

流体包裹体方法在页岩气研究中的应用

严礼宇¹, 郑义^{1,2,3,4}, 王成明¹, 虞鹏鹏¹

- (1. 中山大学地球科学与工程学院, 广东 珠海 519000;
2. 广东省地质过程与矿产资源探查重点实验室, 广东 广州 510275;
3. 广东省地球动力作用与地质灾害重点实验室, 广东 广州 510275;
4. 南方海洋科学与工程广东省实验室, 广东 珠海 519000)

摘要: 自美国页岩气革命以来, 中国油气勘探开发对页岩气的研究日渐重视, 大量研究对中国陆域页岩气地质资源进行了评价和优选, 但对页岩气的生成机理、富集机理、成藏时间和后期破坏等方面的认识仍十分有限。文章通过对比已有对页岩气储层中的流体包裹体的研究, 总结流体包裹体在页岩气储层的应用方法、现状与发展趋势。目前对于页岩气储层的包裹体研究, 主要使用显微测温方法, 对流体包裹体的均一温度、盐度进行研究; 结合激光拉曼光谱测试分析包裹体成分, 进而模拟恢复其古压力条件, 从而反映出页岩气的生成机理、成藏温压条件等。总体而言, 中国目前对页岩气生烃机制和保存机制以及储层特殊性的重视程度仍然不够, 流体包裹体研究有望成为解决这些问题的利器, 需要对其开展更多的工作。

关键词: 页岩气; 流体包裹体; 显微测温; 激光拉曼光谱分析; 古压力恢复

中图分类号: P618.13

文献标识码: A

APPLICATION OF FLUID INCLUSIONS METHODOLOGY IN THE SHALE GAS STUDY: A REVIEW

YAN Liyu¹, ZHENG Yi^{1,2,3,4}, WANG Chengming¹, YU Pengpeng¹

- (1. School of Earth Science and Engineering, Sun Yat-sen University, Zhuhai 519000, Guangdong, China;
2. Guangdong Provincial Key Lab of Geological Processes and Mineral Resource Survey, Guangzhou 510275, Guangdong, China;
3. Guangdong Provincial Key Lab of Geodynamic and Geohazards, School of Earth Science and Engineering, Guangzhou 510275, Guangdong, China;
4. Southern Laboratory of Ocean Science and Engineering, Zhuhai 519000, Guangdong, China)

Abstract: Since the US shale gas exploration breakthrough, more intention has been paid to shale gas exploration in China with a large number of research projects focusing on the potential evaluation and optimized target of continental shale gas in China. Even so, some key scientific issues on shale gas (i. e., generation mechanism, enrichment mechanism, accumulation time and deformation in later period) remain unclear. Herein, we carry out a systematic review about the application of fluid inclusion methodology, as well as its progress and prospective. Micropetrographic observation, cooling-heating

基金项目: 广东省自然科学基金杰出青年基金 (2018B030306021)

作者简介: 严礼宇 (1995-), 男, 在读硕士, 地质工程专业。E-mail: yanly8@mail2.sysu.edu.cn

通讯作者: 郑义 (1984-), 男, 博士, 副教授, 矿床学。E-mail: zhengy43@mail.sysu.edu.cn

引用格式: 严礼宇, 郑义, 王成明, 等. 流体包裹体方法在页岩气研究中的应用 [J]. 地质力学学报, 2019, 25 (S1): 103-107

DOI: 10.12090/j.issn.1006-6616.2019.25.S1.017

YAN Liyu, ZHENG Yi, WANG Chengming, et al. Application of fluid inclusions methodology in the shale gas study: A review [J]. Journal of Geomechanics, 2019, 25 (S1): 103-107 DOI: 10.12090/j.issn.1006-6616.2019.25.S1.017

stage micro-thermometry and Laser Raman are usually used to constrain the T (temperature)-X (composition)-P (pressure) of fluids contributing to formation of shale gas, and the forming depth (paleo-depth) are also reconstructed for further exploration. Generally, more specific fluid inclusion studies on shale gas reservoir are needed for the current insufficient understanding.

Key words: shale gas; fluid inclusions; micro-thermometry; Laser Raman spectroscopy; restoration of paleo geopressure

流体包裹体是指地质流体在矿物结晶生长过程中被捕获、包裹在某矿物的晶格缺陷或穴窝中,现如今还保存在矿物中并与矿物有清晰相界线那一部分物质,它是研究地质流体的一种较为直观可信的手段^[1]。页岩气研究中,泥页岩常作为其储层,如美国 Antirm 页岩;但页岩气一般不仅仅只赋存于泥页岩中,如美国 San Juan 盆地 Lewis 页岩气的致密砂岩层就为其主要储层^[2]。目前在矿床地质研究中,流体包裹体被广泛用来确定成矿流体来源、划分成矿期次和矿床类型等^[3-5];在常规油气成藏研究中,它也被广泛用于确定油气烃源,划分油气充注期次,确定成藏时间、成藏温度,油气运移通道等^[6-8]。然而在页岩气研究中,流体包裹体的应用仍较为不足^[9-10],这主要是由于页岩中矿物粒度普遍较小,结晶程度差,热液流体活动过程中不易进入矿物中而形成包裹体。但是,在一定地质条件下,页岩裂缝中的填充脉体也可发育一定数量的流体包裹体,如涪陵页岩气田焦石坝区块的页岩脉体中发育有甲烷包裹体^[11]。而对于整个页岩系统,即使脉体不发育,其页岩中的砂岩、粉砂岩和粉砂质泥岩夹层也会包裹地质流体形成包裹体。流体包裹体的显微岩相学观察和激光拉曼光谱分析可确定其成分特征,使用冷热台测得其均一温度,进而挖掘其中包含的地质流体信息,反映页岩系统的天然气充注情况,对于页岩气储层的气体“生”、“储”过程研究具有重要意义。

1 页岩气储层中的流体包裹体

页岩气是指基本未经运移,以吸附态和游离态的形式保存于页岩系统地层中的天然气,而天然气是指在自然状态下保存于地层中的一切气体,以 CH_4 为主^[12-14]。由于页岩气并未聚集在圈闭中成藏,严格来说不能称之为页岩气藏,但习惯上仍叫做页岩气藏,页岩系统地层也称之为页岩气

储层。在页岩气储层中,页岩中的脉体或者其砂岩、粉砂岩、泥岩等夹层中常含有流体包裹体^[15],它保存了页岩气生成演化过程中烃类气体及水形成的温度、盐度、成分和压力特征等重要信息,因而可以作为研究页岩气生烃、成藏演化和后期逸失及保存条件的重要工具。而这些研究将有助于页岩气勘探选区和后期生产的压裂改造。

页岩气储层中的流体包裹体通常分布在页岩的裂缝充填脉体中,而这些脉体通常是断裂相关、压力控制下多期流体的产物^[16-17]。裂缝的存在使得流体来源多样化,可以是孔隙水、大气水或者热液流体,也可以是烃类流体。赋存于脉体中的流体包裹体常分为纯水溶液包裹体、盐水两相包裹体、单相气相包裹体和含烃盐水包裹体。从研究页岩气形成的古压力环境来说,含烃盐水包裹体及单相气相包裹体尤为重要,特别是单相气相中的甲烷包裹体,它通常代表了页岩气指示了页岩气的成藏压力和后期的改造演化过程^[18]。盐水两相包裹体根据气相和液相的体积比,可细分为气相和液相包裹体,这里的气相通常为 CH_4 ,少部分为 CO_2 和 N_2 ,常为圆状、椭圆状以及长条状。甲烷包裹体中的气相组分除 CH_4 外,通常还会有 N_2 ,也常为圆状、椭圆状,以及多边形等,通常不能直接在镜下识别,需配合拉曼光谱分析才能确定,高密度的甲烷包裹体表明了地层的超压状态^[11]。

2 页岩气储层中的流体包裹体研究方法和进展

对于页岩系统中的流体包裹体,显微岩相学观察是最基本的方法。为了获得其内部的信息,需要激光拉曼光谱分析确定成分,显微测温得到其均一温度,进而计算捕获压力从而实现页岩气古压力恢复。为了得到捕获压力则需获得烃类包裹体(常为甲烷包裹体)的密度。Seitz^[19]和

Thieu^[20]等提出了用拉曼位移参数来计算甲烷包裹体的密度, 然后根据 Duan 等^[21-22]提出的状态方程即可求出捕获压力, 从而实现页岩气藏古压力的恢复。根据上述原理, 尚长建等^[23]针对柴页 1 井中侏罗统泥页岩的砂岩夹层中的流体包裹体, 进行脉体和包裹体的岩相学观察, 得出其具有两期油气充注活动; 通过激光拉曼光谱分析鉴定出含烃盐水包裹体中的烃类主要是甲烷; 显微测温得到均一温度分布范围为 72 ~ 90 °C; 通过激光拉曼位移最后得出捕获压力为 26.8 ~ 37.1 MPa。何廷鹏等^[24]在渝东北城口地区 Y1 井观察到其页岩裂缝脉体中发育大量含烃盐水包裹体以及伴生盐水包裹体, 激光拉曼测试进一步确定包裹体中烃类

有 CH₄ 和沥青质, 表明 Y1 井的页岩曾产生过天然气; 其中含烃盐水包裹体的均一温度为 103 ~ 109 °C, 伴生盐水包裹体的为 140 ~ 180 °C, 说明城口地区页岩气成藏时期的保存条件良好。李文等^[25]对焦石坝区块 JY-A 井的页岩石英方解石复合脉体中流体包裹体进行研究, 包裹体岩相学观察结合激光拉曼光谱分析, 发现脉体主要发育含 CH₄ 的气-液两相盐水包裹体和部分含少量 CO₂ 的甲烷包裹体; 显微测温测得石英脉中的含烃盐水包裹体的均一温度范围为 230 ~ 268 °C, 方解石脉的为 206 ~ 266 °C; 通过均一温度计算出密度, 进而得到甲烷包裹体捕获压力为 99.3 ~ 160.3 MPa。

表 1 中国页岩气典型勘探开发区的部分流体包裹体测试结果^[23-25]

Table 1 Test results of some fluid inclusions in typical exploration and development areas of shale gas in China^[23-25]

井号	赋存类型	包裹体类型	均一温度/°C	成分特征	捕获压力/MPa
柴页 1 井	砂岩夹层石英颗粒内	含烃盐水包裹体	72 ~ 90	含 CH ₄ 、N ₂ 、CO ₂	26.8 ~ 37.1
Y1 井	页岩裂缝石英、方解石脉体	含烃盐水包裹体 伴生盐水包裹体	103 ~ 109……140 ~ 180	含 CH ₄ 、沥青质 —	— —
JY-A 井	页岩裂缝石英、方解石脉体	含烃盐水包裹体 甲烷包裹体	206 ~ 268 -99 ~ -87	含少量 CH ₄ 含少量 CO ₂	— 99.3 ~ 160.3

注: “—”表示无测试数据。

除了进行古压力恢复外, 页岩气的来源或者说成因研究也是包裹体方法的一大应用。页岩气是自生自储的, 烃源岩即是储集层, 但这并不是说在页岩内部没有天然气的运移。富含有机质的页岩的成烃母质在地层压力下发生热解生烃或微生物分解, 进而吸附成藏, 但对于成烃母质的来源的了解还不够深入。通常认为烃源岩中有机质与烃类物质有直接联系, 但 Borjigin^[26]对四川盆地五峰—龙马溪组的页岩研究发现, TOC (总有机碳) 含量主要由笔石提供, 页岩气却主要是如浮游植物、疑源类的富氢有机质及其热裂解后的产物。Lüders 等^[27]则通过测定包裹体里所含的 CH₄ 和 CO₂ 的 δ¹³C 含量来确定德国 Lower Saxony 盆地页岩气的来源和成熟度, 为研究页岩气的来源提供了一个新的手段。

3 研究展望

经过多年的发展, 页岩气储层中流体包裹体的分析研究在对包裹体显微测温、激光拉曼光谱

分析和古压力恢复等分析方法方面已经取得了一定的进展。近年来, 特别是应用于古压力恢复测试研究, 取得了诸多研究成果。例如通过计算捕获压力进行古压力恢复, 证实了超压是中国页岩气生成富集的重要条件^[28], 为国内未来页岩气勘探选区提供了一个参考。与此同时, 在页岩气的成烃来源及生烃机制、页岩气储层的特殊性、以及古流体对页岩气保存影响等方面, 需要 we 进一步的开展更多工作。

参考文献/References

- [1] 卢焕章, 范宏瑞, 倪培, 等. 流体包裹体 [M]. 北京: 科学出版社, 2004: 172-268.
LU Huanzhang, FAN Hongrui, NI Pei, et al. Fluid inclusion [M]. Beijing: Science Press, 2004: 172-268. (in Chinese)
- [2] BUSTIN R M, BUSTIN A M M, CUI X, et al. Impact of shale properties on pore Structure and storage characteristics [C] // SPE Shale Gas Production Conference. Fort Worth, Texas, USA: Society of Petroleum Engineers, 2008.
- [3] 范洪海, 陈金勇, 顾大钊, 等. 纳米比亚欢乐谷地区白岗岩型铀矿床流体包裹体特征及成矿作用 [J]. 矿床地质,

- 2015, 34 (1): 189 – 199.
- FAN Honghai, CHEN Jinyong, GU Dazhao, et al. Fluid inclusions and metallogenesis of alaskite-type uranium deposits in Gaudeamus area, Namibia [J]. *Mineral Deposits*, 2015, 34 (1): 189 – 199. (in Chinese with English abstract)
- [4] BEJAOU J, BOUHLEL S, SELLAMI A, et al. Geology, mineralogy and fluid inclusion study of Oued Jebb Pb – Zn – Sr deposit; comparison with the Bou Grine deposit (diapirs zone, Tunisian atlas) [J]. *Arabian Journal of Geosciences*, 2014, 7 (6): 2483 – 2497.
- [5] 陈衍景, 倪培, 范宏瑞, 等. 不同类型热液金矿系统的流体包裹体特征 [J]. *岩石学报*, 2007, 23 (9): 2085 – 2108.
- CHEN Yanjing, NI Pei, FAN Hongrui, et al. Diagnostic fluid inclusions of different types hydrothermal gold deposits [J]. *Acta Petrologica Sinica*, 2007, 23 (9): 2085 – 2108. (in Chinese with English abstract)
- [6] 时保宏, 张艳, 张雷, 等. 鄂尔多斯盆地延长组长7致密储层流体包裹体特征与成藏期次 [J]. *石油实验地质*, 2012, 34 (6): 599 – 603.
- SHI Baohong, ZHANG Yan, ZHANG Lei, et al. Hydrocarbon accumulation dating by fluid inclusion characteristics in Chang7 tight sandstone reservoirs of Yanchang Formation in Ordos Basin [J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2012, 34 (6): 599 – 603. (in Chinese with English abstract)
- [7] 斯尚华, 赵靖舟, 蒙启安, 等. 松辽盆地齐家地区高台子致密油层包裹体古流体压力特征及其地质意义 [J]. *地质力学学报*, 2018, 24 (1): 51 – 59.
- SI Shanghua, ZHAO Jingzhou, MENG Qi'an, et al. The fluid inclusion Paleo pressure characteristics and geological implications of Gaotaizi tight reservoir in Qijia area of Songliao basin [J]. *Journal of Geomechanics*, 2018, 24 (1): 51 – 59. (in Chinese with English abstract)
- [8] 欧光习, 李林强, 孙玉梅. 沉积盆地流体包裹体研究的理论与实践 [J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2006, 25 (1): 1 – 11.
- OU Guangxi, LI Linqiang, SUN Yumei. Theory and application of the fluid inclusion research on the sedimentary basins [J]. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2006, 25 (1): 1 – 11. (in Chinese with English abstract)
- [9] 田亚铭, 施泽进, 宋江海, 等. 宜川 – 旬邑地区长6 ~ 长8储层流体包裹体特征及意义 [J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2011, 30 (1): 80 – 87.
- TIAN Yaming, SHI Zejin, SONG Jianghai, et al. Fluid inclusion characteristics of Chang 6 – Chang 8 reservoirs in the Triassic Yanchang formation of the Yichuan – Xunyi Area [J]. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2011, 30 (1): 80 – 87. (in Chinese with English abstract)
- [10] GEORGE S C, VOLK H, AHMED M. Geochemical analysis techniques and geological applications of oil-bearing fluid inclusions, with some Australian case studies [J]. *Journal of Petroleum Science and Engineering*, 2007, 57 (1 – 2): 119 – 138.
- [11] 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 Jian, HE Sheng, YI Jizheng. Discovery of high density methane inclusions in Jiaoshiba shale gas field and its significance [J]. *Oil & Gas Geology*, 2015, 36 (3): 472 – 480. (in Chinese with English abstract)
- [12] 何生, 叶加仁, 徐思煌, 等. 石油及天然气地质学 [M]. 武汉: 中国地质大学出版社, 2010.
- HE Sheng, YE Jiaren, XU Sihuang, et al. *Oil & gas geology* [M]. Wuhan: China University of Geosciences, 2010. (in Chinese)
- [13] 张金川, 金之钧, 袁明生. 页岩气成藏机理和分布 [J]. *天然气工业*, 2004, 24 (7): 15 – 18.
- ZHANG Jinchuan, JIN Zhijun, YUAN Mingsheng. Reservoiring mechanism of shale gas and its distribution [J]. *Natural Gas Industry*, 2004, 24 (7): 15 – 18. (in Chinese with English abstract)
- [14] 张田, 张建培, 张绍亮, 等. 页岩气勘探现状与成藏机理 [J]. *海洋地质前沿*, 2013, 29 (5): 28 – 35.
- ZHANG Tian, ZHANG Jianpei, ZHANG Shaoliang, et al. State-of-art exploration for shale gas and mechanism of gas accumulation [J]. *Marine Geology Frontiers*, 2013, 29 (5): 28 – 35. (in Chinese with English abstract)
- [15] 张敏, 欧光习, 张枝焕, 等. 柴达木盆地东部石炭系页岩气储层流体地球化学特征 [J]. *石油学报*, 2017, 38 (11): 1244 – 1252.
- ZHANG Min, OU Guangxi, ZHANG Zhihuan, et al. Geochemical characteristics of fluid in Carboniferous shale gas reservoir of the eastern Qaidam Basin [J]. *Acta Petrologica Sinica*, 2017, 38 (11): 1244 – 1252. (in Chinese with English abstract)
- [16] SIBSON R H. Crustal stress, faulting and fluid flow [M] // PARNELL J. *Geofluids: Origin, Migration and Evolution of Fluids in Sedimentary Basins*. Geological Society, London, Special Publications, 1994, 78: 69 – 84.
- [17] BONS P D, ELBURG M A, GOMEZ – RIVAS E. A review of the formation of tectonic veins and their microstructures [J]. *Journal of Structural Geology*, 2012, 43: 33 – 62.
- [18] 刘安, 欧文佳, 黄惠兰, 等. 湘鄂西地区奥陶系 – 志留系滑脱层古流体对页岩气保存的意义 [J]. *天然气工业*, 2018, 38 (5): 34 – 43.
- LIU An, OU Wenjia, HUANG Huilan, et al. Significance of paleo-fluid in the Ordovician – Silurian detachment zone to the preservation of shale gas in western Hunan – Hubei [J]. *Natural Gas Industry*, 2018, 38 (5): 34 – 43. (in Chinese with English abstract)
- [19] SEITZ J C, PASTERIS J D, CHOU I M. Raman spectroscopic characterization of gas mixtures. II. Quantitative composition and pressure determination of the CO₂ – CH₄ system [J]. *American Journal of Science*, 1996, 296 (6): 577 – 600.
- [20] THIEU V, SUBRAMANIAN S, COLGATE S O, et al. High-

- pressure optical cell for hydrate measurements using Raman spectroscopy [J]. *Annals of the New York Academy of Sciences*, 2010, 912 (1): 983–992.
- [21] DUAN Z H, MØLLER N, WEARE J H. An equation of state for the $\text{CH}_4 - \text{CO}_2 - \text{H}_2\text{O}$ system: I. Pure systems from 0 to 1000 C and 0 to 8000 bar [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1992, 56 (7): 2605–2617.
- [22] DUAN Z H, MØLLER N, WEARE J H. An equation of state for the $\text{CH}_4 - \text{CO}_2 - \text{H}_2\text{O}$ system: II. Mixtures from 50 to 1000 C and 0 to 1000 bar [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1992, 56 (7): 2619–2631.
- [23] 尚长健, 邱林飞, 黎琼, 等. 柴页 1 井中侏罗统页岩气储层的流体包裹体特征研究 [J]. *东华理工大学学报 (自然科学版)*, 2016, 39 (2): 178–183.
- SHANG Changjian, QIU Linfei, LI Qiong, et al. Characteristic of fluid inclusions in the middle Jurassic shale gas reservoir of well chaiye-1 [J]. *Journal of East China Institute of Technology*, 2016, 39 (2): 178–183. (in Chinese with English abstract)
- [24] 何廷鹏, 栾进华, 胡科, 等. 渝东北城口地区 Y1 井页岩有机地球化学特征及勘探前景 [J]. *岩矿测试*, 2018, 37 (1): 87–95.
- HE Tingpeng, LUAN Jinhua, HU Ke, et al. Organic geochemical characteristics of the shale from Y1 Well in Chengkou area of northeastern Chongqing and exploration prospects [J]. *Rock and Mineral Analysis*, 2018, 37 (1): 87–95. (in Chinese with English abstract)
- [25] 李文, 何生, 张柏桥, 等. 焦石坝背斜西缘龙马溪组页岩复合脉体中流体包裹体的古温度及古压力特征 [J]. *石油学报*, 2018, 39 (4): 402–415.
- LI Wen, HE Sheng, ZHANG Baiqiao, et al. Characteristics of paleo-temperature and paleo-pressure of fluid inclusions in shale composite veins of Longmaxi Formation at the western margin of Jiaoshiiba anticline [J]. *Acta Petrolei Sinica*, 2018, 39 (4): 402–415. (in Chinese with English abstract)
- [26] BORJIGIN T, SHEN B J, YU L J, et al. Mechanisms of shale gas generation and accumulation in the Ordovician Wufeng-Longmaxi Formation, Sichuan Basin, SW China [J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2017, 44 (1): 69–78.
- [27] LÜDERS V, PLESSEN B, DI PRIMIO R. Stable carbon isotopic ratios of $\text{CH}_4 - \text{CO}_2$ -bearing fluid inclusions in fracture-fill mineralization from the Lower Saxony Basin (Germany) - a tool for tracing gas sources and maturity [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2012, 30 (1): 174–183.
- [28] GAO J, ZHANG J K, HE S, et al. Overpressure generation and evolution in Lower Paleozoic gas shales of the Jiaoshiiba region, China: implications for shale gas accumulation [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2019, 102: 844–859.