东营凹陷页岩组成对孔隙度的影响

吴连波^{1,2}

¹中国石化胜利油田勘探开发研究院, 山东 东营

²国家能源局页岩油研发中心, 山东 东营

收稿日期: 2024年1月15日; 录用日期: 2024年2月23日; 发布日期: 2024年2月29日

摘要

以XRD分析、有机碳分析和GRI孔隙度测定为基础, 探讨了东营凹陷古近系沙河街组三段页岩沉积有机质与矿物的赋存关系, 页岩组分对孔隙度的控制作用, 以及矿物转化对页岩孔隙度的影响。东营凹陷沙三段页岩中有机质丰度与碳酸盐矿物含量负相关, 与粘土矿物含量正相关关系表明: 页岩中的碳酸盐为非生物成因, 页岩中有机质与粘土矿物共存。控制页岩的孔隙度的组分因素主要包括碳酸盐、粘土矿物和有机质丰度: 孔隙度与碳酸盐含量负相关, 与粘土矿物含量及有机质丰度正相关。在矿物转化过程中, 蒙脱石向伊利石的转化不利于孔隙度的保持, 方解石的白云石化对孔隙度增加有积极作用。

关键词

孔隙度, 粘土矿物, 页岩, 有机质丰度, 东营凹陷

The Influence of Shale Composition on Porosity in Dongying Depression

Lianbo Wu^{1,2}

¹Exploration and Development Research Institute, Shengli Oilfield Company, SINOPEC, Dongying Shandong

²State Energy Center for Shale Oil Research and Development, Dongying Shandong

Received: Jan. 15th, 2024; accepted: Feb. 23rd, 2024; published: Feb. 29th, 2024

Abstract

Based on XRD, TOC, and GRI porosity analysis, this work discusses the relationship between organic matter and minerals in shales of 3rd member of the palaeogene Shahejie formation in Dongying depression, the control effect of shale components on porosity, and the influence of mineral transformation on porosity. The abundance of organic matter in shales of 3rd member of the Sha-

文章引用: 吴连波. 东营凹陷页岩组成对孔隙度的影响[J]. 地球科学前沿, 2024, 14(2): 210-216.

DOI: 10.12677/ag.2024.142020

hejie formation in the Dongying depression is negatively correlated with the content of carbonate minerals, and positively correlated with the content of clay minerals. This indicates that the carbonate in the shales is non-biogenic, and organic matter coexists with clay minerals. The compositional factors that control the porosity of shale mainly include carbonate, clay minerals, and organic matter abundance: porosity is negatively correlated with carbonate content, and positively correlated with clay mineral content and organic matter abundance. In the process of mineral transformation, the conversion of montmorillonite to illite has a harmful effect on the maintenance of porosity, while the dolomitization of calcite has a positive effect on the increase of porosity.

Keywords

Porosity, Clay Minerals, Shale, Organic Matter Content, Dongying Depression

Copyright © 2024 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>

Open Access

1. 引言

随着北美页岩油气的成功勘探与开发,页岩储层特征及演化规律研究越来越引起学者重视,并且形成相应的测试技术,包括图像法(包括扫描电镜[1][2][3]、纳米CT法[4]、原子力显微镜和小角散射等)、流体注入法(包括氦气孔隙度法、压汞法、低温气体吸附法等[2][4][5][6])、核磁共振法等[7]和GRI孔隙度法[8][9][10]等。

和砂岩相比,页岩矿物颗粒较小,成分更为复杂,且研究程度相对较低。因而对其孔隙度的主控因素及演化规律缺少系统认识。而影响页岩孔隙度的因素包括内因及外因两种因素,内因包括岩石组成、矿物转化等[11][12],外因则包括机械压实、外部应力、外来流体作用等。本文选取东营凹陷热演化程度相近的一系列样品,进行全岩及粘土矿物分析(XRD)、GRI孔隙度测定和有机碳(TOC)测试。研究页岩组成对孔隙度的影响,以及矿物转化对孔隙度的控制作用。

2. 样品及分析测试方法

选取东营凹陷沙河街组三段(典型样品36块,岩性为灰质页岩或泥质灰岩,样品深度在3100 m~3300 m之间,镜质体反射率 $R_o\%$ 在0.50~0.70之间,有机质类型均为I~II₁型。将样品分为3份,1份进行X衍射全岩及粘土矿物定量分析(XRD),1份用于测定GRI孔隙度,另1份用于测定有机碳含量(TOC)。

以标准粉末法测定全岩矿物含量。对于粘土矿物,首先要先对粘土矿物进行超声波解聚,然后以离心分离法制备粘土组分($<4\ \mu\text{m}$)进行测试。

GRI孔隙度测定过程中,将样品分为2份。1份利用汞浸没法,根据浮力原理测量样品的总体密度。1份样品进行机械破碎过筛,选取20~35目的样品,进行Dean Stark抽提实验以抽提出样品中的油和水,然后将抽提后样品在真空烘箱中 105°C 干燥,以孔隙率仪测定颗粒体积,再通过颗粒体积和重量来计算颗粒密度值。利用抽提前样品重量和原始样品的总体密度来计算原始样品的总体积。用总体密度和颗粒密度计算孔隙度[8][9][10]。

TOC在碳硫分析仪上进行。称量一定量的粉碎的页岩样品,以盐酸溶解去除碳酸盐矿物,样品粉末在碳硫分析仪内通氧气燃烧,以远红外检测器检测燃烧生成的 CO_2 量,进而确定样品有机碳含量。

3. 页岩矿物组成及对有机质丰度的影响

3.1. 页岩组成特征

在所测试的 36 个页岩样品中, 含量占优势的主要矿物为两类, 即粘土矿物和碳酸盐岩矿物(包括方解石、白云石和菱铁矿), 占比分别为 19.8%~74.1% (平均 38.2%)和 4.5%~62.5% (平均 33.9%), 其次为石英矿物, 含量为 11.0%~28.3% (平均为 19.6%), 长石含量一般较低, 为 1.3%~12.9% (平均为 3.7%)。

粘土矿物一般以伊利石和伊/蒙混层矿物为主, 含量分别为 12.0%~39.0% (平均 23.5%)和 5.9%~35.1% (平均 12.8%), 绿泥石含量为 0%~4.2% (平均为 0.9%)和高岭石含量为 0%~4.3% (平均为 1.0%), 两者的含量相对较低。

有机质丰度的 TOC 则在 1.11%~12.89%之间, 平均值为 4.42%, 表明该系列样品总体具有较高的有机碳含量。

3.2. 有机质丰度与矿物赋存关系

Figure 1. Relationship between organic matter content and mineral content of shales of Es₃, Dongying Depression
图 1. 东营凹陷沙三段页岩有机质丰度与矿物含量关系图

对比 TOC 与不同矿物含量关系如图 1, 从图 1 可以看出, TOC 与方解石含量负相关: 方解石含量越高, TOC 越低(图 1(a)), 表明页岩中的方解石矿物并非生物成因, 而是化学沉积成因。TOC 与粘土矿物含量关系总体呈现三段式特征(图 1(b)): 在粘土矿物含量低于 30%时, 随粘土矿物含量增加, 总体上 TOC

升高；而粘土矿物含量在 30%~50%之间，TOC 总体偏高；但当粘土矿物含量大于 50%时，TOC 则随着粘土矿物含量增加而降低。推测原因：粘土矿物为沉积有机质赋存的载体，有机质与粘土矿物共生[13]，而非生物成因的碳酸盐矿物和陆源碎屑(石英 + 长石)的存在则会降低页岩的有机质丰度。当粘土矿物含量较低时，随着其含量的增加，碳酸盐含量降低(碳酸盐含量与粘土矿物含量呈负相关，图 1(c))，因此，粘土矿物含量升高，有机质丰度增加；而当粘土矿物达到 60%以上时，尽管碳酸盐矿物较低(10%左右)，但此时陆源碎屑含量较高(图 1(d))，因而有机质丰度总体上较低。

结合有机质丰度与不同矿物含量及不同矿物含量之间的关系，认为：粘土矿物含量为 30%~60%，碳酸盐矿物含量为 20%~40%的页岩，一般具有相对较高的有机质丰度。

4. 页岩组成对孔隙度的影响

4.1. 孔隙度与主要矿物含量关系

东营凹陷沙三段页岩 GRI 孔隙度结果如图 2 所示，孔隙度总体分布在 4%~18%之间，平均值为 7.9%，主频在 6%~10%之间。

Figure 2. Distribution diagram of porosity of shales of Es₃, Dongying Depression

图 2. 东营凹陷沙三段页岩孔隙度分布

页岩孔隙度与主要组成矿物及有机质丰度关系如图 3。总体上，孔隙度与碳酸盐矿物含量呈负相关关系：碳酸盐矿物含量越高，其孔隙度越低；而孔隙度与粘土矿物含量、陆源碎屑含量和有机质丰度呈正相关关系(图 3(a)~(d))。孔隙度与碳酸盐含量的负相关关系(图 3(a))表明：碳酸盐为化学沉积成因，泥晶或微晶碳酸盐颗粒易于分散在页岩基质中，碳酸盐颗粒充填或胶结作用使得总体孔隙度降低。粘土矿物和有机质则是总体孔隙度的最大贡献者，因为粘土矿物中存在大量的晶间孔及粘土矿物片间孔，因而具有较高的孔隙度[14] [15]。而与粘土矿物共存的有机质则一方面为页岩提供有机孔隙储集空间，另一方面，其生烃作用也会导致固体有机质收缩而提供空间，此外，有机质生烃作用的副产物有机酸及二氧化碳也会溶蚀碳酸盐矿物而为页岩提供储集空间。陆源碎屑对孔隙度的贡献较小，因为陆源碎屑多分散分布于粘土矿物中，被粘土矿物所包裹，粒间孔隙较少出现。尽管孔隙度与陆源碎屑含量也呈正相关关系(图 3(c))，实则是陆源碎屑含量与粘土矿物含量正相关(图 1(d))，对孔隙度贡献的是粘土矿物而非陆源碎屑。

4.2. 矿物转化对孔隙度的影响

页岩埋藏 - 成岩过程中矿物的转化，如蒙脱石向伊利石转化和方解石的白云石化也会影响页岩的总体孔隙度。

4.2.1. 伊利石化对孔隙度的影响

Figure 3. Relationship between porosity and mineral components of shales of Es₃, Dongying depression

图 3. 东营凹陷沙三段页岩孔隙度与矿物组成关系图

Figure 4. The influence of mineral transformation on porosity

图 4. 矿物转化对孔隙度的影响

伊/蒙混层向伊利石转化导致页岩总体孔隙度下降，在图 4(a)中，总体孔隙度随着伊利石含量与伊/蒙混层含量的比值增加而明显降低，其原因为蒙脱石比伊利石具有更多的晶间及层面孔隙，饱和层间水，

可抵消部分上覆地层压力。而蒙脱石向伊利石转化过程中矿物体积收缩, 释放层间水, 在上覆地层作用下, 更容易压实, 导致页岩总体孔隙度降低。伊利石化的过程是页岩孔隙度降低的过程。

4.2.2. 白云石化对孔隙度的影响

以白云石与方解石含量比值来表示页岩的白云石化程度, 统计孔隙度和白云石与方解石含量比值关系如图 4(b)所示, 页岩孔隙度与白云石与方解石含量的比值无明显相关性, 但随着白云石化程度增加, 页岩的最小孔隙度具有增加的趋势。图 4(b)中页岩孔隙度与白云石化无明显相关性的原因较为复杂, 推测原因是白云石成因的复杂性, 包括原生成因、准同生成因、埋藏白云岩化、构造热液白云岩化等[16], 原生成因和准同生成因的白云石晶间孔隙小, 且后期的压实或胶结作用减孔明显。在深埋过程中, 页岩中粘土矿物转化释放出 Mg^{2+} 和 Fe^{2+} , 进入方解石层使得方解石发生白云石化, 形成较多的晶间孔隙。因此, 埋藏白云石化对页岩孔隙度增加起到积极的作用。

5. 结论

1) 对东营凹陷沙三段页岩 36 样品进行了 XRD、GRI 孔隙度及 TOC 的系统分析, 以此配套数据为基础, 探讨东营凹陷沙三段页岩组成对孔隙度的影响;

2) 东营凹陷沙三段页岩有机质丰度与碳酸盐含量的负相关, 与粘土矿物含量正相关, 表明碳酸盐矿物为化学沉积成因, 而有机质则与粘土矿物具有共生关系;

3) 东营凹陷沙三段页岩孔隙度与碳酸盐含量负相关, 与粘土矿物含量和有机质丰度正相关, 表明粘土矿物和有机质是页岩孔隙度的主要贡献者;

4) 在矿物转化过程中, 蒙脱石向伊利石的转化不利于孔隙度的保持, 方解石的白云石化对孔隙度增加有积极作用。

基金项目

胜利油田分公司前瞻性基础性项目(编号: YJQ2201)。

参考文献

- [1] Klaver, J., Desbois, G., Urai, J.L. and Littke, R. (2012) BIB-SEM Study of the Pore Space Morphology in Early Mature Posidonia Shale from the Hils Area, Germany. *International Journal of Coal Geology*, **103**, 12-25. <https://doi.org/10.1016/j.coal.2012.06.012>
- [2] Tian, H., Pan, L., Xiao, X.M., et al. (2013) A Preliminary Study on the Pore Characterization of Lower Silurian Black Shales in the Chuandong Thrust Fold Belt, Southwestern China Using Low Pressure N_2 Adsorption and FE-SEM Methods. *Marine and Petroleum Geology*, **48**, 8-19. <https://doi.org/10.1016/j.marpetgeo.2013.07.008>
- [3] Joos, J., Carraro, T., Weber, A., et al. (2011) Reconstruction of Porous Electrodes by FIB/SEM for Detailed Microstructure Modeling. *Journal of Power Sources*, **196**, 7302-7307. <https://doi.org/10.1016/j.jpowsour.2010.10.006>
- [4] 吴松涛, 朱如凯, 崔京钢, 等. 鄂尔多斯盆地长 7 湖相泥页岩孔隙演化特征[J]. 石油勘探与开发, 2015, 42(2): 167-176.
- [5] 俞雨溪, 王宗秀, 张凯逊, 等. 流体注入法定量表征页岩孔隙结构测试方法研究进展[J]. 地质力学学报, 2020, 26(2): 201-210.
- [6] 杨巍, 薛莲花, 唐俊, 等. 页岩孔隙度测量实验方法分析与评价[J]. 沉积学报, 2015, 33(6): 1258-1264.
- [7] 孙中良, 李志明, 申宝剑, 等. 核磁共振技术在页岩油气储层评价中的应用[J]. 石油实验地质, 2022, 44(5): 930-940.
- [8] Guidry, K., Luffel, D. and Curtis, J. (1996) Development of Laboratory and Petrophysical Techniques for Evaluating Shale Reservoirs. Final Technical Report, October 1986-September 1993. ResTech Houston.
- [9] Kuila, U. (2013) Measurement and Interpretation of Porosity and Pore-Size Distribution in Mudrocks: The Hole Story of Shales. Colorado School of Mines, Colorado.

- [10] 包友书. 渤海湾盆地东营凹陷古近系页岩油主要赋存空间探索[J]. 石油实验地质, 2018, 40(4): 479-484.
- [11] 刘文平, 张成林, 高贵冬, 等. 四川盆地龙马溪组页岩孔隙度控制因素及演化规律[J]. 石油学报, 2017, 38(2): 175-184.
- [12] 张顺, 刘惠民, 王敏, 等. 东营凹陷页岩油储层孔隙演化[J]. 石油学报, 2018, 39(7): 754-766.
- [13] 蔡进功, 宋明水, 卢龙飞, 等. 烃源岩中有机黏粒复合体——天然的生烃母质[J]. 海洋地质与第四纪地质, 2013, 33(6): 123-131.
- [14] 刘惠民, 包友书, 张守春, 等. 陆相富碳酸盐页岩结构特征与页岩油可动性: 以济阳坳陷古近系沙河街组页岩为例[J]. 石油勘探与开发, 2023, 50(6): 1150-1161.
- [15] Yuan, Y.J., Rezaee, R., Yu, H.Y., *et al.* (2021) Compositional Controls on Nanopore Structure in Different Shale Lithofacies: A Comparison with Pure Clays and Isolated Kerogens. *Fuel*, **303**, Article ID: 121079. <https://doi.org/10.1016/j.fuel.2021.121079>
- [16] 滕建彬. 东营凹陷利页 1 晶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): 1-8.