

东营凹陷樊页1井沙河街组烃源岩 元素地球化学特征及其地质意义

刘庆

(中国石化胜利油田分公司勘探开发研究院, 山东 东营 257015)

摘要:为明确东营凹陷樊页1井沙河街组烃源岩元素地球化学特征及其地质意义,对其主量和微量元素组成进行系统分析。根据不同元素含量与 Al_2O_3 等含量的相关性,将其分为3种类型:第1种类型包括Al, Ti, K, Co, Cr, Ga和V等,以陆源碎屑来源为主;第2种类型包括Ca, Mg, Mn和Sr等,以水成来源为主;第3种类型包括Na, Fe, Cd, Ni, Pb, Ba和Zn等,具有多元复杂来源。根据元素来源的差异,优选 CaO/Al_2O_3 , Sr/Al_2O_3 , Sr/Ba 和 $V/(V+Ni)$ 这4个参数,建立综合地球化学剖面,根据各参数在剖面中的变化分析沙河街组烃源岩沉积环境的演变。从沙四段上亚段—沙三段中亚段,水成来源元素富集程度逐渐下降,湖水盐度逐渐降低,底水还原性逐渐减弱。根据各参数纵向差异及变化特征,将沙四段上亚段和沙三段下亚段划分为4个更小的沉积单元,其古盐度和底水的氧化、还原条件存在明显的差异。

关键词:烃源岩 主量元素 微量元素 湖泊演化 沙河街组 东营凹陷

中图分类号:TE125.6

文献标识码:A

文章编号:1009-9603(2017)05-0040-06

Element geochemical characteristics of source rocks in the Shahejie Formation in Well Fangye-1, Dongying sag and their geological significance

Liu Qing

(Exploration and Development Research Institute, Shengli Oilfield Company, SINOPEC, Dongying City,
Shandong Province, 257015, China)

Abstract: The major and minor elements of source rocks in the Shahejie Formation drilled by Well Fangye-1 in Dongying sag were analyzed systematically in order to clarify the element geochemical characteristics of the source rocks and their geological significance. According to the relation of contents of different elements with Al_2O_3 and CaO, the elements are classified into 3 different types. The elements of the first class, including Al, Ti, K, Co, Cr, Ga and V, are mainly sourced from terrestrial debris; those of the second class, which consist of Ca, Mg, Mn and Sr, are mainly sourced from lacustrine water; and those of the third class, including Na, Fe, Cd, Ni, Pb, Ba and Zn, are sourced from multiple and complex sources. Based on the genetic difference of the elements, 4 parameters including CaO/Al_2O_3 , Sr/Al_2O_3 , Sr/Ba and $V/(V+Ni)$ were preferably selected to set up a vertical comprehensive geochemical section, and the sedimentary environment evolution of the Shahejie Formation was discussed according to the changes of the parameters in the geochemical section. It shows that from the upper Es_4 to the middle Es_3 , the enrichment of the elements sourced from the water gradually decreases and the salinity of the lake water gradually drops, and the reducibility of bottom water is gradually weakened. Based on the variation tendency, both the upper Es_4 and the lower Es_3 can be subdivided into four smaller sedimentary units where the palaeo-sa-

收稿日期:2017-05-04。

作者简介:刘庆(1970—),男,山东沂水人,高级工程师,博士,从事油气地球化学研究。联系电话:13854639289, E-mail: Liuq_1230@163.com。

基金项目:国家科技重大专项“渤海湾盆地剩余油气资源潜力研究”(2016ZX05006-001),中国石化油气勘探开发领域重大项目“济阳坳陷油气聚集规律与精细评价关键技术”。

linity and bottom water redox condition are obviously different.

Key words: hydrocarbon source rocks; major elements; minor elements; evolution of the lacustrine; Shahejie Formation; Dongying sag

近年来,为适应页岩油气勘探的需要,针对烃源岩开展了大量的研究工作,研究领域涉及沉积学、岩石矿物学及地球化学等各个方面^[1-4]。元素作为烃源岩的主要组成部分,蕴含着古物源、古气候和古环境等丰富的地球化学信息^[5-7],对粗粒碎屑沉积物来说,烃源岩沉积较为连续,地质信息记录更为完整,因此加强元素地球化学研究,对深化烃源岩成因机制研究和精细评价具有重要指导意义。

东营凹陷是中国东部中—新生代陆相断陷盆地富油凹陷的典型代表,沙河街组烃源岩发育,沙四段上亚段—沙三段下亚段是其主力烃源岩发育层位。受到勘探程度和钻井取心的限制,对其主力烃源岩元素地球化学研究较少,主要涉及牛38和郝科1等井^[8]。其中郝科1井取心样品用于元素地球化学特征分析的层段跨度较大,虽然样品数量较多,但是样品间距较大,且主要为岩屑样品,不能适应烃源岩精细研究的需要;牛38井虽为连续取心样品,但层位以沙三段中亚段为主,沙三段下亚段仅有部分样品,因此亟需对研究区主力烃源岩元素地球化学特征及其地质意义进行深化研究。

近年来,在东营凹陷钻探的樊页1井针对主力烃源岩沙四段上亚段、沙三段下亚段及沙三段中亚段连续取心长度累积达403.63 m。樊页1井的系统取心为研究东营凹陷烃源岩元素地球化学特征奠定了物质基础。

1 样品采集与实验方法

樊页1井位于东营凹陷西南部的博兴洼陷,其烃源岩连续取心井段为3 030.00~3 444.44 m,取心层位为沙四段上亚段—沙三段中亚段,岩性以半深湖—深湖相灰色—深灰色油页岩、泥岩、灰质泥岩和泥灰岩为主,纹层较为发育,呈现较强的韵律性。以2 m左右间距进行样品采集,共采集样品209块,进行主量元素和微量元素分析。

样品分析依据SY/T 6404—1999^[9],取0.5 g样品进行粉碎烘干,加入约1 mL去离子水湿润后,先后用硝酸、氢氟酸和高氯酸等加热处理,再用去离子水定容于50 mL容量瓶中,最后利用电感耦合等离子体发射光谱仪(ICP-AES)进行元素测定。测定的主量元素包括K, Na, Ca, Mg, Fe, Al和Mn共7种,微

量元素包括Ba, Cd, Co, Cr, Ga, Ni和Sr等10种。

2 主量元素分类

泥页岩中元素往往具有不同成因来源,包括陆源碎屑来源、水成来源(包括底水通过吸附和沉淀及生物—化学作用等因素形成),可通过分析不同元素之间及有机质和元素之间的相关性加以识别^[10-12]。Al通常用来表征陆源碎屑组分含量,其通用的方法是假定Al(可换算为 Al_2O_3)仅源自陆源碎屑输入^[12],通过对比分析Al与其他元素的相关性,确定元素来源及成因机制。依据樊页1井沙四段上亚段—沙三段中亚段主量元素中氧化物含量与 Al_2O_3 等含量的相关性(图1)将主量元素分为3类。

第1类主量元素 包括Ti和K,除 TiO_2 存在少量异常点以外,樊页1井烃源岩中的 K_2O 和 TiO_2 含量与 Al_2O_3 含量呈较好的正相关(图1a, 1b),且不同层位之间斜率差异不大,表明Ti和K主要来源于陆源碎屑输入。樊页1井烃源岩中 Al_2O_3 、 TiO_2 和 K_2O 的平均含量分别为9.0%、1.43%和0.42%,均低于已公布的全球页岩的平均含量(分别为15.5%、3.2%和0.77%)^[13]。据此认为樊页1井沙四段上亚段—沙三段中亚段烃源岩相对贫陆源碎屑输入物,而富集水成来源成分,一定程度上表明古湖泊具有较高的盐度和矿化度。综上分析认为,可以用Ti和K含量来表征纵向剖面中陆源输入物的相对变化。

第2类主量元素 主要包括Ca, Mg和Mn,其中樊页1井烃源岩中CaO含量与 Al_2O_3 含量呈明显的负相关(图1c),表明Ca主要为水成来源,其富集程度与湖泊水化学特征有关,主要以化学和生物—化学成因的碳酸盐矿物形式赋存。而Mn含量与 Al_2O_3 含量呈负相关,与CaO含量呈较好的正相关(图1d),表明Mn含量可能与碳酸盐矿物的沉淀有关。泥页岩中Mn富集因素比较复杂,在海洋泥页岩沉积中,Mn是底水氧化、还原条件比较敏感的指示剂,通常在氧化、还原界面附近富集^[14];而在陆源沉积物中,Mn一般在距离物源较近的岸边沉积并富集。从樊页1井烃源岩样品的沉积环境来看,总体为相对稳定的深湖—半深湖还原环境。由此可见,Mn对沉积环境及与岸距离这2种影响因素的反映并不敏感。在黑海地区以碳酸盐岩为主的沉积岩中也发

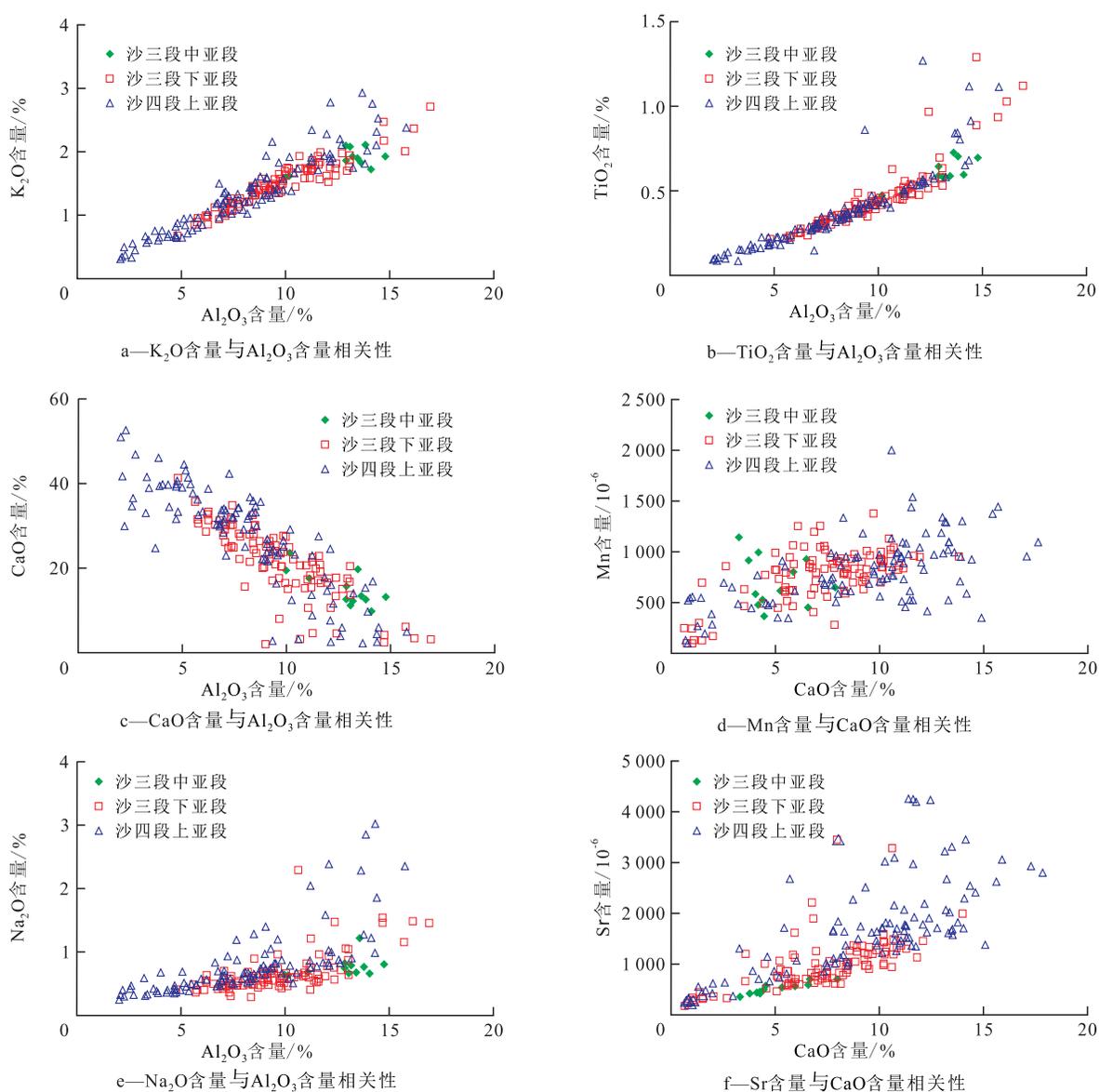


图1 东营凹陷樊页1井沙河街组烃源岩部分主要元素氧化物含量与Al₂O₃和CaO含量相关性

Fig.1 Relations of the contents of some major-element oxides with Al₂O₃ and CaO in source rocks of the Shahejie Formation in Well Fangye-1, Dongying sag

现了富含Mn的现象,即Mn赋存在碳酸盐矿物中,这与Mn²⁺与方解石中Ca²⁺发生置换反应有关^[14]。MgO含量与Al₂O₃含量整体上呈负相关。Mg与Ca化学性质相近,均为亲碳酸盐矿物元素^[15],主要赋存在白云石中^[11],主要为水成来源,其富集一般需要更高的盐度。

第3类主要元素 主要包括Na和Fe。樊页1井烃源岩中的Na₂O、Fe₂O₃含量与Al₂O₃含量整体上呈正相关,但数据点较为零散,相关性比第1类差(图1e)。这表明Na和Fe含量除与陆源碎屑输入有关以外,还受湖水盐度及氧化、还原条件等因素影响。Na含量在沙四段上亚段和沙三段下亚段还表现出一定的差异,当Al₂O₃含量一定时,沙四段上亚段比沙三段下亚段Na含量高(图1f)。经计算沙四

段上亚段和沙三段下亚段Na₂O/Al₂O₃平均值分别为0.097和0.069,也就是说在陆源碎屑输入量相当条件下,Na在下部层段更为富集。由于东营凹陷沙四段上亚段为咸化湖相沉积,而沙三段为半咸—微咸湖相沉积,湖水盐度由下向上逐渐降低^[16],Na含量在纵向上的差异一定程度上反映了湖泊古盐度的演变。Fe除陆源碎屑来源以外,一般还包括水成来源,随沉积环境由还原向氧化的转变,Fe以黄铁矿、菱铁矿或Fe(OH)₃等形式从孔隙水中沉淀出来。前人研究证实,东营凹陷沙四段上亚段和沙三段下亚段草莓状黄铁矿大量存在,并且往往与有机质伴生,其形成与底水的强还原环境有关。因此,Fe₂O₃含量与Al₂O₃含量的相关性可能是陆源碎屑来源与水成来源混合的综合反映。

3 微量元素分类

利用与主量元素相同的方法,将微量元素分为3类。第1类微量元素包括Co, Cr, Ga和V,其含量与Al₂O₃含量整体上呈较好的正相关,表明这4种微量元素主要为陆源碎屑来源(图2a, 2b)。第2类微量元素仅包括Sr,其含量与Al₂O₃含量呈明显的负相关(图2c),与CaO含量呈较好的正相关(图1f),表明Sr主要为水成来源。David等对现代生物成因方解石分析发现,Sr是在方解石和白云石中赋存的最重要的微量元素^[11]。另外,从图1e和图2c可以看出,沙四段上亚段Sr含量明显高于沙三段下亚段,进一步表明Sr沉淀受控于古湖泊盐度,高盐度环境有利于Sr在沉积物中富集。第3类微量元素包括Cd, Ni, Pb, Ba和Zn,其含量与Al₂O₃和CaO含量的相关性与前2类微量元素存在较大差异,并且这5种微量元素之间也表现出一定的差异性,表明其来源较为复杂。其中Cd, Ni和Pb含量均与Al₂O₃含量整体上呈正相关,但相关性较差(图2d),表明除陆源碎屑来源以外,其富集还受其他因素的影响。值得说明的是,沙四段上亚段Ni含量远低于沙三段下亚段,这种差异可能从较大程度上受氧化、还原条件等因素控制。而Ba和Zn含量与Al₂O₃含量之间的相

关性不明显,表明非陆源碎屑来源的成分占较大比重。其中Ba含量与CaO含量呈弱正相关,表明部分Ba可能以碳酸盐岩的形式赋存。Zn含量与Al₂O₃和CaO含量之间的相关性均较差,David等对Monterey页岩研究发现,Zn主要赋存在有机质中^[11]。樊页1井3210m附近沙三段下亚段高阻泥页岩中Zn含量呈现增高的趋势,该高阻层段有机质最为富集,间接证明了Zn富集从一定程度上受有机质沉积的影响^[16]。综上分析认为,第3类微量元素的来源和赋存机制非常复杂,有必要继续做更深入的研究工作。

在诸多海相沉积研究实例中,不同微量元素的成因来源与樊页1井存在一定的差异,究其原因可能与海水较湖水规模大,海水储集元素的能力更强,加之海洋中沉积速率较低,活动元素在海水中滞留时间长,元素得以充分分异有关。

4 元素组成与湖泊环境演化

在对主量和微量元素来源分析的基础上,优选CaO/Al₂O₃, Sr/Al₂O₃, Sr/Ba和V/(V+Ni)这4个参数,建立综合柱状剖面,系统分析樊页1井沙河街组烃源岩中各参数的纵向变化(图3)。其中CaO/Al₂O₃和Sr/Al₂O₃这2个参数分别表征水成来源为主与陆源

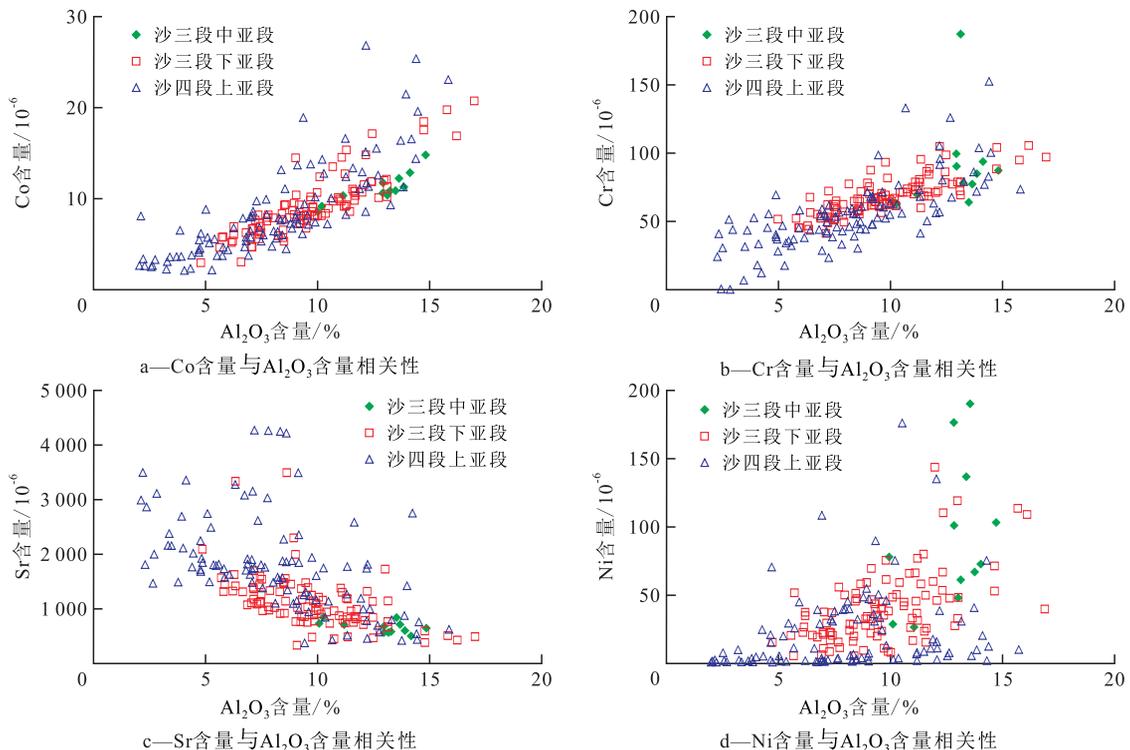


图2 东营凹陷樊页1井沙河街组烃源岩各微量元素含量与Al₂O₃含量相关性

Fig.2 Relations of contents of some minor elements with Al₂O₃ in source rocks of the Shahejie Formation in Well Fangye-1, Dongying sag

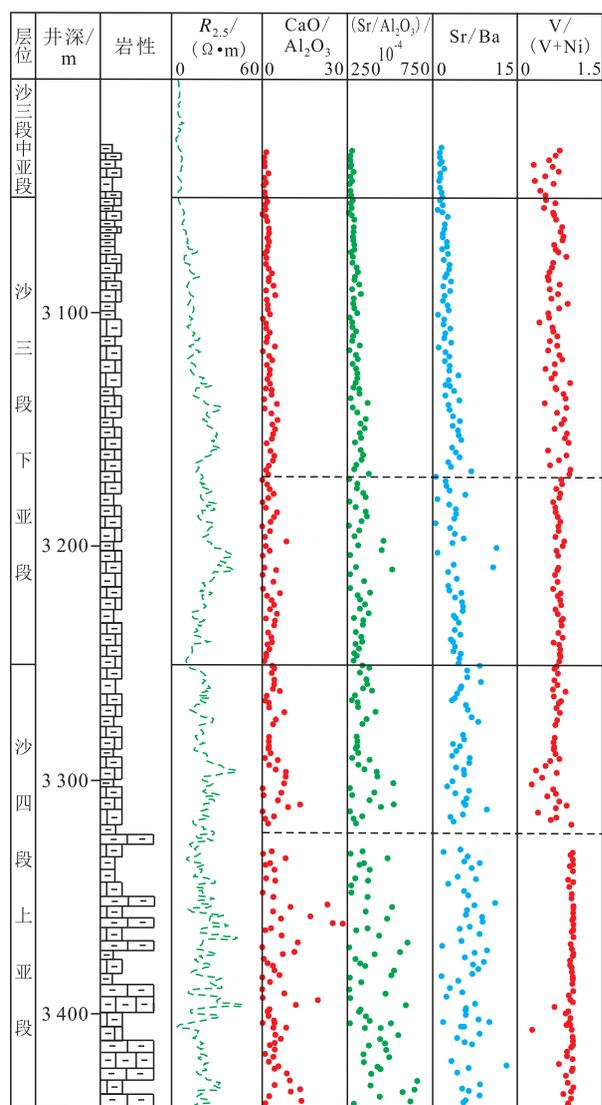


图3 东营凹陷樊页1井沙河街组烃源岩部分元素纵向变化

Fig.3 Variation of some element ratios in vertical section of source rocks of the Shahejie Formation in Well Fangye-1, Dongying sag

碎屑输入为主,其差异可用于分析水成来源元素相对陆源碎屑输入的富集程度和水体性质的变化。 Sr/Ba 值对古盐度的变化较为敏感,常用来判别沉积环境类型和恢复水体古盐度。通常, Sr/Ba 值大于1指示海相咸水沉积, Sr/Ba 值小于0.6指示陆相淡水沉积, Sr/Ba 值为0.6~1指示过渡相的半咸水沉积^[17]。 $V/(V+Ni)$ 是指示沉积环境氧化、还原条件的常用参数。据前人研究,当 $V/(V+Ni)$ 值大于0.60时,指示厌氧的还原环境;当 $V/(V+Ni)$ 值为0.46~0.60时,指示贫氧的沉积环境;当 $V/(V+Ni)$ 值小于0.46时,指示富氧的沉积环境^[17]。

由图3可以看出,沙四段上亚段 CaO/Al_2O_3 , Sr/Al_2O_3 和 Sr/Ba 值整体上较大、波动范围较大,且由下向上呈逐渐降低的趋势。其参数值整体上较大,表

明水成来源元素相对陆源碎屑输入来说较为富集,指示湖水较高的盐度,这与沙四段上亚段为咸化湖相沉积是一致的;其参数值波动范围较大,表明沉积环境不稳定,东营凹陷沙四段上亚段烃源岩为交互式优质烃源岩,沉积物对气候的变化较为敏感,岩性组合呈较好的韵律性^[16];其参数值由下向上呈逐渐降低的趋势,指示湖水盐度逐渐降低,这与东营凹陷沙河街组沉积时期气候由于旱向湿润的变化趋势及湖水逐渐淡化的趋势是一致的^[18]。上述3个参数的波动性变化可能是气候变化引起的物源输入、湖泊水化学特征不稳定的体现。从 $V/(V+Ni)$ 值来看,沙四段上亚段可分为2段。其中3 320~3 444.4 m井段 $V/(V+Ni)$ 值一般大于0.9,而3 249~3 320 m井段 $V/(V+Ni)$ 值迅速降低,大多数为0.5~0.75,二者之间存在突变。这种突变表明尽管沙四段上亚段 $V/(V+Ni)$ 值均相对较高,指示底水较强的还原环境,但底水的氧化、还原条件在3 320 m附近发生变化,推测与湖水盐度的持续降低而引起湖水的化学成分和盐度、密度分层有关。

整体上,沙三段下亚段 CaO/Al_2O_3 , Sr/Al_2O_3 和 Sr/Ba 值低于沙四段上亚段,且由下向上持续降低(图3),表明水成来源元素相对陆源碎屑输入富集的程度逐渐下降,进一步表明气候逐渐湿润,湖水盐度逐渐降低。3个参数的波动程度逐渐降低,说明沉积环境较为稳定。东营凹陷沙三段下亚段为深水侧变式优质烃源岩成因模式,沉积物对气候干湿变化的反映不敏感,岩性较为均一,是环境稳定的体现^[16]。从 $V/(V+Ni)$ 值来看,沙三段下亚段大致也可分为2段。其中 $V/(V+Ni)$ 值在沙三段下亚段3 165~3 249 m井段与沙四段上亚段3 249~3 320 m井段较接近,且参数值波动范围较小,表明底水的氧化、还原条件较为稳定;沙三段下亚段3 053~3 165 m井段同其下部3 165~3 249 m井段相比, $V/(V+Ni)$ 平均值变化不大,但参数值波动较大,表明底水的氧化、还原条件开始变得不稳定,推测该井段处于氧化、还原界面附近。

沙三段中亚段 CaO/Al_2O_3 , Sr/Al_2O_3 和 Sr/Ba 值较沙三段下亚段持续降低(图3),表明水成来源元素富集程度相对陆源碎屑输入进一步下降。 $V/(V+Ni)$ 值则延续了沙三段下亚段上部的特点,表明其氧化、还原程度进一步降低。

根据各参数的纵向差异及变化特征,将沙四段上亚段和沙三段下亚段划分为4个更小的沉积单元,其古盐度和底水的氧化、还原条件存在明显的差异。

5 结论

根据樊页1井沙河街组烃源岩不同主量元素和微量元素含量与 Al_2O_3 等含量的相关性,将其分为3类:其中Al, K, Ti, Co, Cr, Ga和V主要为陆源碎屑输入来源, Ca, Mg, Mn和Sr主要为水成来源, 其他元素较为复杂, 为复合来源。

优选 CaO/Al_2O_3 , Sr/Al_2O_3 , Sr/Ba 和 $V/(V+Ni)$ 这4个参数, 建立樊页1井沙河街组烃源岩的综合柱状剖面, 分析烃源岩沉积环境的变化: 从下向上, 古湖泊的盐度逐渐降低, 水成来源元素富集程度逐渐下降, 而陆源碎屑输入元素含量逐渐增加, 氧化、还原条件逐渐由强还原环境向弱还原环境转变。根据各参数的纵向差异及变化特征, 将沙四段上亚段和沙三段下亚段划分为4个更小的沉积单元, 其古盐度和底水的氧化、还原条件存在明显的差异。

参考文献:

- [1] 刘惠民, 孙善勇, 操应长, 等. 东营凹陷沙三段下亚段细粒沉积岩岩相特征及其分布模式[J]. 油气地质与采收率, 2017, 24(1): 1-10.
Liu Huimin, Sun Shanyong, Cao Yingchang, et al. Lithofacies characteristics and distribution model of fine-grained sedimentary rock in the lower Es₃ member, Dongying sag[J]. Petroleum Geology and Recovery Efficiency, 2017, 24(1): 1-10.
- [2] 李钜源. 渤海湾盆地东营凹陷古近系泥页岩孔隙特征及孔隙度演化规律[J]. 石油实验地质, 2015, 37(5): 566-574.
Li Juyuan. Pore characteristics and their evolution in Paleogene mud shales, Dongying Sag, Bohai Bay Basin[J]. Petroleum Geology & Experiment, 2015, 37(5): 566-574.
- [3] 蒋启贵, 申宝剑, 仰云峰, 等. 渤南洼陷页岩生烃组分动力学分析及其对页岩油气勘探的意义[J]. 石油实验地质, 2016, 38(2): 231-239.
Jiang Qigui, Shen Baojian, Yang Yunfeng, et al. Kinetic analysis of hydrocarbon generation components in shales from the Bonan sub-Sag and its significance for hydrocarbon exploration[J]. Petroleum Geology & Experiment, 2016, 38(2): 231-239.
- [4] 李进步, 卢双舫, 陈国辉, 等. 基于矿物学和岩石力学的泥页岩储层可压裂性评价[J]. 大庆石油地质与开发, 2015, 34(6): 159-164.
Li Jinbu, Lu Shuangfang, Chen Guohui, et al. Friability evaluation for the mud shale reservoirs based on the mineralogy and rock mechanics[J]. Petroleum Geology & Oilfield Development in Daqing, 2015, 34(6): 159-164.
- [5] 钱焕菊, 陆现彩, 张雪芬, 等. 东营凹陷沙四段上部泥质烃源岩元素地球化学及其古盐度的空间差异性[J]. 岩石矿物学杂志, 2009, 28(2): 161-168.
Qian Huanju, Lu Xiancai, Zhang Xuefen, et al. Spatial paleosalinity distribution and element geochemistry of argillaceous source rocks in the upper part of 4th Member of Tertiary Shahejie Formation in Dongying Sag[J]. Acta Petrologica Et Mineralogica, 2009, 28(2): 161-168.
- [6] 柏静儒, 王擎, 陈艳, 等. 油页岩中几种微量元素的赋存形态[J]. 环境科学学报, 2008, 28(10): 2156-2160.
Bai Jingru, Wang Qing, Chen Yan, et al. Geochemical occurrences of selected trace elements in oil shale[J]. Acta Scientiae Circumstantiae, 2008, 28(10): 2156-2160.
- [7] 刘江涛, 刘双莲, 李永杰, 等. 焦石坝地区奥陶系五峰组—志留系龙马溪组页岩地球化学特征及地质意义[J]. 油气地质与采收率, 2016, 23(3): 53-57.
Liu Jiangtao, Liu Shuanglian, Li Yongjie, et al. Geochemistry characteristics and its geological significance of shale in the Ordovician Wufeng Formation and Silurian Longmaxi Formation, Jiaoshiba area[J]. Petroleum Geology and Recovery Efficiency, 2016, 23(3): 53-57.
- [8] Chen Zhonghong, Wei Huang, Qing Liu, et al. Geochemical characteristics of the Paleogene shales in the Dongying depression, eastern China[J]. Marine and Petroleum Geology, 2016, 73: 249-270.
- [9] 王汇彤, 王荣光, 张蒂嘉, 等. SY/T 6404—1999 沉积岩中金属元素电感耦合等离子体原子发射光谱分析方法[S]. 北京: 石油工业出版社, 1999.
Wang Huitong, Wang Rongguang, Zhang Dijia, et al. SY/T 6404—1999 Analytical method of metal elements in sediment rock by ICP-AES[S]. Beijing: Petroleum Industry Press, 1999.
- [10] Piper David Z, Dean Walter E. Trace-element deposition in the Cariaco Basin, Venezuela Shelf, under sulfate-reducing conditions—a history of the local hydrography and global climate, 20 ka to the present [R/OL]. US Geological Survey Professional Paper 1670, 2002 [2017-05-04]. <http://pubs.usgs.gov/pp/1670/>.
- [11] David Z P, Caroline M I. The Monterey Formation: bottom-water redox conditions and photic-zone primary productivity [C]. Caroline M I, Jurgen Rullkötter. The Monterey Formation: from rocks to molecules. New York: Columbia University Press, 2001.
- [12] Medrano M D, Piper D Z. Partitioning of minor elements and major-element oxides between rock components and calculation of the marine-derived fraction of the minor elements in rocks of the Phosphoria Formation, Idaho and Wyoming [R]. US Geological Survey Open-File Report, 1995: 95-270.
- [13] Gromet P L, Dymek R F, Haskin L A, et al. The "North American shale composite": Its compilation, major and trace element characteristics [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1984, 48(12): 2469-2482.
- [14] 陈兰. 湘黔地区早寒武世黑色岩系沉积学及地球化学研究[D]. 贵阳: 中国科学院地球化学研究所, 2006: 40.
Chen Lan. Sedimentology and geochemistry of the Early Cambrian black rock series in the Hunan-Guizhou area, China [D]. Guiyang: Philosophy Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, 2006: 40.
- [15] 匡友, 吴章明. 冀中地区早第三纪沉积岩化学元素分布特征及其多元统计研究[J]. 中国海上油气: 地质, 1995, 9(3): 169-178.