

文章编号:1009-9603(2020)02-0018-08

DOI:10.13673/j.cnki.cn37-1359/te.2020.02.003

# 东营凹陷页岩油储层中方解石的成因及证据

滕建彬<sup>1,2,3,4,5</sup>

(1.中国石化胜利油田分公司 勘探开发研究院,山东 东营 257015; 2.中国石油大学(华东)地球科学与技术学院,山东青岛 266580; 3.中国石化页岩油气勘探开发重点实验室,山东 东营 257015; 4.中国石化胜利油田分公司 沉积模拟与储层评价实验室,山东 东营 257015; 5.东营市低渗透油层产能评价与增产改造重点实验室,山东 东营 257015)

**摘要:**为明确东营凹陷页岩中方解石矿物成因和储层成岩特征,利用薄片、X衍射、碳氧同位素等分析技术,首次发现了牛页1井页岩中方解石脉具有示顶底构造和机械双晶特征,是地质构造运动产生地应力作用于页岩方解石脉上留痕的直接岩石学证据,为页岩地层地应力的研究提供了载体矿物。通过对研究区页岩中泥晶方解石和亮晶方解石的碳氧同位素对比分析发现:页岩中泥晶方解石的形成主要隶属于与甲烷细菌活动生成生物气有关的碳酸盐,亮晶方解石脉极可能为泥晶方解石溶蚀后再沉淀重结晶的产物。生烃增压等作用形成微裂缝是方解石脉形成的先决条件,有机酸对泥晶方解石的溶蚀和再沉淀是必要条件。根据发现的4个岩石学特征和碳氧同位素证据,阐述了从生烃增压、微裂缝形成、有机质热演化排出有机酸、泥晶方解石被溶蚀、方解石重结晶,直至方解石脉形成的整个同生演化过程,并探讨了页岩与相邻砂岩的碳库来源和砂泥岩协同成岩演化过程。

**关键词:**泥页岩;同位素;方解石;重结晶;同生演化;东营凹陷

中图分类号:TE122.2\*21

文献标识码:A

## Origin and evidence of calcite in shale oil reservoir of Dongying Sag

TENG Jianbin<sup>1,2,3,4,5</sup>

(1.Exploration and Development Research Institute, Shengli Oilfield Company, SINOPEC, Dongying City, Shandong Province, 257015, China; 2.School of Geosciences, China University of Petroleum(East China), Qingdao City, Shandong Province, 266580, China; 3.Key Laboratory of Shale Oil/Gas Exploration and Production, SINOPEC, Dongying City, Shandong Province, 257015, China; 4.Key Laboratory of Sedimentary Simulation and Reservoir Evaluation, Shengli Oilfield Company, SINOPEC, Dongying City, Shandong Province, 257015, China; 5.Key Laboratory of Productivity Evaluation and Stimulation of Low Permeability Reservoir, Dongying City, Shandong Province, 257015, China)

**Abstract:** In order to clarify the origin of calcite minerals and the diagenetic characteristics of reservoirs in Dongying Sag, the calcite veins in Well Niuye1 are analyzed with thin section, X-ray diffraction and carbon-oxygen isotope. It is discovered that they can indicate top-bottom structure and have mechanical twin crystals characteristics, which provides the evidence that they are products of the in-situ stress generated by geological tectonic movement acting on the shale, and they provide carrier minerals for the study of in-situ stress in shale formation. Through comparative analysis of carbon and oxygen isotopes of micrite calcite and sparry calcite in shale of the study area, it is found that micrite calcite in shale mainly belongs to carbonate related to biogas generated by methane bacteria. The sparry calcite veins are likely to be the product of precipitation and recrystallization of the mudstone calcite after dissolution. The micro-fractures caused by hydrocarbon generation and pressurization are the prerequisite for the formation of the calcite veins, and the dissolution and reprecipitation of argillaceous calcite by organic acid is a necessary condition. Based on the four petrological characteristics and the car-

收稿日期:2019-09-28。

作者简介:滕建彬(1980—),男,山东青州人,高级工程师,在读博士研究生,从事油气储层综合评价研究。E-mail:tengjianbin.slyt@sinopec.com。

基金项目:国家科技重大专项“济阳拗陷页岩油勘探开发目标评价”下属课题“济阳拗陷页岩油储集特征与发育规律研究”(2017ZX05049-004),国家“973”计划“中国东部古近系陆相页岩油富集机理与分布规律”下属02课题“陆相页岩油储集空间与发育模式”(2014CB239102)。

bon-oxygen isotope, the syngenetic evolution of the hydrocarbon-generating pressurization, micro-fracture formation, organic acid discharged from thermal evolution of organic matter, dissolution of micrite calcite, recrystallization of calcite, and formation of calcite veins are described. The source of carbon pool of shale and adjacent sandstone and the process of synergistic diagenesis of sandstone and mudstone are discussed as well.

**Key words:** shale; isotope; calcite; recrystallization; contemporaneous evolution; Dongying Sag

油气储层综合研究主要涵盖储层特征描述、成岩作用分析、孔隙演化、优质储层主控因素及展布规律等诸多方面<sup>[1-3]</sup>。碳氧同位素既是分析碳酸盐岩形成时古气候、古环境变化的重要地球化学指标,又是分析同位素分馏与成岩演化关系的示踪标志。中外相关研究表明, $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 高值一般反映湖平面的上升,有机碳埋藏速率升高,而低值则反映湖平面的下降和有机碳埋藏速率的减缓。 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值则可以作为碳酸盐岩早期成岩和后期成岩变化的指标<sup>[4-6]</sup>。碳酸盐胶结物中碳氧稳定同位素组成是判断其形成时物质来源和地球化学特征的重要证据,可用于阐明流体-岩石相互作用和次生孔隙形成机理等问题<sup>[4-5]</sup>。油气勘探中往往对砂岩储层大规模取心,分析化验资料较为齐全,而页岩储层取心较少,对应的分析资料相对缺乏。因此,虽然部分研究者开始转向泥页岩和砂岩协同成岩方面的研究<sup>[7-11]</sup>,但受限于泥页岩取心和化验资料,无法深入地阐述页岩的成岩作用以及分析页岩与砂岩间的协同成岩特征<sup>[7,12]</sup>。笔者利用碳氧同位素反映湖平面变化、有机碳埋藏速率以及解释成岩变化的原理,揭示东营凹陷古近系页岩中碳酸盐矿物的形成、埋藏压实、成岩演化等隐含信息,从一个全新的视角反映页岩油储层的成岩特点,解析页岩油储层沉积成岩影响物性的隐含信息,丰富陆相页岩基础理论和服务页岩油勘探工作。

## 1 地质背景

东营凹陷位于渤海湾盆地东部,是济阳拗陷中的一个次级构造单元。凹陷内古近系沉积厚度超过5 000 m,主要由湖相成因的砂岩和泥页岩组成。东营凹陷探明石油地质储量和探明天然气地质储量约占整个济阳探区的50%,在整个拗陷的勘探贡献上占有举足轻重的地位。随着油气勘探程度的提高,页岩油勘探逐渐成为储量接替阵地。

东营凹陷古近系的主体烃源岩是咸水一半咸水环境的沙四段上亚段、淡水环境的沙三段下亚段和沙三段中亚段泥页岩<sup>[13-17]</sup>,X衍射全岩矿物分析显示,研究区页岩矿物组分中以方解石为主的碳酸

盐矿物含量占总岩石的20%~60%<sup>[16-17]</sup>。

## 2 页岩中方解石的成因

### 2.1 页岩碳氧同位素证据

分析页岩中方解石和砂岩中方解石胶结物的碳氧同位素值,散点分布结果(图1)显示,研究区页岩样品的碳氧同位素值全部集中分布于①区,即与甲烷细菌活动生成生物气有关的碳酸盐(封闭区),无样品数据点落于②区(与有机质脱羧作用有关的碳酸盐(半封闭区))和③区(埋藏较浅时与硫酸盐还原作用有关的碳酸盐(开放区)),说明页岩具有更为独立的封闭性。取牛页1井和樊页1井沙四段上亚段纯上次亚段的页岩,剥离亮晶方解石和泥晶方解石,分别检测碳氧同位素,结果显示:亮晶方解石与泥晶方解石相比 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 值相近,集中于0~6.5‰,平均为3.145 6‰;泥晶方解石的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 值分布于2.10‰~4.80‰,平均为3.48‰,亮晶方解石的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 值分布于0.20‰~6.50‰,平均为3.65‰。 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值明显偏轻,亮晶方解石的 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值分布于-13.20‰~-5.70‰,平均为-11.16‰。泥晶方解石的 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值则分布于-11.50‰~-8.40‰,平均为-9.49‰。亮晶方解石的 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值小于-11‰,表明岩石已发生了较强烈的蚀变,主要为后期重结晶成岩成因。

碳的有机来源表现为 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 值变化范围较宽,主要为-33‰~-18‰<sup>[2]</sup>,而大气中 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 值为-7‰左右。在碳酸盐矿物析出沉淀的过程中,碳同位素发生分馏作用,导致重新析出碳酸盐矿物的碳同位素相对于母源的碳同位素偏重9‰~10‰。当砂岩中碳酸盐胶结物的碳均来自于有机质时,碳同位素值可低至-23‰~-8‰。当碳酸盐胶结物的碳均为无机来源时,其碳同位素值可高达3‰<sup>[3]</sup>。因此处于相近成岩条件下,重结晶的亮晶方解石较泥晶方解石的碳同位素值差异不大,均为低正值。研究区亮晶方解石和泥晶方解石就属于无机碳库来源,属于湖盆化学沉淀为主的生物-化学碳酸盐成因。

甲烷细菌活动生成生物气的过程中,甲烷细菌发酵,有机质被分解,释放高负值 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 的甲烷,同

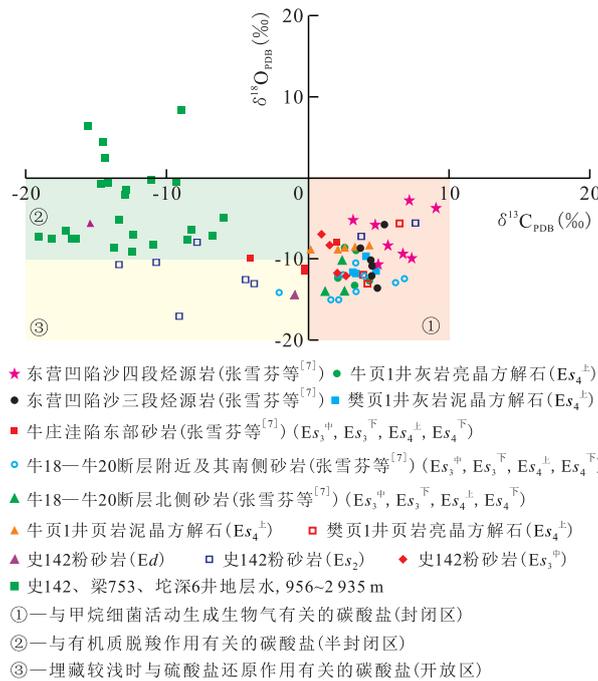


图1 东营凹陷沙河街组页岩和砂岩中碳酸盐胶结物的碳氧同位素散点图

Fig.1 Carbon-oxygen isotope scatter plots of carbonate cements in shale and sandstone of Shahejie Formation, Dongying Sag

时产生富集重<sup>13</sup>C同位素的CO<sub>2</sub>,溶解于页岩中的孔隙水中生成HCO<sub>3</sub><sup>-</sup>和CO<sub>3</sub><sup>2-</sup>,结合Ca<sup>2+</sup>,Mg<sup>2+</sup>和Fe<sup>2+</sup>,产生碳酸盐沉淀,并以方解石矿物的形式再沉淀<sup>[5]</sup>。受控于页岩矿物粒径和岩石密度的影响,页岩中沉淀的与生物气有关的碳酸盐不易与外界发生流体-岩石反应。随着成岩作用的加强,页岩孔隙流体中的金属阳离子不断被结合,生成方解石沉淀于页岩中。此种成岩方解石主要形成于早浅埋藏阶段生

物气大量生成阶段,基本保持了形成时的碳同位素组成,一般具有不随埋藏深度增加而变化的特点<sup>[4-5]</sup>。

东营凹陷沙四段上亚段和沙三段下亚段沉积时期为湖相环境,根据温度计算公式<sup>[18]</sup>,设定当时的δ<sup>18</sup>O<sub>PDB水</sub>分别为-3‰和-5‰,求得相应温度T<sub>1</sub>和T<sub>2</sub>值(表1)。其中牛页1井页岩中泥晶方解石T<sub>1</sub>值约为82~89℃,T<sub>2</sub>值约为58~64℃,亮晶方解石的T<sub>1</sub>

表1 牛页1和樊页1井沙四段上亚段泥页岩碳氧同位素与方解石形成温度

Table1 Carbon-oxygen isotopes and calcite formation temperature of Upper Es<sub>4</sub> shale in Well Niuye1 and Well Fanye1

井号	深度(m)	δ <sup>18</sup> O <sub>PDB</sub> (‰)	δ <sup>13</sup> C <sub>PDB</sub> (‰)	Z	T <sub>1</sub> (℃)	T <sub>2</sub> (℃)	方解石类型
牛页1	3 331.79	-8.7	2.6	128.29	86.28	62.02	泥晶方解石
牛页1	3 329.3	-8.8	3.4	129.88	87.64	63.10	泥晶方解石
牛页1	3 330.15	-8.9	2.1	127.17	89.01	64.19	泥晶方解石
牛页1	3 316	-8.4	4.3	131.92	82.28	58.86	泥晶方解石
牛页1	3 296.06	-8.6	3.3	129.78	84.93	60.95	泥晶方解石
牛页1	3 458.6	-12.3	4.3	129.98	144.06	109.72	亮晶方解石
牛页1	3 414.23	-12.7	2.8	126.71	151.60	116.14	亮晶方解石
牛页1	3 414.56	-13.2	3.9	128.71	161.34	124.48	亮晶方解石
樊页1	3 401.3	-11.5	3.2	128.13	129.65	97.55	泥晶方解石
樊页1	3 401.2	-11.4	4.8	131.45	127.91	96.09	泥晶方解石
樊页1	3 425.93	-9.6	4.1	130.92	99.02	72.24	泥晶方解石
樊页1	3 331.26	-11.6	3.4	128.49	131.40	99.02	亮晶方解石
樊页1	3 412.14	-5.7	6.5	137.78	51.99	36.13	亮晶方解石
樊页1	3 377.05	-13	4.2	129.43	157.40	121.10	亮晶方解石
樊页1	3 378.75	-11.9	3.9	129.36	136.74	103.52	亮晶方解石

值约为 144~162 °C,  $T_2$  值约为 109~125 °C。亮晶方解石形成时的  $T_1$  和  $T_2$  值明显比泥晶方解石的高 40~50 °C, 表明生物-化学作用析出的湖相碳酸盐沉积埋藏后, 泥晶方解石受浅埋藏成岩环境的弱改造, 亮晶方解石则为深埋藏条件下更高温度的脉体侵入和重结晶成因。在相近埋深下, 樊页 1 井页岩中泥晶方解石和亮晶方解石的  $T_1$  和  $T_2$  值同样也表明亮晶方解石形成于更高的温度环境。

根据 Keith 等公式<sup>[6]</sup>计算  $Z$  值,  $Z > 120$  时来源可能为海相,  $Z < 120$  时来源主要为淡水。牛页 1 井和樊页 1 井沙四段上亚段泥晶和亮晶方解石的  $Z$  值均大于 120, 属于咸化水环境, 符合东营凹陷沙四段上亚段沉积时期的咸化湖相沉积环境。

根据对沾化凹陷罗 67 井和罗 69 井页岩中方解石碳氧同位素的测定结果, 对比发现罗家和东营凹陷沙四段上亚段、沙三段下亚段页岩中碳酸盐矿物的碳氧同位素具有相似分布区间(图 2), 页岩中泥晶方解石的  $\delta^{13}C_{PDB}$  值为 2.0‰~5.0‰,  $\delta^{18}O_{PDB}$  分布于 -11.50‰~-8.0‰, 表明在相同地质历史时期, 济阳坳陷陆相湖盆的碳库和氧库具有相似的来源。页岩经埋藏压实后在成岩过程中, 相较于砂岩储层, 页岩受限于物性条件较差, 流体交换缓慢, 碳氧同位素的转化滞后, 保存了相对更为原始的碳氧同位素记录, 为不同凹陷页岩同位素的对比提供了可行性。页岩中亮晶方解石的发育形式包括方解石脉和重结晶方解石, 这两种亮晶方解石相对于泥晶方解石具有更负的  $\delta^{18}O_{PDB}$  值, 但  $\delta^{13}C_{PDB}$  值变化较稳定, 仍为低正值。通过对史 142 井沙二段砂岩储层中碳酸盐胶结物和地层水碳氧同位素的测定, 发现两者均为低负值的  $\delta^{13}C_{PDB}$  和  $\delta^{18}O_{PDB}$ , 散点分布区间广。前者较后者具有更低负值的  $\delta^{18}O_{PDB}$ , 较高负值的  $\delta^{13}C_{PDB}$ 。

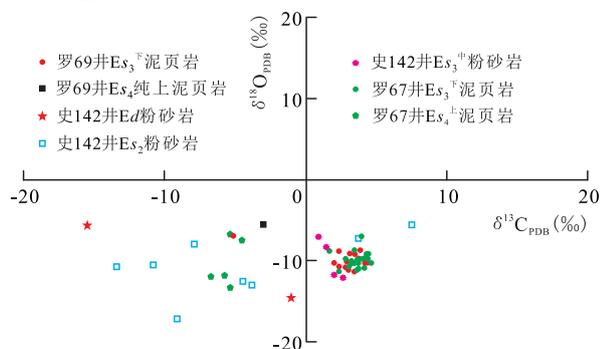


图 2 罗 67 和罗 69 井页岩中方解石的碳氧同位素散点图  
Fig.2 Carbon-oxygen isotope scatter plots of calcite in shale of Well Luo67 and Well Luo69

## 2.2 页岩与砂岩协同成岩演化证据

由于在同一沉积盆地内, 页岩一般作为砂岩的

围岩, 表现为砂泥互层和超覆接触关系, 因而砂岩油气储层的成岩作用势必受到页岩中排出流体的影响。页岩埋藏进入生油窗以后, 在上覆岩层压力、生烃增压及浮力共同作用下, 烃类流体和有机酸侵入与页岩互层或直接对接的砂岩体内, 发生由烃源岩向砂体传导层的油气运移。当油气的封盖保存条件较好时, 油气亦可短距离充注到砂岩储层中就地成藏。因此来自于烃源岩的孔隙流体对砂岩储层的成岩作用有着重要的影响, 常常形成特征性的成岩矿物及矿物组合<sup>[7,13]</sup>。

从泥岩压实水侵入砂岩储层的观点出发, 页岩中碳酸盐的碳氧同位素和砂岩中碳酸盐胶结物的同位素特征具有协同演化的特点。其成岩演化过程为: 埋藏压实作用下, 上覆岩石压力促使页岩孔隙大幅减小, 排出压实水。在大套页岩边缘, 页岩与砂体直接对接, 或是有断层输导, 页岩压实水直接进入砂体中, 发生水岩化学成岩作用<sup>[7,13,19]</sup>。本次主要阐述研究区页岩与砂岩从早成岩阶段 A 期到中成岩阶段 B 期的协同成岩过程。

在早成岩阶段 A 期(古温度小于 65 °C), 疏松的泥灰质沉积物受上覆地层和古水体的压实, 排出大量孔隙流体。在砂体和泥岩接触带, 泥岩压实排出的孔隙流体向砂岩孔隙内运移充注。大量原生孔隙水和有机质生物降解生成的少量有机酸进入砂体中, 砂岩中半风化的长石、岩屑等矿物易受溶蚀, 但溶蚀作用较为有限, 主要形成高岭石等自生矿物<sup>[20]</sup>。由于有机酸有限溶解灰质组分, 形成富含钙离子的高矿化度地层水, 浸入砂岩后, 易于发生方解石结晶沉淀, 在砂泥岩界面处的砂岩中形成钙质结壳, 从而导致在砂泥岩互层的情况下, 砂泥岩界面附近的碳酸盐胶结强于砂岩夹层内部。

在早成岩阶段 B 期(古温度为 65~85 °C), 有机质处于半成熟阶段, 泥灰岩中黏土矿物中的蒙脱石向伊/蒙混层转化, 转化过程中排出的层间水富含  $Ca^{2+}$ , 侵入砂泥岩接触带, 砂岩底部或顶部继续沉淀方解石胶结物, 加速了“底钙”和“顶钙”效应。

在中成岩阶段 A 期(古温度为 85~140 °C), 泥岩中的有机质在热催化作用下脱羧生成大量有机酸和  $CO_2$ , 黏土矿物中的蒙脱石向伊/蒙混层快速转化, 脱出大量层间水, 形成富含有机酸的高矿化度流体。在上覆地层压力和生烃增压的双重驱动作用下, 进入相邻砂岩储层的孔隙中, 大量溶蚀砂泥岩接触带的早期碳酸盐胶结物, 越靠近砂泥岩接触带, 砂岩的次生孔隙越发育。

在中成岩阶段 B 期(古温度为 140~175 °C), 有

机质处于高成熟阶段,释放有机酸的能力明显降低,加之受碳酸氢钠等强碱弱酸盐的影响,地层水介质由酸性向碱性转变,蒙脱石向伊利石的转化会析出大量 $\text{Na}^+$ ,  $\text{Ca}^{2+}$ ,  $\text{Mg}^{2+}$ ,  $\text{Fe}^{2+}$ 和 $\text{Si}^{4+}$ 等,其中 $\text{Mg}^{2+}$ 和 $\text{Fe}^{2+}$ 为重结晶方解石向白云石或铁白云石转化提供了离子条件。牛页1井从沙四段上亚段纯上至纯下次亚段的页岩中铁白云石含量显著增加,标志着页岩基本进入了中成岩阶段B期。

碳氧同位素分析结果显示(图1):牛页1井沙四段上亚段纯上次亚段页岩中泥晶方解石的 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值较稳定,为 $-8.9\text{‰} \sim -8.4\text{‰}$ ,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 值为 $2.1\text{‰} \sim 4.3\text{‰}$ ,亮晶方解石的 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值较稳定,为 $-13.2\text{‰} \sim -12.3\text{‰}$ ,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 值为 $2.8\text{‰} \sim 4.3\text{‰}$ 。相比较而言,亮晶方解石与泥晶方解石的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 值相近,具有相同的碳库来源。亮晶方解石比泥晶方解石具有更负的 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值,反映了页岩中泥晶方解石溶解、结晶形成亮晶方解石氧同位素重分馏的过程,因此亮晶方解石属于后期成岩作用重结晶的产物,主要以方解石脉的形式产出于页岩中<sup>[16]</sup>。

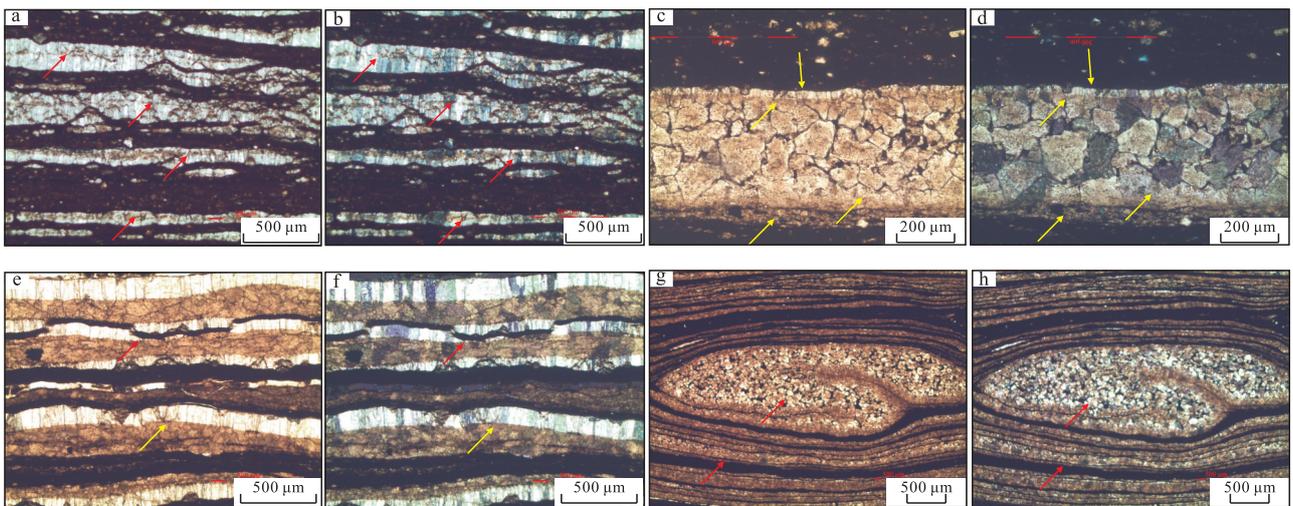
牛18—牛20断层北侧砂岩中方解石的 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值为 $-14.0\text{‰} \sim -10.0\text{‰}$ ,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 值为 $1.0\text{‰} \sim 3.0\text{‰}$ ,与牛页1井沙四段上亚段纯上次亚段页岩中亮晶方解石的 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 和 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值分布区间一致。牛18—牛20断层附近及南侧砂岩中方解石的 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值为 $-15.0\text{‰} \sim -10.0\text{‰}$ ,  $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 值为 $1.8\text{‰} \sim 9.0\text{‰}$ ,与牛页1井相比 $\delta^{13}\text{C}_{\text{PDB}}$ 值差异较大,表明受不同碳库来源的影响。其 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值则区间更负,与亮晶方解石的

$\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 值区间一致,反映了砂岩中方解石胶结物的形成主要源自临近页岩排出的流体,属于方解石重结晶沉淀产生的胶结物,这与砂泥岩成岩作用的研究成果认识较一致<sup>[20-22]</sup>。

### 2.3 方解石重结晶成岩证据

在陆相湖盆的页岩沉积中心,方解石纹层与泥质纹层相比,其抗压能力和储集空间更为优越,压实水优先浸入泥晶方解石纹层,随着孔隙流体压力的增加形成超压。尤其是进入生烃门限之后,随着烃类和有机酸的生成,生烃增压加速了超压的发育规模<sup>[14-15,23-24]</sup>,造成方解石纹层储集空间中的流体压力急剧增大,顺页岩纹层形成透镜体状高矿化度“液泡”,在撑开方解石纹层的同时,由于流体相对封闭,在有机酸作用下,发生方解石的溶蚀与微环境原地重结晶沉淀,形成透镜状亮晶方解石与泥质纹层相间的构造和结构。超压发育、微裂缝和方解石脉的形成可能具有同生的特点,有以下4个佐证。

碳酸盐纹层内发育类似缝合线的构造 发育于方解石纹层中心的未愈合微裂缝(图3a,3b)形似缝合线构造,表明了方解石的充填顺序:方解石沿着微裂缝顶底面先结晶,由两侧向中轴线结晶生长,脉体中方解石一般具有3~4期生长长期次。脉体中轴线为流体运移通道中心,普遍充填油质沥青和胶质沥青<sup>[16]</sup>。由于受泥页岩微观非均质性的影响,岩石破裂强度决定了裂缝形成形态和缝宽方面的差异,因而方解石脉也表现为宽窄不一的透镜状和纹层状的切面形态。在聚片双晶方解石集合体中,



a(单偏光)和b(正交偏光)一类似缝合线构造,表明方解石的充填顺序为顶底面先结晶,脉体轴线为流体运移提供通道中心,3 297.24 m;c(单偏光)和d(正交偏光)一方解石脉的形成特征具有典型的亮晶示顶底构造(顶亮晶-显微晶方解石,底部显微晶-泥晶混杂泥质和有机质),3 464.35 m;e(单偏光)和f(正交偏光)一在方解石成脉的过程中将沥青质捕获包裹,3 459.65 m;g(单偏光)和h(正交偏光)一生物腔中的方解石生长空间充裕,晶型较纹层方解石更规则,晶体更大,3 483.02 m

图3 牛页1井页岩中的方解石重结晶特征

Fig.3 Characteristics of recrystallization of calcite in shale of Well Niuye 1

晶体与晶体接触的晶面和解理面上,常常发育由双晶缝合线所构成的双晶条纹(图3b),正交偏光下则呈现为统一消光的特征<sup>[16]</sup>。聚片双晶是由若干方解石单体按照同一种双晶律组成,表现为一列接触双晶的聚合,所有接合面均相互平行。任意两个相邻单体间都是以同一种双晶律结合的,相邻单体间均呈双晶关系,相间的各单体彼此结晶方向均平行。

由于方解石脉形成的速度较快,在持续应力作用下,方解石以(0112)为双晶面和接合面形成聚片双晶(图3a,3b)。在晶体矿物学上,这种机械双晶又称滑移双晶或形变双晶,是方解石晶体形成后受机械外力作用,晶体内的部分晶格沿着面网一定方向发生滑移变形排列,且不破裂,从而形成“双晶”的特征。因此,机械双晶是晶体塑性变形的一种形式,根据它可以确定构造运动的方向和强度。牛页1井页岩中方解石脉机械双晶方解石的首次发现,直接说明地质构造运动可以使页岩产生内应力效应,提供了地应力表现形式的显著岩石学证据。

示顶底构造 方解石脉具有典型的示顶底构造(图3c,3d),顶部为显微晶方解石,底部为显微晶-泥晶方解石,混含泥质和有机质。位于深洼区的页岩在埋藏过程中,发生的流体活动和成岩作用主要包括:压实地层水排出、有机酸和烃类的幕式释放、方解石溶蚀和重结晶、各类黏土矿物的相互转化等。在构造运动和流体压力增大的影响下,页岩顺层微裂缝开启,微观上形成纹层状或透镜状的空间,空间内充满混含有机酸的高矿化度流体,沿着微裂缝上下壁面发生重结晶沉淀。由于处于裂缝的微环境中,有机酸溶解泥晶碳酸盐矿物时,吸附有机质的黏土矿物相对富集下沉,在微裂缝底部形成显微晶-泥晶方解石薄膜基底(图3c),而高矿化度的地层水在微裂缝顶部形成的显微晶方解石基底则相对纯净(图3d)。在顶底方解石薄膜基底的基础上,继续结晶生长的方解石晶体洁净,透光性好,晶型规则粗大,直径可达150~200  $\mu\text{m}$ 。显微荧光分析表明方解石脉的晶间孔中充填隶属于轻质组分的油质沥青和胶质沥青<sup>[16]</sup>。

“捕虏”沥青质的现象 在方解石成脉过程中,将沥青质捕获并包裹的现象(图3e,3f),说明方解石的重结晶过程必然受到有机质热演化生成的有机酸的影响。泥晶方解石被有机酸溶蚀,发生矿物溶解,再沉淀过程中“捕虏”沥青质,形成现今观察到的亮晶方解石脉<sup>[16]</sup>。沥青质被方解石“捕虏”的现

象充分证明了方解石重结晶和有机酸溶蚀泥晶方解石属于共生过程。由于生长空间有限,重结晶方解石的晶型和产状会有所差异。以牛页1井页岩中的重结晶方解石为例,方解石脉一般呈纹层状和透镜状,宽度为0.10~0.25 mm,方解石直径最小为300 nm,最大可达200  $\mu\text{m}$ (图3e,3f)。

生物体腔中方解石的结晶程度 生物体腔中的方解石与生物体腔外围重结晶的方解石相比,生长空间充裕,晶型更规则(图3g,3h)。生物体腔中的方解石晶体无色透明,在正交偏光下,具有菱形解理、明显闪突起、白干涉色和一轴负晶等典型特征。生物体腔内部与外部方解石晶型和晶体洁净程度的显著差异,是重结晶方解石来源于地层水与泥晶方解石之间水岩相互作用,再沉淀重结晶的直接证据。

东营凹陷页岩中方解石脉的发育层段与页岩初次破裂层段一致,镜质组反射率( $R_o$ )为0.60%~0.65%。方解石脉本质上属于半充填—完全充填微裂缝的表现形式,脉的形成与微裂缝开启同步。因为东营凹陷有机质演化程度较低,决定了镜质组反射率偏低,所以利用镜质组反射率的方法所得古地温梯度偏低。杨绪充和李善鹏等分别利用镜质组反射率法和磷灰石裂变径迹法,推算所得东营凹陷的古地温梯度为3.60和3.73  $^{\circ}\text{C}/\text{hm}$ <sup>[25-27]</sup>。古地温梯度一定程度上决定了有机质的演化程度,本文平均地温梯度取值3.6  $^{\circ}\text{C}/\text{hm}$ ,平均地表温度为14  $^{\circ}\text{C}$ 。根据温度计算公式,计算牛页1井泥晶方解石发生由生物气(甲烷细菌活动产生)导致的碳氧同位素分馏对应的埋深约为1 278~1 389 m。鉴于泥晶方解石的碳氧同位素特征,推测其形成过程为:在湖相咸水环境下,生物-化学成因的方解石沉淀后经历浅埋藏过程,受甲烷细菌活动生成生物气的改造,泥晶方解石发生同位素微弱分馏。推算方解石脉形成时页岩所处的埋深,牛页1井沙四段上亚段亮晶方解石脉对应形成于2 000~2 083 m,樊页1井沙四段上亚段纯上次亚段泥晶方解石发生由生物气(甲烷细菌活动产生)导致的碳氧同位素分馏对应的埋深约为1 611~2 333 m,方解石脉形成时对应的埋深约为2 361~2 972 m。研究表明页岩微裂缝和方解石脉形成于早期干气-生油阶段,这与笔者发现的方解石脉“捕虏”沥青质相印证。该认识与CHRISTOPHER等对页岩微观储集空间演化的研究认识相符<sup>[28]</sup>,说明页岩储集空间的演化机制在全球范围内具有可对比性。诚然,我们不否认在浅埋藏时,一些早期方解石脉也可形成。比如,樊页1井现

今3 412.14 m处的方解石脉,利用 $\delta^{18}\text{O}_{\text{PDB}}$ 计算其形成时的古温度为36.13 °C,埋深约为615 m。

### 3 结论

通过对研究区泥晶方解石和亮晶方解石的碳氧同位素对比发现,页岩中泥晶方解石主要隶属于与甲烷细菌活动生成生物气有关的碳酸盐,透镜状和纹层状重结晶方解石属于微裂缝被脉体充填现象。亮晶方解石脉极可能是泥晶方解石被溶蚀后再沉淀重结晶的产物。从生烃增压、微裂缝形成、有机质热演化排出有机酸、泥晶方解石被溶蚀、方解石重结晶,直至方解石脉的形成,极可能属于同生演化过程。

根据页岩与相邻砂岩的碳氧同位素特征比对,发现砂岩中的一部分方解石胶结物与页岩中方解石脉的碳氧同位素分布区间一致,推测为同一碳库和氧库来源。另一部分方解石胶结物与有机质脱羧作用有关,可能为烃类充注过程中,携带有机酸和高矿化度页岩流体,侵入砂岩储层内部发生方解石沉淀有关。而砂岩中地层水的碳氧同位素值分布十分离散,反映了在浅埋藏条件下,受硫酸盐还原作用影响的碳氧同位素特点。

在牛页1井页岩中首次发现了方解石脉发育示顶底构造和机械双晶现象,是地质构造运动产生地应力,继而作用于方解石脉的直接岩石学证据,为页岩地层地应力的研究提供了载体矿物,具有重要地质意义。推测研究区聚片双晶方解石的成因过程为:地应力促使页岩形成微裂缝,高钙低镁流体汇集充注于微裂缝内,形成多期次重结晶方解石,在地应力持续作用下形成聚片双晶。聚片双晶方解石与白云石化可作为划分成岩阶段的重要指标。

根据古地温梯度和氧同位素分析,测算微裂缝方解石脉形成的大体埋深,约对应于早期干气-生油阶段,笔者发现的方解石脉“捕虏”沥青质现象提供了较好的辅证。初次破裂为方解石脉的形成创造了空间和富钙流体充注条件,有利于页岩油储层中流体与岩石的水岩反应,加速了页岩的成岩作用,因而也是铁方解石化和铁白云石化的主要阶段,白云石相对丰度对应于孔隙异常发育层段就是最为有利的证据。

#### 参考文献

- [1] GREG P, JAMES G, JOHN L. Interpretational application of spectral decomposition in reservoir characterization [J]. The Leading Edge, 1999, 18(3): 353-360.
- [2] MACK G H, COLE D R, GIORDANO T H, et al. Palaeoclimate controls on stable oxygen and carbon isotopes in caliche of the Abo Formation (Permian), south-central New Mexico, USA [J]. Journal of Sedimentary Research, 1991, 61(4): 458-472.
- [3] FRIEDMAN I, O'NEIL J R. Compilation of stable isotope fractionation factors of geochemical interest [M]//Data of Geochemistry. 6th ed. Washington D C: U.S. Geological Survey Professional Paper 440-KK, 1977.
- [4] 郭宏莉,王大锐.塔里木油气区砂岩储集层碳酸盐胶结物的同位素组成与成因分析[J].石油勘探与开发, 1999, 26(3): 31-32.  
GUO Hongli, WANG Darui. Stable isotopic composition and origin analysis of the carbonate cements within sandstone reservoirs of Tarim oil-gas bearing area [J]. Petroleum Exploration and Development, 1999, 26(3): 31-32.
- [5] 王大锐. 油气稳定同位素地球化学 [M]. 北京: 石油工业出版社, 2000: 123-145.  
WANG Darui. Stable isotopic geochemistry of oil and gas [M]. Beijing: Petroleum Industry Press, 2000: 123-145.
- [6] KEITH M L, WEBER J N. Carbon and oxygen isotopic composition of selected limestones and fossils [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1964, 28(10/11): 1 786-1 816.
- [7] 张雪芬, 陆现彩, 张林晔, 等. 胜利油区牛庄洼陷沙河街组烃源岩和砂岩的协同成岩作用及其石油地质意义 [J]. 地质论评, 2013, 59(2): 287-299.  
ZHANG Xuefen, LU Xiancai, ZHANG Linye, et al. Diagenesis of source rocks sandstones of Shahejie formation and their petroleum geological significance in the Niuzhuang sub-sag, Shengli Oilfield [J]. Geological Review, 2013, 59(2): 287-299.
- [8] 应凤祥, 罗平, 何东博, 等. 中国含油气盆地碎屑岩储集层成岩作用与成岩数值模拟 [M]. 北京: 石油工业出版社, 2004: 31-36.  
YING Fengxiang, LUO Ping, HE Dongbo, et al. Diagenetic and diagenetic numerical simulation of clastic rock in China oil and gas basin [M]. Beijing: Petroleum Industry Press, 2004: 31-36.
- [9] 郭春清, 沈忠民, 张林晔, 等. 砂岩储层中有机酸对主要矿物的溶蚀作用及机理研究综述 [J]. 地质地球化学, 2003, 31(3): 53-57.  
GUO Chunqing, SHEN Zhongmin, ZHANG Linye, et al. The corrosion and its mechanism of organic acids on main minerals in oil-gas reservoir sand rocks [J]. Geology Geochemistry, 2003, 31(3): 53-57.
- [10] 张枝焕, 胡文瑄, 曾溅辉, 等. 东营凹陷下第三系流体-岩石相互作用研究 [J]. 沉积学报, 2000, 18(4): 560-566.  
ZHANG Zhihuan, HU Wenxuan, ZENG Jianhui, et al. Study of fluid-rock interactions in Eocene formation in Dongying Depression, Bohai Gulf Basin [J]. Acta Sedimentologica Sinica, 2000, 18(4): 560-566.
- [11] 蔡进功, 张枝焕, 朱筱敏, 等. 东营凹陷烃类充注与储集层化学成岩作用 [J]. 石油勘探与开发, 2003, 30(3): 79-83.  
CAI Jingong, ZHANG Zhihuan, ZHU Xiaomin, et al. Hydrocarbon filling and chemical diagenesis evolution of the clastic reservoir of

- the Paleogene in Dongying Sag[J].*Petroleum Exploration and Development*, 2003, 30(3): 79-83.
- [12] 张永旺.成岩过程中的矿物“耗水作用”模拟实验及其机理分析[D].北京:中国石油大学(北京),2009.  
ZHANG Yongwang.Simulation experiment and mechanism analysis of mineral's "water consumption" in diagenetic stage[D].Beijing:China University of Petroleum(Beijing),2009.
- [13] 张守鹏.有利于油气保存的地下成岩环境分析——以渤海湾盆地东营凹陷RD1井为例[J].*石油实验地质*, 2008, 30(1): 11-15.  
ZHANG Shoupeng.Analysis of underground diagenetic environment favorable for oil and gas storage: a case study of well RD1, Dongying Sag, Bohai Bay Basin[J].*Petroleum Geology & Experiment*, 2008, 30(1): 11-15.
- [14] 郝雪峰.东营凹陷沙三—沙四段砂岩储层超压成因与演化[J].*石油与天然气地质*, 2013, 34(2): 167-173.  
HAO Xuefeng.Overpressure genesis and evolution of sandstone reservoirs in the 3rd and 4th members of Shahejie Formation, the Dongying Depression[J].*Oil & Gas Geology*, 2013, 34(2): 167-173.
- [15] 操应长,徐涛玉,王艳忠,等.东营凹陷古近系储层超压成因及其成藏意义[J].*西南石油大学学报:自然科学版*, 2009, 31(3): 34-38.  
CAO Yingchang, XU Taoyu, WANG Yanzhong, et al.The origin of reservoir overpressure and its implication in hydrocarbon accumulation in the Paleogene of Dongying Depression [J].*Journal of Southwest Petroleum University: Science & Technology Edition*, 2009, 31(3): 34-38.
- [16] 滕建彬,刘惠民,邱隆伟,等.济阳坳陷页岩油储层物质组分对含油性的控制规律[J].*油气地质与采收率*, 2019, 26(1): 80-87.  
TENG Jianbin, LIU Huimin, QIU Longwei, et al.Control law of material components of shale oil reservoir on oil-bearing characteristics in Jiyang Depression [J].*Petroleum Geology and Recovery Efficiency*, 2019, 26(1): 80-87.
- [17] 滕建彬.东营凹陷利页1井泥页岩中白云石成因及层序界面意义[J].*油气地质与采收率*, 2018, 25(2): 1-7, 36.  
TENG Jianbin.Genesis of dolomite in shale drilled by Well Liye1 in Dongying Sag and its significance on sequence boundary indication [J].*Petroleum Geology and Recovery Efficiency*, 2018, 25(2): 1-7, 36.
- [18] FRITZ R, SMITH D G W.The isotopic composition of secondary dolomites [J].*Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1970, 34(11): 1161-1173.
- [19] 陈鑫,钟建华,袁静,等.渤海洼陷古近系高岭石发育特征及转化机理[J].*石油勘探与开发*, 2009, 36(4): 456-462.  
CHEN Xin, ZHONG Jianhua, YUAN Jing, et al.Development and formation of Paleogene kaolinite, Bonan subsag [J].*Petroleum Exploration and Development*, 2009, 36(4): 456-462.
- [20] 钟大康,朱筱敏,张琴.不同埋深条件下砂泥岩互层中砂岩储层物性变化规律[J].*地质学报*, 2004, 78(6): 863-871.  
ZHONG Dakang, ZHU Xiaomin, ZHANG Qin.Variation characteristics of sandstone reservoirs when sandstone and mudstone are interbedded at different buried depths [J].*Acta Geologica Sinica*, 2004, 78(6): 863-871.
- [21] 王艳忠,操应长,扈克来,等.碎屑岩储层地质历史时期孔隙度演化恢复方法——以济阳坳陷东营凹陷沙河街组四段上亚段为例[J].*石油学报*, 2013, 34(6): 1100-1111.  
WANG Yanzhong, CAO Yingchang, XI Kelai, et al.A recovery method for porosity evolution of clastic reservoirs with geological time: a case study from the upper submember of Es<sub>4</sub> in the Dongying depression, Jiyang Subbasin [J].*Acta Petrolei Sinica*, 2013, 34(6): 1100-1111.
- [22] 王行信,周书欣.泥岩成岩作用对砂岩储层胶结作用的影响[J].*石油学报*, 1992, 13(4): 20-30.  
WANG Xingxin, ZHOU Shuxin.The effects of diagenesis of mudstone on the cementation of a sandstone reservoir [J].*Acta Petrolei Sinica*, 1992, 13(4): 20-30.
- [23] 何生,宋国奇,王永诗,等.东营凹陷现今大规模超压系统整体分布特征及主控因素[J].*地球科学——中国地质大学学报*, 2012, 37(5): 1029-1042.  
HE Sheng, SONG Guoqi, WANG Yongshi, et al.Distribution and major control factors of the present-day large-scale overpressured system in Dongying Depression [J].*Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 2012, 37(5): 1029-1042.
- [24] 郭小文,何生,宋国奇,等.东营凹陷生油增压成因证据[J].*地球科学——中国地质大学学报*, 2011, 36(6): 1085-1094.  
GUO Xiaowen, HE Sheng, SONG Guoqi, et al.Evidences of overpressure caused by oil generation in Dongying Depression [J].*Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 2011, 36(6): 1085-1094.
- [25] 杨绪充.试论济阳坳陷的地温场[J].*华东石油学院学报:自然科学版*, 1985, 9(1): 14-25.  
YANG Xuchong.Notes of geothermal field in Jiyang depression [J].*Journal of the East China Petroleum Institute: Science & Technology Edition*, 1985, 9(1): 14-25.
- [26] 邱楠生,李善鹏,曾澌辉.渤海湾盆地济阳坳陷热历史及构造-热演化特征[J].*地质学报*, 2004, 78(2): 263-269.  
QIU Nansheng, LI Shanpeng, ZENG Jianhui.Thermal history and tectonic-thermal evolution of the Jiyang Depression in the Bohai Bay Basin, East China [J].*Acta Geologica Sinica*, 2004, 78(2): 263-269.
- [27] 李善鹏,邱楠生.磷灰石裂变径迹方法研究沉积盆地古地温——以东营凹陷为例[J].*西南石油学院学报*, 2003, 25(4): 4-8.  
LI Shanpeng, QIU Nansheng.Studying the paleo-geotemperature of sedimentary basin by the use of apatite fission track analysis: An example from Dongying Depression [J].*Journal of Southwest Petroleum Institute*, 2003, 25(4): 4-8.
- [28] MODICA C J, LAPIERRE S G.Estimation of kerogen porosity in source rocks as a function of thermal transformation: Example from the Mowry shale in the Power River Basin of Wyoming [J].*AAPG Bulletin*, 2012, 96(1): 87-108.