

应用方解石激光原位U-Pb同位素定年确定多旋回 叠合盆地油气成藏绝对时间 ——以塔里木盆地塔河油田为例

陈家旭¹, 王斌^{1,2}, 郭小文¹, 曹自成³, 刘永立³, 耿锋³, 张旭友¹, 徐豪¹, 赵建新^{1,4}

[1. 中国地质大学(武汉)构造与油气资源教育部重点实验室, 湖北武汉 430074; 2. 中国石化石油勘探开发研究院无锡石油地质研究所, 江苏无锡 214126; 3. 中国石化西北油田分公司勘探开发研究院, 新疆乌鲁木齐, 830011; 4. 昆士兰大学地球与环境科学学院放射性同位素实验室, 澳大利亚布里斯班 4072]

摘要:多旋回叠合盆地油气成藏绝对时间一直是油气成藏研究需要解决的一个重大难题。以塔里木盆地塔河油田为例,在油包裹体观察和荧光光谱分析的基础上,通过阴极发光和微量元素分析划分方解石脉体形成期次,对不同期次方解石脉体进行激光原位U-Pb同位素定年获得油气充注绝对时间。研究结果表明,塔里木盆地塔河油田奥陶系储层方解石脉体中发育黄色和蓝白色荧光两种类型油包裹体。阴极发光和微区微量元素的差异性指示存在两期方解石脉体,其中发育黄色荧光原生油包裹体,两期方解石的年龄分别对应两期黄色荧光原油的充注时间。方解石脉体激光原位U-Pb同位素定年结果显示,第一期黄色荧光原油的充注时间为 $329.7 \text{ Ma} \pm 1.6 \text{ Ma}$,第二期充注时间为 $249.3 \text{ Ma} \pm 2.6 \text{ Ma} \sim 220.5 \text{ Ma} \pm 7.3 \text{ Ma}$ 。激光原位U-Pb同位素定年技术结合烃类流体包裹体分析可以很好地用于确定多旋回叠合盆地油气成藏时间,对重建油气成藏动态过程具有重要作用。

关键词:激光原位U-Pb定年;流体包裹体;方解石脉体;油气成藏年代学;塔河油田;塔里木盆地

中图分类号:TE122.3 **文献标识码:**A

Application of laser in-situ U-Pb dating of calcite to determination of the absolute time of hydrocarbon accumulation in polycyclic superimposed basins: A case study on Tahe oilfield, Tarim Basin

Chen Jiaxu¹, Wang Bin^{1,2}, Guo Xiaowen¹, Cao Zicheng³, Liu Yongli³, Geng Feng³, Zhang Xuyou¹, Xu Hao¹, Zhao Jianxin^{1,4}

[1. Key Laboratory of Tectonics and Petroleum Resources, Ministry of Education, China University of Geosciences, Wuhan, Hubei 430074, China; 2. Wuxi Research Institute of Petroleum Geology, Petroleum Exploration and Production Research Institute, SINOPEC, Wuxi, Jiangsu 214126, China; 3. Research Institute of Exploration and Production, Northwest Oilfield Branch Company, SINOPEC, Urumqi, Xinjiang 830011, China; 4. Radiogenic Isotope Facility, School of Earth and Environment Sciences, University of Queensland, Brisbane 4072, Australia]

Abstract: The absolute time of hydrocarbon accumulation in polycyclic superimposed basins has always been a major problem to be solved in the research of hydrocarbon accumulation. Based on the observation of oil inclusions and fluorescence spectrum analysis, we classify the generation of calcite crystallization into four stages by cathodoluminescence and trace elements analysis carried out in the Tahe oilfield, Tarim Basin; then determine the absolute time of hydrocarbon accumulation by laser in-situ U-Pb dating of calcite generated in these stages. The results show that two types of oil inclusions with yellow and blue-white fluorescent respectively are developed in calcite veins of the Ordovician in the study area. The differences of cathodoluminescence and micro-area trace elements indicate two stages of calcite veins contain primary oil inclusions with yellow fluorescent, the ages of which just correspond to the two

收稿日期:2020-01-02;修订日期:2021-10-16。

第一作者简介:陈家旭(1995—),男,博士研究生,油气成藏年代学。E-mail:jiaxuchen@cug.edu.cn。

通讯作者简介:郭小文(1980—),男,博士、教授,油气成藏机理。E-mail:guoxw@cug.edu.cn。

基金项目:国家自然科学基金项目(41872139);中国石油化工股份有限公司科技部项目(P18095-2)。

charging episodes of yellow fluorescent crude oil. The laser in-situ U-Pb isotope dating results of calcite veins show that the first episode of yellow fluorescent crude oil charging occurred during $329.7 \text{ Ma} \pm 1.6 \text{ Ma}$, the second ran from $249.3 \text{ Ma} \pm 2.6 \text{ Ma}$ to $220.5 \text{ Ma} \pm 7.3 \text{ Ma}$. An integration of the isotope dating technique and hydrocarbon fluid inclusion analysis can effectively determine the absolute time of hydrocarbon accumulation in polycyclic superimposed basins, and is of great significance to reconstructing the dynamic process of hydrocarbon accumulation.

Key words: laser in-situ U-Pb dating, fluid inclusion, calcite vein, hydrocarbon accumulation geochronology, Tahe oil-field, Tarim Basin

多旋回叠合盆地经历过复杂的构造演化,通常发育多套生-储-盖组合,并具有多期油气成藏及改造的特征^[1-3]。确定多旋回叠合盆地中不同期次油气成藏时间对于重建油气成藏动态过程以及研究油气藏形成与分布规律具有重要的作用。传统的油气成藏年代学方法包括圈闭形成时间法、饱和压力/露点压力法、生排烃史法、油藏地球化学方法及流体包裹体法^[4-7],这些方法只能定性判断出油气成藏的大致时期,而不能确定成藏的绝对年龄。常用的油气成藏同位素测年方法包括自生伊利石 K-Ar(Ar-Ar)定年法^[8],沥青、干酪根和原油的 U-Pb, Pb-Pb, Rb-Sr, Sm-Nd 以及 Re-Os 同位素定年法^[5,7],这些方法能够给出油气成藏的绝对年龄,但是其适用范围均存在一定的局限性。自生伊利石的分离和提纯难度大,在分离过程中容易混入碎屑伊利石,导致得到的年龄数据不可靠,并且自生伊利石 K-Ar(Ar-Ar)定年主要适用于碎屑岩地层,对样品要求苛刻,成功率低,难以推广到碳酸盐地层,不能反映油气多期充注的信息,只能确定油气最早充注的时间。自生伊利石 Ar-Ar 定年需要进行核照射,因此面临着 Ar 原子反冲丢失,实验周期长和放射性安全等问题^[7]。沥青、干酪根和原油的 U-Pb, Pb-Pb, Rb-Sr 和 Sm-Nd 同位素定年是基于“无机生油论”提出的,理论基础尚不完善,并且原油中放射性同位素的分离比较困难,限制了此方法的应用^[5]。沥青、干酪根和原油的 Re-Os 同位素定年不能应用于具有多期油气充注的沉积盆地,并且面临着同位素有效分离和提纯难度大以及烃类流体运移过程中 Re-Os 同位素体系重置的问题。

方解石激光原位 U-Pb 同位素定年是基于原位微区分析的同位素定年技术,测试精度高,实验周期短,只需少量样品便可实现对方解石年龄的精确测定^[9],目前已被成功应用于研究洋壳反馈模型^[10],确定断层活动时间^[11],揭示造山带应力演化过程^[12]以及重建成岩演化史^[13]。在方解石形成过程中,若发生烃类充注,烃类流体会被捕获于方解石晶体缺陷中形成原生烃类包裹体。烃类包裹体被捕获的时间与方解石的形成时间一致,因此油气充注时间可以通过方解石激光

原位 U-Pb 同位素定年方法获得。本文以塔里木盆地塔河油田为例,在流体包裹体岩相学观察、荧光光谱分析以及方解石阴极发光、微区原位微量元素分析的基础上,对发育原生烃类包裹体的不同期次方解石进行激光原位 U-Pb 同位素定年,获取不同期次烃类流体充注时间。本研究提出了一种用于确定多旋回叠合盆地中油气充注绝对时间的方法,对推动油气成藏年代学发展具有重要作用。

1 地质背景

塔河油田面积约 $2\,400 \text{ km}^2$,位于塔里木盆地北部沙雅隆起阿克库勒凸起南斜坡(图1)。阿克库勒凸起西邻哈拉哈塘凹陷,东接草湖凹陷,南靠顺托果勒凸起和满加尔凹陷,北部为雅克拉断凸^[14-15]。区域构造演化特征表明,阿克库勒凸起先后经历了加里东晚期、海西早期、海西晚期、印支期、燕山晚期和喜马拉雅晚期等构造运动^[2,16]。受多期构造运动的影响,阿克库勒凸起多次被抬升至地表遭受剥蚀,上奥陶统、志留系和泥盆系普遍缺失,中-下奥陶统遭受溶蚀并形成了古风化壳岩溶缝洞型储集体,为塔河油田的主要产层^[17-19]。前大量的研究成果表明,塔河油田奥陶系储层存在多期油气成藏,但是基于不同的方法确定的成藏期次和时间一直存在争议,主要观点如下:①基于储层沥青反射率、流体包裹体和油气藏饱和压力/露点压力,顾忆^[20]认为塔河油田有4期油气充注,分别为海西早期、海西晚期、燕山期—喜马拉雅早期和喜马拉雅晚期;②基于油藏地球化学方法,高波等^[21]认为塔河油田存在两期油充注,一期气充注;③基于单体烃类包裹体激光剥蚀在线成分分析、油气包裹体古压力和捕获温度恢复,并结合区域埋藏史和热演化史,施伟军等^[17]和潘安阳等^[22]认为塔河油田存在两期油充注,分别为 $327.0 \sim 322.0 \text{ Ma}$ 和 $6.0 \sim 2.0 \text{ Ma}$;④基于油藏地球化学方法、流体包裹体荧光颜色和显微测温,并结合区域埋藏史和热演化史,陈红汉等^[19]认为塔河油田存在“五幕三期”油气成藏,分别

为加里东中-晚期(463.2 ~ 414.9 Ma),海西晚期(312.9 ~ 268.8 Ma)和喜马拉雅期(22.0 ~ 4.8 Ma);⑤基于油藏地球化学方法、流体包裹体荧光颜色和显微测温,并结合区域埋藏史和热演化史,王铁冠等^[23]认为存在两期油充注,分别为429.0 ~ 415.0 Ma和8.0 ~ 2.0 Ma。造成上述不同观点的主要原因在于这些方法均只能定性判断油气成藏时间,对于存在多期油气充注并经历多期构造抬升的储层成藏时间的划分具有较强的局限性和多解性。

2 样品及实验方法

实验样品来自塔里木盆地塔河油田TS3井、AT5井和S118井奥陶系一间房组和鹰山组碳酸盐岩储层中的方解石脉体,取样井位置见图1,方解石脉产状见图2。

将采集的4块方解石样品磨制成厚约100 μm 且双面抛光的包裹体片进行流体包裹体岩相学观察、荧光光谱及阴极发光分析。流体包裹体岩相学观察及荧光光谱分析于中国地质大学(武汉)构造与油气资源教育部重点实验室完成,阴极发光测试于中国地质大学(武汉)地质过程与矿产资源国家重点实验室完成。流体包裹体岩相学观察采用仪器为NIKON-LV100双通

道荧光-透射光显微镜,荧光光谱由Maya2000Pro显微荧光光谱分析仪获得,阴极发光测试采用的仪器为英国CL8200-MK5型阴极发光仪。

方解石微区原位微量元素分析及激光原位U-Pb定年测试在澳大利亚昆士兰大学放射性同位素实验室开展,所用仪器为四级杆等离子体质谱仪(iCap-RQ ICP-MS),并配备了193 nm的ARF准分子激光剥蚀器。首先用环氧树脂将方解石样品制成直径为25 mm的靶,并对靶表面进行抛光、清洗。将方解石靶样置于Laurin Technic样品室,用激光对样品表面进行扫描,选择出合适区域开展U-Pb同位素定年。为提高ICP-MS灵敏度,采用的激光束斑直径为100 μm ,能量密度设置为3 J/cm²,剥蚀频率为10 Hz,并在氦气中加入适量的氩气和氮气作为载气,样品剥蚀方式采用单点剥蚀,单点剥蚀包括20 s的背景采集、25 s的数据收集和10 s的样品清洗时间。在方解石样品表面选择20 ~ 30个点进行微区原位微量元素测试,处理之后可获得不同点的²³⁸U, ²⁰⁸Pb, ²⁰⁷Pb和²⁰⁶Pb含量及²³⁸U/²⁰⁶Pb比值。挑选出²³⁸U/²⁰⁶Pb比值高且²⁰⁶Pb含量低的点位,在其附近密集打点进行激光原位U-Pb同位素定年测试,以获取更精确的年龄数据。以玻璃标样NIST612中⁴³Ca作为内标来校正样品的微量元素含量,NIST614用于校正仪器灵敏度漂移及²⁰⁷Pb/²⁰⁶Pb。昆士兰大学放射性

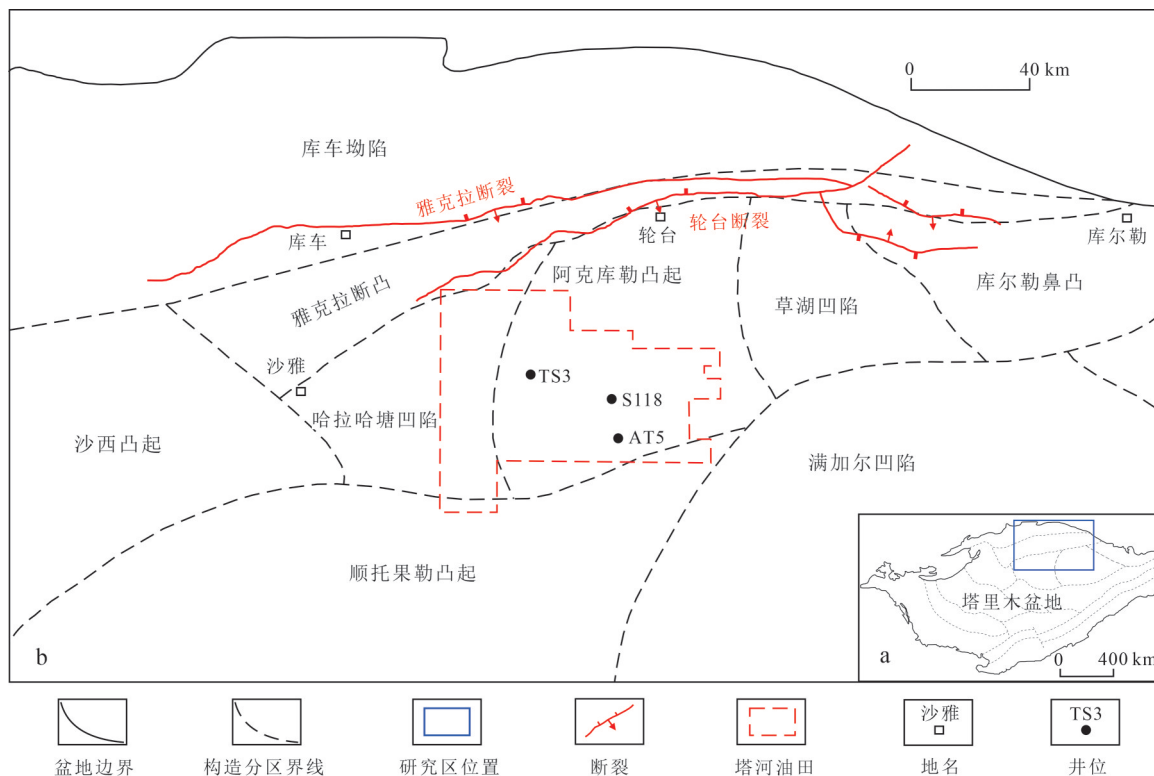


图1 塔里木盆地塔河油田构造位置(a)和取样井位(b)

Fig. 1 Tectonic location of Tahe oilfield (a) and sampling well locations (b) therein, Tarim Basin

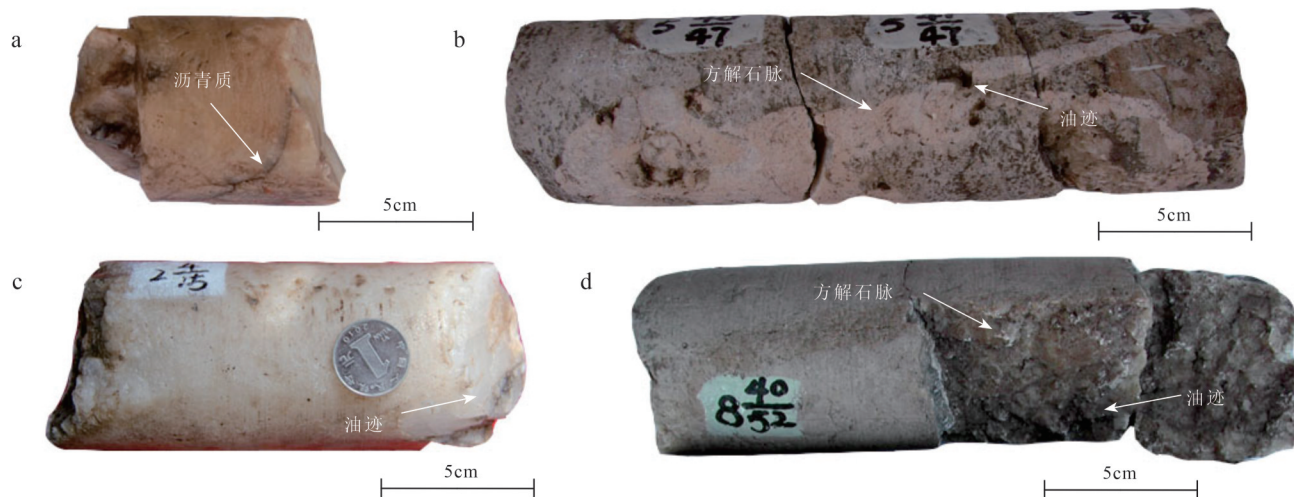


图2 塔河油田奥陶系储层岩心照片

Fig. 2 Photographs of the Ordovician cores in the Tahe oilfield, Tarim Basin

a. T1样品, TS3井, $O_{1-2}y$, 埋深6 103.0 m, 溶洞巨晶方解石, 沥青质半充填; b. A1样品, AT5井, $O_{2}yj$, 埋深6 524.7 m, 黄灰色亮晶砂屑灰岩, 高角度裂缝方解石全充填, 溶蚀孔洞见油迹; c. T2样品, TS3井, $O_{1-2}y$, 埋深6 106.4 m, 溶洞巨晶方解石, 裂缝中见油迹; d. S1-1样品, S118井, $O_{2}yj$, 埋深5 920.0 m, 浅黄灰色砂屑微晶灰岩, 高角度裂缝方解石全充填, 裂缝中见油迹

同位素实验室对塔里木盆地阿克苏地区下寒武统孔洞充填方解石晶体 AHX-1 进行近千组次测试, 得到稳定且可靠的微量元素及 U-Pb 年龄数据, 将 AHX-1 (年龄加权平均值为 $209.8 \text{ Ma} \pm 1.3 \text{ Ma}$) 作为标样来校正 $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ [24-27]。数据采用 Iolite 3.4 软件处理获得微量元素含量以及 $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ 和 $^{207}\text{Pb}/^{206}\text{Pb}$, 再用 Isoplot 3.00 软件 [28] 计算年龄并绘制 Terra-Wasserburg 谐和图。

3 流体包裹体

3.1 流体包裹体岩相学

塔河油田奥陶系储层方解石中油包裹体相对比较发育, 通过荧光观察, 可识别出两种类型的油包裹体。一种为单偏光下呈无色-浅黄色, 紫外光下发黄色荧光的油包裹体 (图 3a-f); 另一种为单偏光下呈无色, 紫外光下发蓝白色荧光的油包裹体 (图 3g, h)。在样品 A1, T1, T2 和 S1-1 中, 均可见黄色和蓝白色荧光油包裹体。其中, 黄色荧光油包裹体多位于方解石颗粒内, 呈孤立分布, 为原生油包裹体, 个体相对较大, 主要在 $10 \sim 20 \mu\text{m}$, 形状以次圆状和不规则状为主。蓝白色荧光油包裹体主要位于方解石裂纹内, 呈串珠状分布, 为次生油包裹体, 个体相对较小, 主要在 $5 \sim 10 \mu\text{m}$, 形状以长条状为主。流体包裹体岩相学反映黄色荧光油包裹体被捕获的时间与方解石形成的时间相同, 而蓝白色荧光油包裹体被捕获的时间晚于方解石的形成时间。

3.2 流体包裹体荧光光谱

油包裹体荧光颜色的不同是由包裹体成分的差异造成的, 可以用来指示油包裹体的成熟度。随着油包裹体成熟度增加, 荧光颜色从红色变为黄色再到蓝色。荧光光谱记录了油包裹体在紫外光照射下不同波长处的荧光强度, 可以更加准确地区分油包裹体荧光颜色的差异, 减小肉眼观察的不确定性。常用的荧光光谱参数包括主峰波长 (λ_{max} , nm) 和红绿熵值 (Q , 无量纲)。 λ_{max} 为荧光光谱中最大荧光强度对应的波长, Q 代表波长为 650 nm 和 500 nm 处荧光强度的比值, 这两个参数均与有机质成熟度有关。油包裹体中小分子成分含量越多, 包裹体中油的成熟度越大, 主峰波长会发生蓝移, λ_{max} 和 Q 值均减小。塔河油田奥陶系储层方解石中油包裹体荧光颜色共有黄色和蓝白色两种, 记录不同荧光颜色油包裹体的荧光光谱谱图 (图 4) 并计算 λ_{max} 和 Q (图 5)。黄色荧光油包裹体 λ_{max} 大部分在 $512 \sim 536 \text{ nm}$, Q 值对应范围在 $0.26 \sim 0.55$, 表明油包裹体中大分子成分含量较高, 包裹体中油的成熟度较低。蓝白色荧光油包裹体 λ_{max} 大部分在 $482 \sim 508 \text{ nm}$, Q 值对应范围为 $0.18 \sim 0.37$, 表明油包裹体中小分子成分含量较高, 包裹体中油的成熟度较高。结合油包裹体岩相学观察, 奥陶系储层中早期充注的为发黄黄色荧光的相对低熟油, 晚期充注的为发蓝白色荧光的相对高熟油。

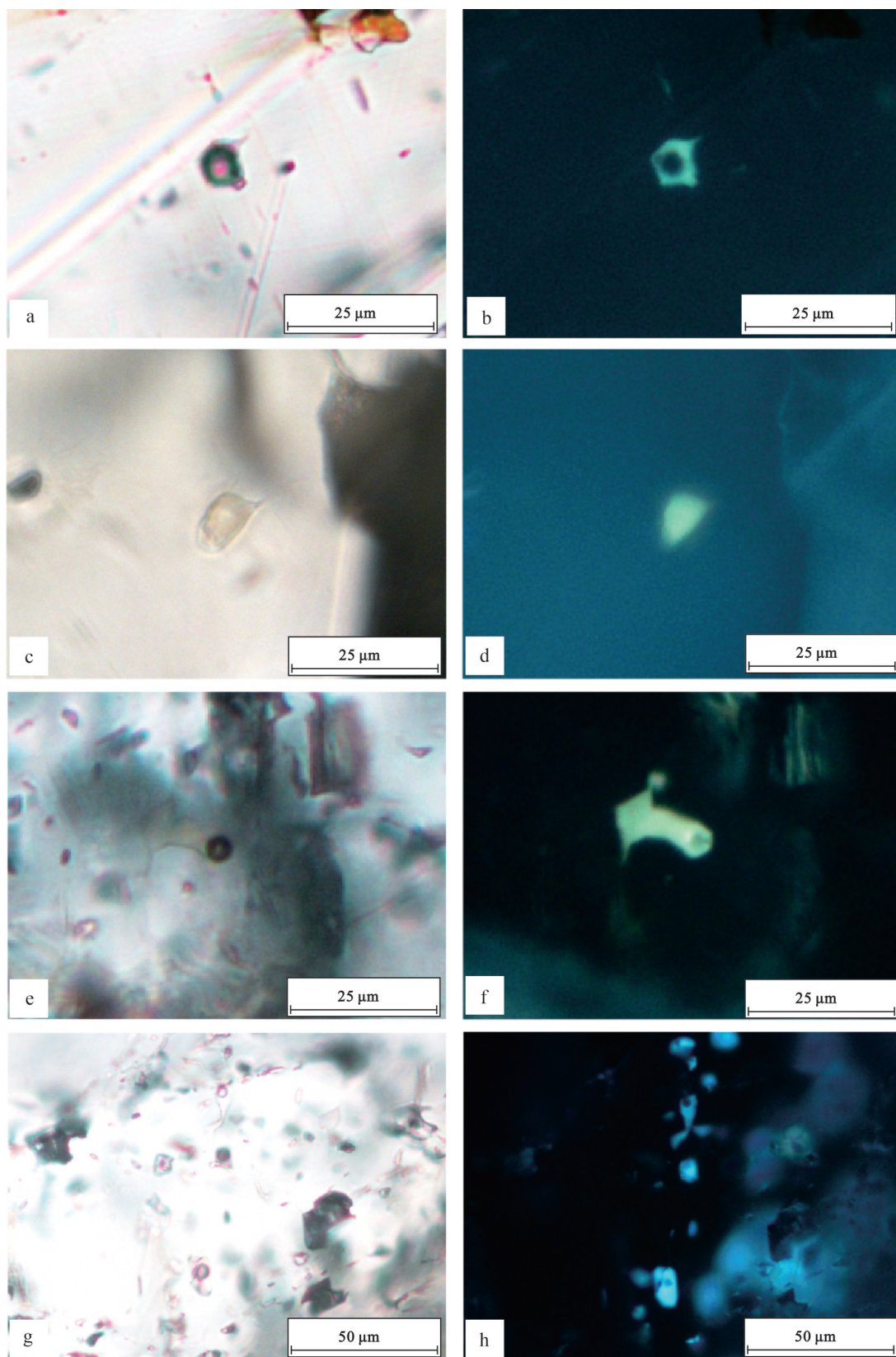


图3 塔河油田奥陶系储层方解石脉中油包裹体典型显微照片

Fig. 3 Representative micrographs of oil inclusions in calcite vein samples taken from the Ordovician reservoirs in the Tahe oilfield, Tarim Basin
a, b. T1 样品中发黄色荧光原油包裹体的透射光及荧光照片, TS3 井, $O_{1-2}y$, 埋深 6 103.0 m; c, d. A1 样品中发黄色荧光原油包裹体的透射光及荧光照片, AT5 井, O_{2y} , 埋深 6 524.7 m; e, f. S1-1 样品中发黄色荧光原油包裹体的透射光及荧光照片, S118 井, O_{2y} , 埋深 5 920.0 m; g, h. S1-1 样品中发蓝白色荧光次生油包裹体的透射光及荧光照片, S118 井, O_{2y} , 埋深 5 920.0 m

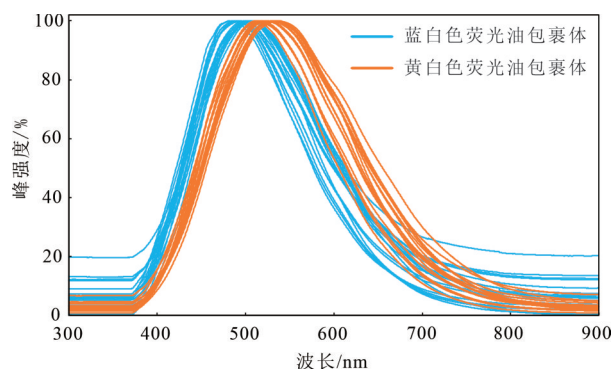


图4 塔河油田奥陶系储层方解石脉中油包裹体荧光光谱

Fig. 4 Fluorescent spectrum of oil inclusions in calcite vein samples taken from the Ordovician reservoirs in the Tahe oilfield, Tarim Basin

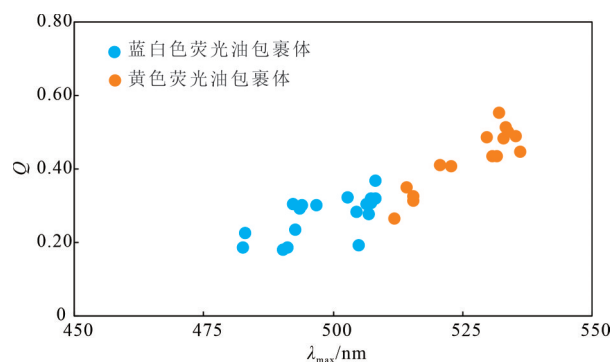


图5 塔河油田奥陶系储层方解石脉中油包裹体主峰波长 ($\lambda_{\max}$)与红绿比值(Q)交汇图

Fig. 5 Cross plot of $\lambda_{\max}$ and Q of oil inclusions in calcite vein samples taken from the Ordovician reservoirs in the Tahe oilfield, Tarim Basin

4 方解石脉体形成期次

同一套地层中成岩流体的氧化还原环境、流体来源及成分特征在不同地质时期可能存在差异,导致方解石脉体记录的成岩流体性质存在差异。由于采集的每块样品中均没有观察到方解石脉体的交切关系,因此,本研究主要通过阴极发光和微量元素分析来确定不同样品中方解石脉体的形成期次。方解石脉体期次的划分是进行激光原位U-Pb同位素定年并获得各期方解石脉体形成时间的基础。

4.1 阴极发光特征

Mn^{2+} 是方解石阴极发光的活化剂, Fe^{2+} 是方解石阴极发光的猝灭剂,因此方解石阴极发光的颜色主要代表了成岩流体的 Fe^{2+}/Mn^{2+} 比值。4块方解石样品在

透射光下均为无色,发育两组解理,解理缝和裂缝中充填物在透射光下为黑色。S1-1方解石脉阴极发光颜色为橙红色,脉体中裂缝较发育,裂缝充填物阴极发光颜色为橙黄色,可能与后期成岩过程中碳酸盐岩的溶蚀与再胶结有关(图6)。A1、T1和T2方解石脉阴极发光颜色一致,均为橙黄色,裂缝充填物阴极发光颜色为黄色。阴极发光特征表明,A1、T1和T2的成岩流体具有相似的 Fe^{2+}/Mn^{2+} 比值,S1-1方解石脉成脉流体的 Fe^{2+}/Mn^{2+} 比值高于A1、T1和T2成岩流体的 Fe^{2+}/Mn^{2+} 比值。

4.2 微区原位微量元素

稀土元素可以通过交代 Ca^{2+} 进入碳酸盐矿物晶格中,因此碳酸盐矿物的稀土元素能反映成岩流体的来源。本次研究采用LA-ICP-MS(激光剥蚀-电感耦合等离子体-质谱)法来测定方解石的微区微量元素,与化学溶解法相比,此方法可以直接对方解石表面剥蚀并测定每个点的元素含量,省去了繁琐的处理流程。由于元素在不同晶面上分配系数不同,LA-ICP-MS法测定的不同点上的元素含量会存在差异^[29],但稀土元素的标准配分模式与化学溶解法几乎完全相同^[30]。本次研究通过分析不同点的稀土元素标准配分模式、轻重稀土元素比值及稀土元素特征参数,判断方解石的期次。为了消除元素的奇偶效应,采用澳大利亚页岩标准(PAAS)对稀土元素进行标准化。

A1、T1和T2稀土元素配分模式相似,配分曲线较平坦,S1-1稀土元素配分曲线波动较大(图7)。流体中的Eu主要以三价态赋存,在高温热液流体($>250\text{ }^{\circ}\text{C}$)中, Eu^{3+} 会被还原成 Eu^{2+} ,导致Eu的离子半径增大,Eu更易进入碳酸盐格架中^[31]。因此,高温热液流体沉淀的碳酸盐具有Eu正异常的特征,且中稀土元素(MREE)相对于重稀土元素(HREE)富集^[32-33]。低温热液流体($<200\text{ }^{\circ}\text{C}$)沉淀的碳酸盐具有较高的 $\Sigma\text{MREE}/\Sigma\text{HREE}$ 比值,但Eu表现为无异常或弱异常^[32]。A1的 $\Sigma\text{MREE}/\Sigma\text{HREE}$ 比值在1.17~2.44,Eu/Eu*比值在0.82~0.90;T1的 $\Sigma\text{MREE}/\Sigma\text{HREE}$ 比值在0.83~1.54,Eu/Eu*比值在0.71~1.06;T2的 $\Sigma\text{MREE}/\Sigma\text{HREE}$ 比值在1.27~3.59,Eu/Eu*比值在0.85~1.05;S1-1的 $\Sigma\text{MREE}/\Sigma\text{HREE}$ 比值在1.64~5.03,Eu/Eu*比值在0.78~1.03。4块样品均表现出中稀土元素相对重稀土元素富集且Eu具有弱异常或无异常,说明4块样品均在低温流体环境中沉淀形成。S1-1的中稀土元素富集程度明显大于A1、T1和T2。Ce的异常与成岩流体的氧化还原条件有关,在氧化环境中,可溶的 Ce^{3+} 会

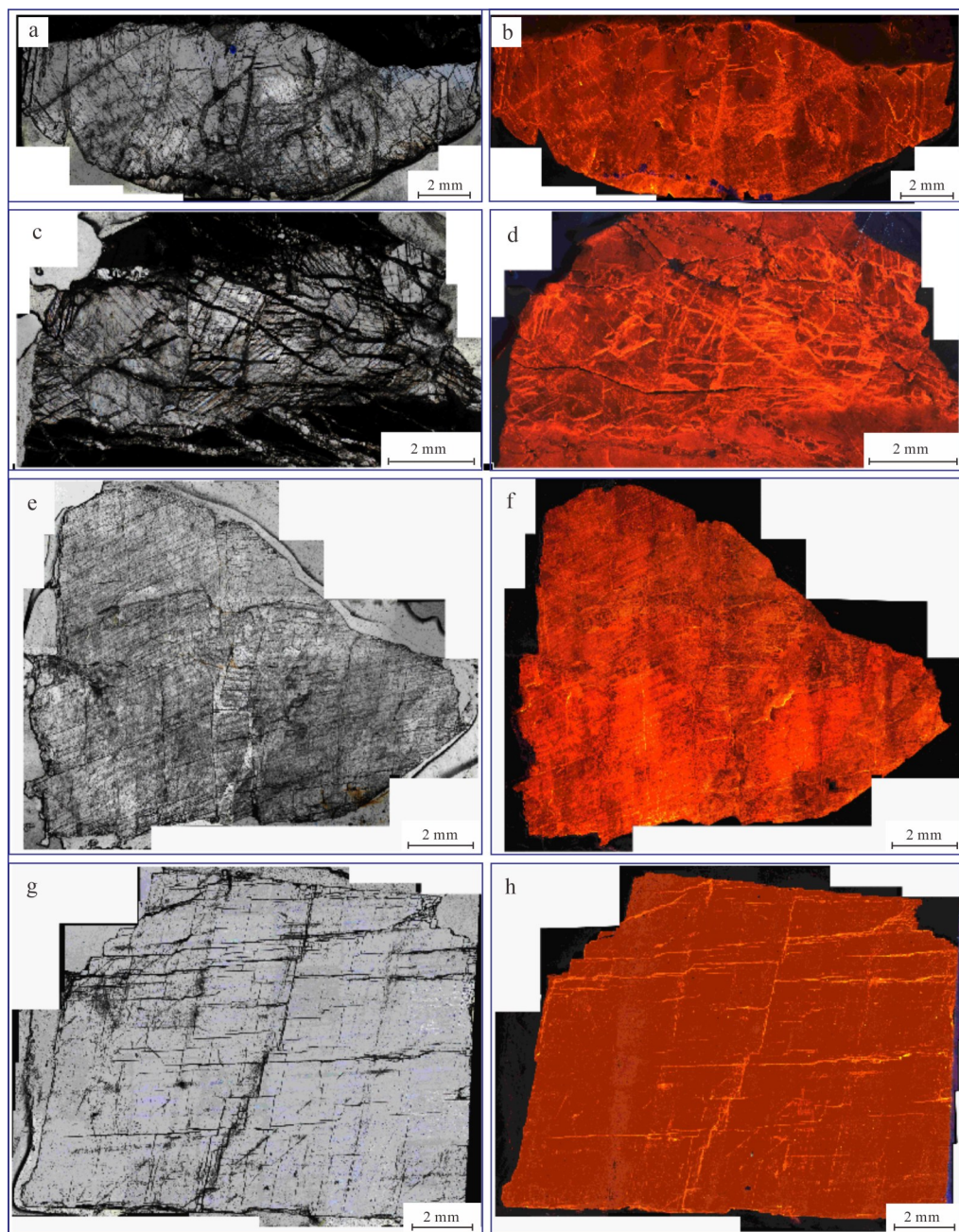


图6 塔河油田奥陶系储层中典型方解石样品透光(a,c,e,g)及阴极发光(b,d,f,h)照片

Fig. 6 Photos showing transmission light (a, c, e, g) and cathodoluminescence (b, d, f, h) of representative calcite samples from the Ordovician reservoirs in the Tahe oilfield, Tarim Basin

a, b. A1样品, AT5井, O_{2y} , 埋深6 524. 7 m; c, d. S1-1样品, S118井, O_{2y} , 埋深5 920. 0 m; e, f. T1样品, TS3井, O_{1-2y} , 埋深6 103. 0 m; g, h. T2样品, TS3井, O_{1-2y} , 埋深6 106. 4 m

被氧化成不可溶的 Ce^{4+} , 导致成岩流体中沉淀的碳酸盐矿物具有Ce负异常。A1的 Ce/Ce^* 比值在0.98 ~ 1.23, T1的 Ce/Ce^* 比值在0.77 ~ 1.02, T2的 Ce/Ce^* 比值在0.84 ~ 0.95, S1-1的 Ce/Ce^* 比值在0.44 ~ 0.68。A1, T1和T2均无明显的Ce异常, S1-1有较强的Ce负异常, 暗示A1, T1和T2的成脉流体处于弱氧化弱还原环境, 而S1-1的成脉流体处于氧化环境。A1的 $Fe^{2+}/$

Mn^{2+} 比值在1.64 ~ 2.11, T1的 Fe^{2+}/Mn^{2+} 比值在0.30 ~ 0.74, T2的 Fe^{2+}/Mn^{2+} 比值在0.56 ~ 0.90, S1-1的 Fe^{2+}/Mn^{2+} 比值在1.23 ~ 6.19。A1, T1和T2的 Fe^{2+}/Mn^{2+} 比值相对较低, S1-1的 Fe^{2+}/Mn^{2+} 比值相对较高。稀土元素配分模式, $\Sigma MREE/\Sigma HREE$ 比值, Ce/Ce^* 比值和 Fe^{2+}/Mn^{2+} 比值均表明A1, T1和T2方解石脉是在同一期成岩流体中形成, 而S1-1方解石脉成岩流体的性质不

同于A1,T1和T2。每块样品中不同点位的稀土元素配分模式相似,说明每块方解石脉体均在—期流体中形成。

5 方解石形成的绝对年龄和油气成藏时间

在方解石微区原位微量元素测试的基础上,挑选出 $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ 比值大且 ^{206}Pb 含量低的点,在其附近密集打点,每块方解石表面的测试点数约为100个。A1的U含量在 $(0.078 \sim 0.220) \times 10^{-6}$,Pb含量在 $(0.011 \sim 0.087) \times 10^{-6}$, $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ 比值在3.456~20.115。T1的U含量在 $(0.032 \sim 2.087) \times 10^{-6}$,Pb含量在 $(0 \sim 0.062) \times 10^{-6}$, $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ 比值在3.767~25.921。T2的U含量在 $(0.110 \sim 0.194) \times 10^{-6}$,Pb含量在 $(0 \sim 0.083) \times 10^{-6}$, $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ 比值在4.789~29.844。S1-1的U含量在 $(0.213 \sim 1.864) \times 10^{-6}$,Pb含量在 $(0.001 \sim 0.136) \times 10^{-6}$, $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ 比值在9.946~19.276。4块方解石的U含量均小于 3.000×10^{-6} ,但Pb的含量更低,且最大 $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ 比值可达29.844。低的Pb含量及高 $^{238}\text{U}/^{206}\text{Pb}$ 比值是塔河油田方解石样品定年成功的

关键。U-Pb同位素测年结果显示,A1样品中方解石脉体形成绝对年龄为 $220.5 \text{ Ma} \pm 7.3 \text{ Ma}$,T1样品中方解石脉体形成绝对年龄为 $249.3 \text{ Ma} \pm 2.6 \text{ Ma}$,T2样品中方解石脉体形成绝对年龄为 $224.1 \text{ Ma} \pm 1.7 \text{ Ma}$,S1-1样品中方解石脉体形成绝对年龄为 $329.7 \text{ Ma} \pm 1.6 \text{ Ma}$ (图8)。4块样品绝对年龄的误差都在4%以内,均在允许的误差范围之内。激光原位U-Pb定年结果显示A1,T1和T2方解石的年龄相近,而S1-1方解石的形成时间早于A1,T1和T2方解石,因此,S1-1为第一期方解石脉,A1,T1和T2为第二期方解石脉。方解石阴极发光和原位微区微量元素特征显示A1,T1和T2方解石脉的成脉流体性质相似,表明A1,T1和T2为—期方解石脉。与A1,T1和T2方解石脉相比,S1-1方解石脉具有高的 $\text{Fe}^{2+}/\text{Mn}^{2+}$ 比值,MREE相对HREE更加富集,Ce负异常,稀土元素配分曲线波动较大,表明S1-1为另一期方解石脉。方解石激光原位U-Pb定年识别的方解石期次与阴极发光和原位微区微量元素所判断期次一致,进一步证实了方解石脉体期次划分的准确性。

油包裹体岩相学观察显示,黄色荧光油包裹体为原生包裹体,说明包裹体中黄色荧光原油是在方

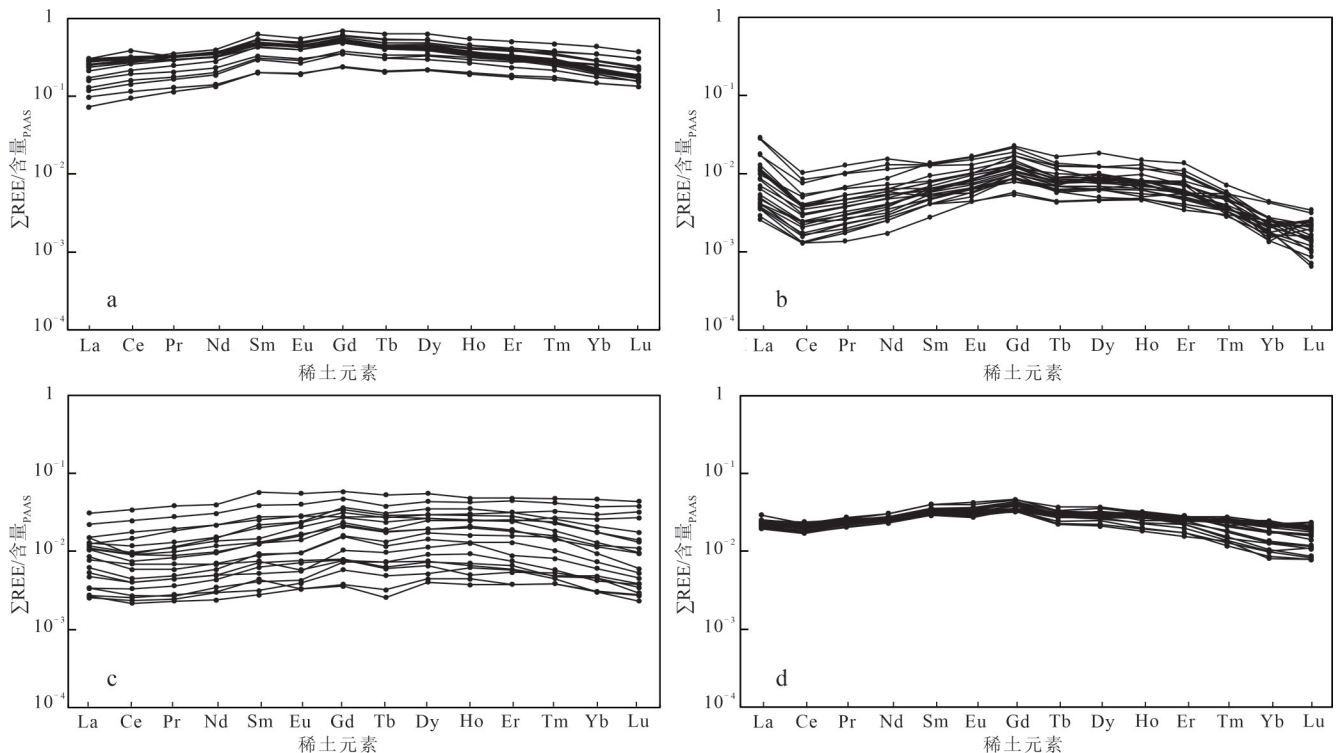


图7 塔河油田奥陶系储层中典型方解石样品稀土元素配分模式

Fig. 7 REE distribution patterns of representative calcite samples from the Ordovician reservoirs in the Tahe oilfield, Tarim Basin
a. A1样品,AT5井, O_{2y} ,埋深6 524.7 m;b. S1-1样品,S118井, O_{2y} ,埋深5 920.0 m;c. T1样品,TS3井, O_{1-2y} ,埋深6 103.0 m;d. T2样品,TS3井, O_{1-2y} ,埋深6 106.4 m

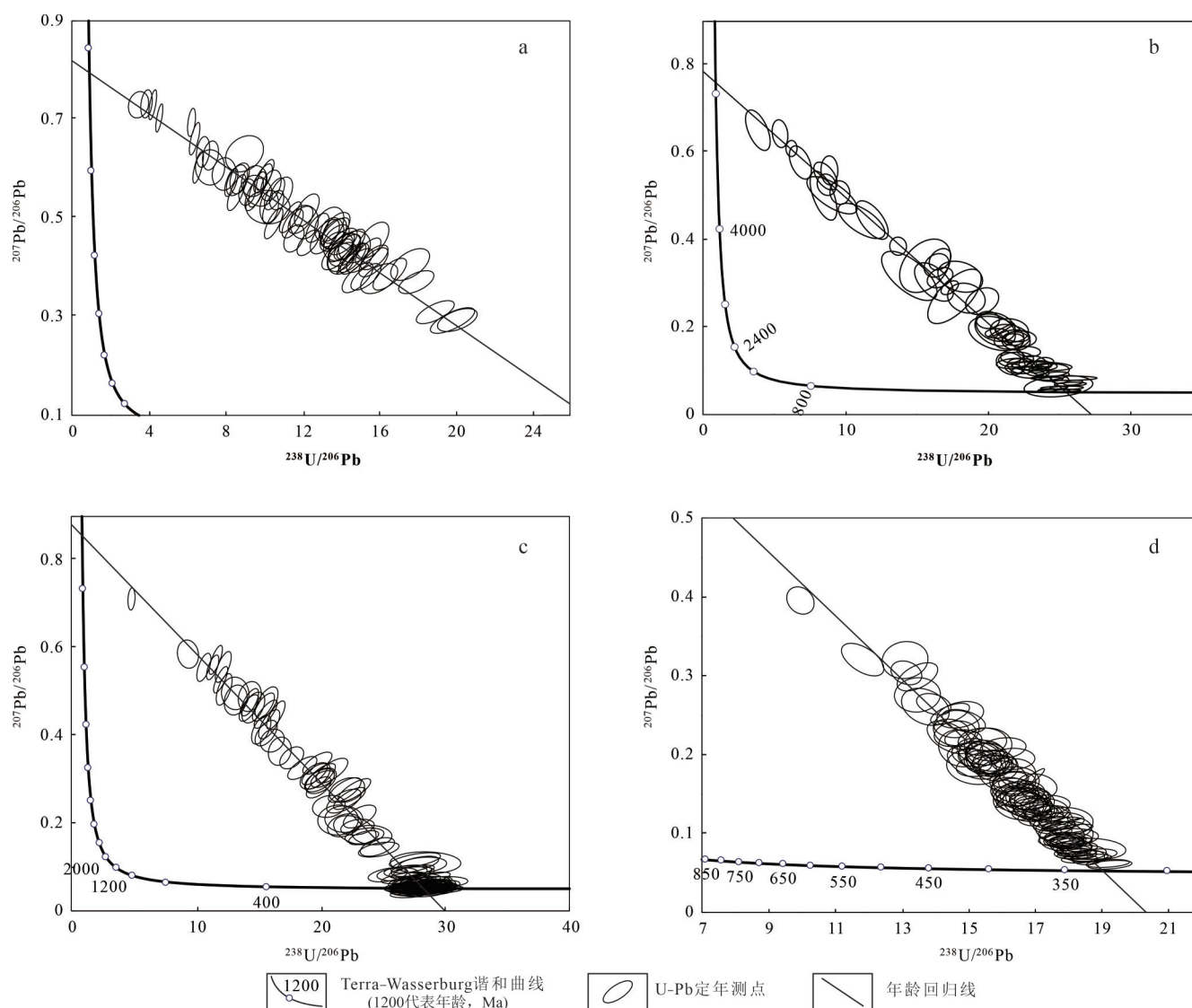


图8 塔河油田方解石样品U-Pb Tera-Wasserburg 谐和图

Fig. 8 Concordia plots by U-Pb Tera-Wasserburg for calcite samples from the Tahe oilfield, Tarim Basin

a. A1样品, AT5井, O_{2y} , 埋深6 524.7 m, 年龄 $220.5 \text{ Ma} \pm 7.3 \text{ Ma}$, 平均标准方差($MSWD$, 无量纲)=2.00; b. T1样品, TS3井, O_{1-2y} , 埋深6 103.0 m, 年龄为 $249.3 \text{ Ma} \pm 2.6 \text{ Ma}$, $MSWD=3.30$; c. T2样品, TS3井, O_{1-2y} , 埋深6 106.4 m, 年龄 $224.1 \text{ Ma} \pm 1.7 \text{ Ma}$, $MSWD=1.40$; d. S1-1样品, S118井, O_{2y} , 埋深5 920 m, 年龄 $329.7 \text{ Ma} \pm 1.6 \text{ Ma}$, $MSWD=1.14$

解石结晶过程中,与方解石脉同时形成并被捕获于方解石缺陷晶格之中形成无排列次序的原生油包裹体,因此黄色荧光原油的充注时间与方解石脉的成脉年龄相同;蓝白色荧光油包裹体为次生包裹体,说明在方解石形成之后,由于后期构造热活动使方解石产生裂缝,蓝白色荧光原油进入这些裂缝并被捕获于包裹体之中形成沿着愈合裂纹分布的次生油包裹体,因此蓝白色荧光原油的充注时间晚于方解石脉的成脉年龄。综合油包裹体观察结果可以确定,塔里木盆地塔河油田奥陶系储层中存在两期黄色荧光原油充注,第一期充注时间为 $329.7 \text{ Ma} \pm 1.6 \text{ Ma}$, 对应海西中期,第二期黄色荧光原油充注时间为

$249.3 \text{ Ma} \pm 2.6 \text{ Ma} \sim 220.5 \text{ Ma} \pm 7.3 \text{ Ma}$, 对应海西晚期一印支期。蓝白色荧光油包裹体在两期方解石脉中均为次生包裹体,说明发蓝白色荧光原油充注的时间相对较晚。

中国许多大型含油气盆地诸如塔里木、四川、鄂尔多斯、松辽、渤海湾和准噶尔等盆地均为多旋回叠合盆地,多套烃源岩多期生烃、多期构造运动叠加改造以及多期油气运聚成藏的特征导致对盆地中油气成藏过程的研究尤为困难,确定多期油气充注的时间更是恢复油气成藏过程的难点与关键。方解石激光原位U-Pb同位素定年结合烃类包裹体可用于确定多旋回叠合盆地中油气成藏绝对时间,识别油气充注

史,重建油气动态成藏过程,对于研究油气来源、油气成藏的动力学机制和主控因素、油气成藏期的流体环境、总结油气成藏规律以及提高油气勘探成功率均有重要意义。

6 结论

1)采集的塔里木盆地塔河油田奥陶系储层方解石脉样品中存在发黄色和蓝白色荧光两种类型油包裹体。黄色荧光油包裹体为原生油包裹体, $\lambda_{\max}$ 主要在512~536 nm, Q 值对应范围为0.26~0.55,包裹体中油成熟度相对较低。蓝白色荧光油包裹体为次生油包裹体, $\lambda_{\max}$ 主要在482~508 nm, Q 值对应范围为0.18~0.37,包裹体中油成熟度相对较高。

2)阴极发光和微区微量元素结果显示,塔河油田奥陶系储层中发育原生黄色荧光油包裹体的方解石脉体可分为两期。第一期方解石脉体 $\text{Fe}^{2+}/\text{Mn}^{2+}$ 比值较低,阴极发光显示橙黄色,稀土元素配分曲线波动较大, $\Sigma\text{MREE}/\Sigma\text{HREE}$ 比值较大,具有Ce负异常。第二期方解石脉体 $\text{Fe}^{2+}/\text{Mn}^{2+}$ 比值较高,阴极发光显示橙红色,稀土元素配分曲线较平坦。

3)采用激光原位U-Pb同位素定年技术获得4块方解石脉体形成绝对时间分别是220.5 Ma $\pm$ 7.3 Ma, 249.3 Ma $\pm$ 2.6 Ma, 224.1 Ma $\pm$ 1.7 Ma和329.7 Ma $\pm$ 1.6 Ma。结合方解石脉体烃类包裹体特征可以确定第一期黄色荧光原油充注的绝对时间为329.7 Ma $\pm$ 1.6 Ma,第二期黄色荧光原油充注的绝对时间为249.3 Ma $\pm$ 2.6 Ma~220.5 Ma $\pm$ 7.3 Ma,分别对应海西中期和海西晚期—印支期。

参 考 文 献

- [1] 何登发,贾承造,周新源,等.多旋回叠合盆地构造控油原理[J].石油学报,2005,26(3):1-9.
He Dengfa, Jia Chengzao, Zhou Xinyuan, et al. Control principles of structures and tectonics over hydrocarbon accumulation and distribution in multi-stage superimposed basins [J]. Acta Petrolei Sinica, 2005, 26(3): 1-9.
- [2] 张光亚,赵文智,王红军,等.塔里木盆地多旋回构造演化与复合含油气系统[J].石油与天然气地质,2007,28(5):653-663.
Zhang Guangya, Zhao Wenzhi, Wang Hongjun, et al. Multicycle tectonic evolution and composite petroleum systems in the Tarim Basin [J]. Oil & Gas Geology, 2007, 28(5): 653-663.
- [3] Zhijun Jin, Qingchen Wang. Recent developments in study of the typical superimposed basins and petroleum accumulation in China: Exemplified by the Tarim Basin [J]. Science in China (Series D): Earth Sciences, 2004, 47(Supp. II): 1-15.
- [4] 赵靖舟.油气成藏年代学研究进展及发展趋势[J].地球科学进展,2002,17(3):378-383.
Zhao Jingzhou. Geochronology of petroleum accumulation: new advances and the future trend [J]. Advance in Earth Sciences, 2002, 17(3): 378-383.
- [5] 蔡李梅,陈红汉,李兆奇,等.油气成藏过程中的同位素测年方法评述[J].沉积与特提斯地质,2008,28(4):18-23.
Cai Limei, Chen Honghan, Li Zhaoqi, et al. Isotopic dating techniques and their applications to the geochronology of hydrocarbon migration and accumulation: An overview [J]. Sedimentary Geology and Tethyan Geology, 2008, 28(4): 18-23.
- [6] 赵靖舟,李秀荣.成藏年代学研究现状[J].新疆石油地质,2002,23(3):257-261.
Zhao Jingzhou, Li Xiurong. Methods of geochronology of petroleum accumulation [J]. Xinjiang Petroleum Geology, 2002, 23(3): 257-261.
- [7] 陈红汉.油气成藏年代学研究进展[J].石油与天然气地质,2007,28(2):143-150.
Chen Honghan. Advances in geochronology of hydrocarbon accumulation [J]. Oil & Gas Geology, 2007, 28(2): 143-150.
- [8] Lee M C, Aronson J L, Savin S M. K/Ar dating of time of gas emplacement in Rotliegendes sandstone, Netherlands [J]. AAPG Bulletin, 1985, 69(9): 1381-1385.
- [9] Li Q, Parrish R R, Horstwood M S A, et al. U-Pb dating of cements in Mesozoic ammonites [J]. Chemical Geology, 2014, 376(6): 76-83.
- [10] Coogan L A, Parrish R R, Roberts N M W. Early hydrothermal carbon uptake by the upper oceanic crust: Insight from in situ U-Pb dating [J]. Geology, 2016, 44(2): 147-150.
- [11] Nuriel P, Weinberger R, Kylander-Clark A R C, et al. The onset of the Dead Sea transform based on calcite age-strain analyses [J]. Geology, 2017, 45(7): 587-590.
- [12] Beaudoin N, Lacombe O, Roberts N M W, et al. U-Pb dating of calcite veins reveals complex stress evolution and thrust sequence in the Bighorn Basin, Wyoming, USA [J]. Geology, 2018, 46(11): 1015-1018.
- [13] Lawson M, Shenton B J, Stolper D A, et al. Deciphering the diagenetic history of the El Abra Formation of eastern Mexico using re-ordered clumped isotope temperatures and U-Pb dating [J]. Geological Society of America Bulletin, 2018, 130(3-4): 617-629.
- [14] 贺婷婷,段太忠,赵磊,等.塔里木盆地塔河油田T区三叠纪沉积模式[J].石油与天然气地质,2019,40(4):822-834.
He Tingting, Duan Taizhong, Zhao Lei, et al. Triassic sedimentary model in Block T of Tahe oilfield, Tarim Basin [J]. Oil & Gas Geology, 2019, 40(4): 822-834.
- [15] 刘永立,尤东华,高利君,等.塔河油田塔深6井蓬莱坝组硅质岩成因及其地质意义[J].石油与天然气地质,2020,41(1):83-91.
Liu Yongli, You Donghua, Gao Lijun, et al. Genesis and geological significance of siliceous rock in Penglaiba Formation in Well Tashen 6, Tahe oilfield [J]. Oil & Gas Geology, 2020, 41(1):

- 83-91.
- [16] 何登发,贾承造,李德生,等. 塔里木多旋回叠合盆地的形成与演化[J]. 石油与天然气地质, 2005, 26(1): 64-77.
He Dengfa, Jia Chengzao, Li Desheng, et al. Formation and evolution of polycyclic superimposed Tarim Basin[J]. Oil & Gas Geology, 2005, 26(1): 64-77.
- [17] 施伟军,席斌斌,秦建中,等. 单体油气包裹体激光剥蚀在线成分分析技术——以塔河油田奥陶系储层为例[J]. 石油学报, 2016, 37(2): 196-206.
Shi Weijun, Xi Binbin, Qin Jianzhong, et al. Online laser ablation compositional analysis technique for single hydrocarbon inclusion: A case study of the Ordovician reservoirs in Tahe oilfield, Tarim Basin, NW China[J]. Acta Petroli Sinica, 2016, 37(2): 196-206.
- [18] 张抗. 塔河油田的发现及其地质意义[J]. 石油与天然气地质, 1999, 20(2): 24-28.
Zhang Kang. The discovery of Tahe oilfield and its geologic implication[J]. Oil & Gas Geology, 1999, 20(2): 24-28.
- [19] 陈红汉,吴悠,丰勇,等. 塔河油田奥陶系油气成藏期次及年代学[J]. 石油与天然气地质, 2014, 35(6): 806-819.
Chen Honghan, Wu You, Feng Yong, et al. Timing and chronology of hydrocarbon charging in the Ordovician of Tahe oilfield, Tarim Basin, NW China[J]. Oil & Gas Geology, 2014, 35(6): 806-819.
- [20] 顾忆. 塔里木盆地北部塔河油田油气藏成藏机制[J]. 石油实验地质, 2000, 22(4): 307-312.
Gu Yi. Forming mechanism of hydrocarbon pools in Tahe oilfield of the northern Tarim Basin [J]. Petroleum Geology & Experiment, 2000, 22(4): 307-312.
- [21] 高波,刘文汇,范明,等. 塔河油田成藏期次的地球化学示踪研究[J]. 石油实验地质, 2006, 28(3): 276-280.
Gao Bo, Liu Wenhui, Fan Ming, et al. Study on geochemical tracking for the periods of reservoir forming of oil and gas in the Tahe oilfield [J]. Petroleum Geology & Experiment, 2006, 28(3): 276-280.
- [22] 潘安阳,秦建中,姚素平,等. 单体烃类包裹体在油气地球化学中的应用——以塔河油田为例[J]. 石油实验地质, 2017, 39(5): 675-681.
Pan Anyang, Qin Jianzhong, Yao Suping, et al. Application of single hydrocarbon inclusions in petroleum geochemistry: A case study of the Tahe oilfield [J]. Petroleum Geology & Experiment, 2017, 39(5): 675-681.
- [23] Wang T G, He F Q, Wang C J, et al. Oil filling history of the Ordovician oil reservoir in the major part of the Tahe Oilfield, Tarim Basin, NW China [J]. Organic Geochemistry, 2008, 39(11): 1637-1646.
- [24] 沈安江,胡安平,程婷,等. 激光原位U-Pb定年技术及其在碳酸盐岩成岩-孔隙演化中的应用[J]. 石油勘探与开发, 2019, 46(6): 1-13.
Shen Anjiang, Hu Anping, Cheng Ting, et al. Laser ablation multi-collector inductively coupled plasma mass spectrometry in situ U-Pb dating and its application to diagenesis-porosity evolution of carbonate reservoirs [J]. Petroleum Exploration and Development, 2019, 46(6): 1-13.
- [25] 刘恩涛,赵建新,潘松圻,等. 盆地流体年代学研究新技术:方解石激光原位U-Pb定年法[J]. 地球科学, 2019, 44(3): 698-712.
Liu Entao, Zhao Jianxin, Pan Songqi, et al. A new technology of basin fluid geochronology: in-situ U-Pb dating of calcite [J]. Earth Science, 2019, 44(3): 698-712.
- [26] 郭小文,陈家旭,袁圣强,等. 含油气盆地激光原位方解石U-Pb年龄对油气成藏年带的约束——以渤海湾盆地东营凹陷为例[J]. 石油学报, 2020, 41(3): 284-291.
Guo Xiaowen, Chen Jiaxu, Yuan Shengqiang, et al. Constraint of in-situ calcite U-Pb dating by laser ablation on geochronology of hydrocarbon accumulation in petroliferous basins: a case study of Dongying sag in the Bohai Bay Basin [J]. Acta Petroli Sinica, 2020, 41(3): 284-291.
- [27] 胡安平,沈安江,梁峰,等. 激光铀铅同位素定年技术在塔里木盆地肖尔布拉克组储层孔隙演化研究中的应用[J]. 石油与天然气地质, 2020, 41(1): 37-49.
Hu Anping, Shen Anjiang, Liang Feng, et al. Application of laser in-situ U-Pb dating to reconstruct the reservoir porosity evolution in the Cambrian Xiaerbulake Formation, Tarim Basin [J]. Oil & Gas Geology, 2020, 41(1): 37-49.
- [28] Ludwig K. User's manual for isoplot 3.00: A geochronology toolkit for Microsoft Excel [M]. Berkeley: Berkeley Geochronological Center Special Publication, 2003, 1-71.
- [29] Ubide T, Mollo S, Zhao J X, et al. Sector-zoned clinopyroxene as a recorder of magma history, eruption triggers, and ascent rates [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2019, 251: 265-283.
- [30] Chen L, Liu Y S, Hu Z C, et al. Accurate determinations of fifty-four major and trace elements in carbonate by LA-ICP-MS using normalization strategy of bulk components as 100% [J]. Chemical Geology, 2011, 284(3-4): 283-295.
- [31] 赵彦彦,李三忠,李达,等. 碳酸盐(岩)的稀土元素特征及其古环境指示意义[J]. 大地构造与成矿学, 2019, 43(1): 141-167.
Zhao Yanyan, Li Sanzhong, Li Da, et al. Rare earth element geochemistry of carbonate and its paleoenvironmental implications [J]. Geotectonica Et Metallogenia, 2019, 43(1): 141-167.
- [32] Alexander B W, Bau M, Andersson P, et al. Continentally-derived solutes in shallow Archean seawater: Rare earth element and Nd isotope evidence in iron formation from the 2.9Ga Pongola Supergroup, South Africa [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2008, 72(2): 378-394.
- [33] Douville E, Bienvenu P, Charlou J L, et al. Yttrium and rare earth elements in fluids from various deep-sea hydrothermal systems [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1999, 63(5): 627-643.