

长石砂岩中长石溶解作用发育机理 及其影响因素分析^①

史基安 晋慧娟 薛莲花

(中国科学院兰州地质研究所)

提 要 松辽盆地和辽河盆地的砂岩储层中长石含量很高,次生孔隙主要是由长石颗粒溶解后形成的。本文运用扫描电镜、X衍射、氧碳稳定同位素等分析方法,对研究区砂岩储层中长石溶解作用发育状况以及溶解物质的迁移与沉淀的影响因素进行了分析,阐明了泥质岩在成岩过程中由于粘土矿物和有机质演化所释放出来的富含有机酸溶液对砂岩中长石溶解作用的发育产生着重要影响。

关键词 砂岩 长石溶解作用 粘土矿物 有机酸 氧碳稳定同位素

第一作者简介 史基安 男 35岁 副研究员 沉积学

由不稳定的骨架颗粒溶解而形成的孔隙是次生孔隙中最重要的成因类型,而长石又是分布最广泛的易溶骨架颗粒。我国东部松辽盆地和辽河盆地等大型含油气内陆盆地,发育着巨厚的碎屑岩建造,其中绝大多数储集砂岩中含有20%以上的长石等不稳定碎屑颗粒组分,这为次生孔隙的广泛发育创造了必要的条件。但是由于长石等骨架颗粒的溶解通常不能增加砂岩储层的渗透率(Siebert, 1984),并且一个单位体积的长石矿物溶解后,可产生0.66体积的高岭石和0.33体积的石英(Sullivan, 1991)。因此,长石骨架颗粒发生溶解后,溶解物质必须运送到孔隙或孔隙喉道之外,才能有效地提高砂岩的孔隙度。如果溶解物质大部分以自生粘土矿物形式沉淀在砂岩的粒间孔隙中,那么它将对砂岩的储集性产生严重的影响。

本文试图通过对松辽盆地西部和辽河盆地砂岩储层中长石溶解作用发育状况的实际研究,剖析长石溶解作用的发育机理和控制因素,探讨长石溶解作用和溶解物质的迁移与沉淀对砂岩储层产生的影响。

1 研究区砂岩储层的基本特征

1.1 沉积学特征

松辽盆地西部白垩系砂岩,属盆地西侧白垩系英台三角洲相沉积,该三角洲从西向东伸入湖中,由于地形坡度较大,湖滨接近物源又滨临拗陷深水区,发育着河流相、三角洲相交替的岩性组合。英台白垩系扇三角洲相具有规模小、相带窄、变化快、单层砂层厚度较大以及缺少前缘席状砂等特点。三角洲相砂岩的成分成熟度较低,碎屑成分以长石为主(45.5%),其

^① 国家自然科学基金和气体地球化学国家重点实验室资助项目

次为岩屑(21.2%),石英平均含量仅为33.3%。根据砂岩全岩样的X衍射分析资料表明,长石中钠长石($An \leq 10\%$)含量最高,通常占25~60%,钾长石和斜长石含量变化很大,钾长石5~35%,斜长石2~40%。

辽河盆地早第三纪以来的沉积作用直接受其裂陷期构造运动的控制,三个裂谷型湖盆呈狭长形北东方向展布,湖盆窄、岸线长、与两侧隆起高差大,物源区剥蚀速度快、大坡降、多物源、近距离搬运是当时湖盆的基本沉积特征,这种特殊环境造成了形成扇三角洲沉积的有利条件。因此,各沉积体系在其发育过程中缺乏广阔的空间,没有足够的分异时间,导致在成因上有联系的各相带在横向上压缩得很紧,相带分异不明显,甚至连为一体。在其沉积特点上表现为砂体规模小、相带窄、平面演变快,岩石学特点则表现为结构和成分成熟度低,具有与辫状河相似的层理类型和组合,粗粒碎屑含量高。扇三角洲相砂岩是辽河盆地最主要的砂岩储集类型。这类砂岩中石英平均含量为45%,长石含量约占35%左右,岩屑含量约为20%,不同地区长石和岩屑的种类和含量都有较大变化。

1.2 储集砂岩的主要成岩变化

松辽盆地西部和辽河盆地的储集砂岩均经历了复杂的成岩变化,这些成岩变化的主要类型和发生的时期如图1所示,其中与砂岩中长石颗粒溶解作用有关的成岩变化主要有:①粘土矿物的形成与演化;②斜长石与钾长石的钠长石化;③碳酸盐矿物的胶结与交代作用;④长石颗粒的溶解作用。

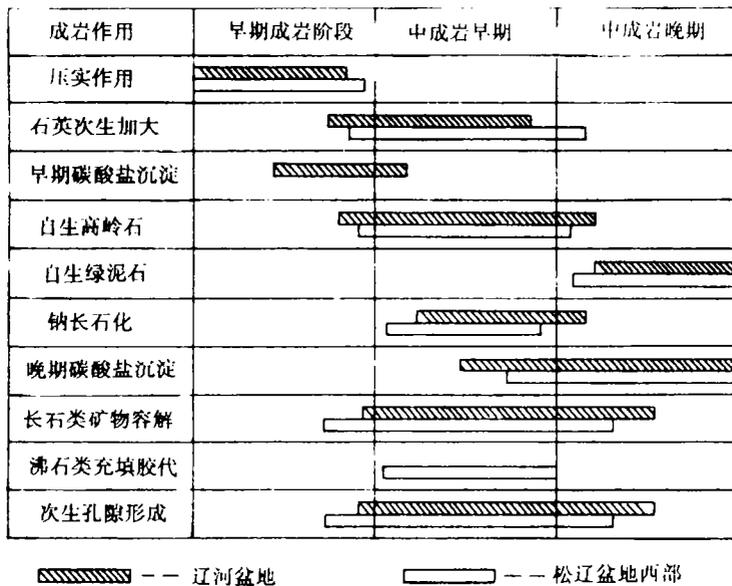


图1 研究区砂岩成岩作用特征图

Fig. 1 Map showing diagenetic characteristics of sandstone in study area

1.2.1 粘土矿物的形成与演化

松辽盆地西部白垩系砂岩中粘土矿物组成及产状随着其埋藏深度发生有规律的变化,

在埋深小于 1200m 的砂岩中,粘土矿物组成以蒙脱石、高岭石和伊利石为特征,并且粘土矿物的自形程度相对较差,集合体形态并不规则。蒙脱石呈棉絮状和薄膜状,高岭石呈分散的鳞片状,伊利石呈片状。1200m 至 2000m 砂岩中,以高岭石、伊/蒙混层和伊利石粘土矿物为特征,高岭石矿物自形程度明显提高。多呈假六方书页状集合体(图版 1),混层粘土矿物含量较少,以薄膜式产状为主,伊利石矿物不仅含量明显增多,而且其形态特征也有明显的变化,多呈片状定向排列,甚至可见到丝状和搭桥式产状。当埋藏深度超过 2000m 时,砂岩中除了仍可见到少量自形书页状高岭石外,则大量出现丝缕状伊利石和针叶片状绿泥石(图版 2),当埋藏深度超过 2300m 则砂岩粒间孔中很难见到高岭石。

辽河盆地第三系沙河街组砂岩中粘土矿物在垂向上的分带就不太明显,在埋深 2000m 以下仍可见到大量蒙脱石和伊/蒙混层粘土矿物。埋深 3500m 以下的砂岩中仍可见到大量自形高岭石,自生的叶片状绿泥石多在埋深大于 2500m 的砂岩中出现,大多数砂岩粒间孔中都有相当数量的伊利石分布,但在 3000m 以下伊利石矿物自形程度明显变好(图版 3)。

1.2.2 斜长石和钾长石的钠长石化

松辽盆地和辽河盆地埋藏较深的砂岩中,常可见到斜长石和钾长石的钠长石化,并具有随埋藏深度的加深而增强的趋势。由于钠长石化作用提高了孔隙水中钙离子活度,因此它可促使粒间孔隙自生碳酸盐类矿物和沸石类矿物的沉淀。

1.2.3 碳酸盐矿物的胶结和交代作用

在松辽盆地西部白垩系砂岩中,方解石矿物的交代和充填现象比较普遍,但其含量并不高,很少超过 10%,这些方解石主要是无铁方解石,阴极发光为橙黄色,方解石沉淀后又有少量铁方解石和菱铁矿在成岩晚期充填孔隙或交代早期无铁方解石。

辽河盆地第三系沙河街组砂岩中碳酸盐胶结物含量变化很大,从 0~20% 以上,其分布的深度范围也很广(从 1300~3700m),可分为早晚两期,并以晚期为主。阴极发光和染色资料表明,碳酸盐胶结物类型很丰富,有方解石、铁方解石、白云石和铁白云石,它们在砂岩中大都呈嵌晶状和晶粒状充填孔隙,其中铁方解石和铁白云石的形成时间晚于无铁方解石和白云石,铁白云石多呈自形晶粒状出现于埋深大于 2500m 的砂岩中(图版 4)。

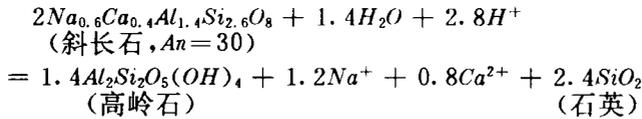
1.2.4 长石颗粒的溶解作用

从扫描电镜下观察松辽盆地西部白垩系砂岩和辽河盆地第三系沙河街组砂岩,都可见到长石颗粒广泛地发育着不同程度的溶解作用,主要表现为首先沿长石解理发生初步的溶蚀,形成呈条带状分布的溶蚀孔隙(图版 5),进而演变成蜂窝状溶孔,但有时也可见到长石整个颗粒被溶蚀而形成的特大孔隙(图版 6),长石被溶解后形成的次生孔隙是松辽盆地和辽河盆地砂岩储层的主要次生孔隙类型和储集空间。

2 长石溶解作用的热力学状态

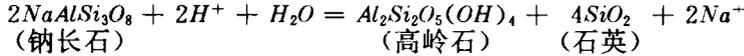
长石溶解作用发育状况,在很大程度上取决于长石颗粒的溶解速度,它主要受长石成份(类型)、粒度、沉积前蚀变状况、孔隙流体性质、运动状况和有机酸类型、含量,以及温度效应和砂岩原始孔渗条件等多种因素控制。对长石溶解过程的热力学状态分析,有助于阐明长石溶解作用发育状况与长石类型及温度的关系。

斜长石、钠长石和钾长石在溶解过程中,最常见的反应是形成自生高岭石,其反应方程式如下:

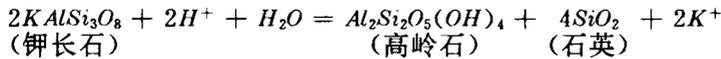


经计算得出标准状态下的反应自由能(ΔG°)、生成热(ΔH°)和熵(ΔS°):

$$\Delta G^\circ = -162.81 \text{ kJ/mol}, \Delta H^\circ = -192.72 \text{ kJ/mol}, \Delta S^\circ = -100.5 \text{ J/mol} \cdot \text{K}.$$



$$\Delta G^\circ = -78.74 \text{ kJ/mol}, \Delta H^\circ = -87.38 \text{ kJ/mol}, \Delta S^\circ = -30.04 \text{ J/mol} \cdot \text{K}.$$



$$\Delta G^\circ = -67.70 \text{ kJ/mol}, \Delta H^\circ = -45.97 \text{ kJ/mol}, \Delta S^\circ = -72.91 \text{ J/mol} \cdot \text{K}.$$

自由能判据是(恒温、恒压、不作其它功):

$\Delta G < 0$, 不可逆过程; $\Delta G > 0$, 不可能发生过程; $\Delta G = 0$, 平衡态标志或可逆过程。

以上热力学计算可以看出,在标准状态下斜长石、钠长石和钾长石都自发地向高岭石转化,并且斜长石反应的 ΔG° 远小于钠长石和钾长石,这说明在地表条件下,斜长石比钠长石和钾长石更易蚀变和溶解。随着温度的升高(假设压力不变),反应自由能将发生变化,利用公式 $\Delta G^\circ_T = \Delta H^\circ - T\Delta S^\circ$ 可计算出温度从 25℃ 升高到 175℃ 时,斜长石的 ΔG 从 -162.81 kJ/mol 升高到 -147.70 kJ/mol,钠长石的 ΔG 从 -78.74 kJ/mol 升高到 -73.93 kJ/mol,相反钾长石的 ΔG 则从 -67.70 kJ/mol 降到 -78.64 kJ/mol,可见温度升高对钠长石溶解影响不大,使斜长石的溶解有明显减弱的趋势,而使钾长石的溶解能力有较大的提高。

3 影响长石溶解作用的主要因素

3.1 长石类型与溶解作用关系

通过上述对长石溶解作用热力学状态的计算分析,已可看出不同类型长石的溶解作用状况有较大差异,虽然这是基于标准状态的理论计算,没有考虑长石颗粒在成岩过程中所处的压力、pH 值、有机酸以及孔隙流体运动状况等因素,但与松辽盆地和辽河盆地砂岩的实际研究结果基本吻合。在松辽盆地西部白垩系砂岩中,斜长石的溶解作用通常只在较浅处(< 1500m)广泛发育,而在浅处地层中很少见到钾长石明显的溶解作用,钾长石的增生则屡见不鲜,当埋深大于 1500m 时,钾长石的溶解现象迅速增多,全岩样品的 X 衍射分析资料表明,埋深超过 1800m 时,钾长石的相对含量明显减少,在埋深超过 2200m 以下的砂岩中,钾长石基本消失。钠长石的相对含量随着埋藏深度的增加有明显的增高趋势,并且在砂岩中常可见到斜长石和钾长石的钠长石化。

辽河盆地第三系沙河街组砂岩,由于埋藏时间短、堆积速度快,砂岩中不同类型长石的溶解作用没有明显的分带性,但钾长石的增生仅常见于埋藏较浅的砂岩中,而随着砂岩埋藏深度的增加,钾长石的溶解作用有明显的增强趋势。

3.2 有机质演化对长石溶解作用的影响

近年来越来越多的研究证据表明,在成岩过程中砂岩的孔隙扩大是生油泥质岩在成岩过程中放出富含有机酸和二氧化碳溶液,与砂岩发生有机与无机反应,使铝硅酸盐矿物和碳酸盐矿物发生溶解的结果。当泥质岩在成岩温度 80℃ 至液态烃大量生成前这一温度范围内,有机质演化产生了大量有机酸(Franks and Forester, 1984),在 80~200℃ 温度范围内油田水的羧酸含量可达 8000ppm 以上。实验证明醋酸盐溶液在同样温度下可使铝溶解度增加一个数量级,草酸则可使铝溶解度增加三个数量级(Surdam, 1984),并且有机酸基本控制了孔隙流体的碱度,使其保持较低的 pH 值(Carothers and Kharaka, 1978)。这样使铝硅酸盐以复杂的有机络合物形式发生迁移,从而大大提高了长石的溶解能力:

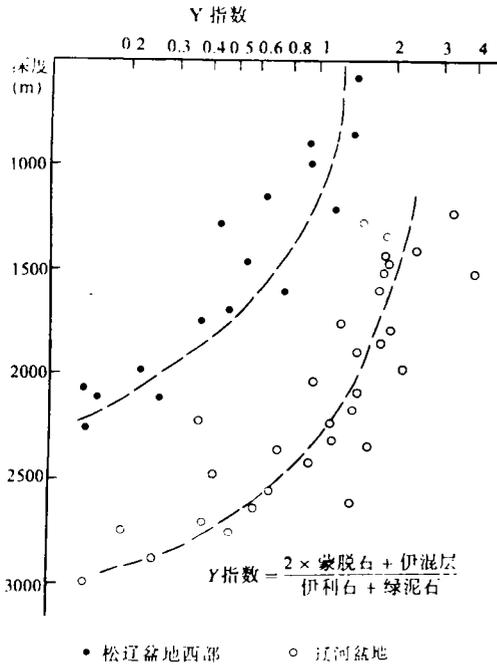


图 2 泥岩中粘土矿物演化指数与埋藏深度关系图

Fig. 2 Showing relations between burial depth and evolution indices of clay minerals in mudstone

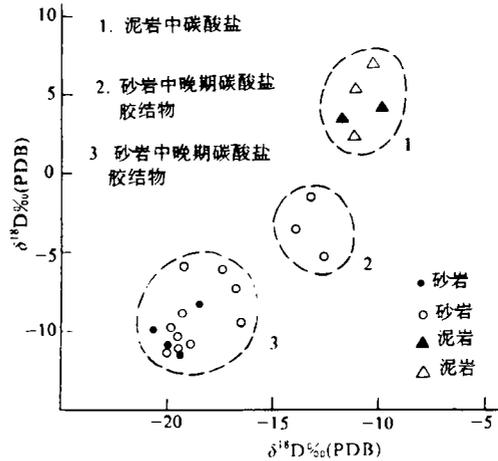


图 3 砂岩和泥岩中碳酸盐矿物氧碳稳定同位素特征

Fig. 3 Characteristics of stable oxygen and carbon isotopes of carbonate minerals in sandstone and mudstone

从松辽盆地和辽河盆地储集砂岩中钾长石发生溶解作用的条件来看,钾长石发生广泛溶解作用的深度与泥岩中粘土矿物演化过程存在着比较密切的关系,泥岩中粘土矿物演化指数(简称 Y 指数)可用蒙脱石和伊/蒙混层粘土矿物与伊利石及绿泥石的比值来衡量,即:

$$Y \text{ 指数} = \frac{2 \times \text{蒙脱石} + \text{伊/蒙混层}}{\text{伊利石} + \text{绿泥石}}$$

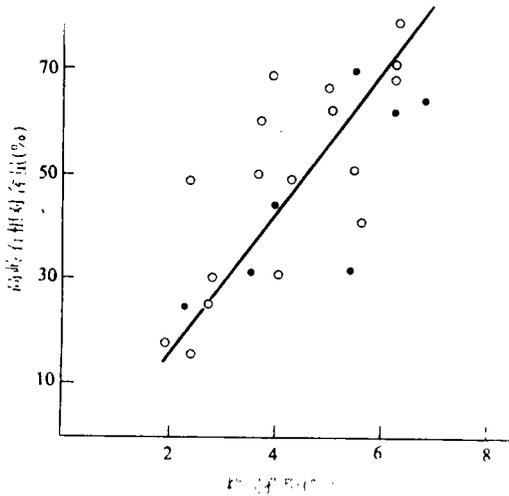
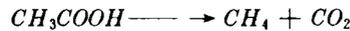


图4 砂岩的粒间孔隙与高岭石
相对含量关系图

Fig. 4 Relationship between intergranular porosity of
sandstone and relative contents of kaolinite

同位素的 HCO_3^- 与岩石中钙离子相结合形成的。砂岩中早期碳酸盐矿物的氧碳稳定同位素与泥岩中碳酸盐矿物同位素特征差异不大。但是砂岩中晚期碳酸盐胶结物的氧碳稳定同位素则很轻,它的形成与有机酸的脱羧作用有关,当成岩温度升至 100°C 后,有机酸开始脱羧形成富轻同位素的 CO_2 ,其化学反应式如下:



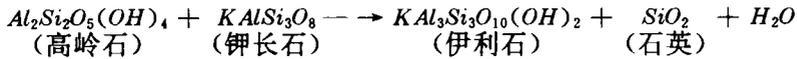
虽然脱羧反应生成的 CO_2 使 P_{CO_2} (CO_2 分压) 升高, P_{CO_2} 缓冲有机酸,但在 $100\sim 200^\circ\text{C}$ 之间,有机酸仍然控制着流体的碱度 (Surdam and Crossey, 1985),使碳酸盐矿物变得稳定 (Surdam, et al 1989),从而导致碳酸盐矿物的沉淀,即砂岩中早期碳酸盐胶结物与长石颗粒溶解的 Ca^{2+} 与 CO_3^{2-} 结合而形成晚期碳酸盐胶结物。因此,其氧碳稳定同位素较轻。

3.3 溶解物质的迁移与沉淀

长石颗粒发生溶解后,大都首先以自生高岭石形式沉淀在粒间孔隙中,但也可以直接或间接地形成其它自生粘土矿物,如高岭石在 $120\sim 150^\circ\text{C}$ 温度下变得不稳定,转变成伊利石,或与长石反应生成伊利石和石英:

从图2可以看出,泥岩中粘土矿物演化指数与其埋藏深度之间存在着明显的负相关关系,砂岩中的钾长石在松辽盆地西部埋深超过 $1300\sim 1500\text{m}$ 、在辽河盆地埋深超过 $1800\sim 2000\text{m}$ 时才开始发生广泛的溶解作用,这个深度范围正是泥岩中蒙脱石和伊/蒙混层粘土矿物向伊利石矿物发生迅速转变的深度(图2),同时也是泥岩中有机质由未成熟向成熟发生明显变化的地带。这种关系并不是偶然的,因为一方面生油岩达到一定的成熟度 ($>80^\circ\text{C}$),才能释放大量有机酸,另一方面有机酸不能象在多孔的砂岩中那样在渗透性极差泥岩中运移,因此它从泥质岩中释放出来必然受到蒙脱石向伊利石反应等粘土矿物的水释放反应的影响。

砂岩中碳酸盐胶结物和钙质泥岩中碳酸盐矿物的氧碳稳定同位素分析数据也可看出(图3),泥质岩中碳酸盐矿物的氧碳稳定同位素相对较重,它是成岩早期发酵细菌在还原环境中分解有机质作用,使残余富含重同



松辽盆地西部和辽河盆地的砂岩粒间孔中,除见有大量自生高岭石外还见有自生伊利石、绿泥石、石英和碳酸盐矿物等,这些矿物常共生于长石粒间孔隙中。在孔渗条件较好的砂岩中,长石颗粒通常发生较强的溶解作用,砂岩粒间孔隙中自生高岭石矿物的相对含量也显著增多(图 4),但砂岩中粘土矿物的绝对含量并不高。在孔渗条件相对较差的砂岩中,长石溶解作用发育程度相对较低,砂岩粒间孔中自生高岭石相对含量比较低,但砂岩中整个粘土矿物的绝对含量往往较高。长石颗粒的溶解作用与自生高岭石矿物的密切相关性说明,高岭石是由长石颗粒溶解而形成的,但对于砂岩储层中整个长石颗粒的溶解量来说,砂岩粒间孔中自生高岭石的数量显然是微不足道的。因此,在砂岩中肯定存在着铝质溶解物输出网,由于高孔渗砂岩与低孔渗砂岩相比,其传送水溶液的数量显著增多,因而迁移流体运动速度快,反应时间短,溶液也不易达到过饱和,因此溶解物质较易被迁移出砂岩储层外,使砂岩中有较多机会形成次生孔隙,粒间孔中沉淀的自生粘土矿物也比较单一,主要为自生高岭石。

结 论

长石溶解作用发育程度受有机与无机反应时间;孔隙水性质和流动状况;砂岩原始孔隙度;温度和压力等多种因素的综合控制,这些控制因素对不同长石类型所起的作用也不尽相同,其中流体运动状况和流体中有机酸丰度、类型是最主要的因素,它与生油岩(泥质岩)在成岩过程中粘土矿物和有机质的演化关系极其密切。

参 考 文 献

- [1] 周书欣,卓胜广,1991,松辽盆地北部中-深层砂岩的次生孔隙研究,地质科学,(1):48~59。
- [2] 郑波茂,庞明编著,1989,碎屑储集岩的成岩作用研究,中国地质大学出版社。
- [3] Stoessell, R. K., and E. D. Pittman, 1990, Secondary porosity revisited; the chemistry of feldspar dissolution by carboxylic acids and anions; AAPG Bulletin, 75, 1795~1805.
- [4] Sullivan, K. B., and Earle F. McBride, 1991, Diagenesis of sandstones at shale contacts and diagenetic heterogeneity, Frio formation, Texas; AAPG Bulletin, 75, 121~138.
- [5] Surdam, R. C., L. J. Crssey, E. S. Hagen, and H. P. Heasler, 1989, organic-inorganic interactions and sandstone diagenesis; AAPG Bulletin, 73, 3~16.

Annalysis on Mechanism of Feldspar Dissolution and Its Influencing Factors in Feldspar-rich Sandstone Reservoir

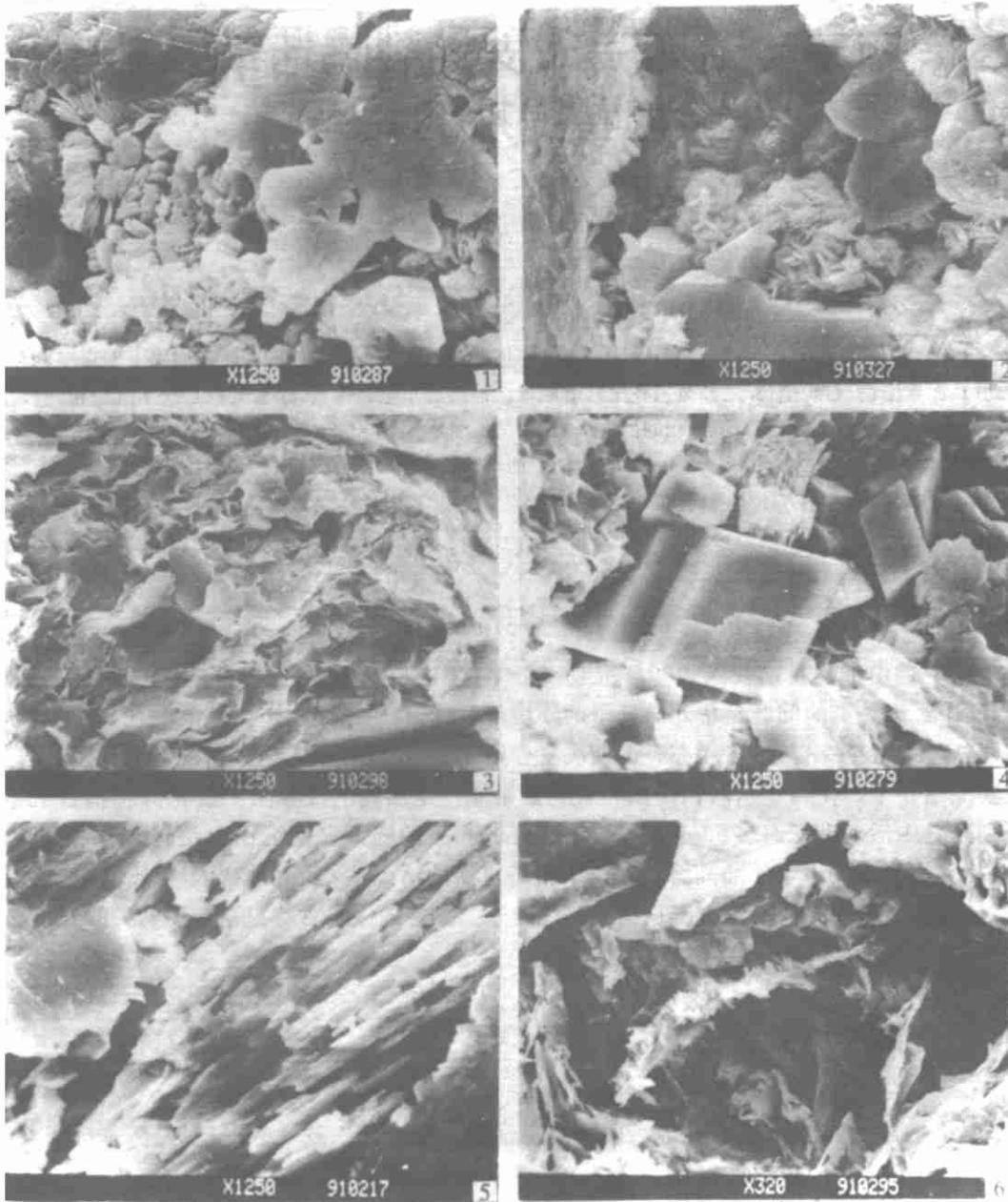
Shi Ji'an Jin Huijuan Xue Lianhua

(Lanzhou Institute of Geology, Chinese Academy of Sciences)

Abstract

Porosity formed by the dissolution of unstable framework grains is one of the most important genetic types of secondary porosity, and feldspar is found to be the most extensive ones of the unstable framework grains. Songliao and Liaohe basins are two large petroliferous inland basins of Mesozoic and Cenozoic, in which has been constructed a clastic rock formation with great thickness. In sandstone there is above 20% unstable feldspar fragments, which is the requisite condition for the development of the secondary porosity. But it has been studied that the FGD of the grains, may not cause the increase of the reservoir permeability of the sandstone(Siebert, 1984). The dissolution of a unit volume of feldspar may produce 0.66 volume of Kaolinite and 0.33 volume of quartz (Sullivan, 1991). Therefore, only when the dissolved materials are transferred after dissolution, the porosity of the sandstone can be effectively increased.

This paper is based on analyzing the state of thermodynamics of feldspar dissolution process. The SEM, X—diffraction, oxygen and carbon stable isotopes, etc. analytical methods are adopted in research of the controlling factors of feldspar dissolution in Cretaceous sandstone in the region of Songliao basin and Palaeogene sandstone in the Liaohe basin. Through research, the author indicates that favors to development degree of feldspar dissolution are dependent on : (1) the organic and inorganic reaction time; (2) the characteristics and fluid condition of pore water; (3) the primary porosity of sandstone, and (4) the temperature and pressure, etc. These factors play different roles in different types of feldspar. The most important parameters are fluid condition, type and abundance of organic acid in fluid, which were closely related with the evolution of clay mineral and organic material in the diagenesis of mudstone.



图版说明

1. 砂岩粒间孔中自生书页状高岭石特征,扫描电镜,1250 \times ,松辽盆地西部,井深 1316m。
2. 自生叶片状绿泥石与自生石英共生于长石溶蚀孔隙中,扫描电镜,1250 \times ,松辽盆地西部,井深 2236m。
3. 鳞片状伊利石充填于砂岩粒间孔隙中,扫描电镜,1250 \times ,辽河盆地西部凹陷,井深 3180m。
4. 砂岩粒间孔中自形铁白云石晶体特征,扫描电镜,1250 \times ,辽河盆地东部凹陷,井深 2510m。
5. 沿长石解理发育的溶蚀孔隙特征,扫描电镜,1250 \times ,松辽盆地西部,井深 1889m。
6. 长石颗粒溶解后形成的特大孔隙,扫描电镜,320 \times ,辽河盆地西部凹陷,井深 2711m。