.issn.2096-1693.2019.03.022

## 0 引言

川南地区泸州区块是四川盆地页岩气勘探开发的主要目标之一,该区块上奥陶统五峰组—下志留统龙马溪组下段为主要页岩气产层,这一层段含有丰富的页岩气资源,勘探开发远景十分可观<sup>[1-4]</sup>。现有资料表明,川南地区泸州区块五峰组—龙马溪组页岩储层在经历过漫长的地质演变过程之后,逐渐演化成为超压储层,而这种深层高温超压环境有利于页岩气聚集和保存,因此现在评价页岩气藏是否具有开发远景时往往会先恢复其古温压环境,并将其作为一个重要的评价依据<sup>[5]</sup>。

流体包裹体是矿物晶格缺陷中保存的流体物质,其中保存了流体捕获时各种原始流体环境信息,借助这些信息可以恢复地层古温压状态、追踪成脉流体来源、明确其裂缝形成机制<sup>[6-8]</sup>。前人对页岩气藏古温压状态的恢复,多是先通过甲烷包裹体均一温度( $T_h$ )求取高密度甲烷包裹体密度( $\rho$ ),再进行甲烷包裹体捕获压力的恢复<sup>[9-10]</sup>;也可采用纯气相包裹体(Ⅱ型)的等容线与气—液两相包裹体(Ⅰ型)均一温度最低值交点的方法求解<sup>[9-10]</sup>,但两种方法都存在计算结果不准确的缺点,无法反映真实的页岩气藏古温压状态。

因此本文针对五峰组—龙马溪组页岩储层的裂缝脉体样品,开展裂缝脉体显微观察,明确了脉体的矿物组成与胶结序列;结合包裹体显微观察与测温、激光拉曼光谱分析,发现其中发育大量高密度纯甲烷包裹体;再根据甲烷拉曼散射峰 $\nu_1$ 位移与密度关系式<sup>[11-12]</sup>,计算得到甲烷包裹体的密度,随后利用甲烷

体系状态方程恢复了甲烷包裹体捕获压力,并讨论了泸州区块页岩裂缝成因及地质意义。

## 1 地质背景

泸州区块位于四川盆地南部,范围包括了齐岳山断裂带以西、华蓥山断裂带以东之间的区域。研究区内褶皱构造发育,常以直线或弧型带状展布,主要集中在中心至南部区域,北部区域较少,向斜地带平缓宽阔,背斜地带两翼陡峭角度低,总体上断层发育较少,以逆断层为主,局部伴有地层隆升<sup>[13]</sup>(图1A)。

研究区先后经历了多期构造演化旋回,在海西期东吴运动的作用下,川东南地区隆起成陆,导致泥盆系、石炭系和一部分志留系上统地层普遍缺失;而由于喜山期构造抬升作用,研究区也缺失古近系和新近系地层,因此研究区地层以寒武系—白垩系地层为主,偶尔可见第四系地层(图1B)。上奥陶统五峰组和下志留统龙马溪组岩性主要为黑色、灰黑色页岩和灰黑色粉砂质页岩,富有机质页岩厚度可达 $95\sim 140\text{ m}$ ,优质页岩气层段厚度约 $40\sim 52\text{ m}$ ,其有机碳(TOC)含量大于 $3.5\%$ 、龙马溪组微裂缝自下向上部逐渐减少、测井总含气量达到 $5.2\sim 7.1\text{ m}^3/\text{t}$ 。该层段现今埋深为 $3540\sim 3625\text{ m}$ ,地质历史时期最大埋深可能超过 $6500\text{ m}$ <sup>[4]</sup>,现今地温梯度为 $2.6\sim 3.0\text{ }^\circ\text{C}/\text{hm}$ ,压力系数为 $1.80\sim 2.30$ <sup>[15]</sup>。页岩气组分以甲烷为主,含量为 $86.93\%\sim 97.35\%$ ,同时含少量的氮气组分( $2.4\%\sim 16.23\%$ )以及极少量的乙烷组分<sup>[13]</sup>。

## 2 样品信息与测试方法

研究样品采于川南地区泸州区块的L201井和H202井。采样信息如表1所示。

裂缝脉体偏光显微镜观察在中国石油大学(北京)油气资源与探测国家重点实验室完成,镀膜操作、能谱电镜及阴极发光扫描电镜观察在北京大学造山带与地壳演化教育部重点实验室完成。采用双面抛光薄片,在Leica-35偏光显微镜下进行普通光学显微镜观察,然后采用Sputter Coaters and SEM/TEM Carbon

Coaters (Q150T ES)镀膜系统下进行镀铬操作,再采用QUANTA FEG 650热场发射扫描电镜,进行二次电子显微镜、能谱电镜和阴极发光扫描电镜(CL-SEM)观察,能谱电镜工作条件:高真空模式,工作距离(WD):10~11 mm;电压:10 kV;SPOT:5;APE:5。CL-SEM工作条件:高真空模式,工作距离(WD):11.7 mm;电压:10 kV;SPOT:6;APE:3。

流体包裹体和激光拉曼光谱分析工作均在核工业北京地质研究院分析测试研究中心进行。流体包裹体观察使用双面抛光包裹体薄片,测试所用仪器为LEICA公司生产的DM4500P型偏光/荧光显微镜

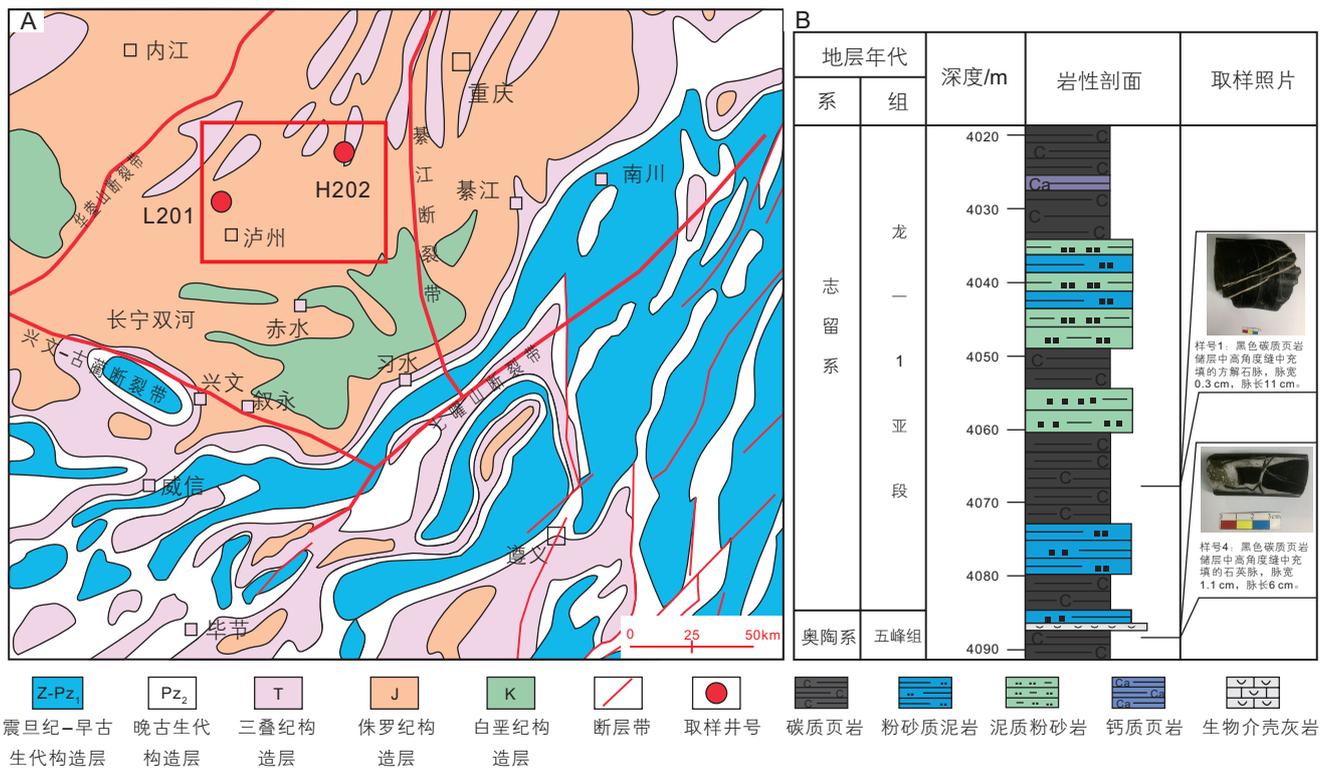


图1 四川盆地泸州区块页岩气田地质构造图及H202井五峰组—龙马溪组底部地层综合柱状图

Fig. 1 Schematic geological map of the Luzhou area, southern Sichuan Basin, and stratigraphic column of the Wufeng-Longmaxi Formation in the Well H202

表1 页岩样品信息

Table 1 Sampling information of the analyzed shales

样品号	井名	取样层位	深度/m	岩性	照片
H1	H202	龙马溪组	4067.75	含方解石脉页岩	图2B
H2	H202	龙马溪组	4077.15	含方解石脉和石英脉页岩	图2A
H3	H202	龙马溪组	4079.50	含方解石脉和石英脉页岩	图2D
H4	H202	五峰组	4087.22	含石英脉页岩	图2E
L1	L201	龙马溪组	3619.23	含方解石脉和石英脉页岩	图2F
L2	L201	五峰组	3621.94	含方解石脉页岩	图2C

以及LINKAM-THMS600型冷热台, 测温的误差为 $\pm 0.1\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 实验条件: 温度 $25\text{ }^{\circ}\text{C}$ 、湿度 $40\%$ 。在测温初始阶段, 盐水包裹体的升温速率为 $5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , 相态交界线消失之前, 升温速率减小为 $0.5\text{ }^{\circ}\text{C}/\text{min}$ , 随后观察并记录下包裹体内物质达到完全均一时的温度, 继续恒温加热 $2\text{ min}$ ; 然后进行降温, 并仔细观察并记录气泡出现时的温度, 再升温加热并重复测试, 确定最准确的均一温度数值, 并检查核对和记录确定均一温度。

激光拉曼光谱分析实验, 使用的仪器为LabRAM-HR800研究级显微激光拉曼光谱仪, 仪器实验条件为: 环境温度为 $25\text{ }^{\circ}\text{C}$ , 湿度控制在 $50\%$ , 使用Nd: YAG晶体倍频固体激光器, 波长 $532\text{ nm}$ , 扫描范围 $100\sim 4200\text{ cm}^{-1}$ , 功率为 $14\text{ mW}$ , 线宽控制在 $<0.1\text{ nm}$ , 激光照射在样品的表面时, 功率范围为 $2\sim 10\text{ mW}$ , 光谱仪的共焦效果一般可达到横向 $0.1\text{ }\mu\text{m}$ 、深度 $0.3\text{ }\mu\text{m}$ 精度的分辨率。一般用拉曼峰值位移为

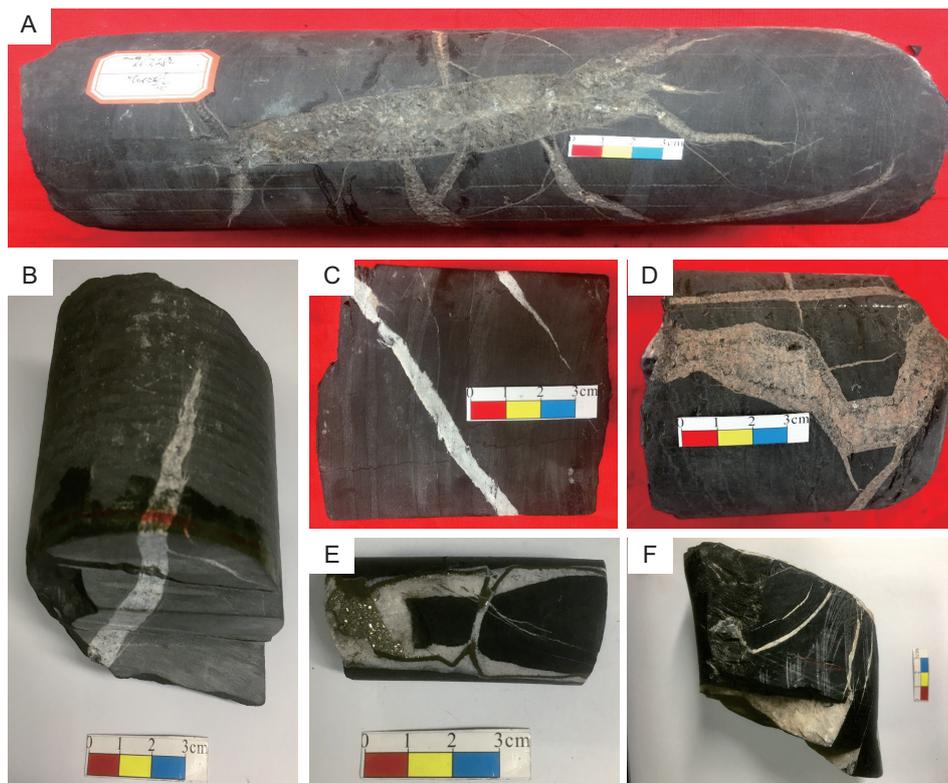
$520.7\text{ cm}^{-1}$ 的硅标样来进行仪器校正, 数据收集时间为 $10\sim 100\text{ s}$ 。

### 3 分析测试结果与讨论

#### 3.1 页岩样品特征

研究区五峰组和龙马溪组底部优质页岩层段裂缝类型以构造缝、层间页理缝和层面滑移缝(图2)为主, 局部可见少量的擦痕面和断层面。其中, 构造缝多数被方解石、石英充填, 长度变化在几厘米到十几厘米不等, 宽度 $3\text{ mm}\sim 2\text{ cm}$ , 普遍倾角较大, 甚至与层面近于垂直, 其充填的脉体宽度为 $5\text{ mm}\sim 3\text{ cm}$ 。

研究区龙马溪组微裂缝密度相对高于五峰组, 其中龙马溪组下部龙一段微裂缝密度最高, 构成了空间型微裂缝网, 提高了该层段渗透率, 向上地层微裂缝总数逐步减少, 微裂缝密度降低, 地层渗透能力减弱。



(A)灰黑色页岩中方解石和石英充填的多期构造缝交错成为“蝎子”形状的构造缝系统, 龙马溪组, H202井, 4077.15 m; (B)黑色页岩中方解石充填的高角度拉张缝, 龙马溪组, H202井, 4067.75 m; (C)黑色页岩中方解石充填的高角度拉张缝, 五峰组, H202井, 4087.22 m; (D)黑色页岩中方解石和石英充填的多期高角度构造缝系统, 龙马溪组, H202井, 4079.50 m; (E)黑色页岩中方解石和石英充填的高角度剪切缝, 脉体中间发育团状及条带状黄铁矿, 龙马溪组, L201井, 3619.23 m; (F)黑色页岩中方解石充填的高角度剪切缝, 五峰组, L201井, 3622.94 m

图2 研究区五峰组—龙马溪组页岩裂缝脉体特征

Fig. 2 Characteristics of fractures in the Wufeng-Longmaxi Formation shales in the Luzhou area, southern Sichuan Basin

### 3.2 裂缝脉体特征

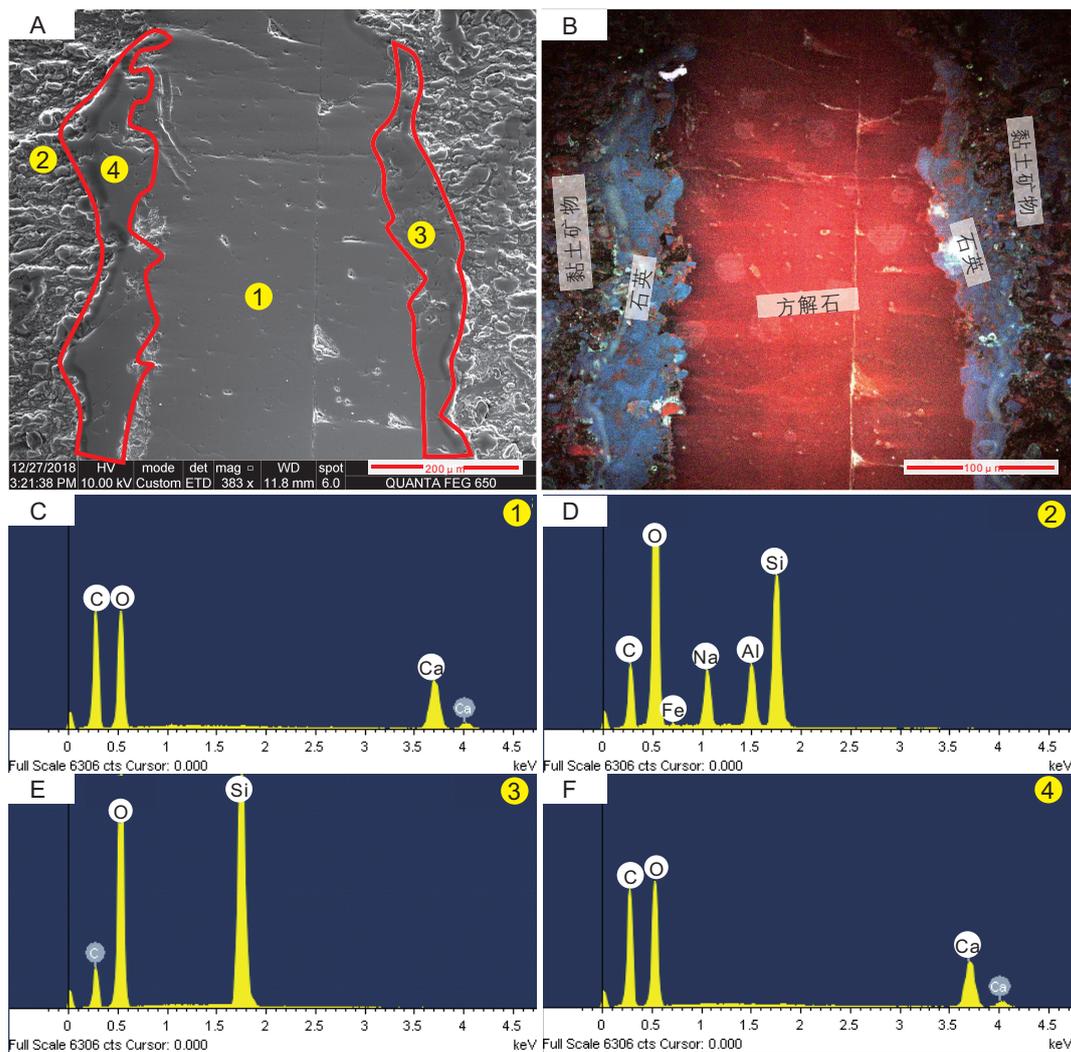
岩心观察与显微镜下观察发现,研究区页岩裂缝脉体主要由方解石和/或石英组成。若两种矿物同时存在,石英会早于方解石胶结,石英矿物一般分布在裂缝的边缘,方解石矿物则分布在裂缝中间,这种现象是多期次裂缝开启一愈合的直接证据。

二次电子显微镜、背散射扫描电镜、能谱电镜和阴极发光扫描电镜观察显示(图3),脉体中胶结物以方解石为主,分布在裂缝中间,形态完整呈鲜红色—橘红色,能谱显示C、O、Ca含量偏高。石英主要分布在方解石脉两侧,位于裂缝两壁,形态较为破碎,边缘出现侵蚀现象呈现蓝色—蓝紫色,能谱显示O、Si含量偏高。该裂缝脉体的形成至少经历了两期裂缝

开启一愈合过程,第一期裂缝张开流体注入后,石英脉体胶结,第二期裂缝开启流体注入,将先期形成的石英脉体破坏、溶蚀,在石英脉体边缘又发生了方解石胶结,形成了第二期方解石脉体。

### 3.3 裂缝流体包裹体特征

镜下观察显示,研究区6块样品中均观察到有丰富的包裹体发育,主要为单相态甲烷包裹体以及气—液两相盐水包裹体。其中单相态甲烷包裹体多存在于石英脉及较大清晰的方解石颗粒中,形态多以圆形、次圆形、不规则多边形为主,长轴为6~20 μm不等,呈带状或孤立状分布,深灰色、透明度低<sup>[10]</sup>。盐水包裹体的存在较为广泛,可聚集成群或带状存在,也可与甲烷包裹体伴生,在偏光显微镜下呈透明无色,中



(A)二次电子显微镜照片;(B)阴极发光扫描电镜照片;(C)、(D)、(E)、(F)能谱电镜照片 龙马溪组, H202井, 4079.50 m  
图3 研究区五峰组—龙马溪组页岩裂缝脉体二次电子显微镜和阴极发光特征图

Fig. 3 Secondary electrons microscope and cathodoluminescence-SEM images of the fracture cements in the Wufeng-Longmaxi Formation shales in Luzhou area, southern Sichuan Basin

间或边缘小气泡会发生“气跳”现象,形态大小多样不规则(图4B-D, F)。沥青包裹体在镜下以黑色不透明、条状或片状的形式存在,热演化程度较高的焦沥青会充填在甲烷包裹体大量出现的页岩储层中(图4B, E)。相比于方解石脉中形态多样不规则、数量少、规格小的甲烷包裹体(图4B, F),产于石英脉中的甲烷包裹体形态规则、数量较多、尺寸较大、保存条件好(图4A, D, E)。

### 3.4 流体包裹体测温

本次实验测定了方解石与石英矿物中,与甲烷包裹体共生的气—液两相盐水包裹体的均一温度和盐度<sup>[10]</sup>。测定中发现,在H202井和L201井石英脉样品中气—液两相盐水包裹体的周围,大量发育纯气相甲烷包裹体,该现象表明包裹体的形成环境为饱和甲烷状态下、两相不混容系统,因此,所测气—液两相盐水包裹体的均一温度可以代表甲烷包裹体的捕获温度<sup>[10,16-17]</sup>。

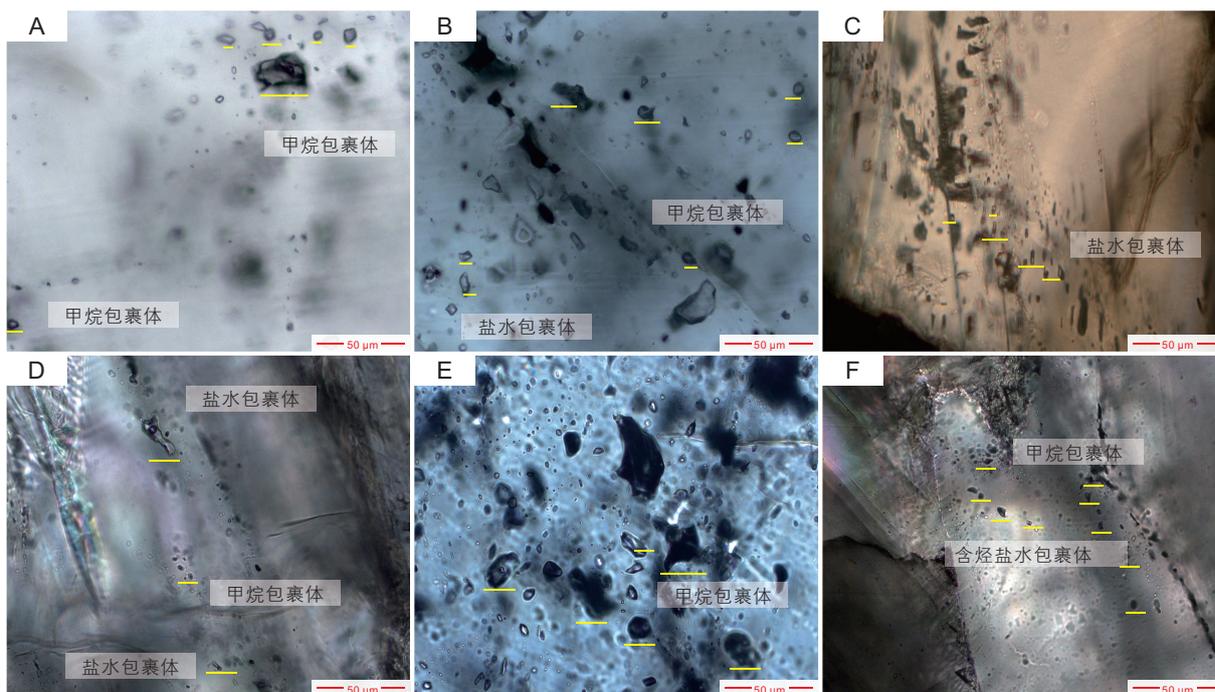
通过对H202井和L201井,裂缝脉石英和方解

石矿物中盐水包裹体进行显微测温(图5),发现石英中的盐水包裹体均一温度范围集中在160℃~220℃(H202井)、240℃~260℃(L201井),方解石中包裹体的均一温度范围为150℃~260℃(H202井)、140℃~170℃(L201井),表明五峰组—龙马溪组页岩在埋藏过程中,石英脉先期胶结,方解石脉体后期胶结,这与岩相学观察的结果相符,石英多分布在裂缝边缘且形态不完整,方解石多分布在裂缝中间且颗粒较大。

### 3.5 甲烷包裹体激光拉曼分析结果

激光拉曼光谱是研究宿主矿物及流体包裹体成分的可信手段,因此在流体包裹体岩相学观察的基础上进行显微激光拉曼检测,可有效地检测出样品中各种不同的流体包裹体成分,进一步根据所测得石英脉中的高密度甲烷包裹体甲烷拉曼散射峰 $\nu_1$ ,计算得到甲烷包裹体的密度和捕获压力<sup>[10-12,18]</sup>。

图6为测定的石英脉样品(4079.50 m, H202; 3622.94 m, L201)中甲烷包裹体的激光拉曼光谱图。



(A)龙马溪组黑色页岩裂缝充填的石英脉中密集分布的单相甲烷包裹体, L201井, 3619.23 m; (B)五峰组黑色页岩裂缝充填的复合脉中富集的甲烷包裹体和两相盐水包裹体, H202井, 4077.15 m; (C)龙马溪组黑色页岩裂缝充填的方解石脉中条带状分布的两相盐水包裹体, H202井, 4067.75 m; (D)龙马溪组黑色页岩裂缝石英脉中发育的甲烷包裹体和盐水包裹体, H202井, 4079.5 m; (E)五峰组黑色页岩裂缝石英脉中分布甲烷包裹体, H202井, 4087.22 m; (F)五峰组黑色页岩裂缝充填的方解石脉中含烃两相盐水包裹体和甲烷包裹体, L201井, 3622.94 m

图4 研究区页岩裂缝石英和方解石脉中甲烷包裹体形态特征(单偏光)

Fig. 4 Characteristics of methane inclusions in quartz and calcite veins in the Wufeng-Longmaxi Formation shales in Luzhou area, southern Sichuan Basin (plane-polarized)

在激光拉曼光谱图中, 除过高强度甲烷散射峰以外, 甲烷包裹体寄主矿物石英也出现了强度较高的拉曼散射峰值(463.31  $\text{cm}^{-1}$ 、464.73  $\text{cm}^{-1}$ ), 且并无其他成分显示出明显的高强度峰值, 说明包裹体的流体成分较为单一, 为纯甲烷包裹体<sup>[10]</sup>。川南地区五峰组—龙马溪组海相页岩裂缝石英脉中甲烷包裹体的拉曼散射峰值为 2909.97~2914.41  $\text{cm}^{-1}$ (表 2), 在 100~4200  $\text{cm}^{-1}$  扫描范围的光谱图中, 甲烷散射峰值为 2914.23  $\text{cm}^{-1}$ 、2909.97  $\text{cm}^{-1}$ 。

### 3.6 甲烷包裹体密度计算

根据所测甲烷拉曼散射峰  $\nu_1$  位移量, 可以计算出甲烷包裹体的密度<sup>[10]</sup>。前人在不同压力条件下测定了甲烷拉曼散射峰  $\nu_1$  位移, 从而发现了甲烷包裹体密度和甲烷拉曼散射峰  $\nu_1$  位移之间的关系, 并结合实验结果建立了甲烷拉曼散射峰  $\nu_1$  位移与甲烷包裹体密度  $\rho$

的关系公式(1)<sup>[10-12,19-22]</sup>, 此公式适用于甲烷饱和度大于 90% 的甲烷包裹体密度计算:

$$\rho = -5.17331 \times 10^{-5} D^3 + 5.53081 \times 10^{-4} D^2 - 3.51387 \times 10^{-2} D \quad (1)$$

式中,  $\rho$  表示甲烷包裹体的密度,  $\text{g}/\text{cm}^3$ ;  $\rho$  和  $D$  之间的相关系数为 0.9987;  $D = \nu_1 - \nu_0$ ;  $\nu_1$  表示使用氙灯校正后, 实测获得的甲烷拉曼散射峰值;  $\nu_0$  表示当压力约为 0 时的甲烷拉曼散射峰值, 不同实验室的校准条件不同, 导致了  $\nu_0$  取值差异, 本文采用核工业北京地质研究院分析测试研究中心激光拉曼实验室标定值。依据公式(1), 计算得到川南泸州地区上奥陶统五峰组和下志留统龙马溪组黑色页岩石英脉中纯甲烷包裹体密度为 0.277~0.305  $\text{g}/\text{cm}^3$ 。

### 3.7 高密度甲烷包裹体古压力恢复

流体包裹体中包含大量地质信息, 利用它们能够

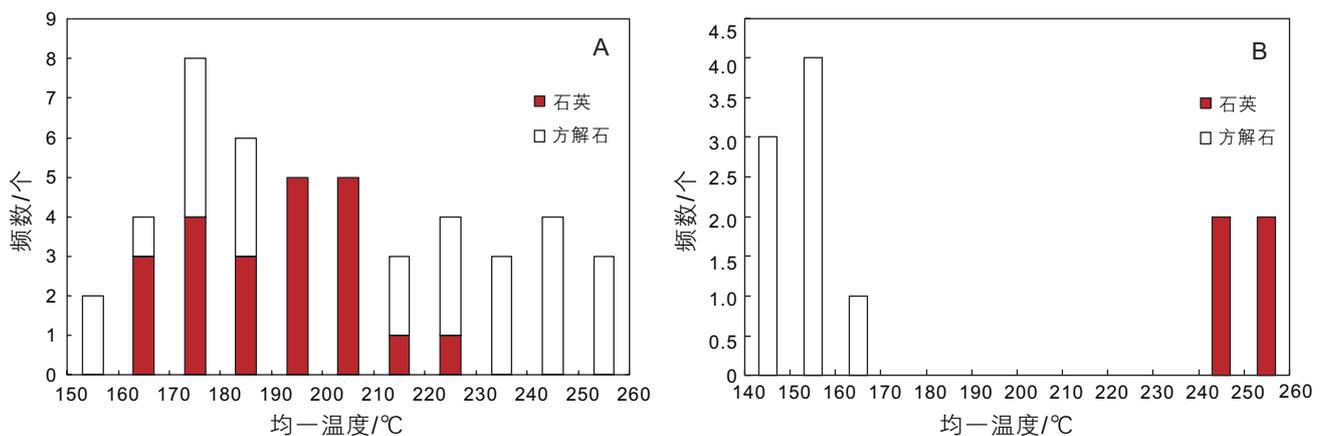


图 5 研究区(A)H202 井和(B)L201 井页岩裂缝脉石英和方解石矿物中气—液两相盐水包裹体的均一温度分布直方图

Fig. 5 Frequency histogram of two-phase fluid inclusions homogenization temperatures in quartz and calcite cements from H202(A) and L201(B) in Luzhou area, southern Sichuan Basin

表 2 研究区 H202 井和 L201 井页岩裂缝石英脉中甲烷包裹体拉曼散射峰  $\nu_1$  和密度计算结果

Table 2 Measured Raman scatter peak  $\nu_1$  positions, calculated densities of methane inclusions in quartz cements from wells H202 and L201 in the Luzhou shale gas field, Sichuan Basin

包裹体编号	样品号	大小	$\nu_1/\text{cm}^{-1}$	$D/\text{cm}^{-1}$	$\rho/(\text{g}\cdot\text{cm}^{-3})$
Sample 1	H2	3 $\mu\text{m}$ × 5 $\mu\text{m}$	2910.24	-6.87	0.284 281
Sample 2	H2	4 $\mu\text{m}$ × 7 $\mu\text{m}$	2910.38	-6.73	0.277 303
Sample 3	H3	4 $\mu\text{m}$ × 6 $\mu\text{m}$	2909.91	-7.20	0.300 979
Sample 4	H3	3 $\mu\text{m}$ × 3 $\mu\text{m}$	2910.14	-6.97	0.289 303
Sample 5	H4	5 $\mu\text{m}$ × 3 $\mu\text{m}$	2914.23	-7.18	0.299 957
Sample 6	H4	3 $\mu\text{m}$ × 6 $\mu\text{m}$	2910.08	-7.03	0.292 332
Sample 7	L1	4 $\mu\text{m}$ × 4 $\mu\text{m}$	2910.12	-6.99	0.290 312
Sample 8	L1	3 $\mu\text{m}$ × 6 $\mu\text{m}$	2909.97	-7.14	0.297 917

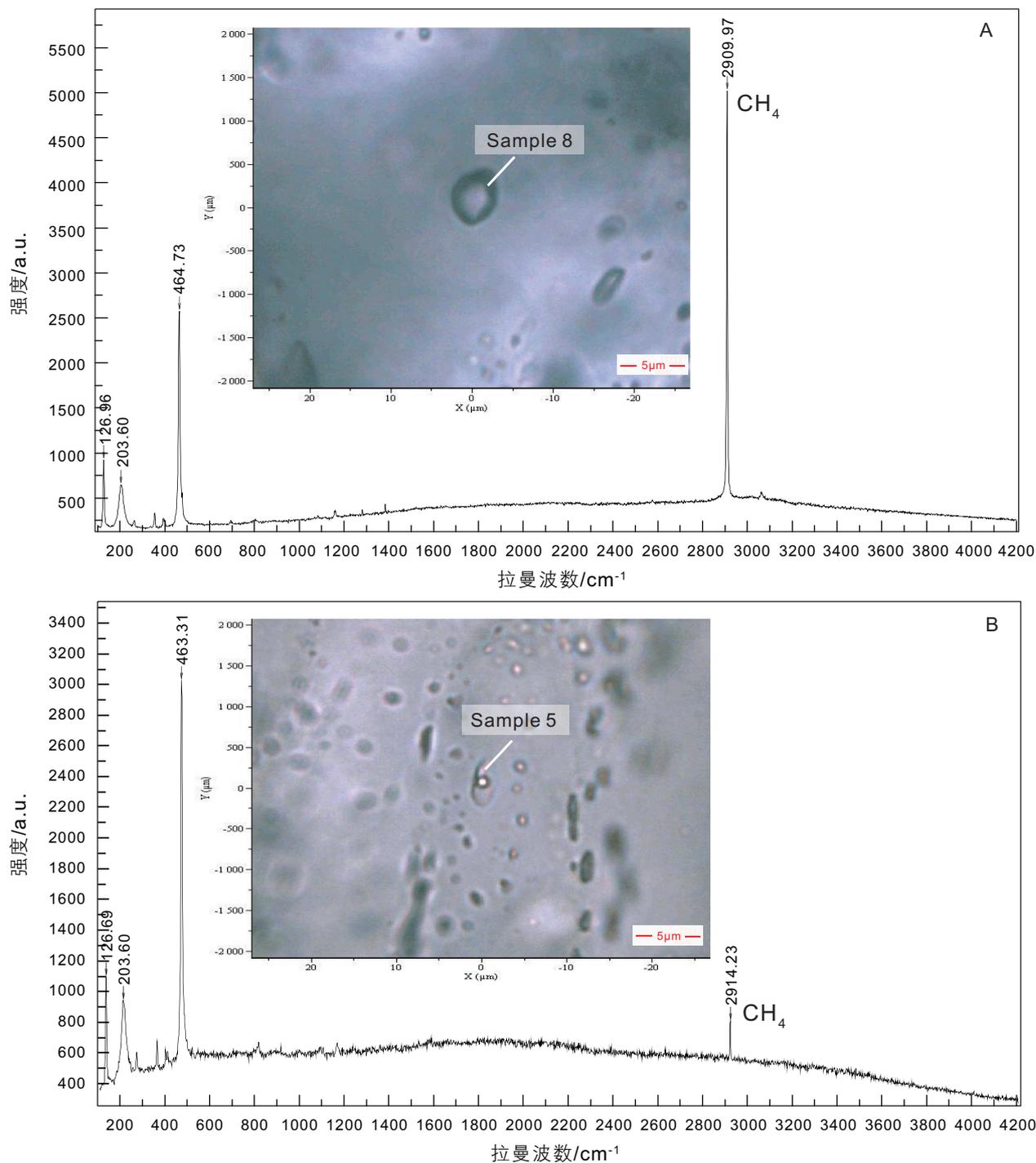


图 6 研究区(A)H202 井和(B)L201 井页岩裂缝石英脉中包裹体激光拉曼图谱

Fig. 6 Laser Raman spectra of fluid inclusions in quartz cements from Wells H202(A) and L201(B) in the Luzhou area, southern Sichuan Basin

恢复包裹体捕获时的环境温压状态,是重建古流体温压条件的有效手段<sup>[5,10,23]</sup>,可是包裹体组分越复杂,对其各组分进行精确测定就会越难,导致用多组分包裹体模拟获得的捕获压力值精度就会偏低<sup>[10,24]</sup>,因此需要采用高纯度单组分包裹体来进行捕获压力恢复。于是,研究区五峰组—龙马溪组黑色页岩样品中存在大

量单相态高密度甲烷包裹体的情况,成为了能够准确模拟甲烷包裹体捕获压力的可靠条件。

本文借助适用于超临界CH<sub>4</sub>体系的状态方程<sup>[10,25-26]</sup>,计算了石英脉中高密度甲烷包裹体的捕获压力:

$$Z = \frac{PV}{RT} = \frac{PV_r}{T_r} = 1 + \frac{B}{V_r} + \frac{C}{V_r^2} + \frac{D}{V_r^4} + \frac{E}{V_r^5} + \frac{F}{V_r^2} \left( \beta + \frac{\gamma}{V_r^2} \right) e^{-\frac{\gamma}{V_r^2}} \quad (2)$$

$$B = a_1 + \frac{a_2}{T_r^2} + \frac{a_3}{T_r^3} \quad C = a_4 + \frac{a_5}{T_r^2} + \frac{a_6}{T_r^3}$$

$$D = a_7 + \frac{a_8}{T_r^2} + \frac{a_9}{T_r^3} \quad E = a_{10} + \frac{a_{11}}{T_r^2} + \frac{a_{12}}{T_r^3}$$

$$F = \frac{\alpha}{T_r^3} \quad P_r = \frac{P}{P_c} \quad T_r = \frac{T}{T_c} \quad V_r = \frac{V}{V_c} \quad V_c = \frac{RT_c}{P_c}$$

式中,  $P$ 代表压力, bar;  $T$ 代表温度, K;  $R$ 表示气体常数,  $R=0.08314467 \text{ bar} \cdot \text{dm}^3 \cdot \text{K}^{-1} \cdot \text{mol}^{-1}$ ;  $V$ 表示摩尔体积,  $\text{dm}^3/\text{mol}$ , 通过甲烷包裹体的密度与摩尔质量计算得到;  $Z$ 表示压缩因子;  $P_r$ 、 $T_r$ 代表对比压力和对比温度, 量纲均是1;  $P_c$ 、 $T_c$ 表示临界压力(46 bar)、临界

温度(190.4 K), 与 $P$ 、 $T$ 单位相同;  $a_1=0.0872553928$ ;  $a_2=-0.752599476$ ;  $a_3=0.375419887$ ;  $a_4=0.0107291342$ ;  $a_5=0.0054962636$ ;  $a_6=-0.0184772802$ ;  $a_7=0.000318993183$ ;  $a_8=0.000211079375$ ;  $a_9=0.0000201682801$ ;  $a_{10}=-0.0000165606189$ ;  $a_{11}=0.000119614546$ ;  $a_{12}=-0.000108087289$ ;  $\alpha=0.0448262295$ ;  $\beta=0.75397$ ;  $\gamma=0.077167^{[10,25-26]}$ 。

通过公式(1)计算了研究区H202井和L201井页岩石英脉中甲烷包裹体密度, 再结合甲烷包裹体同期共生的气-液两相盐水包裹体的均一温度最小值(甲烷包裹体捕获温度), 通过公式(2)模拟恢复了高密度甲烷包裹体的捕获压力, 研究区H202井和L201井页岩裂缝石英脉中甲烷包裹体的捕获压力为127.58~168.68 MPa(表3, 图7)。

表3 研究区H202井和L201井石英脉中两相盐水包裹体均一温度、甲烷包裹体密度及捕获压力计算结果

Table 3 Homogenized temperatures of two-phase fluid inclusions, calculated densities and trapping pressures of methane inclusions in quartz cements from wells H202 and L201 in Luzhou area, southern Sichuan Basin

包裹体编号	共生两相盐水包裹体均一温度/°C	均一相态	$\rho/(\text{g} \cdot \text{cm}^{-3})$	捕获压力/MPa	压力系数
Sample 1	185	液相	0.284281	129.63	1.89
Sample 2	203	液相	0.277303	127.58	1.86
Sample 3	175	液相	0.300980	156.47	2.28
Sample 4	178	液相	0.289303	143.34	2.09
Sample 6	206	液相	0.292332	137.17	2.01
Sample 7	258	液相	0.290312	163.48	2.57
Sample 8	242	液相	0.297917	168.67	2.65

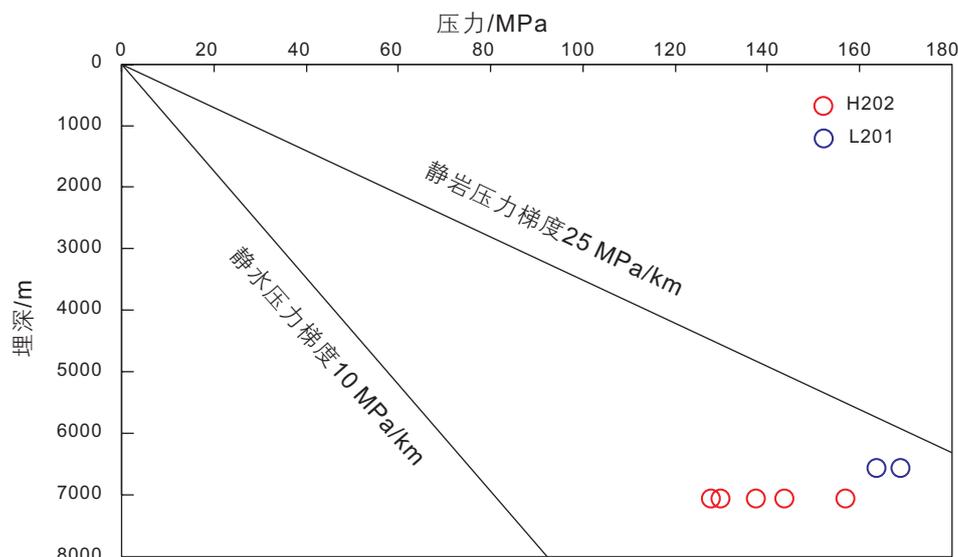


图7 研究区页岩石英脉体甲烷包裹体捕获压力变化范围及捕获深度图

Fig. 7 Variation range of trapping pressures and burial depth of methane inclusions in the Luzhou area, southern Sichuan Basin

## 4 地质意义

研究区L201井龙马溪组页岩裂缝石英脉中与甲烷包裹体共生的两相盐水包裹体均一温度较高,为242℃~258℃左右,表明该井龙马溪组页岩裂缝中石英脉形成的深度大。前人研究表明L201井五峰组—龙马溪组页岩最大古埋深为6500m左右<sup>[4]</sup>,根据古埋深计算得到地层压力为163.48~168.67MPa,同时期静水压力为63.7MPa,剩余压力约为100MPa,压力系数为2.57~2.65。H202井石英脉中包裹体均一温度相对较低,为175℃~206℃左右。前人研究表明该井龙马溪组最大古埋深在7000m左右<sup>[4]</sup>,该时期页岩地层压力为127.58~156.47MPa,同时期静水压力为68.6MPa,剩余压力为58.98~87.87MPa,压力系数为1.86~2.28。由此可见,川南地区泸州区块页岩气藏处于强超压状态。

现今川南地区泸州区块五峰组—龙马溪组页岩储层埋深大于3500m<sup>[4]</sup>,地层压力约为77.18~90.41MPa,压力系数约为1.8~2.3<sup>[15]</sup>,剩余压力约为42.88~50.23MPa。泸州地区的页岩成熟度约为2.8%~3.2%,该地区五峰组—龙马溪组页岩石英脉中与高密度甲烷包裹体共生的气—液两相盐水包裹体均一温度与页岩主生气期温度相近,说明了黑色页岩中含高密度甲烷包裹体的石英脉的形成过程与页岩裂解生气过程具有时空一致性,推测裂缝的形成可能与页岩气的生成阶段导致的孔隙流体压力上升相关,而非达到最大埋深之后的构造抬升运动相关。

通过对五峰组—龙马溪组页岩裂缝脉体的阴极发光扫描电镜和能谱分析,石英脉体主要分布在裂缝两壁,而方解石脉体主要分布在裂缝中部(图3)。前人研究表明,在较深的地层中,石英会作为主要的裂缝胶结物先期胶结,而在较浅的地层方解石会在裂缝中优先胶结,在石英和方解石都存在的地方,石英会早于方解石胶结<sup>[27]</sup>。川南地区泸州区块五峰组—龙马溪组页岩裂缝方解石脉体的流体包裹体捕获温度一般低于石英脉体(图5),说明方解石胶结深度比石英浅,其胶结时间较石英要晚,裂缝中的方解石脉体是在储层最大埋藏深度之后和早期抬升过程中形成的。如H202井方解石脉气—液两相盐水包裹体均一温度的分布范围在150℃~260℃,反映了H202井中五峰组—龙马溪组页岩裂缝方解石脉体在石英脉体胶结之后,是在页岩最大埋深之后的构造抬升阶段产生的,期间可能不断发生裂缝开启—愈合的过程。而石英脉体中富甲烷包裹体的存在证明了裂缝的形成及石英脉体的胶结是发生在最大

埋藏深度之前,即五峰组—龙马溪组页岩产气阶段。

利用甲烷包裹体密度和与其共生的气—液两相盐水包裹体均一温度计算得到的页岩古压力为127.58~168.67MPa,压力系数为1.86~2.65,推测五峰组—龙马溪组页岩在达到最大埋深之前就已经处于异常高压状态,也就是说在后期构造抬升过程中泸州区块五峰组—龙马溪组页岩储层超压演化的起点为强超压状态。泸州区块页岩气田中高密度甲烷包裹体的发现及其形成时的异常高压证据,为进一步开展裂缝形成机制对页岩气的保存和富集的影响研究提供了重要的地质依据。

## 5 结论

1)通过对川南地区泸州区块五峰组—龙马溪组页岩裂缝脉体的岩相学研究,发现研究区五峰组—龙马溪组页岩裂缝主要被石英和方解石充填,且石英脉普遍早于方解石胶结。石英脉体中发现大量富甲烷包裹体存在,证明裂缝的开启以及石英脉体的胶结发生在五峰组—龙马溪组页岩产气阶段,裂缝形成的原因可能与生气阶段造成的孔隙流体压力上升相关。

2)根据流体包裹体激光拉曼光谱和显微测温分析,在泸州区块页岩气田五峰组—龙马溪组页岩储层中发现了高密度甲烷包裹体,甲烷包裹体的甲烷拉曼散射峰 $\nu_1$ 分布在2909.97~2914.23 $\text{cm}^{-1}$ ,利用甲烷包裹体的甲烷拉曼散射峰 $\nu_1$ 位移计算了甲烷包裹体的密度,其密度范围为0.277~0.305 $\text{g/cm}^3$ ,具有高密度特征。

3)根据泸州区块页岩气田L201井和H202井五峰组—龙马溪组裂缝充填的脉体中甲烷包裹体的密度,以及与其共生的气—液两相盐水包裹体的均一温度(242℃~258℃,L201井;175℃~206℃,H202井),利用 $\text{CH}_4$ 体系的状态方程模拟计算出高密度纯甲烷包裹体的捕获压力为127.58~168.67MPa,对应的压力系数达到1.86~2.65。

4)泸州区块页岩气田五峰组—龙马溪组页岩中的高密度甲烷包裹体形成时的捕获压力为强超压状态,剩余压力为58.98~100MPa,均一温度集中范围在175℃~206℃(H202井)和242℃~258℃(L201井),这指示五峰组—龙马溪组页岩在达到最大埋深之前,构造抬升之前或构造抬升初期就已经处于异常高压状态。该区页岩中高密度甲烷包裹体的发现及其捕获的温压条件和超压证据,为进一步开展泸州区块五峰组—龙马溪组页岩裂缝形成机制对页岩气的保存和富集的影响研究提供了重要的地质依据。

## 参考文献

- [1] 董大忠,程克明,王玉满,等. 中国上扬子区下古生界页岩气形成条件及特征[J]. 石油与天然气地质, 2010, 31(03): 288-299+308. [DONG D Z, CHENG K M, WANG Y M, et al. Formation conditions and characteristics of shale gas in the Lower Paleozoic of the Upper Yangtze region, China[J]. Oil & Gas Geology, 2010, 31(03): 288-299+308.]
- [2] 梁超,姜在兴,杨懿婷,等. 四川盆地五峰组—龙马溪组页岩岩相及储集空间特征[J]. 石油勘探与开发, 2012, 39(06): 691-698. [LIANG C, JIANG Z X, YANG Y T, et al. Characteristics of shale lithofacies and reservoir space of the Wufeng-Longmaxi Formation, Sichuan Basin[J]. Petroleum Exploration and Development, 2012, 39(06): 691-698.]
- [3] 张琴,刘洪林,拜文华,等. 渝东南地区龙马溪组页岩含气量及其主控因素分析[J]. 天然气工业, 2013, 33(05): 35-39. [ZHANG Q, LIU H L, BAI W H, et al. Shale gas content and its main controlling factors in Longmaxi shales in southeastern Chongqing[J]. Natural Gas Industry, 2013, 33(05): 35-39.]
- [4] 魏祥峰,刘若冰,张廷山,等. 页岩气储层微观孔隙结构特征及发育控制因素——以川南—黔北XX地区龙马溪组为例[J]. 天然气地球科学, 2013, 24(05): 1048-1059. [WEI X F, LIU R B, ZHANG T S, et al. Micro-pores structure characteristics and development control factors of shale gas reservoir: A case of Longmaxi Formation in XX area of southern Sichuan and Northern Guizhou[J]. Natural Gas Geoscience, 2013, 24(05): 1048-1059.]
- [5] 高键,何生,何治亮,等. 中扬子京山地区方解石脉成因及其对油气保存的指示意义[J]. 石油与天然气地质, 2014, 35(01): 33-41. [GAO J, HE S, HE Z L, et al. Genesis of calcite vein and its implication to petroleum preservation in Jingshan region, Mid-Yangtze[J]. Oil & Gas Geology, 2014, 35(1): 33-41.]
- [6] 刘伟,王国芝,刘树根,等. 川中磨溪构造龙王庙组流体包裹体特征及其地质意义[J]. 成都理工大学学报(自然科学版), 2014, 41(6): 723-732. [LIU W, WANG G Z, LIU S G, et al. Characteristics and geological significance of fluid inclusions in Longwangmiao Formation of Moxi structure in Central Sichuan, China[J]. Journal of Chengdu University of Technology (Science & Technology Edition), 2014, 41(6): 723-732.]
- [7] 舒晓辉,张军涛,李国蓉,等. 四川盆地北部栖霞组—茅口组热液白云岩特征与成因[J]. 石油与天然气地质, 2012, 33(3): 442-448. [SHU X H, ZHANG J T, LI G R, et al. Characteristics and genesis of hydrothermal dolomites of Qixia and Maokou Formations in northern Sichuan Basin[J]. Oil & Gas Geology, 2012, 33(3): 442-448.]
- [8] 王东,王国芝,刘树根,等. 塔东地区英东2井寒武系—奥陶系储层流体地球化学示踪[J]. 石油与天然气地质, 2012, 33(6): 867-876. [WANG D, WANG G Z, LIU S G, et al. Geochemical tracing of the Cambrian-Ordovician reservoir fluid in Well Yingdong-2, eastern Tarim Basin[J]. Oil & Gas Geology, 2012, 33(6): 867-876.]
- [9] 高键,何生,易积正. 焦石坝页岩气田中高密度甲烷包裹体的发现及其意义[J]. 石油与天然气地质, 2015, 36(3): 472-480. [GAO J, HE S, YI J Z. Discovery of high density methane inclusions in Jiaoshiiba shale gas field and its significance[J]. Oil & Gas Geology, 2015, 36(3): 472-480.]
- [10] 高键. 渝东地区五峰组—龙马溪组页岩裂缝脉体古温压及古流体成因[D]. 武汉: 中国地质大学, 2018. [GAO J. Paleo temperature and pressure and origin of paleo-fluid of fracture veins in the Wufeng-Longmaxi shales of Yudong area[D]. Wuhan: China University of Geosciences, 2018.]
- [11] LU W J, CHOU I M, BURRUSS R, et al. A unified equation for calculating methane vapor pressures in the CH<sub>4</sub>-H<sub>2</sub>O system with measured Raman shifts[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2007, 71(16): 3969-3978.
- [12] LIN F, BODNAR R, BECKER S. Experimental determination of the Raman CH<sub>4</sub> symmetric stretching ( $\nu_1$ ) band position from 1-650 bar and 0.3-22 °C: Application to fluid inclusion studies[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2007, 71(15): 3746-3756.
- [13] 唐鑫. 川南地区龙马溪组页岩气成藏的构造控制[D]. 徐州: 中国矿业大学, 2018. [Tang X. Tectonic control of shale gas accumulation in Longmaxi Formation in the southern Sichuan Basin[D]. Xuzhou: China University of Mining and Technology, 2018.]
- [14] 刘树根,邓宾,钟勇,等. 四川盆地及周缘下古生界页岩气深埋藏—强改造独特地质作用[J]. 地学前缘, 2016, 23(01): 11-28. [LIU S G, DENG B, ZHONG Y, et al. Unique geological features of burial and superimposition of the Lower Paleozoic shale gas across the Sichuan Basin and its periphery[J]. Earth Science Frontiers, 2016, 23(01): 11-28.]
- [15] 胡东风,张汉荣,倪楷,等. 四川盆地东南缘海相页岩气保存条件及其主控因素[J]. 天然气工业, 2014(6): 17-23. [HU D F, ZHANG H R, NI K, et al. Main controlling factors for gas preservation conditions of marine shales in southeastern margins of the Sichuan Basin[J]. Natural Gas Industry, 2014(6): 17-23.]
- [16] ROEDDER E. Fluid inclusions[C]// Ribbe P H. Reviews in mineralogy. Washington D C: Mineralogical Society of America, 1984: 644.
- [17] GOLDSTEIN R H, REYNOLDS T J. Systematics of fluid inclusions in diagenetic minerals[R]. SEPM( Society for Sedimentary Geology) Short Course 31, 1994: 199.
- [18] BRUNSGAARD H S, BERG R W, STENBY E H. Raman spectroscopic studies of methane-ethane mixtures as a function of pressure[J].

- Applied Spectroscopy, 2001, 55(6): 745–749.
- [19] FABRE D, COUTY R. Etude, par spectroscopie Raman, du methane comprimé jusqu'à 3 kbar. Application à la mesure de la pression dans les inclusions continues dans les mines. Académie des Sciences, Paris[J]. Comptes Rendus, 1986, 303( II ): 1305–1308.
- [20] SEITZ J C, PASTERIS J D, CHOU I M. Raman spectroscopic characterization of gas mixtures; ii, quantitative composition and pressure determination of the CO<sub>2</sub>–CH<sub>4</sub> system[J]. American Journal of Science, 1996, 296(6): 577–600.
- [21] THIEU V, SUBRAMANIAN S, COLGATE S, et al. High-pressure optical cell for hydrate measurements using Raman spectroscopy[J]. Annals of the New York Academy of Sciences, 2000, 912(1): 983–992.
- [22] HANSEN S B, BERG R W. Raman spectroscopic studies of methane gas hydrates[J]. Applied Spectroscopy Reviews, 2009, 44 (2): 168–179.
- [23] 李文. 涪陵与宜昌地区海相页岩裂缝脉体成因及流体包裹体古温压特征[D]. 武汉: 中国地质大学, 2018. [LI W. Origins of fractured veins and characteristics of paleo-temperature and pressure of fluid inclusions in marine shales of Fuling and Yichang regions[D]. Wuhan: China University of Geosciences, 2018.]
- [24] 刘德汉, 戴金星, 肖贤明, 等. 普光气田中高密度甲烷包裹体的发现及形成的温度和压力条件[J]. 科学通报, 2010, 55(4): 359–366. [LIU D H, DAI J X, XIAO X M, et al. High density methane inclusions in Puguang gas field: Discovery and a T-P genetic study[J]. Chinese Science Bulletin, 2010, 55(4): 359–366.]
- [25] DUAN Z, MØLLER N, WEARE J. An equation of state for the CH<sub>4</sub>–CO<sub>2</sub>–H<sub>2</sub>O system: I . Pure systems from 0 to 1000 °C and 0 to 8000 bar[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1992, 56 (7): 2605–2617.
- [26] DUAN Z, MØLLER N, WEARE J. An equation of state for the CH<sub>4</sub>–CO<sub>2</sub>–H<sub>2</sub>O system: II . Mixtures from 50 to 1000 °C and 0 to 1000 bar[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1992, 56(7): 2619–2631.
- [27] FALL A, EICHHUBL P, BODNAR R J, et al. Natural hydraulic fracturing of tight-gas sandstone reservoirs, Piceance Basin, Colorado[J]. GSA Bulletin, 2015, 127(1–2): 61–75.

(编辑 付娟娟)