

基于 PetroMod 四川盆地长宁地区五峰-龙马溪组 优质页岩段吸附模拟研究

陈承声^{1,2}, 史树勇^{1,2}, 王云鹏^{1*}

(1. 中国科学院 广州地球化学研究所 有机地球化学国家重点实验室, 广东 广州 510640; 2. 中国科学院大学, 北京 100049)

摘要: 通过建立长宁地区五峰-龙马溪组优质页岩段地质模型和页岩吸附模型, 利用 PetroMod 软件模拟计算了页岩吸附能力及其油气吸附过程的演化, 系统研究了区域构造-热演化对页岩吸附能力、页岩内部油气组成变化, 以及油气吸附过程的影响。模拟结果显示, 有机质丰度是影响页岩吸附能力的关键因素, 页岩的生烃和有机质丰度的降低通常会伴随着页岩吸附能力的降低, 而常规地质条件下的温压变化对页岩吸附能力的影响有限。长宁地区五峰-龙马溪组页岩气成藏经历了 4 个构造演化阶段, 其页岩吸附能力及油气吸附过程同样受控于这 4 个阶段: 分别包括沉积成岩期(晚加里东-早海西期)、早成藏期(晚海西-印支期)、主成藏期(燕山早期)和调整期(燕山-喜马拉雅期)。根据 4 个构造演化阶段我们进一步将五峰-龙马溪组优质页岩段的油气吸附过程划分为液态烃不饱和吸附(小于 7.0 万 t/km²)、液态烃饱和吸附(7.0~24.5 万 t/km²)、液态烃-气态烃饱和吸附(24.5~23.5 万 t/km²)和气态烃饱和吸附(23.5~24.3 万 t/km²)。其中, 气态烃吸附过程主要发生在后 3 个阶段, 具体表现为: 早成藏期(干燥系数小于 50%, 含气量小于 0.30 m³/t), 页岩开始大量生成以吸附态为主的气态烃, 成分以乙烷和 C₃₊为主, 甲烷含量低; 主成藏期(干燥系数 50%~95%, 含气量 0.30~2.73 m³/t), 液态烃大量裂解生成甲烷, 导致甲烷吸附气量迅速升高至 21 万 t/km², 而乙烷和 C₃₊的吸附气量经历了先增大后减小的过程并最终稳定在 1 万 t/km²左右; 调整期(干燥系数大于等于 95%, 含气量大于等于 2.73 m³/t), 甲烷吸附气量从 21 万 t/km²缓慢上升到最终的 21.56 万 t/km², 而乙烷和 C₃₊的吸附气量分别稳定在 1 万 t/km²左右。值得注意的是, 虽然模拟的甲烷吸附气量与实际相符, 但是模拟的甲烷游离气量以及干燥系数却明显小于模拟结果。这是因为在实际地质条件下, 甲烷更高的浓度和更强的运移扩散能力使得游离态甲烷能够在有利位置进一步富集, 形成高游离气含量、高干燥系数的页岩气藏。

关键词: PetroMod; 页岩; 吸附能力; 吸附模拟; 五峰-龙马溪组

中图分类号: P593; P599 文献标识码: A 文章编号: 0379-1726(2019)06-0602-11

DOI: 10.19700/j.0379-1726.2019.06.008

Adsorption simulation based on PetroMod of high-quality shale segment of Wufeng-Longmaxi Formation in Changning Area, Sichuan Basin

CHEN Cheng-sheng^{1,2}, SHI Shu-yong^{1,2} and WANG Yun-peng^{1*}

1. State Key Laboratory of Organic Geochemistry, Guangzhou Institute of Geochemistry, Chinese Academy of Sciences, Guangzhou 510640, China;

2. University of Chinese Academy of Sciences, Beijing 100049, China

Abstract: By establishing the geological and adsorption models for the high-quality shale segment (target layer) of the Wufeng-Longmaxi Formation in the Changning Area, we simulated and calculated the shale adsorption capacity and the evolutionary process of hydrocarbon adsorption, which systematically revealed the effect of regional tectonic-thermal evolution on the evolutions of shale adsorption capacity, hydrocarbon composition, and adsorption.

收稿日期(Received): 2019-05-05; 改回日期(Revised): 2019-06-21; 接受日期(Accepted): 2019-07-16

基金项目: 中国科学院战略性先导科技专项(B类)(XDB10010300); 中国科学院战略性先导科技专项(A类)(XDA14010103); 国家科技重大专项大型油气田及煤层气开发专项(2017ZX05008-002-030); 中国科学院广州地球化学研究所“一三五”项目(135TP201602)

作者简介: 陈承声(1991-), 男, 博士研究生, 地球化学专业。E-mail: chenchengsheng14@mails.ucas.ac.cn

* 通讯作者(Corresponding author): WANG Yun-peng, E-mail: wangyp@gig.ac.cn; Tel: +86-20-85290197

The results show that organic matter abundance is the main factor affecting the change in shale adsorption capacity, which means that the decrease in organic matter abundance caused by the hydrocarbon generation correspondingly reduces the shale adsorption capacity, which is slightly impacted by temperature and pressure under a usual geological condition. Four tectonic evolutionary stages, including the sedimentation (from late Caledonian to early Hercynian), early-stage accumulation (from late Hercynian to Indosinian), main accumulation (early Yanshanian), and the adjustment period (from Yanshan to Himalayan), have not only controlled the shale gas accumulation, but also controlled the processes of shale adsorption capacity and hydrocarbon adsorption at the target layer of the Wufeng-Longmaxi formation in the Changning Area. According to these four tectonic evolutionary stages, we further divided the process of hydrocarbon adsorption into four stages: unsaturated adsorption of liquid hydrocarbon ($< 70,000$ tons/ km^2), saturated adsorption of liquid hydrocarbon ($70,000\text{--}245,000$ t/ km^2), saturation adsorption of liquid-gaseous hydrocarbon ($245,000\text{--}235,000$ t/ km^2), and saturation adsorption of gaseous hydrocarbon ($235,000\text{--}243,000$ t/ km^2). The gaseous adsorption in the target layer of the Wufeng-Longmaxi shale mainly occurred in the later three stages. During the early-stage accumulation period (drying coefficient is less than 50%; gas content is less than 0.30 m^3/t), the shale began to generate large amounts of gaseous hydrocarbon in the adsorbed state, which is mainly composed of ethane and C_{3+} gases with low methane content. During the main accumulation period (drying coefficient 50%–95%, gas content rising from 0.30 m^3/t to 2.73 m^3/t), methane adsorption gas rapidly increased to $210,000$ t/ km^2 because of the abundant cracking of liquid hydrocarbon, while ethane and C_{3+} adsorption respectively reached nearly $10,000$ t/ km^2 after changing from increasing to decreasing. During the adjustment period (drying coefficient is equal to or greater than 95%, gas content is equal to or greater than 2.73 m^3/t), methane adsorption increased from $210,000$ t/ km^2 to $215,600$ t/ km^2 eventually, while ethane and C_{3+} adsorption were steady at the level of $10,000$ t/ km^2 . It should be noticed that although the adsorption simulation results maintain consistency with the adsorption characteristics of actual shale gas reservoirs, the volume of free gas as well as the drying coefficient are lower than those in real cases. This is attributed to stronger migration and diffusion of methane under real geological conditions, so that methane existing in a free state accumulates in advantageous positions and then forms shale gas reservoirs with high free methane contents and high drying coefficients.

Key words: PetroMod; shale; adsorption capacity; adsorption simulation; Wufeng-Longmaxi Formation

0 引 言

页岩气是一类以吸附态和游离态赋存于泥页岩中的非常规天然气^[1-3]。在不同类型页岩和构造条件下,页岩的吸附气量和总含气量变化范围很大,通常吸附气量可占页岩总含气量的 20%~85%,游离气量可占 50%~60%^[4-5]。鉴于吸附气在页岩气生产后期的脱附作用是页岩气产量下降的主要原因,吸附气量大小在一定程度上是页岩气后期稳产的关键,也是资源评价和勘探选区的重要参数,对页岩气储量预测具有重要意义^[6-7]。基于此,近年来国内外开展了大量关于页岩吸附气量评估的研究工作^[1,8-10]。目前,评估页岩吸附气量主要有两种方法:一种是在页岩气钻井现场测试岩芯样品的脱附气量,另一种是在实验室中通过等温吸附实验测定页岩的吸附能力。由于实验室页岩吸附量研究可以很好地避免现场测试存在的气体散失、解吸不充分、耗时长等

问题而成为页岩含气性评价的重要方法^[1]。

页岩中的有机质和黏土矿物是气体吸附的主要载体,因此页岩的有机质丰度、有机质类型与成熟度、黏土矿物含量等因素直接影响和控制着页岩的吸附能力^[1-3]。不同地区、不同地层的页岩在漫长的地质历史进程中会经历各不相同的埋藏史、温压史和生-留烃史,这些过程不但控制着页岩内部油气组成的变化,也控制着页岩吸附能力及其主要吸附物的变化。大量实验研究表明在地质历史过程中页岩的埋藏-热成熟作用伴随着有机质的消耗、孔隙结构与孔隙度的改变,甚至矿物成分的改变,从而影响页岩实际吸附能力^[3,10-14]。虽然这些研究成果揭示了页岩有机质丰度、成熟度和黏土矿物与页岩吸附能力的关系并应用于页岩吸附气量的评估,但大多数是基于理想的页岩成熟过程,缺乏结合实际地质过程的研究。因此,恢复地质历史过程中页岩吸附能力及其油气吸附过程的研究至关重要,尤其在构造-热演化复杂的页岩气产区,如我国的四川盆地更是

如此。开展针对四川盆地五峰-龙马溪组页岩吸附能力和油气吸附过程的模拟研究将有助于系统性评价该地区页岩吸附能力与含气性特征,从而深刻理解构造过程对页岩气成藏的控制作用。

本研究以我国四川盆地长宁页岩气主产区宁209井为例,选取五峰-龙马溪组优质页岩段(约50 m)为目的层。在区域构造沉积分析基础上利用PetroMod盆地模拟软件建立宁209井地质模型,恢复目的层埋藏史和温压史,并在选取有效生烃动力学模型的基础上模拟计算目的层的生-残留烃史。最后建立用于模拟计算页岩吸附能力和油气吸附过程演化的有效页岩吸附模型,研究四川盆地长宁地区五峰-龙马溪组页岩构造-热演化、油气组成变化和吸附过程三者之间的耦合关系,探讨地质构造复杂区的页岩吸附特征及其对页岩气成藏的控制。

1 地质背景

宁209井所在的长宁页岩气产区构造位置属四

川盆地川东南高陡褶皱带南段的长宁背斜南斜坡-向斜区,总体上是一个大型宽缓向斜内的马鞍型构造(图1)。主力产层五峰-龙马溪组上覆下三叠统和二叠统。该区自早古生代以来经历的加里东期、海西期、印支期、燕山期和喜马拉雅期构造运动在该地区皆有相关的构造响应^[15]。

2016年王玉满等^[8]总结了长宁页岩气田关键地质参数:产层层位为五峰组-龙马溪组底部,地层总厚度250~308 m,优质页岩段厚度33~46 m;总有机碳(TOC)含量为1.9%~7.3%,平均4.6%,有机质为I型或II₁型;成熟度 R_o 2.3%~2.8%,平均2.6%;总孔隙度3.4%~8.2%,平均5.4%;孔隙压力56~66 MPa,地层压力系数1.40~2.03;含气饱和度55.84%~85.44%,平均77.44%;页岩吸附能力1.07~3.97 m³/t,平均2.30 m³/t(温度70℃,压力20 MPa);含气量1.7~6.5 m³/t,平均4.1 m³/t;游离气占比60%。总体而言,长宁五峰-龙马溪组页岩为高丰度页岩气藏,页岩气赋存条件优越,生产特性好,是四川盆地重要的海相页岩气“甜点”区。长宁页岩为超高压区,

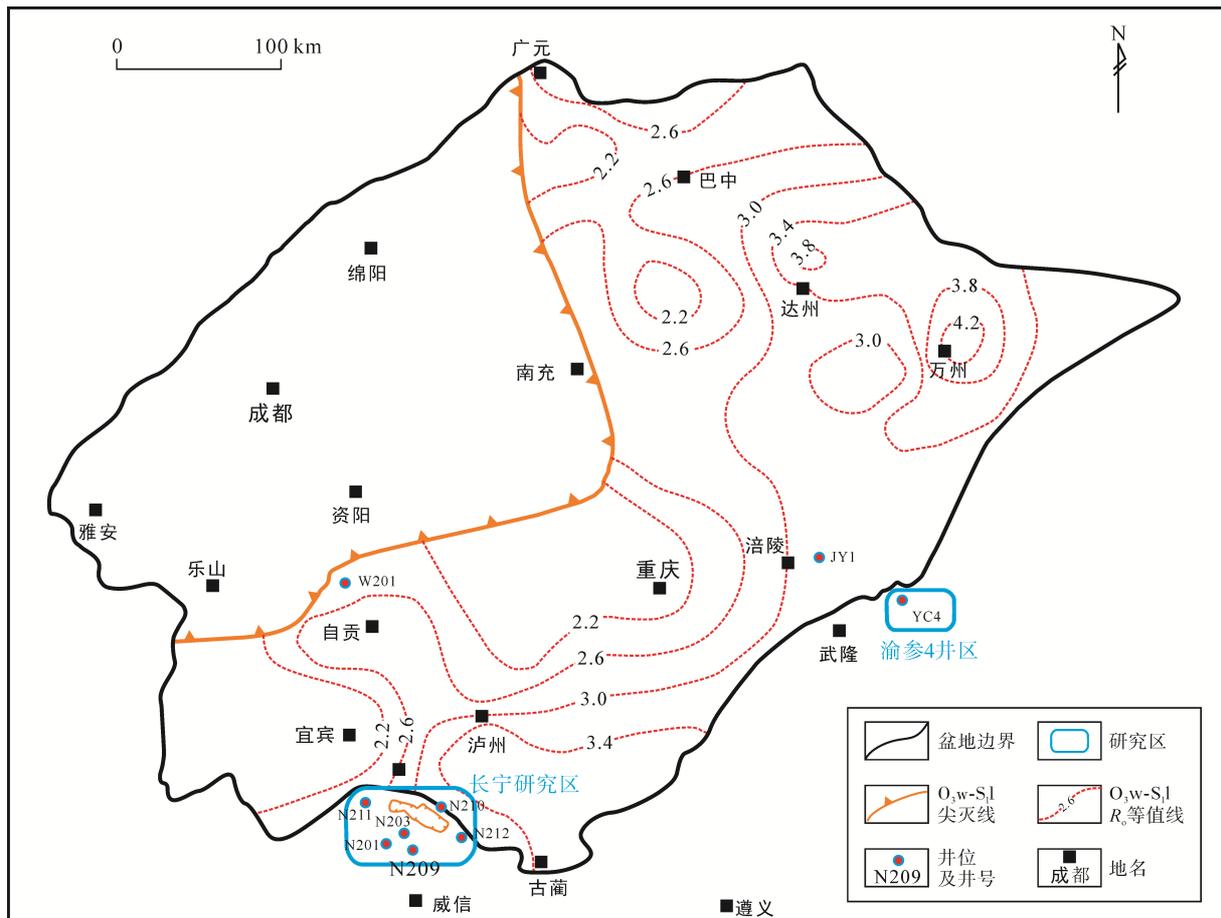


图1 研究区地理位置及其构造要素示意图(据文献[8]修改)

Fig.1 Diagram of study areas and structural elements (after reference [8])

具有含气饱和度高、含气量高、初试产量高、稳产时间长等特征^[8]。

2 模拟过程与关键参数筛选

盆地模拟结果的可靠性取决于关键参数的筛选和输入。模型中需要输入的参数有地层数据(岩性、厚度、时代), 构造事件(不整合、剥蚀、沉积间断), 烃源岩地球化学特征(TOC、氢指数、生烃动力学模型)和边界条件(古水深、古热流、水岩界面温度)等。本文建立宁 209 井模型所需的关键参数如表 1 和表 2 所示。

2.1 多组分动力学模型

PetroMod 软件主要自带 Tang(2011)_SARA_TI、TII 和 TIII 三种多组分动力学模型, 它们分别代表典型的湖相泥岩 I 型干酪根、海相泥岩 II 型干酪根和煤 III 型干酪根^[16]。这些模型是基于干酪根反应动力学以及无水的开放和封闭裂解体系的多组分动力学模型。由于五峰-龙马溪组以海相页岩为特征, 干酪根类型以 III 型为主^[1,8,10,15], 其干酪根类型和沉积环境与

代表海相泥岩 II 型干酪根的 Tang(2011)_SARA_TII 模型最为接近, 因此我们选用该模型进行本次模拟研究。Tang(2011)_SARA_TII 模型的产物按照饱和烃、芳烃、非烃和沥青质族组分划分成 10 种, 包括 C₁、C₂、C₃-C₅、CO₂、H₂S、C₆-C₁₄、C₁₅₊ 饱和烃、C₁₅₊ 芳烃、非烃(Resin)、沥青质。由于长宁地区五峰-龙马溪组页岩气普遍不含或含极少量的 H₂S 和 CO₂, 本研究不考虑 H₂S 和 CO₂ 的生成和吸附过程, 因此最终采用的动力学模型如图 2 所示。

2.2 页岩吸附模型

PetroMod 盆地模拟软件内置吸附模型包括如下参数: ① 吸附调整因子(Adsorption adjustment factor, %), 表示惰性干酪根的相对吸附能力, 本次研究设置吸附调整因子为 100%, 指示在吸附过程中惰性干酪根的吸附能力与活性干酪根一致; ② Expelled Composition 组分吸附方式, 对所有可吸附烃类按照各组分相对浓度进行累积吸附; ③ Langmuir 全岩吸附模型, 相关参数包括 Langmuir 体积(V_L)、Langmuir 压力(p_L)、等温吸附温度(T)、等温吸附 TOC 和脱附能(E_{des})。

表 1 宁 209 井 1 维地质模型基础输入参数数据表

Table 1 Main input data of Well Ning 209 for 1D basin modeling

地 层	地层符号	沉积时间 (Ma)		顶 界	底 界	地层厚度 (m)	剥蚀时间 (Ma)		剥蚀厚度 (m)	岩 性
		起 始	终 止				起 始	终 止		
燕山-喜马拉雅期剥蚀事件							97.5	0	3000	
白垩系	K	135.0	97.5	0	0	0				砂岩
中-上侏罗统	J ₂₊₃	174.0	135.0	0	0	0				砂岩
下侏罗统	J _{1z}	201.0	174.0	0	96	96				砂岩
上三叠统	T _{3x-2}	204.0	201.0	96	296	200				砂岩
上三叠统	T _{3x-1}	210.0	204.0	296	428	132				泥页岩
印支期剥蚀事件							242	210	300	
下三叠统	T _{1l}	247.0	242.0	428	568	140				泥灰岩
下三叠统	T _{1j}	251.0	247.0	568	1060	492				泥晶灰岩
下三叠统	T _{1f}	253.3	251.0	1060	1520	460				泥页岩
上二叠统	P ₂	257.0	253.3	1520	1670	150				灰岩-泥岩
晚海西期剥蚀事件							272	257	300	
下二叠统	P ₁	299.0	272.0	1670	2152	482				灰岩
晚加里东-早海西期剥蚀事件							427	299	200	
中志留统	S _{2h}	438.0	427.0	2152	2522	370				灰岩
中志留统	S _{2s}	438.5	438.0	2522	2860	338				页岩
龙马溪组	S _{1l}	445.4	438.5	2860	3126	266				页岩
五峰-龙马溪组	S _{1l} + O _{3w}	447.6	445.4	3126	3176	50				富有机质页岩

表2 宁209井1维地质模型边界条件数据表

Table 2 Boundary conditions of Well Ning 209 for 1D basin modeling

时间 (Ma)	古水深 (m)	时间 (Ma)	古热流 (mW/m ²)
0.0	0	0.0	60
200.0	0	25.0	60
253.0	40	97.5	60
450.0	100	220.0	65
时间 (Ma)	水岩界面温度 (°C)	时间 (Ma)	古热流 (mW/m ²)
0.0	20.66	240.0	70
200.0	21.33	259.0	90
253.0	23.01	270.0	70
450.0	23.00	290.0	60
		440.0	60

本文页岩吸附模型所需参数采用2016年 Tian *et al.*^[10]的等温吸附实验结果与相关参数。其实验采用

的8个页岩样品取自渝参4井(YC4)五峰-龙马溪组页岩(图1),样品从上到下进行系统采样,样品分布跨度约120 m,实验温度分别为35.4 °C、50.4 °C和65.4 °C^[10]。本次研究采用了其中5个来自五峰-龙马溪组优质页岩段(O₃w-S₁l,约50 m)样品在65.4 °C实验时所获得的Langmuir全岩吸附模型参数,具体结果如表3所示。最终输入参数采用5个样品相关参数的平均值:等温线TOC值为4.62%, R_o 值为3.3%,等温线温度为65.4 °C, V_L 为3.06 cm³/g, p_L 为1.91 MPa, E_{des} 为15.5 kJ/mol。值得注意的是,虽然脱附曲线在等温吸附实验中滞后于吸附曲线^[17],但是在考虑地质时间补偿效应的情况下两者将趋于一致,即认为脱附能(E_{des})约等于等温吸附热(E_{ads})。

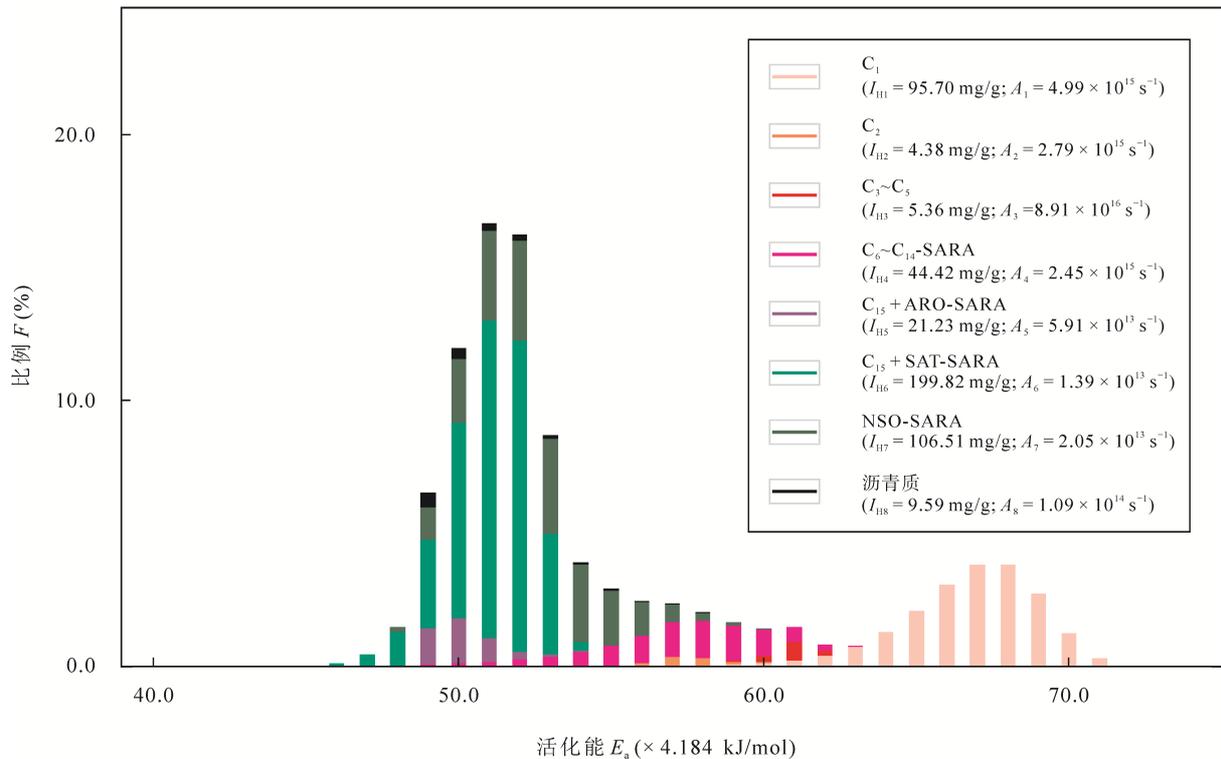


图2 适用于五峰-龙马溪组富有机质段页岩的Tang(2011)_SARA_TII多组分动力学模型

Fig.2 Compositional kinetic model of Tang(2011)_SARA_TII for high-quality shale segment of the Wufeng-Longmaxi Formation SARA-饱和烃(S)、芳烃(A)、非烃(R)和沥青质(A); ARO-芳烃; SAT-饱和烃; NSO-非烃

表3 五峰-龙马溪组优质页岩段样品65.4 °C时的Langmuir全岩吸附模型参数(据文献[10])

Table 3 Parameters of Langmuir bulk adsorption model of high-quality shale segment of the Wufeng-Longmaxi Formation at 65.4 °C (from reference [10])

样号	R_o (%)	V_L (cm ³ /g)	p_L (MPa)	等温线温度 (°C)	等温线 TOC (%)	$E_{des}(E_{ads})$ (kJ/mol)
YC4-47	2.64~3.55	2.72	2.50	65.4	3.34	14.1
YC4-54	3.06~3.41	2.88	0.72	65.4	4.52	16.4
YC4-61	3.28~3.62	3.19	1.79	65.4	5.44	12.9
YC4-64	3.10~3.55	3.27	2.50	65.4	4.07	17.8
YC4-65	3.20~3.53	3.25	2.04	65.4	5.74	16.1
平均值	3.30	3.06	1.91	65.4	4.62	15.5

2.3 模型运算与校正

盆地模拟工作除了要完成早期基础数据输入与关键参数筛选外,模型的运行和校正同样至关重要。为了真实反应页岩系统内部的烃类演化过程,本次模拟研究采用考虑页岩有机质二次孔隙和烃类二次裂解过程的算法,以及采用侵入渗流算法(Invasion percolation)计算页岩的生烃-排烃过程。完成运算后,模拟结果还需要一系列实测数据进行校正。如表 4 所示,模拟结果根据实测数据进行校正后获得与实测数据相吻合的结果,显示了模型及其模拟结果可靠性。

3 模拟结果及分析

3.1 埋藏史与成熟度演化

模拟结果显示长宁地区的五峰-龙马溪组埋藏史与成熟度演化受多期次构造-热活动控制,成熟度演化过程可以被划分为 6 个阶段:晚加里东期、早

海西期、晚海西期、印支期、燕山早期和燕山-喜马拉雅期(图 3)。五峰-龙马溪组经历了加里东-早海西期正常地温梯度、晚海西期-印支期高地温梯度,和燕山-喜马拉雅期正常地温梯度 3 个主要升温阶段。其中,晚海西期-印支期(大约 300~200 Ma)高地温梯度与广泛分布的峨眉山溢流玄武岩有关,在五峰-龙马溪组的成熟过程中发挥了重要作用。一般来说,五峰-龙马溪组页岩气成藏过程经历了沉积成岩期、早成藏期、主成藏期和调整期 4 个阶段^[15],结合图 3 可以看出这些过程可对应 4 个阶段的构造活动,分别为晚加里东-早海西期、晚海西期-印支期、燕山早期和燕山-喜马拉雅期。其中,燕山期造山运动导致五峰-龙马溪组大幅度深埋,最大埋深可超过 6000 m,最高地层温度超过 200 °C、成熟度 R_o 超过 2.4%,是页岩中大量天然气形成的主要阶段。

3.2 页岩吸附能力演化

模拟结果显示长宁地区五峰-龙马溪组富有机质段页岩吸附能力演化可分为 4 个阶段,如图 4a 所示,

表 4 模拟结果与实测数据对比统计表

Table 4 Comparison between modeled results and measured data

数据类型	R_o (%)	TOC (%)	孔隙度 (%)	地层温度 (°C)	地层孔隙压力 (MPa)	压力系数	页岩吸附能力 (m^3/t)
实测数据 ^[8,15] 实测值	2.30~2.80	1.90~7.30	3.40~8.20	110~133	56~66	1.40~2.03	1.07~3.97
实测数据 ^[8,15] 平均值	2.70	4.00	5.40	124	61	1.72	2.30
模拟结果 现今值	2.72	4.62	5.82	123	60	1.92	2.73

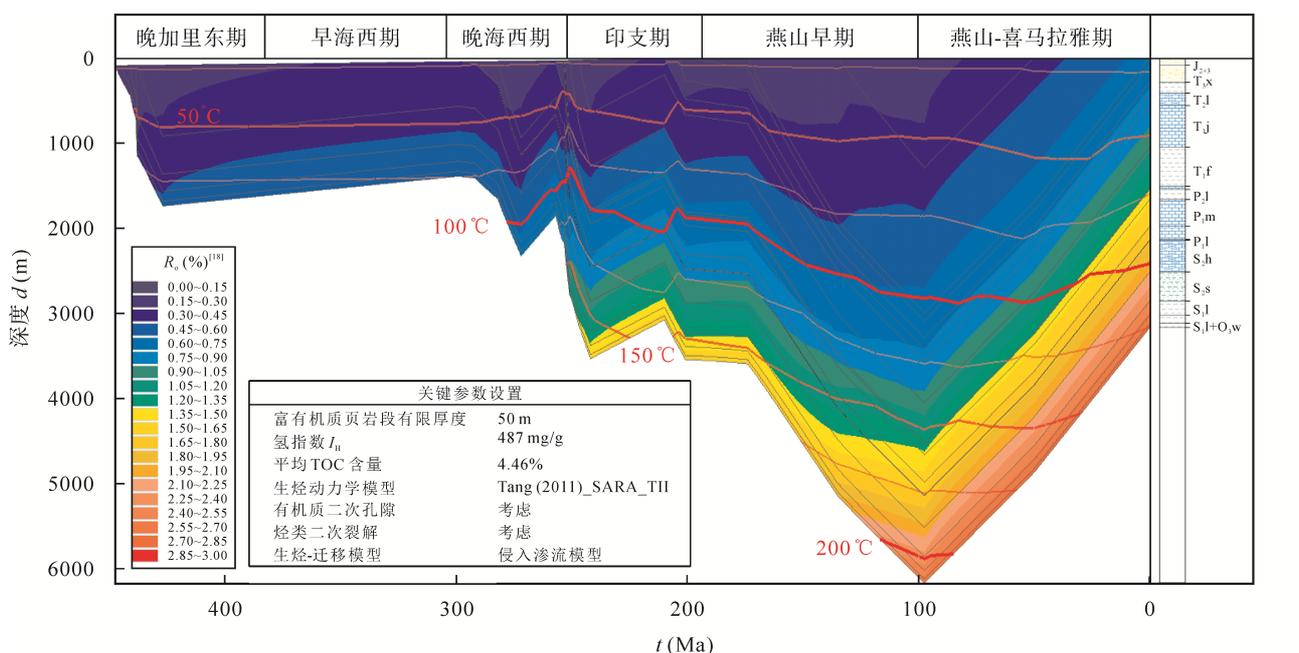


图 3 长宁地区宁 209 井埋藏热演化史图

Fig.3 Burial and heating history of well Ning 209 in the Changning area

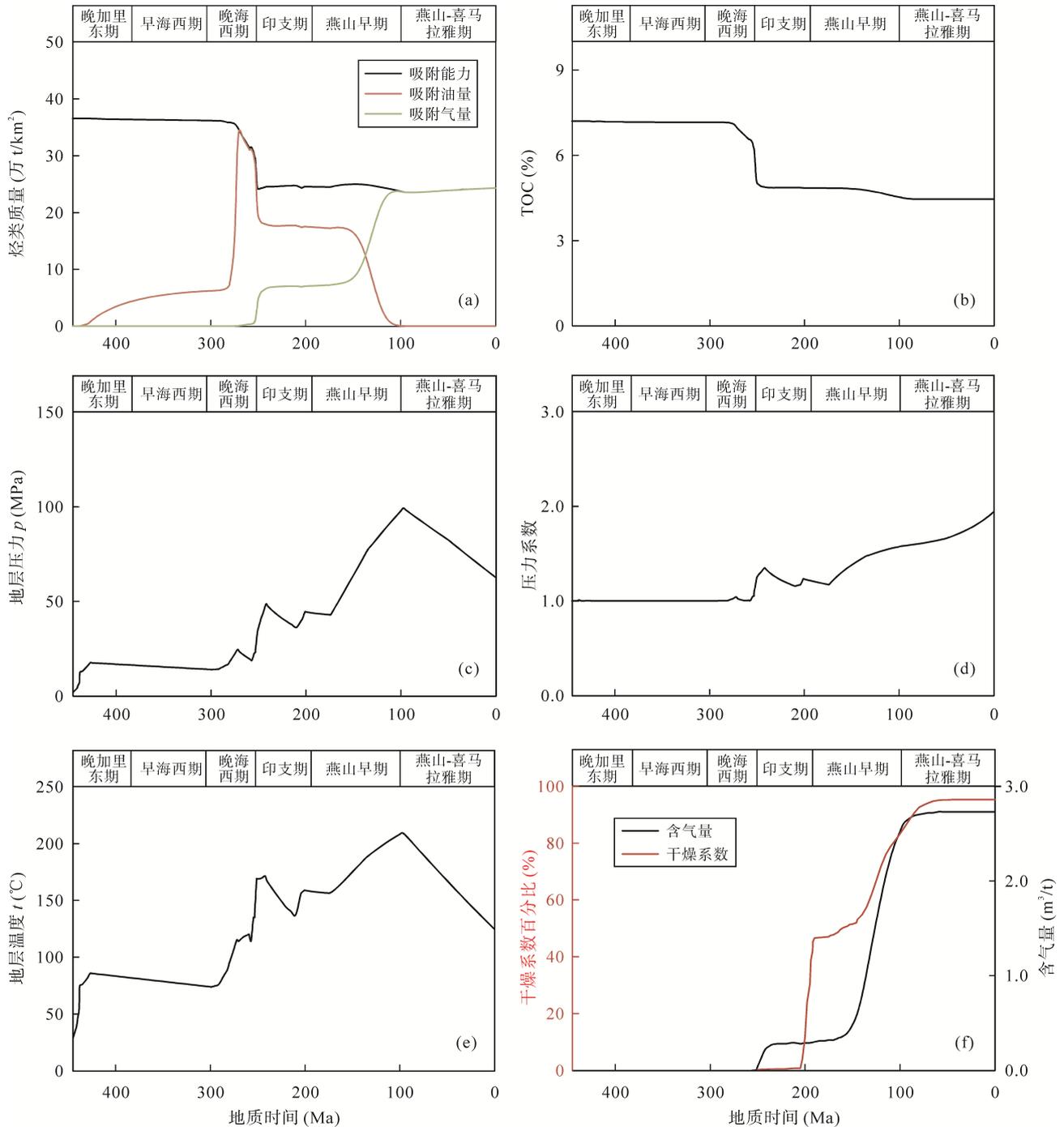


图4 五峰-龙马溪组富含有机质段页岩吸附能力演化及其影响因素变化

Fig.4 Evolutions of adsorption capacity and relevant influences in the target layer

晚加里东-早海西期的吸附能力维持在 36.50 万 t/km^2 ，对应沉积成岩期；晚海西-印支期，页岩吸附能力快速下降直至 24.5 万 t/km^2 ，对应早成藏期；燕山早期，页岩吸附能力略微下降，至 23.50 万 t/km^2 ，对应主成藏期；燕山-喜马拉雅期，页岩吸附能力开始略微上升，直至现今的 24.30 万 t/km^2 ，对应调整期。对比图 4a 页岩吸附能力与图 4b 有机质丰度曲线来看，页岩有机质丰度经历了与吸附能力相似的 4 个演化

阶段：晚加里东-早海西期，对应成熟度 R_0 小于 0.60% 时，有机质丰度从 7.2% 缓慢下降至 7.0% ；晚海西-印支期，对应成熟度 R_0 从 0.60% 迅速升高至 1.60% ，有机质丰度从 7.2% 快速下降至 4.8% ；燕山早期，对应成熟度 R_0 从 1.60% 进一步升高至 2.72% ，有机质丰度从 4.8% 略微下降 4.46% ；燕山-喜马拉雅期，成熟度和有机质丰度维持不变，直至现今。显然，这两条虚线表现出明显的相关性，说明有机质丰度

是影响页岩吸附能力及其演化的关键因素, 即有机质丰度受热成熟过程(干酪根热解生烃过程)控制而不断降低, 从而导致页岩吸附能力随着有机质丰度的降低而降低, 直至生烃停止。

研究表明页岩吸附能力也受地层温压条件的影响。从图 4c~4e 可以看出虽然五峰-龙马溪组的温压史经历了大幅度的变化, 但并未对页岩吸附能力产生明显的影响。印支期-燕山早期页岩吸附能力表现出小范围的波动以及燕山-喜马拉雅期的小幅度升高, 如图 4a 所示, 这一现象可能受地层温压条件变化的微弱影响。

3.3 页岩生烃与吸附量演化

模拟结果显示长宁地区五峰-龙马溪组富有机质段页岩生-排烃过程亦分为 4 个阶段, 如图 5a 所示, 晚加里东-早海西期(沉积成岩期)开始缓慢且少量地生烃, 生烃强度不超过 7 万 t/km²; 晚海西-印支期(早成藏期), 页岩有机质开始大量生油并开始大量排烃, 原地油量显示出先迅速升高后迅速减低的变化过程, 而该阶段的生烃过程明显滞后, 即二叠纪

末期开始生烃-排气过程; 燕山早期(主成藏期), 原地液态烃开始大量裂解, 原地油量迅速降低, 而气态烃则快速增多并有相当一部分排出; 燕山-喜马拉雅期(调整期), 页岩气主成藏期结束, 页岩原地气量维持不变, 其最终原地气量为 24.7 万 t/km²。

烃源岩生排烃过程和页岩吸附能力共同控制着页岩吸附油气过程。我们将页岩内部烃类划分为油和气两部分以分别讨论页岩对它们的吸附过程。模拟结果显示, 长宁地区五峰-龙马溪组优质页岩段的油气吸附过程表现为液态烃不饱和吸附、液态烃饱和吸附、液态烃-气态烃饱和吸附、气态烃饱和吸附。如图 4a 所示: 晚加里东-早海西期, 由于页岩早期生烃量较少, 并未满足页岩的全部吸附能力, 这一阶段油气都以吸附态形式赋存; 晚海西期早期(早二叠世), 烃源岩开始进入生油窗并大量生油, 在迅速满足页岩全部的吸附能力后开始出现游离烃, 随后由于吸附能力的快速下降, 页岩吸附量也开始减小, 但从二叠纪末期开始吸附气量开始迅速升高而吸附油量开始下降(气态烃取代液态烃吸附位), 同时维持着页岩的饱和吸附状态; 直至燕山早期,

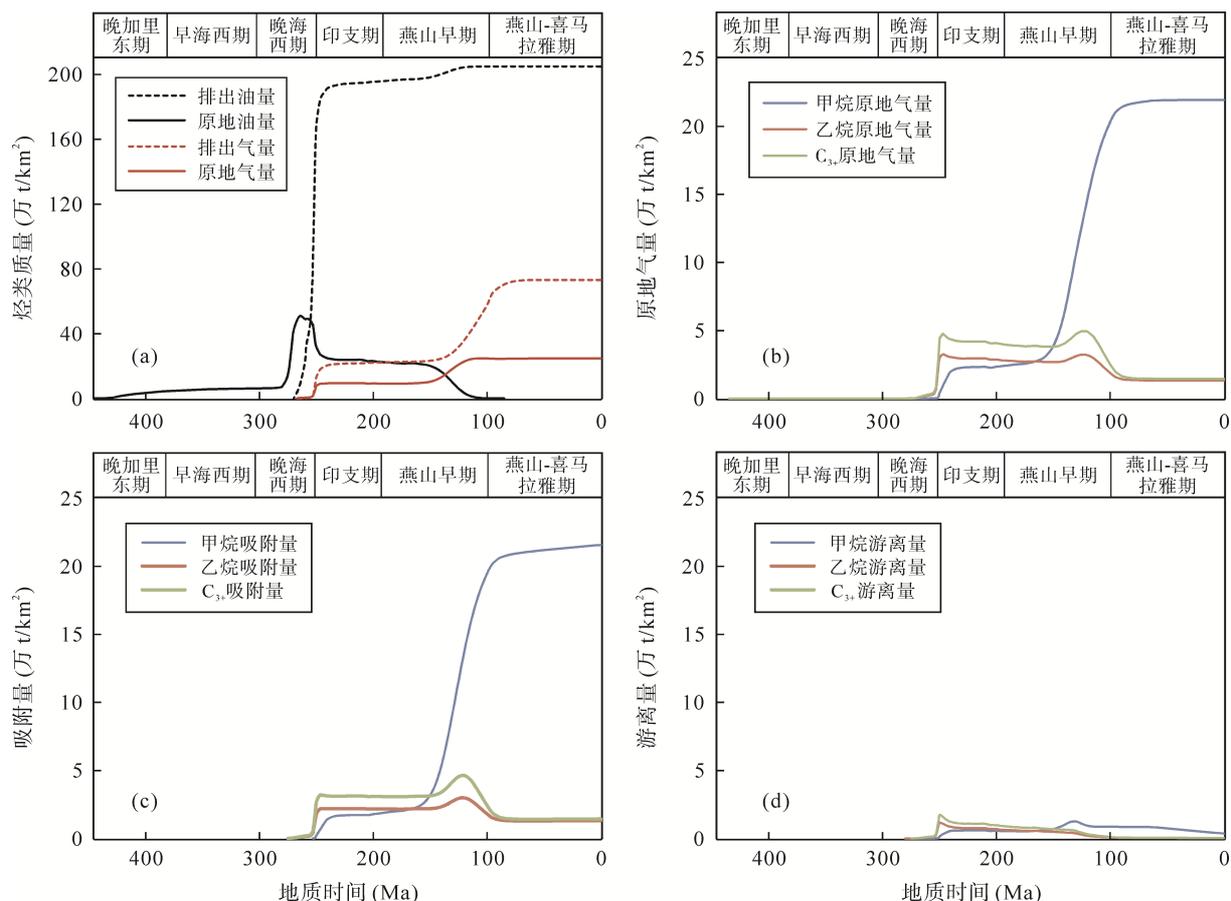


图 5 五峰-龙马溪组富有机质段页岩油气组成变化与气态烃吸附过程

Fig.5 Evolutions of hydrocarbon and processes of gaseous hydrocarbon adsorption in the target layer

由于页岩内部的液态烃开始大量裂解成气态烃,导致吸附油量迅速下降为零,而气态烃则进一步取代液态烃吸附位,直至被页岩吸附的烃类皆为气态烃,此时页岩吸附气量为 23.50 万 t/km²;燕山-喜马拉雅期,由于页岩吸附能力在这一时期略有增强,吸附气量从 23.50 万 t/km² 缓慢增大直到现今的 24.30 万 t/km²。

3.4 页岩含气性演化

研究探讨长宁五峰-龙马溪组含气性在地质历史进程中的特征及其演化过程也是本次研究的重点。模拟结果显示,页岩从晚海西期开始大量生成以干酪根裂解气为主的气态烃,其初始原地气量不到 10 万 t/km² (早成藏期);直到燕山早期,由于页岩中残留液态烃开始大量裂解,原地气量迅速达到了 24.7 万 t/km² (主成藏期),之后再无明显变化(图 5a)。这些过程对应的干燥系数先从很低的数值快速上升至 50% (早成藏期),再从 50% 上升至 95% 后保持不变(主成藏期),而对应的含气量先从 0 m³/t 上升至 0.30 m³/t,再从 0.30 m³/t 大幅度上升至 2.73 m³/t 后保持不变(图 4f)。

基于这些认识将气态烃划分为甲烷、乙烷和 C₃₊ 之后的页岩含气性特征及其演化。如图 5b 所示,晚海西-印支期(早成藏期),页岩中气态烃以乙烷和 C₃₊ 为主,甲烷的含量很低;燕山早期(主成藏期),液态烃和重烃气态的二次裂解甚至残余干酪根裂解是导致甲烷原地气量迅速上升的关键因素,而这一时期的乙烷和 C₃₊ 原地气量表现出先增多后减少的过程则可能与液态烃裂解有关;燕山-喜马拉雅期,各组分原地气量开始维持不变直至最终成藏。

一般来说,原地气量等于吸附气量和游离气量的总和,而模拟结果显示吸附气量占原地气量的大多数,因此各组分吸附量表现出与原地气量相似的演化过程(图 5b~5d)。如图 5c、5d 所示,晚海西-印支期(初成藏期),无论是吸附态还是游离态,页岩中的天然气以乙烷和 C₃₊ 为主,甲烷吸附气量和游离气量都相对较低。燕山早期(主成藏期),由于甲烷的大量生成使得甲烷的吸附气量迅速升高并达到 21 万 t/km²,而乙烷和 C₃₊ 的吸附气量经历了先增多后减少的过程,最终各自残留约 1 万 t/km²;甲烷游离气经历了先增多后减少的过程,直到现今的 0.36 万 t/km²,而乙烷和 C₃₊ 的游离气逐渐减低为零(图 5c、5d)。燕山-喜马拉雅期(调整期),这一时期甲烷吸附量从 21 万 t/km² 缓慢上升到最终的 21.56 万 t/km²,

而乙烷和 C₃₊ 的吸附气量分别维持稳定在 1 万 t/km² 左右;甲烷游离气量则逐渐减低,这因为页岩吸附能力增大使得部分游离态甲烷转化为吸附态,而乙烷和 C₃₊ 含量很低且都以吸附态存在故几乎无游离态的乙烷和 C₃₊ 存在(图 5c、d)。

4 讨论

页岩油气吸附演化主要受页岩内部油气组分变化和页岩吸附能力共同控制,主要体现在以下几个方面:(1) 页岩内部油气组成受页岩生-排-烃过程控制,而可供页岩吸附的油气组成是控制页岩吸附态烃类组成的关键因素之一;(2) 有机质作为吸附主体,是控制页岩吸附能力的主要因素,页岩吸附能力随着有机质丰度的不断降低而降低;(3) 温压条件也是影响页岩吸附能力的重要条件,但在地质条件下的温压变化影响有限。

与长宁地区五峰-龙马溪组页岩气实际生产情况进行对比,我们发现现今的模拟结果与页岩气成分特征存在一定差异。模拟结果显示,现今甲烷吸附气量为 21.56 万 t/km²、甲烷游离气量为 0.36 万 t/km²,游离气占比不到 2%,干燥系数为 95%。而长宁地区产出的页岩气中游离气占比高达 60% 且干燥系数超过 99%,这显然与吸附气占绝大多数且干燥系数偏低的模拟结果差异较大,即较之实际页岩气藏,本次模拟的原地气量(主要是游离气部分)和干燥系数偏低。我们认为造成这一差异的主要原因是一维模型无法考虑页岩气成藏的二次运聚效应。因为甲烷较之其他重烃气体(乙烷和 C₃₊ 主要以吸附态赋存)具有更强的运移能力,可以通过孔隙通道甚至裂缝扩散运移至有利位置聚集^[19],使实际游离气量远远高于模拟结果,且具有更高的干燥系数。如果考虑页岩气的二次运聚效应,按游离气占比 60% 的实际情况^[8] 计算,长宁地区游离态天然气量约为 32 万 t/km²,干燥系数超过 99%,含气量大于 2.73 m³/t,与实际情况相符。显然这部分游离气(主要是甲烷)是页岩气成藏调整期天然气层内运移聚集成藏的结果,而吸附态天然气组成保持着动态平衡相对稳定。由此可见,虽然页岩吸附过程模拟是可靠的,但一维盆地模拟方法无法准确模拟和反演页岩游离态天然气组成的演化过程,考虑游离态天然气运聚的模拟需要在二维甚至三维模型中进行,这是盆地模拟工作者在研究模拟过程中需要注意的。

另外, 我们的模拟结果从侧面可以反应出页岩吸附作用对长宁地区乃至整个四川盆地页岩气成因和演化的重要性, 这一过程对控制页岩内部油气组成演化和页岩含气性贡献具有至关重要的作用。同时, 页岩内部游离气在调整期的二次运聚也是页岩气成藏的关键因素。

5 结 论

(1) 长宁地区五峰-龙马溪组优质页岩段页岩气成藏经历了沉积成岩期、早成藏期、主成藏期和调整期, 分别对应晚加里东-早海西期、晚海西-印支期、燕山早期和燕山-喜马拉雅期 4 个构造演化阶段。页岩吸附能力及吸附进程受控于这 4 个构造演化阶段。

(2) 沉积成岩期页岩吸附能力维持在 36.50 万 t/km²; 早成藏期, 页岩吸附能力快速下降直至 24.5 万 t/km²; 主成藏期, 页岩吸附能力略微下降至 23.50 万 t/km²; 调整期, 页岩吸附能力略微上升。现今页岩吸附能力为 24.30 万 t/km²。有机质丰度是影响页岩吸附能力及其演化的关键因素, 地层温压条件变化对页岩吸附能力的影响有限。

(3) 长宁地区五峰-龙马溪组优质页岩段的油气吸附过程表现为液态烃不饱和吸附(沉积成岩期, 小于 7 万 t/km²)、液态烃饱和和吸附(初成藏期, 7~24.5 万 t/km²)、液态烃-气态烃饱和和吸附(主成藏期, 24.5~23.5 万 t/km²)、气态烃饱和和吸附(调整期, 23.5~24.3 万 t/km²)。

(4) 晚海西期(早成藏期), 页岩开始大量生成气态烃, 初始原地气量不足 10 万 t/km², 其组成以乙烷和 C₃₊ 为主, 甲烷含量较低, 且以吸附态赋存为主。燕山早期(主成藏期), 原地气量迅速达到了 24.7 万 t/km² (主成藏期), 其中甲烷吸附气量迅速升高至 21 万 t/km², 乙烷和 C₃₊ 吸附气量各自达到 1 万 t/km²。燕山-喜马拉雅期(调整期), 甲烷吸附气量从 21 万 t/km² 缓慢上升到最终的 21.56 万 t/km², 而乙烷和 C₃₊ 的吸附气量分别稳定在 1 万 t/km² 左右。这些过程对应的干燥系数先从很低的数值快速上升至 50%, 再从 50% 上升至 95% 后保持不变(主成藏期), 而对应的含气量先从 0 m³/t 上升至 0.30 m³/t, 再从 0.30 m³/t 大幅度上升至 2.73 m³/t 后保持不变。

(5) 在调整期, 由于甲烷较之其他重烃气体具有更强的运移能力使得游离态甲烷进一步在有利位

置聚集, 导致实际游离气量和干燥系数明显高于模拟结果。因为一维模型无法考虑页岩游离气二次运聚效应, 导致游离气模拟结果与实际页岩气藏不符, 所以与游离气相关模拟需要在二维甚至三维模型中进行。

本研究成果得到中国科学院战略性先导科技专项(B类)(XDB10010300)、中国科学院战略性先导科技专项(A类)(XDA14010103)、国家科技重大专项大型油气田及煤层气开发专项(2017ZX05008-002-030)和中国科学院广州地球化学研究所“一三五”项目(135TP201602)的资助。审稿专家对本文提出了宝贵的修改意见, 在此深表谢意。

参考文献(References):

- [1] 王思波, 宋之光, 曹涛涛, 夏嘉. 中国南方古生界页岩吸附特征及控制因素[J]. 地球化学, 2014, 43(5): 429-436.
Wang Si-bo, Song Zhi-guang, Cao Tao-tao, Xia Jia. Characterizing the methane sorption and its controlling factors in Paleozoic shales of south China [J]. *Geochimica*, 2014, 43(5): 429-436 (in Chinese with English abstract).
- [2] Montgomery S L, Jarvie D M, Bowker K A, Pollastro R M. Mississippian Barnett Shale, Fort Worth basin, north-central Texas: Gas-shale play with multi-trillion cubic foot potential [J]. *AAPG Bulletin*, 2005, 89(2): 155-175.
- [3] Jarvie D M, Hill R J, Ruble T E, Pollastro R M. Unconventional shale-gas systems: The Mississippian Barnett Shale of north-central Texas as one model for thermogenic shale-gas assessment [J]. *AAPG Bulletin*, 2007, 91(4): 475-499.
- [4] 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 Jin-chuan, Jin Zhi-jun, Yuan Ming-sheng. Reservoiring mechanism of shale gas and its distribution [J]. *Nat Gas Ind*, 2004, 24(7): 15-18 (in Chinese with English abstract).
- [5] Lane H S, Lancaster D E, Watson A. Characterizing the role of desorption in gas production from Devonian shales [J]. *Energ Sour*, 1991, 13(3): 337-359.
- [6] Curtis J B. Fractured shale-gas systems [J]. *AAPG Bulletin*, 2002, 86(11): 1921-1938.
- [7] 李新景, 胡素云, 程克明. 北美裂缝性页岩气勘探开发的启示[J]. 石油勘探与开发, 2007, 34(4): 392-400.
Li Xin-jing, Hu Su-yun, Cheng Ke-ming. Suggestion from the development of fractured shale gas in North America [J]. *Pet Explor Develop*, 2007, 34(4): 392-400.
- [8] 王玉满, 黄金亮, 王淑芳, 董大忠, 张晨晨, 管全中. 四川盆地长宁-焦石坝志留系龙马溪组页岩气刻度区精细解剖[J]. 天然气地球科学, 2016, 27(3): 1672-1926.
Wang Yu-man, Huang Jin-liang, Wang Shu-fang, Dong Da-zhong, Zhang Chen-chen, Guan Quan-zhong. Dissection of two calibrated areas of the Silurian Longmaxi Formation Changning and Jiaoshiba, Sichuan Basin [J]. *Nat Gas Geosci*, 2016, 27(3): 1672-1926.
- [9] EIA. Technically recoverable shale oil and shale gas resources:

- An Assessment of 137 Shale Formations in 41 Countries outside the United States [C]//EIA/ARI. World Shale Gas and Shale Oil Resources Assessment. Washington D C: US Department of Energy, 2013: 1–20.
- [10] Tian H, Li T F, Zhang T W, Xiao X M. Characterization of methane adsorption on overmature lower Silurian-Upper Ordovician shales in Sichuan Basin, southwest China: Experimental results and geological implications [J]. *Int J Coal Geol*, 2016, 156: 36–49.
- [11] Chalmers G R L, Bustin R M. The organic matter distribution and methane capacity of the Lower Cretaceous strata of Northeastern British Columbia, Canada [J]. *Int J Coal Geol*, 2007, 70(1–3): 223–239.
- [12] 杨振恒, 李志明, 沈宝剑, 韩志艳. 页岩气成藏条件及我国黔南坳陷页岩气勘探前景浅析[J]. *中国石油勘探*, 2009, 14(3): 24–28.
Yang Zhen-heng, Li Zhi-ming, Shen Bao-jian, Han Zhi-yan. Shale gas accumulation conditions and exploration prospect in southern Guizhou depression [J]. *China Pet Explor*, 2009, 14(3): 24–28 (in Chinese with English abstract).
- [13] 王濡岳, 胡宗全, 聂海宽, 刘忠宝, 陈前, 高波, 刘光祥, 龚大建. 川东南五峰组-龙马溪组与黔东南牛蹄塘组页岩储层特征对比分析与差异性探讨[J]. *石油实验地质*, 2018, 40(5): 639–649.
Wang Ru-yue, Hu Zong-quan, Nie Hai-kuan, Liu Zhong-bao, Chen Qian, Gao Bo, Liu Guang-xiang, Gong Da-jian. Comparative analysis and discussion of shale reservoir characteristics in the Wufeng-Longmaxi and Niutitang formations: A case study of the well JY1 in SE Sichuan Basin and well TX1 in SE Guizhou area [J]. *Pet Geol Exp*, 2018, 40(5): 639–649.
- [14] Gasparik M, Bertier P, Gensterblum Y, Ghanizadeh A, Krooss B M, Littke R. Geological controls on the methane storage capacity in organic-rich shales [J]. *Int J Coal Geol*, 2014, 123: 34–51.
- [15] Chen S B, Zhu Y M, Chen S, Han Y F, Fu C Q. Hydrocarbon generation and shale gas accumulation in the Longmaxi Formation, southern Sichuan Basin, China [J]. *Mar Pet Geol*, 2017, 86: 248–258.
- [16] Tang Y C, Jenden P D, Nigrini A S, Teerman S C. Modeling early methane generation in coal [J]. *Energy Fuel*, 1996, 10(3): 659–671.
- [17] 郭为, 熊伟, 高树生, 胡志明, 刘洪林, 于荣泽. 温度对页岩等温吸附/解析特征影响[J]. *石油勘探与开发*, 2013, 40(4): 481–485.
Guo Wei, Xiong Wei, Gao Shu-sheng, Hu Zhi-ming, Liu Hong-lin, Yu Rong-ze. Impact of temperature on the isothermal adsorption/desorption characteristics of shale gas [J]. *Pet Explor Develop*, 2013, 40(4): 481–484.
- [18] Sweeney J J, Burnham A K. Evaluation of a simple model of vitrinite reflectance based on chemical kinetics [J]. *AAPG Bulletin*, 1990, 74(10): 1559–1570.
- [19] Zhang M J, Tang Q Y, Cao C H, Lü Z G, Zhang T W, Zhang D K, Li Z P, Du L. Molecular and carbon isotopic variation in 3.5 years shale gas production from Longmaxi Formation in Sichuan Basin, China [J]. *Mar Pet Geol*, 2018, 89: 27–37.