

文章编号: 0253-2697(2019)11-1346-12 DOI:10.7623/syxb201911005

# 湖北宜昌地区鄂阳页2井牛蹄塘组和陡山沱组页岩气随钻碳同位素特征及勘探意义

张家政<sup>1</sup> 朱地<sup>2,3</sup> 慈兴华<sup>4</sup> 牛强<sup>4</sup> 张焕旭<sup>2,5</sup> 唐永春<sup>3,5</sup> 康淑娟<sup>6</sup> 何坤<sup>7</sup>

(1. 中国地质调查局油气资源调查中心 北京 100020; 2. 苏州冠德能源科技有限公司 江苏苏州 215004;

3. 苏州加州能源与环境研究院有限公司 江苏苏州 215004; 4. 中石化胜利石油工程有限公司地质录井公司 山东东营 257064;

5. 北京大学工学院 北京 100089; 6. 中国科学院地质与地球物理研究所 北京 100020; 7. 中国石油勘探开发研究院 北京 100083)

**摘要:**为了深入分析页岩气的甜点特征,针对鄂阳页2井所钻遇的牛蹄塘组和陡山沱组两套古老页岩层系,在井场随钻连续取样,并测量泥浆气碳同位素值以及岩屑罐顶气碳同位素值随时间序列的变化特征。基于高密度连续碳同位素数据,结合气体组分、地层岩性、储层物性特征分析页岩气的成因及富集规律;基于岩屑释放气碳同位素分馏特征,结合页岩纳米孔隙发育程度分析页岩气地质甜点要素。研究结果显示:甲烷和乙烷倒转特征及湿度特征表明牛蹄塘组页岩可能具有较好的页岩气勘探潜力;泥浆气甲烷碳同位素值随地层垂深上的变化与生油窗时期液态烃类的残留有关,牛蹄塘组页岩底部同位素值偏轻揭示其液态烃类残留量大,资源潜力高;陡山沱组页岩气组分偏干、碳同位素值偏重的特征可能与其生烃母质以及生、排烃演化史有关;岩屑释放气同位素分馏特征与页岩纳米孔喉体系的发育程度有关,纳米孔喉体系发育程度作为页岩气甜点的判断指标应是一条可行的研究思路。这种基于现场的、连续的、动态的碳同位素分析方法为页岩气成因及富集规律分析、地质甜点区判识提供了更多有价值的参考。

**关键词:**页岩气;同位素录井;甜点识别;牛蹄塘组;陡山沱组

**中图分类号:**TE122.14

**文献标识码:**A

## Characteristics of carbon isotope while drilling and exploration significance of shale gas in Niutitang and Doushantuo formations in Well Eyangye-2, Yichang, Hubei, China

Zhang Jiazheng<sup>1</sup> Zhu Di<sup>2,3</sup> Ci Xinghua<sup>4</sup> Niu Qiang<sup>4</sup> Zhang Huanxu<sup>2,5</sup>

Tang Yongchun<sup>3,5</sup> Kang Shujuan<sup>6</sup> He Kun<sup>7</sup>

(1. Oil and Gas Survey, China Geological Survey, Beijing 100020, China; 2. Suzhou Grand Energy Technology Co., Ltd., Jiangsu

Suzhou 215004, China; 3. Suzhou California Energy and Environment Research Institute Co., Ltd., Jiangsu Suzhou 215004, China;

4. Geological Logging Company, Sinopec Shengli Petroleum Engineering Corporation Limited, Shandong Dongying 257064, China;

5. College of Engineering, Peking University, Beijing 100089, China; 6. Institute of Geology and Geophysics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100020, China; 7. PetroChina Research Institute of Petroleum Exploration and Development, Beijing 100083, China)

**Abstract:** To further analyze the characteristics of sweet spot of shale gas, aiming at two sets of ancient shale series of strata in Niutitang and Doushantuo formations drilled in Well Eyangye-2, continuous sampling while drilling was conducted in the well site; the changes of the carbon isotope values of mud gas and the carbon isotope values of cuttings head space gas with time series were measured. Based on the continuous high-density carbon isotope data, the genesis and enrichment rule of shale gas were analyzed in combination with gas composition, formation lithology and reservoir physical properties. Based on carbon isotope fractionation characteristics of the gas released from cuttings, the geologic elements of sweet spot in shale gas reservoirs were analyzed in combination with the development degree of nanopore in shale. The results show that the reversal characteristics and humidity characteristics of methane and ethane indicate that Niutitang Formation may have good potential for shale gas exploration. The variation of carbon isotope value of mud gas with true vertical depth (TVD) is related to the residual liquid hydrocarbons in the oil generation window. The light isotope at the bottom of the Niutitang Formation shale reveals that there are large quantities of residual liquid hydrocarbons, showing great resource potential. The dry component and heavy carbon isotope of the Doushantuo Formation shale gas may have certain relation with the hydrocarbon generation material and the evolution history of hydrocarbon generation and expulsion. The isotope fractionation characteristics of the gas released from cuttings are relevant with the development degree of nano pore-throat system in shale. It should be practical to use the development degree of nano pore-throat system as the judgment index of sweet spot in shale gas. This field-based, continuous, and dynamic analysis method of carbon isotope provides more valuable references for analyzing the genesis and enrichment law of shale gas and identifying geological sweet spots.

**Key words:** shale gas; isotope logging; sweet point distinguish; Niutitang Formation; Doushantuo Formation

**基金项目:** 中国石油化工集团公司科技重大专项(JP18038-7)和中国石油勘探开发研究院科研项目(2018ycq01)资助。

**第一作者:** 张家政,男,1973年2月生,1997年获江汉石油学院学士学位,2009年获中南大学博士学位,现为中国地质调查局油气资源调查中心高级工程师,主要从事石油天然气地质综合研究工作。Email:626687675@qq.com

**通信作者:** 朱地,男,1987年11月生,2010年获北京大学学士学位,2014年获美国威斯康星大学博士学位,现为山东省科学院能源研究所特聘研究员、加州能源与环境研究院有限公司顾问,主要从事地球化学理论和同位素仪器研发、天然气催化化学研究等工作。Email:zhud@sderi.cn

引用:张家政,朱地,慈兴华,牛强,张焕旭,唐永春,康淑娟,何坤. 湖北宜昌地区鄂阳页 2 井牛蹄塘组和陡山沱组页岩气随钻碳同位素特征及勘探意义[J]. 石油学报,2019,40(11):1346-1357.

Cite:ZHANG Jiazheng,ZHU Di,CI Xinghua,NIU Qiang,ZHANG Huanxu,TANG Yongchun,KANG Shujuan,HE Kun. Characteristics of carbon isotope while drilling and exploration significance of shale gas in Niutitang and Doushantuo formations in Well Eyangye-2, Yichang, Hubei, China[J]. Acta Petrolei Sinica,2019,40(11):1346-1357.

“甜点”的寻获与评估是页岩气勘探工作的关键与最终落脚点,一些学者在勘探经验理论总结的基础上提出了页岩气富集的“四大控制因素”(沉积环境、热演化程度、孔缝发育程度和构造保存)<sup>[1-2]</sup>,南方海相页岩的“二元富集”理论(深水陆棚优质泥页岩发育是页岩气“成烃控储”的基础,良好的保存条件是页岩气“成藏控产”的关键)<sup>[3]</sup>,以及“四高”(高 TOC 值、高含气量、高孔隙度、高地层压力)、“两发育”(页岩层理、天然微裂缝发育)的“地质甜点”优选原则<sup>[4]</sup>等理论。但是在“甜点”优选常见的考虑因素中,天然气本身所蕴含的地质信息往往被忽视。目前页岩气碳同位素的研究与常规天然气类似,基本上采用生产井井口采样、实验室分析的流程,这固然可以得到一些关于页岩气成因类型与演化程度的认识<sup>[5-6]</sup>,但这种笼统的、区块上的研究并不能直接指导“甜点段”的优选,也不能及时对钻探进程做出反馈。近年来,随着同位素分析技术的发展,尤其是同位素红外光谱分析技术的成熟,使实时同位素录井技术成为可能<sup>[7]</sup>。国外学者在 20 世纪 90 年代进行过同位素录井的尝试<sup>[8-10]</sup>,但限于硬件条件,采取的是在钻井过程中定点采集泥浆气样,后进行实验室分析的手段,其针对的目标也是常规油气藏,主要分析油气是否发生充注<sup>[8]</sup>、储层的连通性<sup>[9]</sup>以及预测水平井断层<sup>[10]</sup>。笔者采用红外激光光谱同位素测量仪,在钻探现场对泥浆气及岩屑罐顶气进行密集采样和实

时分析,并基于页岩气流动性差、气体纳米孔隙逸散过程中同位素会发生分馏的特性,通过分析页岩气成因及富集规律,识别了页岩气“甜点”层段。

## 1 同位素现场实时检测工作方法

### 1.1 实验设备

GRAND-3 红外激光光谱同位素测量仪是由苏州加州能源与环境研究院有限公司<sup>[7]</sup>研发的新一代同位素测量仪器,不同于实验室中常用的气相色谱-同位素质谱仪(GC-IRMS),GRAND-3 是采用吸收光谱实现烃类气体同位素的测量(图 1)。其工作原理为:通过快速色谱将混合的烃类气体按组分分离,并依次进入氧化池使其燃烧成为  $\text{CO}_2$ ,之后进入中红外激光光谱测量腔室,利用  $^{12}\text{C}-\text{O}$ 、 $^{13}\text{C}-\text{O}$  分子键对激光的吸收特征峰不同,从而实现同位素的测量。与传统的同位素质谱相比,红外激光光谱同位素测量仪价格低、体积轻巧、环境容忍度高,且在测量的过程中不需要高度的真空条件,也不需要经过复杂的样品前处理过程,因此,能够在野外环境下部署,实现样品的原位测量。此外,GRAND-3 检测速度快,在 5 min 内可以完成  $\text{C}_1-\text{C}_3$  同位素的测量,测量精度基本可以与气相色谱-质谱仪器(GC-MS)相媲美,测量值绝对误差小于 0.5‰,测量的浓度下限低至  $2\,000 \times 10^{-6}$ 。由于 GRAND-3 同位素仪所具有的优势,使同位素现场实时检测成为可能。

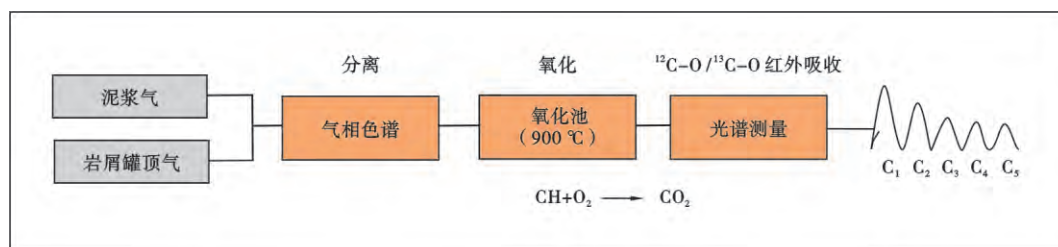


图 1 GRAND-3 光谱同位素测量仪工作原理

Fig. 1 Operating principle of GRAND-3 spectroisotope measuring instrument

### 1.2 实验样品分析流程

页岩气同位素现场实时检测取得的样品包括:泥浆气和岩屑罐顶气(图 2)。泥浆气是钻头破碎地层所释放出来的气体,通过泥浆循环返上地面,其反映了所钻遇地层最为直观的同位素信息。对于泥浆气可以通过取样管手动采集、注样测量,也可以将脱气器的气路直接连接至同位素光谱仪以实现泥浆气样品的自动测

量。岩屑罐顶气是岩屑解析出来的气体,在采样过程中,在振动筛处将随泥浆上返的岩屑捞拾,洗净装入岩屑罐,加水倒置密封,以固定时间序列测定岩屑罐顶部气体中烃类的碳同位素值。岩屑罐顶气的测量分析更多的是基于气体在纳米孔隙中逸散所产生的同位素分馏特性,通过同位素分馏的程度与速率来反映页岩含气量与纳米孔隙网络的发育特征。

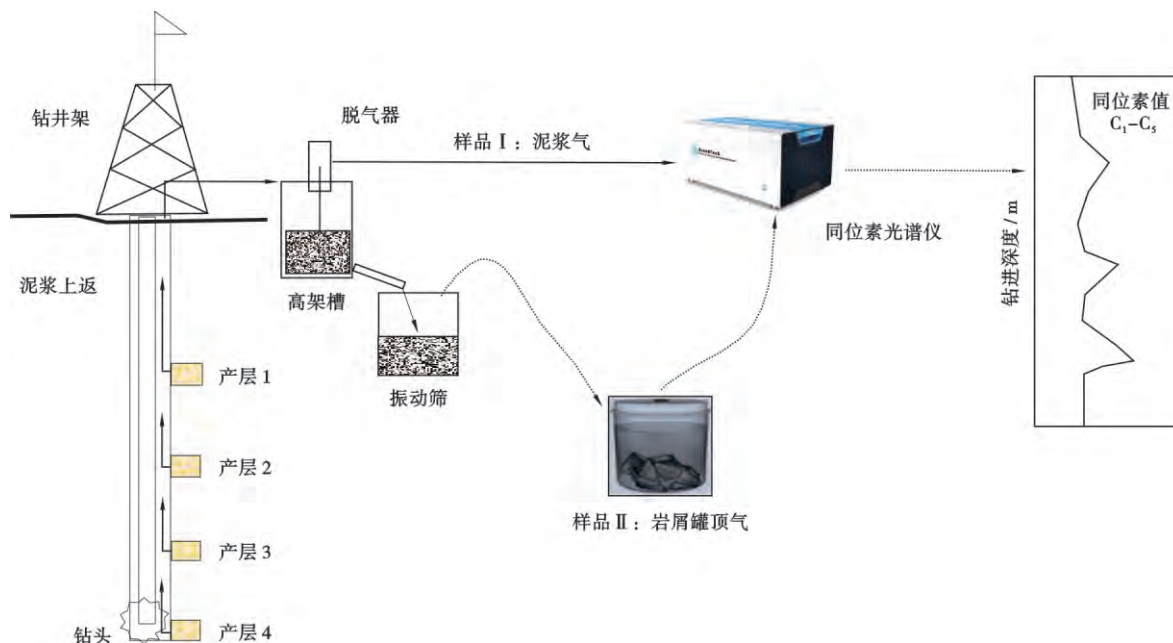


图2 同位素现场实时检测流程

Fig. 2 Process of isotopic field real-time detection

## 2 鄂阳页2井地质工程背景与样品情况

鄂阳页2井位于鄂西地区长阳县贺家坪镇七里坪村,是中国地质调查局油气资源调查中心部署在“鄂阳页”钻探平台的第2口水平井。在“古老隆起边缘控藏模式”的指导下,中国地质调查局油气资源调查中心于2016年在中扬子地区黄陵背斜南翼部署了鄂阳页1井(图3),钻探获得寒武系牛蹄塘组和震旦系陡山沱组两套高含气优质页岩,在天河板组 and 上震旦统灯影组获得常规天然气良好显示,在复杂构造区实现了“四层楼”式页岩气、天然气重大发现<sup>[11-14]</sup>。随后在鄂阳页1井井眼的基础上开侧孔,完成了探索牛蹄塘组页岩的鄂阳页1-HF井。鄂阳页2井则是在鄂阳页1井井眼旁另开新孔针对震旦统灯影组页岩所做的探井。

黄陵背斜位于扬子地台上扬子台褶带的东缘,西面为姊归复向斜、东面为当阳复向斜,三者轴向互相平行,方位近NS向。在前震旦系结晶杂岩基地的基础上,中—上扬子地区发育了震旦系陡山沱组和寒武系牛蹄塘组两套主要的页岩地层,这也是中国目前除五峰组—龙马溪组页岩以外最受关注的两套页岩气潜力层系<sup>[14]</sup>。受多期构造作用影响,这两套烃源岩埋藏深度在不同地区存在较大差异,在构造低部位,其埋藏深度往往超过6 km,钻探难度较大。相对而言,古隆起周缘具有埋藏深度适中、抬升较早、构造变形较弱的特征,逆冲推覆体下盘保存条件较好,有利于页岩气富集和保存,成为页岩气勘探的首选目标。前期的

相关研究表明:黄陵背斜南翼地区陡山沱组页岩的沉积厚度约为130 m,TOC含量最高达2.57%、平均超过1.50%;牛蹄塘组页岩厚度约为140 m,TOC含量最高达3.82%、平均超过1.80%<sup>[11]</sup>,具有较好的页岩气勘探潜力。

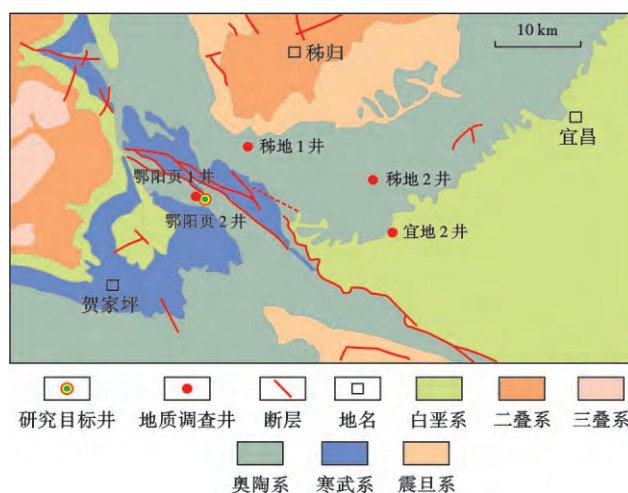


图3 鄂阳页钻井平台位置及区域地层出露情况  
(据文献<sup>[11]</sup>修改)

Fig. 3 Location of Eyangye drilling platform and regional formation outcrops

鄂阳页2井钻遇页岩地层情况及随钻测录井数据见图4。由于鄂阳页2井是另开新孔,因此得以在检测过程中同时录取到牛蹄塘组及陡山沱组页岩垂直井段数据以及陡山沱组水平井段数据,详细采样计划见图5。



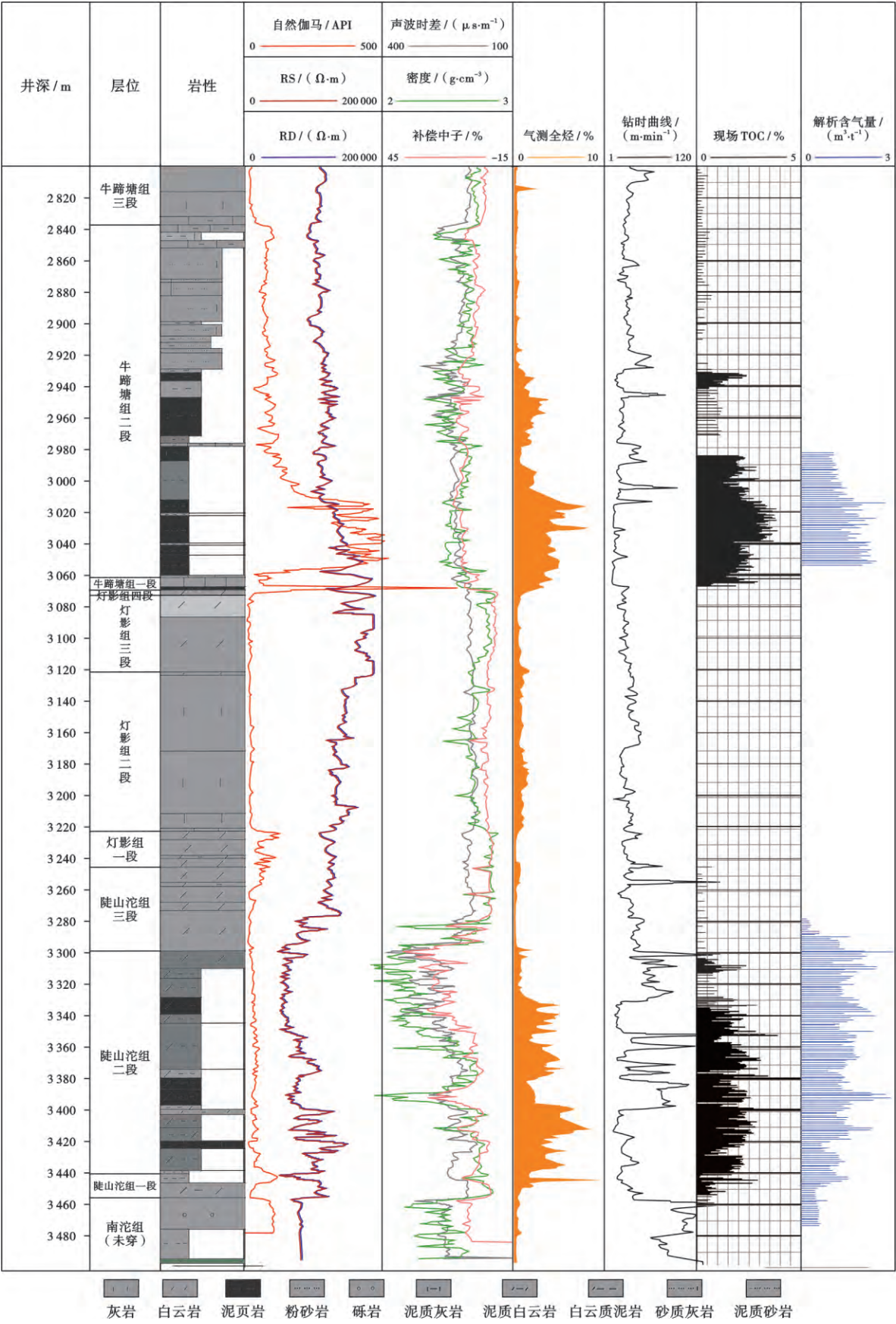


图 4 鄂阳页 2 井钻遇页岩地层情况及随钻测录井数据

Fig. 4 Drilling shale formation and logging data while drilling of Well Eyangye-2

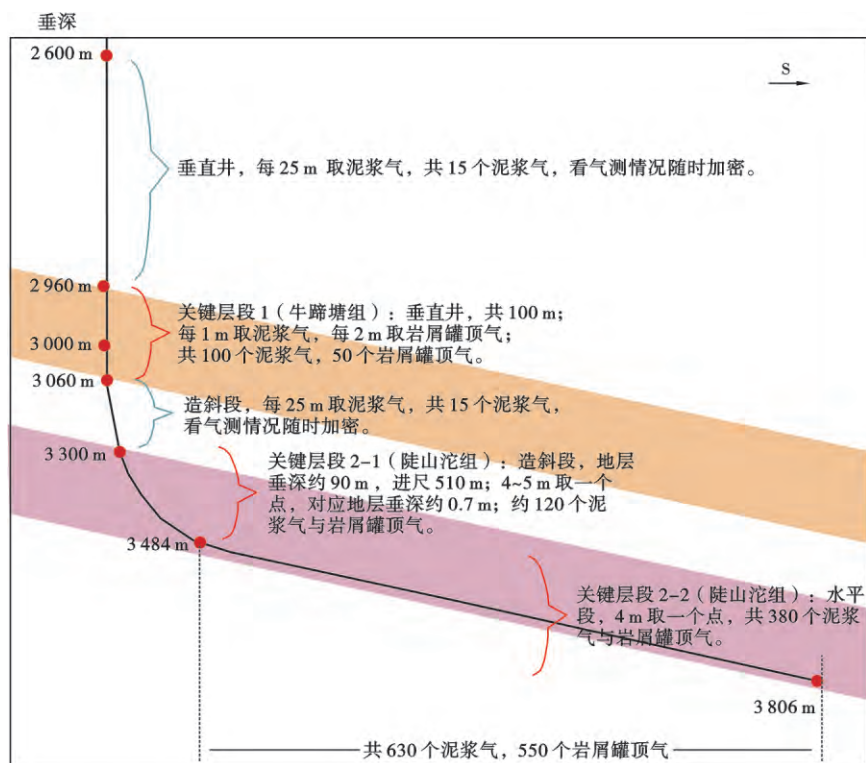


图 5 鄂阳页 2 井同位素现场实时检测取样计划

Fig. 5 Isotopes on-site sampling plan for Well Eyangye-2

### 3 泥浆气同位素特征与页岩气勘探潜力

泥浆气主体上是破碎岩石气, 此外还可能存在单根气、后效气和扩散气等, 但是这些相对于页岩段的破碎气一般气量较小, 对同位素值的影响有限。页岩气由于流动性较差, 具有典型的原位赋存特征, 因此, 通过测量泥浆气可以直接获悉所钻遇地层中赋存页岩气的同位素特征。在研究中, 笔者成功录取到了所有目标层段的甲烷碳同位素数据以及牛蹄塘组页岩中一下部的乙烷碳同位素数据。但是由于陡山沱组页岩气极为干燥(气测录井仪上亦无乙烷显示), 未能在钻探过程中录到该段的乙烷碳同位素值。

#### 3.1 甲烷和乙烷碳同位素倒转

根据碳同位素热力学分馏原理, 天然气各个组分之间往往要保持一定的碳同位素分馏间距, 碳分子数越多, 同位素值越重, 这也与大多数单一来源气藏的实际情况相符<sup>[15]</sup>。然而在页岩气中同位素的倒转却是十分普遍的现象, 甚至成为了北美某些页岩气的典型特征<sup>[16-17]</sup>, 中国南方海相五峰组—龙马溪组页岩气也普遍见同位素倒转<sup>[18-19]</sup>。并且, 国内外的相关统计也表明同位素的倒转与页岩气的高产往往具有较好的对应关系<sup>[5, 17, 20-21]</sup>, 因此, 页岩气同位素倒转成因的研究备受关注。目前一个广泛被接受的解释为: 页岩中残存的相对富集<sup>12</sup>C 液态烃类的二次裂解是造成页

岩气同位素倒转的主要原因。Tang 等<sup>[22]</sup>指出, 在较高成熟度阶段, 油和凝析油的转换及碳链的断裂使得二次裂解气比初次裂解气湿度更大、同位素更轻。因此, 乙烷、丙烷的同位素值由油裂解气决定, 而甲烷同位素主要由干酪根热降解气决定。Xia 等<sup>[23]</sup>则在此理论基础上, 结合实例, 将页岩气同位素倒转划分为 4 个阶段(图 6): I 为正常阶段, 此时尚未发生液态烃类的裂解(如鄂尔多斯长 7 油层组页岩气); II 为预备阶段, 部分残留原油裂解, 碳同位素值偏离正常序列(如北美 Barnett 部分页岩气); III 为倒转阶段, 残留原油大规模裂解, 甲烷和乙烷碳同位素发生倒转(如加拿大西部盆地); IV 为回归阶段, 原油裂解减弱, 乙烷、丙烷等进一步裂解为甲烷, 碳同位素回归正常序列。

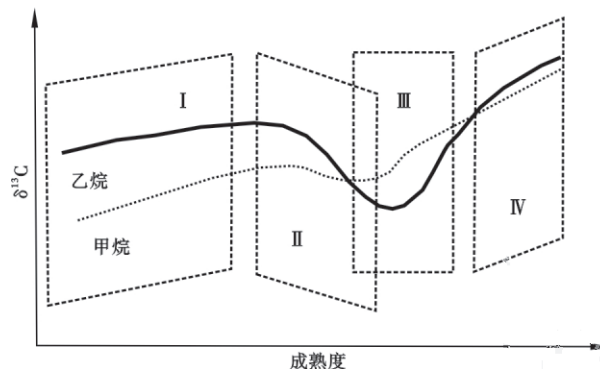


图 6 同位素倒转的阶段划分(据文献[20]修改)

Fig. 6 Phase division of isotope inversion



从目前录取的同位素数据来看,牛蹄塘组页岩气在其中一下部已经发生了明显的碳同位素“倒转”, $\delta^{13}\text{C}_2$ 与 $\delta^{13}\text{C}_1$ 的差距基本上保持在 $3\text{‰}\sim 5\text{‰}$ (图 7)。

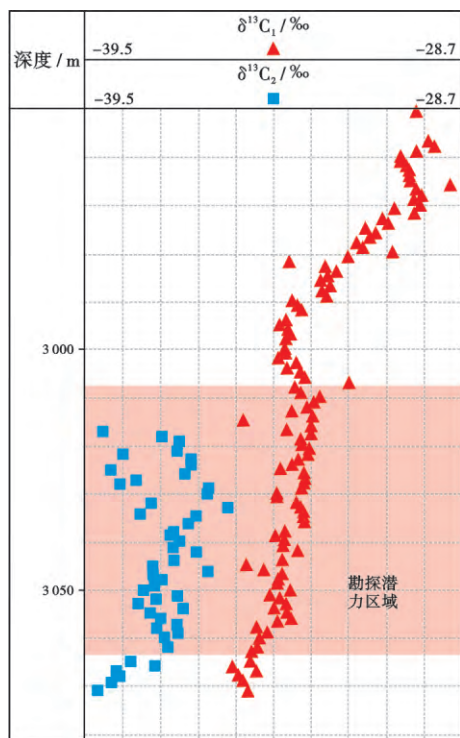
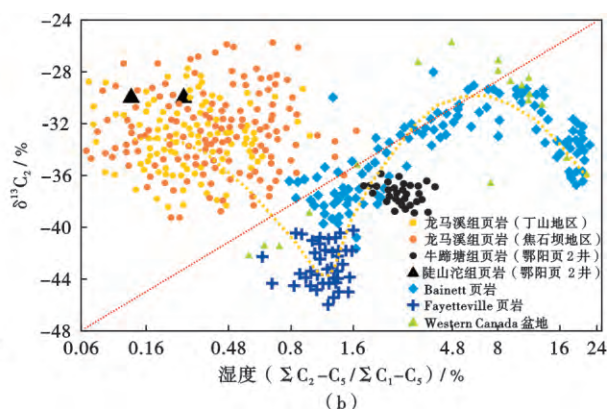
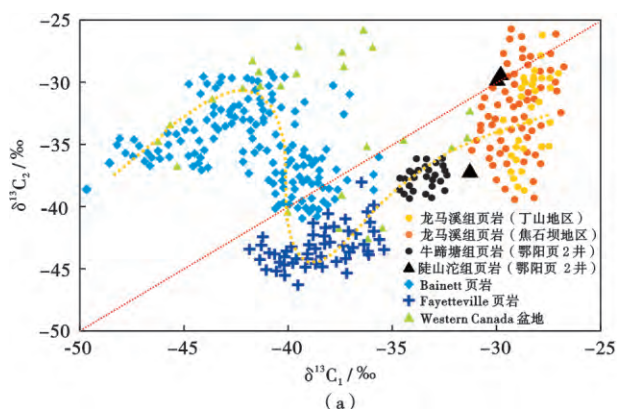


图 7 鄂阳页 2 井牛蹄塘组泥浆气同位素剖面

Fig. 7 Isotope profile of mud gas in Niutitang Formation of Well Eyangye-2



注: Barnett 页岩、Fayetteville 页岩以及 Western Canada 盆地的同位素数据引自文献[18, 23]; 龙马溪组页岩、牛蹄塘组页岩同位素数据为钻探随钻实时检测; 陡山沱组页岩同位素数据为压裂反排气检测结果。

图 8 不同地区页岩气同位素倒转特征对比

Fig. 8 Comparison of isotope inversion characteristics of shale gas in different areas

组较低。这是由于陡山沱组页岩气与龙马溪组页岩气部分样品都进入了倒转序列的Ⅳ阶段,即页岩气当中的乙烷、丙烷进一步裂解为甲烷,同位素值逐渐向正常序列回归,同时这也造成了页岩气湿度的进一步降低。

### 3.2 甲烷碳同位素值垂向变化与页岩气成因探讨

页岩中残留液态烃类的二次裂解使页岩气碳同

在已有数据的基础上,将鄂阳页 2 井牛蹄塘组中一下部的泥浆气同位素数据与北美典型页岩气的数据进行对比后发现,这几套页岩气完全符合前文述及的同位素变化趋势,从而构成了一个完整的同位素倒转演化序列(图 6)。牛蹄塘组页岩气样品全都发生了甲烷和乙烷碳同位素的倒转,演化阶段要高于北美 Barnett 页岩气(部分发生倒转),近似于北美 Fayetteville 页岩气,但是低于五峰组—龙马溪组页岩气,根据 Xia 等[23]所作的划分,应该属于Ⅲ阶段[图 8(a)]。与处于同一个倒转演化阶段的北美 Fayetteville 页岩气相比,牛蹄塘组页岩气甲烷和乙烷碳同位素都要偏重,但是其湿度却更大一些[图 8(b)]。这一现象有 2 个可能的原因:①牛蹄塘组页岩有机质碳同位素本身就重于 Fayetteville 页岩,在相近的演化阶段,其产物的甲烷和乙烷同位素都要重于后者;②牛蹄塘组页岩气湿度更大,可能是其二次裂解气占比更高,因为原油裂解气重烃气体含量要明显高于干酪根裂解气[23-24]。这说明该区域牛蹄塘组页岩在生油窗时“憋住”了大量的液态烃类,从这个层面来说,该套页岩层系可能具有较好的勘探前景。

从陡山沱组页岩压裂反排气的同位素及气体组分数据来看,其整体特征与龙马溪页岩较为类似。甲烷和乙烷碳同位素值发生倒转,但倒转程度相对牛蹄塘

位素值出现了明显的异常,产生了甲烷和乙烷碳同位素的倒转。但实际上,由于早期生成的液态烃类更为富集 $^{12}\text{C}$ ,其生成的甲烷碳同位素也是偏轻的,只是因为先期存在的甲烷基数比较大,所以原油裂解气对甲烷同位素整体的影响相对于乙烷要小一些。在同位素研究中,由于天然气样品太干,多数井段的

乙烷碳同位素数据难以准确获取,因此,在研究中以牛蹄塘组和陡山沱组页岩直井段数据为例,通过相对连续、完整的甲烷碳同位素数据分析页岩气的性质与富集特征。

### 3.2.1 牛蹄塘组页岩段

牛蹄塘组泥浆气甲烷碳同位素值表现出来显著的规律性变化特征(图9):2600~2950 m的灰岩段甲烷碳同位素值( $-34.5\text{‰} \sim -29.0\text{‰}$ )是一个逐渐变重的过程;自2950 m进入牛蹄塘组页岩段,甲烷同位素值开始急剧变轻;至3000 m处,同位素值变回至约 $-34.0\text{‰}$ ,在50 m范围内,同位素值变化了 $5\text{‰}$ ;3000 m以深的页岩层段甲烷同位素值整体较轻,集中在 $-33.0\text{‰} \sim -34.0\text{‰}$ ,虽然具有向深部逐渐变轻的趋势,但变轻的幅度大为减缓;至页岩底部3060~3070 m与下部灯影组灰岩接触的区域甲烷同位素值进一步变轻,同位素值处于 $-34.0\text{‰} \sim -35.0\text{‰}$ 。显然,这种甲烷碳同位素垂向上的变化特征不能单纯地用成熟度因素进行解释。

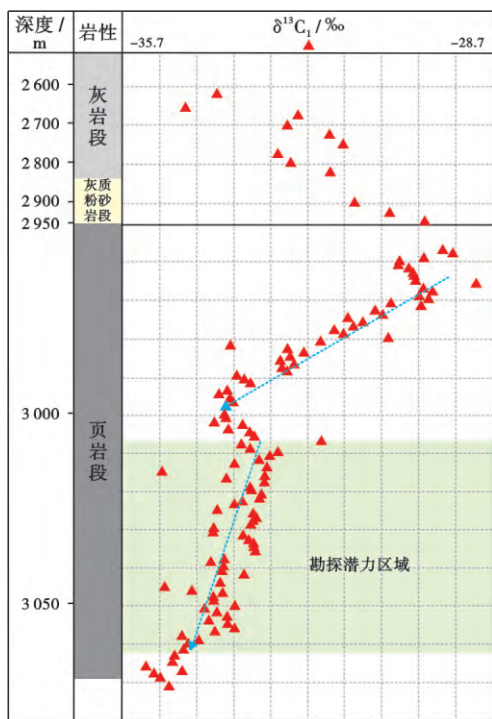


图9 鄂阳页2井牛蹄塘组泥浆气甲烷碳同位素值随深度变化特征

Fig. 9 Characteristics of methane carbon isotopes variation with depth in mud gas in Niutitang Formation of Well Eyangye-2

同是牛蹄塘组页岩段,以深度3000 m为界,其上、下段泥浆气甲烷碳同位素值及其变化趋势存在明显的区别。为了探索这两段页岩气在成因方面的差别,将上、下段泥浆气样品的组分数据分别投影至 $\ln(C_1/C_2)$

与 $\ln(C_2/C_3)$ 交会图版<sup>[25]</sup>中,从图10可以看出,上、下段样品的组分数据存在明显的分区:3000~3070 m天然气样品 $\ln(C_1/C_2)$ 变化范围较小,而 $\ln(C_2/C_3)$ 变化范围较大,接近于原油裂解气的特征;2950~3000 m天然气样品 $\ln(C_1/C_2)$ 变化范围相对于下段则更广一些,样品点趋势线的斜率也更小一些,说明2950~3000 m页岩气中干酪根裂解气所占比例要明显高于下段。

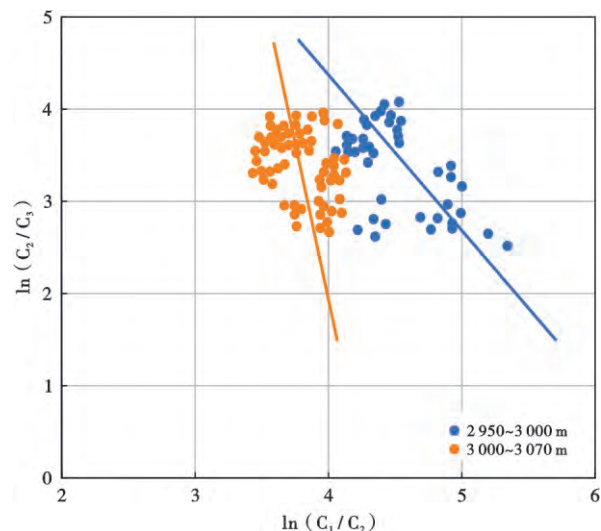


图10 鄂阳页2井牛蹄塘组页岩气成因判别

Fig. 10 Identification of shale gas genesis in Niutitang Formation of Well Eyangye-2

根据前文同位素倒转阶段的分析,牛蹄塘组页岩正处于甲烷和乙烷同位素倒转的Ⅲ阶段,即页岩中残留原油裂解的高峰时期,而原油裂解所产生的天然气相对于干酪根裂解产物乙烷含量要多一些<sup>[23-24]</sup>。据此进一步统计了乙烷相对含量随深度的变化关系,结果发现其与甲烷碳同位素的变化具有很好的对应关系(图11):甲烷碳同位素变轻, $C_2/C_1$ 值随之增大,二者的同步变化受控于同一关键因素——原油裂解气的比例。并且,在页岩层之上深度为2570 m和2870 m的上下区域,存在两个 $C_2/C_1$ 高值区,而在地层岩性上恰好对应的都是灰质粉砂岩段,这些灰质粉砂岩层,在生油窗时都是有利的液态烃类滞留区域。

基于上述证据可以推论:牛蹄塘组页岩气甲烷碳同位素垂向上的大幅度变化主要是原油裂解气比例不同所导致,原油裂解气的比例取决于生油窗时页岩的排烃效率,而排烃效率与页岩本身以及顶、底板的物性条件有直接关系。牛蹄塘组页岩上、下段在声波时差与补偿中子响应特征都存在较为明显的差异,显示其上部物性条件要好于下部(图11);牛蹄塘组页岩顶部为一套灰质粉砂岩层,下部为灯影组致密灰岩,测井响应上也显示二者物性条件差别明显。3000 m以上的



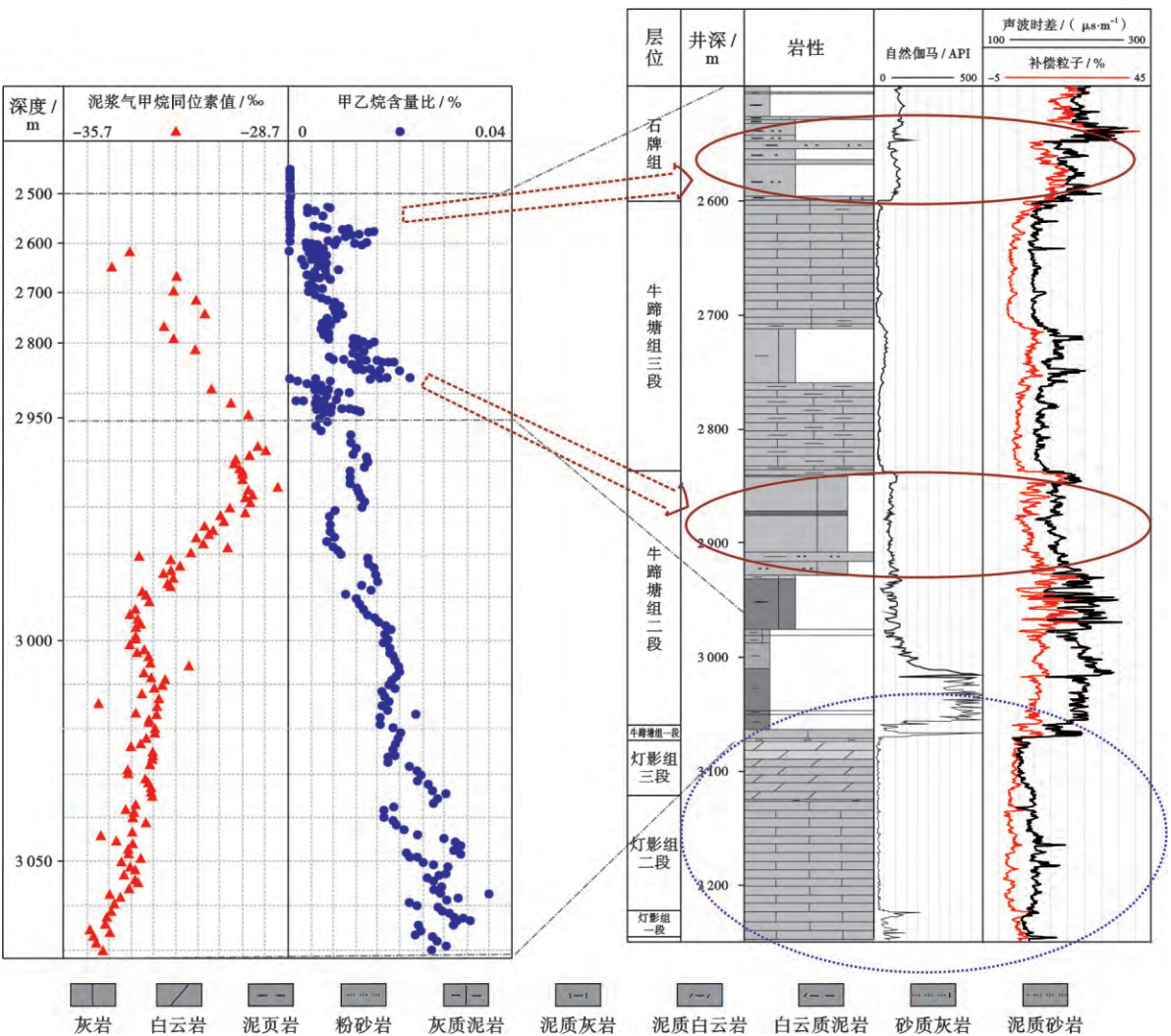


图 11 鄂阳页 2 井牛蹄塘组页岩气同位素及组分与地层特征对比

Fig. 11 Comparison of shale gas isotopes, compositions and stratigraphic characteristics in Niutitang Formation of Well Eyangye-2

页岩段, TOC 值并不低, 具一定生烃能力, 且其上部紧邻的灰质砂岩为其提供了较好的排烃通道, 越靠近上部排烃效率越高, 残留油量越少, 页岩气中后期干酪根裂解气比例越高, 同位素越重; 3 000 m 以下的页岩段, 上有厚层页岩阻碍, 其下有致密灰岩阻挡, 排油效率较低, “憋住”了大量液态烃类, 这也导致其后期裂解产生的页岩气同位素偏轻。

3.2.2 陡山沱组页岩段

陡山沱组页岩段为井身结构的造斜段, 根据地层测井响应特征, 将陡山沱组页岩在垂向上划分为 10 个小段, 其中在钻井过程中发现顶部的 9、10 小段地层破碎严重, 为典型破碎带。陡山沱组页岩泥浆气碳同位素值相较牛蹄塘组差别明显: 在 9、10 小段所对应的破碎带, 同位素值在灰岩段的基础上开始逐渐变重, 同样在比较短的距离内同位素值发生了较大的变化; 至 8 小段, 同位素值已变重至约 -29‰。

自此以下, 泥浆气碳同位素值变化幅度则相对较小; 在 5 小段存在同位素值变轻的趋势, 变轻幅度约为 1‰; 在 4 小段和 3 小段内部所对应的灰质成分较高的地层, 其泥浆气碳同位素值则出现了偏重的波动 (图 12)。陡山沱组页岩气在组分特征上也表现出了与牛蹄塘组页岩气显著的差别: 牛蹄塘组页岩气湿度变化范围较大, 甚至在底部某些样品点大于 5%; 但是陡山沱组页岩气却极为干燥, 湿度小于 0.3%, 随钻过程中大多数情况下难以检测到 C<sub>2</sub> 以上组分的存在。

陡山沱组页岩气相对于牛蹄塘组页岩埋藏更深, 演化程度也更高, 缺乏 C<sub>2</sub> 以上组分和碳同位素数据使得对陡山沱组页岩气成因的研究变得极为困难, 但是结合前人的研究数据来看, 陡山沱组与牛蹄塘组页岩气在同位素上的差别可能很大程度上继承自其生烃母质。同样位于中扬子地块, 根据杨平等<sup>[26]</sup>的测试结果,



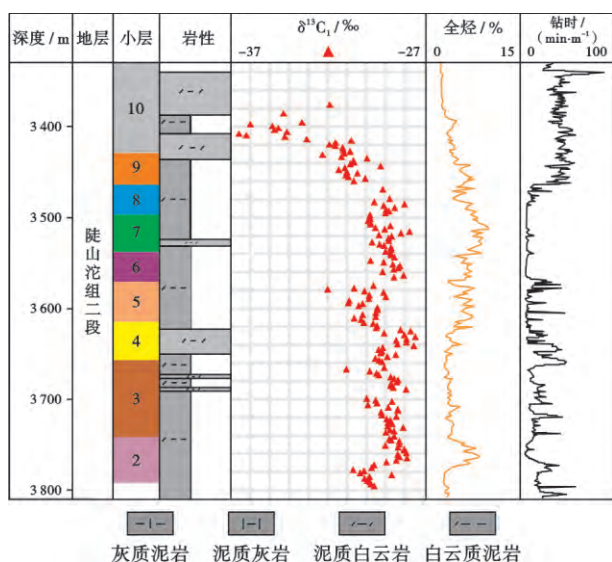


图 12 鄂阳页 2 井陡山沱组泥气同位素剖面

Fig. 12 Isotope profile of mud gas in Doushantuo Formation of Well Eyangye-2

遵义松林地区牛蹄塘组页岩碳同位素为  $-34.01\%$  ~  $-32.32\%$ ，而陡山沱组黑色泥岩碳同位素为  $-30.89\%$  ~  $-28.69\%$ ；湄潭梅子湾地区牛蹄塘组页岩碳同位素为

$-32.53\%$  ~  $-31.85\%$ ，而陡山沱组为  $-30.02\%$  ~  $-28.96\%$ 。可见，较重的生烃母质可能是造成陡山沱组页岩气碳同位素整体偏重的主要原因。此外，页岩的演化程度与液态烃的残留比例都会对页岩气的同位素值造成影响，虽然缺乏直接的证据，参照牛蹄塘组的分析结果，猜测位于陡山沱组页岩中部同位素值偏轻的 5 小段可能是液态烃类残留的集中区域。

陡山沱组页岩气极为干燥的组分特征也很可能与页岩的生、排烃特征有关。从有机质的碳同位素组成来看，牛蹄塘组页岩的有机质来源偏向海洋浮游生物脂肪质或者海洋性自生菌，而陡山沱组页岩则更倾向于来自海生藻类<sup>[27]</sup>，不同来源的有机质其生成产物的烃类组分特征也存在较大差别。根据烃源岩埋藏史，鄂西地区两套页岩在经历了沉积初期的快速埋深后，在加里东运动晚期发生了一次显著的地层抬升，此时陡山沱组页岩已经进入了生烃高峰期，而牛蹄塘组页岩刚进入生烃门限（图 13）。如果在地层抬升时期液态烃类大量散失，那么后期原油裂解气贡献必然较低，而相对较高比例的后期干酪根裂解气则会导致页岩气组分偏干、同位素偏重。

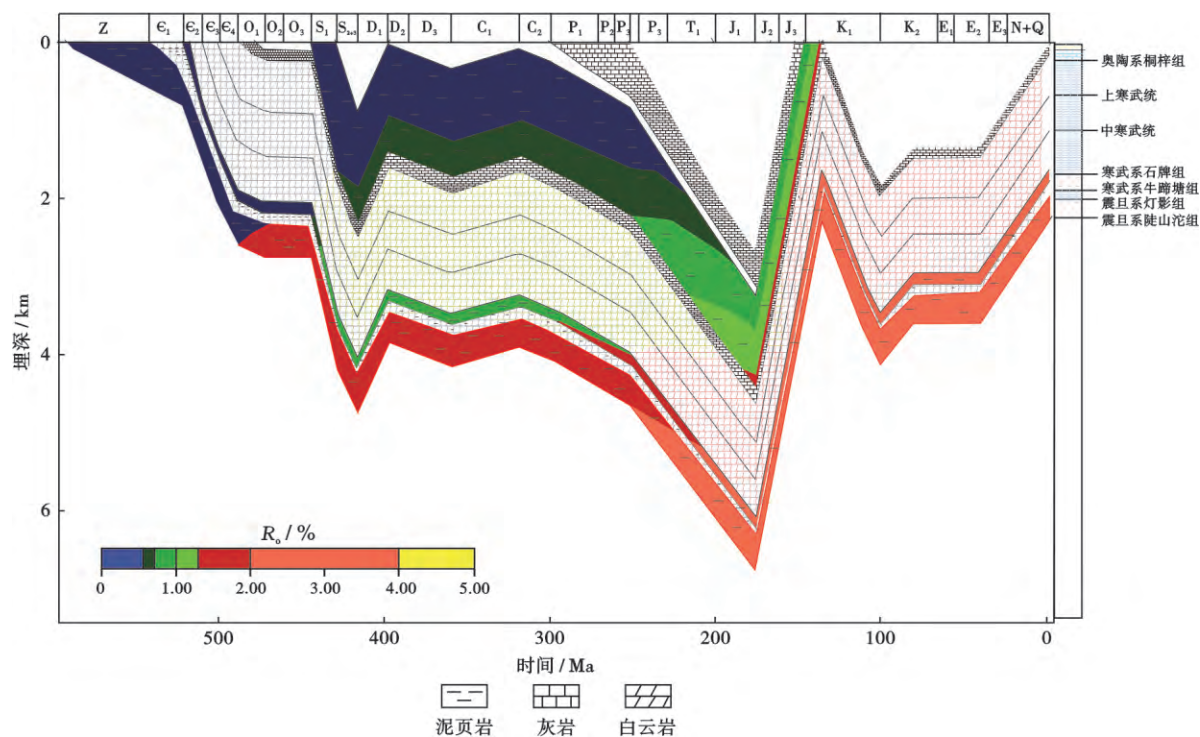


图 13 鄂阳页 2 井埋藏生烃演化史

Fig. 13 Evolution history of buried hydrocarbon generation in Well Eyangye-2

由于缺乏更为充分的证据，笔者只给出几种较具可能性的解释方案，作为中国目前发现的最古老的烃源岩层系，陡山沱组页岩在古环境、有机质生物来源、演化历程等诸多方面都有待深入的研究。

#### 4 岩屑罐顶气同位素特征与页岩气甜点

对岩屑罐顶气进行了时间序列的测量，通过连续深度岩屑样品解析气的碳同位素变化特征，分析了页

岩气的地质甜点属性特征。罐顶气碳同位素在时间序列下产生变化主要是运移分馏效应所导致。岩屑的放气是一个不断变化的过程(图 14):在放气的前期,岩屑内部气压较大,出气速率较高,出气量也较大,此时,岩屑的放气过程符合达西渗流,同位素分馏极为微小;随着岩屑内部气体压力的降低,气体运移动力降低,进入滑脱流阶段,天然气碳同位素发生较弱的分馏效应;当岩屑内部压力继续减小,分子自由程增大,当大于喉道尺寸时,进入 Knudsen 扩散过程,在这个过程中同位素发生较强的分馏效应<sup>[28]</sup>,同位素分馏的强度取决于 Knudsen 数的大小:

$$Kn = \lambda / L \tag{1}$$

可见气体压力越低、喉道越细小分馏效应越显著。由于岩屑的上返需要一定的时间,当取到岩屑并封装时,岩屑的放气过程已基本进入后期,同位素分馏显著。因此,可以通过观测岩屑放气过程中的同位素分馏行为,来分析页岩气的地质甜点特征。

以鄂阳页 2 井牛蹄塘组岩屑罐顶气碳同位素现场实时检测结果为例,牛蹄塘组 2 950~3 000 m 的岩屑罐顶气碳同位素值相对于泥浆气差别并不明显,未发生明显的同位素分馏。而在 3 000 m 以下岩屑罐顶气碳同位素值则开始明显重于泥浆气,并且在 3 030~3 060 m 两者的差值达到最大,72 h 获取的岩屑罐顶气(累积)与泥浆气的碳同位素差值约在 6‰。从岩屑罐顶气碳同位素值随时间序列的变化来看,其变化速率最大的一段同样也在 3 030~3 060 m,说明该段岩屑放气过程中碳同位素分馏效应最为明显。而从岩屑最终放气量来看,放气量最大的区域也恰好在 3 030~3 060 m,平均放气量能达到 0.5 cm<sup>3</sup>/g,与其上部页岩区域差别明显,与现场岩心解析所刻画的页岩含气量特征也存在明显区别。

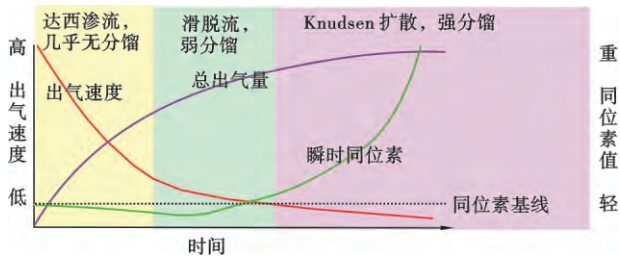


图 14 岩屑放气过程中的同位素分馏原理

Fig. 14 Isotopic fractionation principle in cuttings deflating process

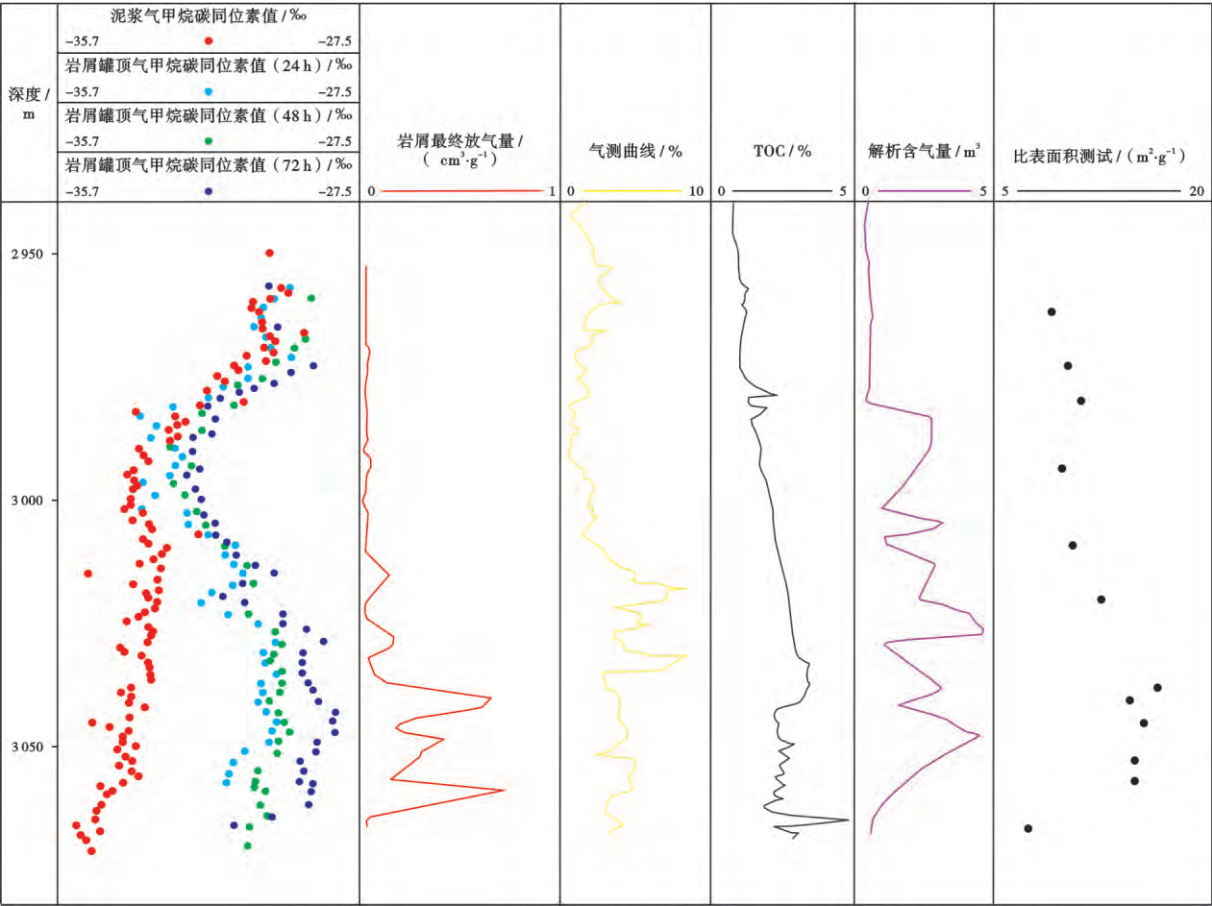


图 15 鄂阳页 2 井牛蹄塘组岩屑碳同位素分馏特征

Fig. 15 Carbon isotope fractionation characteristics of cuttings in Niutitang Formation of Well Eyangye-2

为了进一步解释岩屑释放气同位素分馏的内在机制,按深度序列选取了部分页岩岩屑样品进行氮气等温吸附测试,以获取孔隙结构信息。从分析结果可以看出,同位素分馏显著的区域比表面积偏大,二者随深度具有很好的对应关系。前人的研究指出,页岩的比表面积通常取决于其微孔及介孔所占的比例,纳米孔隙越发育,比表面积越大<sup>[29]</sup>。结合扩散造成同位素分馏的作用机理可见,较为发育的纳米孔喉体系是牛蹄塘组底部岩屑释放气同位素分馏显著的一个重要原因。考虑到上文基于泥浆气碳同位素做出的液态烃类残留比例的判断,纳米孔隙体系的发育与液态烃类的残留似乎具有较好的对应关系,这可能与液态烃类转化为天然气时所产生的超压保孔作用有关。国内外典型页岩气地层的研究也指出,优质页岩气地层往往都具有较好的纳米级有机孔隙发育<sup>[30-31]</sup>。

同位素分馏显著的区域也是岩屑最终放气量的高值区,集中在3030~3060 m,而岩心解析含气量高值则出现在2980~3060 m一个相对宽泛的范围内。分析认为,岩屑与岩心放气特征的差异很可能与页岩的致密程度有关。现场岩心快速解析的方法是通过升温促进页岩气的释放,以缩短测量时间,往往不会再去破碎岩心测量残余气,因此,在一些较为致密的区域,会造成实测气量的损失。相对而言,岩屑更小,更有利于残余气量的释放,因此,在纳米孔喉较为发育的区域,其残留气量较高。

以鄂阳页2井牛蹄塘组页岩为例,将目前常用的页岩气甜点指标进行了对比:TOC的高值点出现在3030 m,其上、下的TOC值逐渐降低但变化幅度较小;岩心解析含气量高值出现在2980~3060 m一个相对宽泛的范围内;气测高值则出现在3010 m之后,最高值段集中于3020~3035 m,三者的判断结论并不统一。因此,将纳米孔喉体系发育程度作为页岩气甜点的判断指标应是一条可行的研究思路,而岩屑释放气的现场同位素测量则为纳米孔喉发育程度的判识提供了一条简便易行的分析方法。当然,页岩放气速度及释放气体同位素的变化根本上取决于页岩本身的物性特征与页岩气的赋存状态,能否通过释放气的同位素分馏特征来定量页岩气赋存参数(如孔隙压力、含气量、渗透性等)还有待深入研究。

## 5 结论与建议

(1) 牛蹄塘组页岩气甲烷和乙烷碳同位素完全发生了倒转,与同样发生倒转的Fayetteville页岩气相比,牛蹄塘组页岩气甲烷和乙烷碳同位素都要偏重,但是其湿度却更大,可能与原油裂解气比例较高有关。

(2) 牛蹄塘组页岩气甲烷碳同位素值在地层垂向上的变化主要取决于页岩在生油窗时的排烃效率:3 km以下页岩段相较于其上部页岩排烃效率更差,残存液态烃类更多,后期生成的页岩气中原油裂解气比例更高,碳同位素值也更加偏轻预示着其可能具有更优异的页岩气资源潜力。

(3) 陡山沱组页岩气在组分上极为干燥,其同位素值相较于牛蹄塘组也明显偏重,这一特征可能取决于其生烃母质以及生排烃演化史。

(4) 岩屑释放气同位素分馏特征与页岩纳米孔喉体系的发育程度有关,纳米孔喉体系发育程度作为页岩气甜点的判断指标是一条可行的研究思路,岩屑释放气的现场同位素测量则为纳米孔喉发育程度的判识提供了一条简便易行的分析方法。

符号注释:  $K_n$ —Knudsen数;  $\lambda$ —分子自由程, nm;  $L$ —喉道直径, nm。

## 参考文献

- [1] 董大忠,高世葵,黄金亮,等.论四川盆地页岩气资源勘探开发前景[J].天然气工业,2014,34(12):1-15.  
DONG Dazhong,GAO Shikui,HUANG Jinliang,et al. A discussion on the shale gas exploration & development prospect in the Sichuan Basin[J]. Natural Gas Industry,2014,34(12):1-15.
- [2] 邹才能,董大忠,王玉满,等.中国页岩气特征、挑战及前景(一)[J].石油勘探与开发,2015,42(6):689-701.  
ZOU Caineng,DONG Dazhong,WANG Yuman,et al. Shale gas in China: characteristics, challenges and prospects (I)[J]. Petroleum Exploration and Development,2015,42(6):689-701.
- [3] 郭旭升.南海相页岩气“二元富集”规律——四川盆地及周缘龙马溪组页岩气勘探实践认识[J].地质学报,2014,88(7):1209-1218.  
GUO Xusheng. Rules of two-factor enrichment for marine shale gas in southern China—understanding from the Longmaxi Formation shale gas in Sichuan Basin and its surrounding area[J]. Acta Geologica Sinica,2014,88(7):1209-1218.
- [4] 邹才能,董大忠,王玉满,等.中国页岩气特征、挑战及前景(二)[J].石油勘探与开发,2016,43(2):166-178.  
ZOU Caineng,DONG Dazhong,WANG Yuman,et al. Shale gas in China: characteristics, challenges and prospects (II)[J]. Petroleum Exploration and Development,2016,43(2):166-178.
- [5] 吴伟,罗超,张鉴,等.油型气乙烷碳同位素演化规律与成因[J].石油学报,2016,37(12):1463-1471.  
WU Wei,LUO Chao,ZHANG Jian,et al. Evolution law and genesis of ethane carbon isotope of oil type gas[J]. Acta Petroli Sinica,2016,37(12):1463-1471.
- [6] 冯子齐,刘丹,黄士鹏,等.四川盆地长宁地区志留系页岩气碳同位素组成[J].石油勘探与开发,2016,43(5):705-713.  
FENG Ziqi,LIU Dan,HUANG Shipeng,et al. Carbon isotopic composition of shale gas in the Silurian Longmaxi Formation of the Changning area, Sichuan Basin[J]. Petroleum Exploration and Development,2016,43(5):705-713.
- [7] WU Sheng,DEEV A,HAUGHT M,et al. Hollow waveguide quantum cascade laser spectrometer as an online microliter sen-



- sor for gas chromatography[J]. Journal of Chromatography A, 2008, 1188(2): 327-330.
- [8] HAKAMI A, ELLIS L, AL-RAMADAN K, et al. Mud gas isotope logging application for sweet spot identification in an unconventional shale gas play: a case study from Jurassic carbonate source rocks in Jafurah Basin, Saudi Arabia[J]. Marine and Petroleum Geology, 2016, 76: 133-147.
- [9] ELLIS L, BERKMAN T, UCHYTIL S, et al. Integration of mud gas isotope logging (MGIL) with field appraisal at Horn Mountain field, deepwater gulf of Mexico[J]. Journal of Petroleum Science and Engineering, 2007, 58(3/4): 443-463.
- [10] WILHELM A, REIN E, ZWACH C, et al. Application and implication of horizontal well geochemistry[J]. Petroleum Geoscience, 2001, 7(1): 75-79.
- [11] 翟刚毅, 包书景, 王玉芳, 等. 古隆起边缘成藏模式与湖北宜昌页岩气重大发现[J]. 地球学报, 2017, 38(4): 441-447.  
ZHAI Gangyi, BAO Shujing, WANG Yufang, et al. Reservoir accumulation model at the edge of palaeohigh and significant discovery of shale gas in Yichang area, Hubei province[J]. Acta Geoscientia Sinica, 2017, 38(4): 441-447.
- [12] 张君峰, 许浩, 周志, 等. 鄂西宜昌地区页岩气成藏地质特征[J]. 石油学报, 2019, 40(8): 887-899.  
ZHANG Junfeng, XU Hao, ZHOU Zhi, et al. Geological characteristics of shale gas reservoir in Yichang area, western Hubei[J]. Acta Petrolei Sinica, 2019, 40(8): 887-899.
- [13] 罗胜元, 陈孝红, 刘安, 等. 中扬子宜昌地区下寒武统水府坪组页岩现场解吸气特征及地质意义[J]. 石油学报, 2019, 40(8): 941-955.  
LUO Shengyuan, CHEN Xiaohong, LIU An, et al. Characteristics and geological significance of canister desorption gas from the Lower Cambrian Shuijingtu Formation shale in Yichang area, Middle Yangtze region[J]. Acta Petrolei Sinica, 2019, 40(8): 941-955.
- [14] 王朋飞, 姜振学, 韩波, 等. 中国南方下寒武统牛蹄塘组页岩气高效勘探开发储层地质参数[J]. 石油学报, 2018, 39(2): 152-162.  
WANG Pengfei, JIANG Zhenxue, HAN Bo, et al. Reservoir geological parameters for efficient exploration and development of Lower Cambrian Niutitang Formation shale gas in South China[J]. Acta Petrolei Sinica, 2018, 39(2): 152-162.
- [15] 戴金星. 天然气中烷烃气碳同位素研究的意义[J]. 天然气工业, 2011, 31(12): 1-6.  
DAI Jinxing. Significance of the study on carbon isotopes of alkane gases[J]. Natural Gas Industry, 2011, 31(12): 1-6.
- [16] TILLEY B, MUEHLENBACHS K. Isotope reversals and universal stages and trends of gas maturation in sealed, self-contained petroleum systems[J]. Chemical Geology, 2013, 339: 194-204.
- [17] ZUMBERGE J, FERWORN K, BROWN S. Isotopic reversal ('roll-over') in shale gases produced from the Mississippian Barnett and Fayetteville formations[J]. Marine and Petroleum Geology, 2012, 31(1): 43-52.
- [18] DAI Jinxing, ZOU Caineng, LIAO Shimeng, et al. Geochemistry of the extremely high thermal maturity Longmaxi shale gas, southern Sichuan Basin[J]. Organic Geochemistry, 2014, 74: 3-12.
- [19] 吴伟, 房忱琛, 董大忠, 等. 页岩气地球化学异常与气源识别[J]. 石油学报, 2015, 36(11): 1332-1340.  
WU Wei, FANG Chenchen, DONG Dazhong, et al. Shale gas geochemical anomalies and gas source identification[J]. Acta Petrolei Sinica, 2015, 36(11): 1332-1340.
- [20] ZUMBERGE J E, FERWORN K A, CURTIS J B. Gas character anomalies found in highly productive shale gas wells [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta Supplement, 2009, 73: A1539.
- [21] TILLEY B, MCLELLAN S, HIEBERT S, et al. Gas isotope reversals in fractured gas reservoirs of the western Canadian Foothills: mature shale gases in disguise[J]. AAPG Bulletin, 2011, 95(8): 1399-1422.
- [22] TANG Y, PERRY J K, JENDEN P D, et al. Mathematical modeling of stable carbon isotope ratios in natural gases [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2000, 64(15): 2673-2687.
- [23] XIA Xinyu, CHEN J, BRAUN R, et al. Isotopic reversals with respect to maturity trends due to mixing of primary and secondary products in source rocks[J]. Chemical Geology, 2013, 339: 205-212.
- [24] 陈燕燕, 胡素云, 李建忠, 等. 原油裂解过程中组分演化模型及金刚烷类化合物的地球化学特征[J]. 天然气地球科学, 2018, 29(1): 114-121.  
CHEN Yanyan, HU Suyun, LI Jianzhong, et al. Compositional evolution and geochemical characteristics of diamondoids during oil cracking[J]. Natural Gas Geoscience, 2018, 29(1): 114-121.
- [25] BEHAR F, KRESSMANN S, RUDKIEWICZ J L, et al. Experimental simulation in a confined system and kinetic modelling of kerogen and oil cracking[J]. Organic Geochemistry, 1992, 19(1/3): 73-189.
- [26] 杨平, 谢渊, 李旭兵, 等. 雪峰山西侧震旦系陡山沱组生源岩生烃潜力及油气地质意义[J]. 中国地质, 2012, 39(5): 1299-1310.  
YANG Ping, XIE Yuan, LI Xubing, et al. Hydrocarbon-generating potential of the source rocks of the Sinian Doushantuo Formation on the western side of the Xuefeng Mountain[J]. Geology in China, 2012, 39(5): 1299-1310.
- [27] 黄汝昌. 中国低熟油及凝析气藏形成与分布规律[M]. 北京: 石油工业出版社, 1997: 14-16.  
HUANG Ruchang. Formation and distribution from China low mature oil and condensate gas reservoir[M]. Beijing: Petroleum Industry Press, 1997: 14-16.
- [28] XIA Xinyu, TANG Yongchun. Isotope fractionation of methane during natural gas flow with coupled diffusion and adsorption/desorption [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2012, 77: 489-503.
- [29] 张岩, 刘金城, 徐浩, 等. 陆相与过渡相煤系页岩孔隙结构及分形特征对比——以鄂尔多斯盆地东北缘延安组与太原组为例[J]. 石油学报, 2017, 38(9): 1036-1046.  
ZHANG Yan, LIU Jincheng, XU Hao, et al. Comparison between pore structure and fractal characteristics of continental and transitional coal measures shale: a case study of Yan'an and Taiyuan Formations at the northeastern margin of Ordos Basin[J]. Acta Petrolei Sinica, 2017, 38(9): 1036-1046.
- [30] LOUCKS R G, REED R M, RUPPEL S C, et al. Spectrum of pore types and networks in mudrocks and a descriptive classification for matrix-related mudrock pores[J]. AAPG Bulletin, 2012, 96(6): 1071-1098.
- [31] 郭旭升, 胡东风, 李宇平, 等. 海相和湖相页岩气富集机理分析与思考: 以四川盆地龙马溪组 and 自流井组大安寨段为例[J]. 地学前缘, 2016, 23(2): 18-28.  
GUO Xusheng, HU Dongfeng, LI Yuping, et al. Analyses and thoughts on accumulation mechanisms of marine and lacustrine shale gas: a case study in shales of Longmaxi Formation and Da'anzhai Section of Ziliujing Formation in Sichuan Basin[J]. Earth Science Frontiers, 2016, 23(2): 18-28.

(收稿日期 2018-10-07 改回日期 2019-06-12 编辑 王培玺)