

УДК 539.12.04

## ПРИМЕНЕНИЕ ГАММА-СПЕКТРОМЕТРИИ С ГЕРМАНИЕВЫМ ДЕТЕКТОРОМ ДЛЯ ЦЕЛЕЙ ПОИСКОВОЙ НЕФТЯНОЙ И РУДНОЙ ГЕОЛОГИИ

© 2022 г. И. Р. Макарова<sup>1, \*</sup>, Ф. Ф. Валиев<sup>2</sup>, С. А. Горобец<sup>1</sup>, Н. Н. Лаптев<sup>1</sup>,  
А. М. Яфясов<sup>2</sup>, В. О. Сергеев<sup>1</sup>

<sup>1</sup>Общество с ограниченной ответственностью “Петрофизик”, Ухта, Россия

<sup>2</sup>Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования  
“Санкт-Петербургский государственный университет”, Санкт-Петербург, Россия

\*E-mail: makarova\_i\_r@mail.ru

Поступила в редакцию 14.03.2022 г.

После доработки 08.04.2022 г.

Принята к публикации 22.04.2022 г.

Проведенные измерения гамма спектров позволили рассчитать отношения активности  $A(U)/A(Th)$ , масс и отношения масс  $U/Th$  для изучения пород и нефтей. По полученным показателям показано влияние гидротерм на породы основного и кислого состава. Определены значения показателей для выявления в породах туфов и путей миграции нефти.

DOI: 10.31857/S0367676522080129

### ВВЕДЕНИЕ

Известно, что в осадочных отложениях между содержанием  $U$  и  $Th$  существует прямая корреляционная зависимость, тогда как в магматических породах зависимость между содержанием  $U$  и  $Th$  становится обратной [1]. Распределение урана и тория относятся к важным признакам многоуровневых конвективных рудогенных систем. По положительным сопряженным геохимическим аномалиям  $U$  и  $Th$  определяются контуры месторождений золота, редких металлов, жильных и стратиформных полиметаллических руд, при этом зона конкретного рудного тела характеризуется отрицательными аномалиями  $U$  и  $Th$  [2]. Аналогичная зональность прослеживается и для месторождений нефти, контур которых также контролируется положительными геохимическими аномалиям урана и тория. В целом в радиогеохимической практике поиска месторождений чаще всего применяется торий–урановое отношение, по значениям которого оценивается генезис пород. В работе коллектива авторов приведено обоснование более широкого применения в практике поисковых работ уран–ториевого отношения, вследствие различной подвижности урана и тория в зависимости от окислительно-восстановительных условий, избирательной аккумуляцией урана органическим веществом осадочных пород [3].

В районе работ (Южное Притиманье), где присутствуют вулканогенно-осадочные породы, актуальной становится задача оценки влияния наложенных процессов вулканизма и процессов гидротермального преобразования пород на содержание элементов в породах и нефти. Для решения поставленной задачи мы применили гамма-спектрометрический подход. Методическая часть работы состоит из измерения образцов пород, пластовых вод, нефтей, расчета показателя отношение активностей урана и тория  $A(U)/A(Th)$ , определения масс  $^{238}U$ ,  $^{234}Th$  и их соотношений. Ранее показатель  $A(U)/A(Th)$  был применен при изучении образцов керна скважины К-40 из отложений доманикового горизонта в центральной части Тимано-Печорской нефтегазоносной провинции (НГП) на Севере России в исследовании [4]. В результате проведенных исследований в глубоко погруженных породах доманикового горизонта на глубинах свыше 3000 м выделены 4 уровня с повышенным содержанием урана, которые были сопоставлены с аналогичными уровнями в Ухтинском районе на западе Тимано-Печорской НГП, где отложения доманика выходят на поверхность [3, 4] и рассматриваются как толщи, производившие углеводороды. В связи с этим выявление в них корреляционных уровней с повышенным содержанием урана по радиогеохимическому показателю оказалось весьма актуальным для тематических работ при поисках нефти. Следует отметить, что определение высоких содержа-

**Таблица 1.** Расчетные величины показателя U/Th по данным гамма-спектрометрии, метода ИСП-МС и нейтронно-активационного метода

Породы	Минимальные значения	Максимальные значения	Средние значения	Источник для расчета показателя
Базальты (52)	0.40	10.50	2.08	[1]
Андезиты (4)	0.47	1.20	0.82	[1]
Дациты (8)	0.25	1.20	0.68	[1]
Туфы (7)	0.26	1.00	0.63	[1]
Риолиты (7)	0.23	0.39	0.29	[1]
Граниты (1)	0.11	—	0.11	[1]
Гидротермальные поля (25)	<1	80	—	[3]

ний урана и тория и других высокозарядных элементов методом ИСП-МС (масс-спектрометрия с индуктивно-связанной плазмой) остается сложной задачей и требует дальнейших исследований способов пробоподготовки вследствие ряда факторов при проведении разложения и раскрытия минералов различными кислотами [5]. По литературным и нашим данным различия в определении содержания урана и тория методом ИСП-МС по сравнению с другими методами могут быть занижены в 3–5 раз. По нашим данным применение гамма-спектроскопии позволяет на основе неразрушающего метода уточнить заниженные значения тория в случае минеральных образований (ксенотим) и заниженные значения урана в случае органоминеральных образований в высокоуглеродистых породах (сланцах). В данной работе мы приводим только те значения, которые сопоставимы по двум методам исследований (гамма-спектроскопического и метода ИСП-МС).

Измерения образцов пород и нефти проводились спектроскопическим методом на гамма-спектрометре с HPGe-детектором с чувствительным объемом 51 см<sup>3</sup> и методом ИСП-МС с целью получения более полной информации по вмещающим углеводороды толщам. Важное значение применения метода гамма-спектроскопии в комплексе с другими спектральными методами приведено в работе [6].

### РЕЗУЛЬТАТЫ ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫХ ИССЛЕДОВАНИЙ И ОБСУЖДЕНИЕ

В работах [1, 7] для разных типов магматических пород и гидротермальных полей приведены величины содержания U и Th по данным гамма-спектрометрии, масс-спектрометрического метода с индуктивно-связанной плазмой (метод ИСП-МС) и нейтронно-активационного метода. На основе этих данных мы рассчитали величины уран-ториевого отношения для пород основного, среднего и кислого состава, включая туфы, а также провели

расчеты для гидротермально измененных пород (табл. 1).

В табл. 1 приведены расчетные минимальные, максимальные и средние значения показателя U/Th для 79 образцов пород из отложений силура-карбона Южного Урала. Из табл. 1 следует уменьшение средних значений показателя U/Th от пород основного состава (базальты) к породам наиболее кислого состава (граниты). Для гидротермально измененных пород (25 образцов) на примере гидротермальных полей Исландии дана оценка минимальных и максимальных значений показателя U/Th, так как значительная часть определений урана в породах оценивается на уровне значений (<1 г/т) [7].

Приведенные в табл. 1 расчетные значения уран-ториевого отношения послужили эталоном при интерпретации экспериментальных гамма-спектроскопических и геохимических данных по образцам керна и нефти в районе работ в Тимано-Печорской НГП.

Для проверки сходимости результатов, получаемых двумя методами (гамма-спектрометрическим и методом ИСП-МС), проведены измерения одних и тех же образцов пород. Результаты экспериментальных исследований образцов (анализ проведен соответственно на кафедре ядерно-физических методов исследования СПбГУ и в ООО “Полевая геофизика”) представлены в табл. 2.

Из табл. 2 видно, что результаты, полученные двумя методами, согласуются. При этом наибольшее сходство значений показателя U/Th прослеживается для образцов, содержащих глины (минеральная основа), чем для сланцевых пород с органоминеральной основой.

Образцы пород на гамма-спектрометрические измерения были отобраны с разных глубин: на Возейской площади в центральной части Тимано-Печорской НГП глубины отбора образцов — от 2087 до 3682.25 м; на Ухтинской антиклинали глубины отбора образцов — от 38 до 278 м. В таблице 3 приведены измеренные значения активно-

**Таблица 2.** Сопоставление расчетных значений содержания U и Th, полученных гамма спектрометрическим методом, с данными метода ИСП-МС

№ п/п	Породы	Метод ИСП-МС			Метод гамма-спектрометрии			
		U, г/т	Th, г/т	U/Th	U, г/т	Th, г/т	U/Th	интерпретация данных
1	Туфы	0.70	3.83	0.18	1.1 ± 0.1	5 ± 0.2	0.22	Вулканизм
2	Глины	0.68	4.58	0.15	0.8 ± 0.4	5 ± 0.2	0.16	Влияние гидротерм
3	Глины	1.00	3.90	0.26	1.4 ± 0.2	7 ± 0.4	0.20	Влияние гидротерм
4	Черные сланцы	1.60	8.50	0.18	4.0 ± 2.0	11 ± 1.0	0.36	Влияние гидротерм
5	Черные сланцы	1.00	6.20	0.19	4.0 ± 2.0	9 ± 1.0	0.44	Влияние гидротерм

**Таблица 3.** Измеренные значения активностей и расчетные значения содержания U и Th в г/т в образцах из глубоких скважин Возейской площади

№ п/п	Глубина, м	Возраст	Активность, А, Бк/кг		A(U)/A(Th)	Расчетное содержание, г/т		U/Th	Интерпретация
			A(U)	A(Th)		U	Th		
			1	2087.66	D <sub>3</sub> fm <sup>2</sup> up	25	28	0.89	
2	3461.97	D <sub>3</sub> f <sup>2-3</sup>	25	1	25.0	2	<0.23	>8.67	Гидротермальное выщелачивание (коллектор)
3	3473.30	D <sub>3</sub> dm	150	48	3.21	12	11	1.09	Осадочные породы, сланцы
4	3508.40	Dtm+sr	217	77	2.81	17	18	0.94	Осадочные породы
5	3601.00	D <sub>3</sub> dzt	150	238	0.60	12	55	0.22	Вулканические породы, туфы
6	3620.95	D <sub>2</sub> st	1	9	0.10	<0.08	2	<0.08	Гидротермальное влияние
7	3682.25	D <sub>2</sub> ef	1	19	0.05	<0.08	4	<0.08	Гидротермальное влияние

стей и расчетные значения содержания U и Th в г/т в образцах из глубоких скважин Возейской площади.

Из приведенных в табл. 3 значений расчетного содержания урана и тория и уран-ториевого отношения следует, что в разрезах скважин Возейской площади в отложениях среднего-верхнего девона присутствуют неизменные породы (обр. № 1), осадочные породы доманикового горизонта, которые характеризуются накоплением урана и соответственно наибольшим значением показателя (1.09); вулканические прослои с туфами присутствуют в джёрском горизонте (значения уран-ториевого отношения составляют –0.22 при обратной корреляционной зависимости между U и Th). Гидротермально измененные породы верхнего девона в верхней части разреза (обр. № 2) определяются по наибольшим значениям показателя >8.67. С этой частью разреза связывается образование коллекторов за счет процессов гидротермального выщелачивания. В нижней части разреза породы также гидротермально изменены. Вследствие больших глубин залегания пород доманикового горизонта наличие гидротермальных процессов приводит к вы-

носу элементов, а повышенное давление – к “отжатию” вод из пород и уплотнению последних. При этом значения уран-ториевого отношения уменьшаются за счет кислотного выщелачивания более подвижного урана в кислой среде по сравнению с торием.

В разрезах неглубоких скважин мы исследовали элементный состав образцов нефти в интервале глубин 38–278 м с применением гамма-спектроскопического, нейтронно-активационного методов и метода ИСП-МС. В табл. 4 приведены результаты исследования образцов нефти и вмещающих пород.

Из табл. 3 и 4 видно, что повышенное количество урана, превышающее в 5 и более раз кларковое значение, в гидротермально неизменных породах доманикового горизонта не зависит от глубины скважин. Сланцы доманикового горизонта при этом характеризуются значениями уран-ториевого отношения больше 1. Из табл. 4 также следует, что по показателю U/Th в разрезе верхнего девона прослеживаются как магматические, так и гидротермально измененные породы. По данным нейтронно-активационного метода и метода ИСП-МС эти породы по сравнению с оса-

**Таблица 4.** Характеристика отложений и нефтей Ухтинской антиклинали по данным гамма-спектроскопических и геохимических исследований (тиманская свита)

Образец	Породы и нефти	U, г/т	Th, г/т	U/Th	Интерпретация значений U/Th	Преобладающие литофильные, редкие и благородные элементы в породах и нефтях
Ар-1*	Рыхлые породы	1.0	3.90	0.26	Туфы	Ce, Nd, Y, Mo, Re, Ag, Au, Pd
КМ	Сланцы	4.49	0.69	6.51	Влияние гидротерм	V, Sr, Mo, Re, Ag
278	Сланцы	3.33	1.15	2.90	Осадочные породы	Sr, Re,
КС	Сланцы	5.73	1.42	4.04	Осадочные породы	V, Zn Mo, Re, Ag
д-7	Сланцы	11.60	3.86	3.01	Осадочные породы	Cr, Ni, Zn, Ir, Pt, Re
К-15-226	Сланцы	4.52	20.40	0.22	Прослой туфов	Rb, Cs, Ga, Sc, Ce, Nb, Y, Zr
1	Глины алевритистые	3.08	15.30	0.20	Осадочные породы	Mn, Cu, Zr, Ce, Nb, Y
2	Глины алевритистые	3.50	16.00	0.22	Осадочные породы	Mn, Cu, Zn, Zr, Ce, Nb, Y
А 540	Глины	3.52	17.10	0.21	Осадочные породы	Mn, Zr, Ce, Hf
НЧ-104	Плотные породы	3.78	11.80	0.32	Туфы, породы кислого состава	Rb, Ga, Sc, Cs, Ce, Nb, Y, Zr, Fe, V, Pb
I (7 проб)	Нефть	0.34	0.20	1.15–15.38	Влияние элементов гидротерм	Cr, La, Nb, Sm, Yb, Ir, Ba, Sr, As, Au
Пб (3 пробы)	Нефть	0.14	0.12	1.15	Влияние элементов гидротерм и пород основного состава	V, Cr, Fe, Co, Ni, Pd, Au, Zn, Rb, Cs, Re, La, Ce, Nb, Pr, Sr, Ba, Zr

\* Кайнозойские отложения (?).

дочными породами характеризуются большим разнообразием и повышенным содержанием литофильных, редких и благородных элементов. В районе работ ранее установлено, что гидротермально измененные вулканогенно-осадочные породы отличаются повышенными содержаниями: стронция, ванадия, хрома, никеля, молибдена, цинка, кадмия, серебра, рения, иридия, платины и контролируются показателями  $Sr/Ba \geq 1$  и  $U/Th > 1$ , тогда как в случае преимущественно гидрогенного осадконакопления породы обогащены барием, железом, рубидием, цирконием, редкоземельными элементами (лантаном, церием, неодимом, празеодимом, самарием), галлием, цезием и контролируются значениями показателей  $Sr/Ba < 1$  и  $U/Th < 1$  [8]. При этом значения показателя составляли  $Nd/Ba 0.1-0.2$ , т.е. фактически не отличались в породах с различными условиями осадконакопления. В работе [8] авторы предположили, что такие выровненные значения – результат наложенного влияния гидротермального процесса. В данной работе, не отрицая

влияния на породы гидротермальных процессов, мы рассматриваем еще один способ обогащения пород широким рядом элементов за счет обогащения вулканогенно-осадочных образований продуктами деления урана. Отметим, что выявленные различия в составе элементов могут быть обусловлены фракционированием “легких” и “тяжелых” осколков при делении урана. Так, еще в 1957 г. было установлено, что инертный газ криптон, рубидий, стронций, цирконий, молибден относятся к легким осколкам при делении  $U^{235}$ , а цезий, барий, церий, неодим, самарий – к тяжелым осколкам при делении  $U^{235}$  [9]. С учетом фундаментальных основ ядерной физики можно предположить, что в районе проводимых нами работ в гидротермальных условиях в вулканогенно-осадочные породы поступают преимущественно легкие осколки деления  $U^{235}$  (Sr, Zr, Cs, Mo), тогда как при гидрогенном осадконакоплении (и/или ослаблении влияния гидротерм) в породах накапливаются преимущественно тяжелые осколки де-

ления  $U^{235}$  (Ba, Cs, Ce, Nd, Sm) и, в меньшей степени, поступают легкие осколки деления  $U^{235}$ . При таком механизме вполне понятно установленное сходство значений показателя Nd/Ba не только для пород, формировавшихся в различных условиях (преимущественно гидрогенных и преимущественно гидротермальных), но и для нефтей разных пластов во вмещающих породах, как отношения “тяжелых” осколков Nd и Ba в процессе деления одного и того же (исходного) количества урана. При этом значения показателя Sr/Ba для пород, образовавшихся в разных условиях, отличаются так, как Sr (легкий осколок деления  $U^{235}$ ) соотносятся с гидротермальными процессами, возможно с более (высокотемпературными гидротермами), а Ba (тяжелый осколок) накапливается в относительно спокойных гидрогенных условиях (и/или в условиях низкотемпературных гидротерм). Для данного района величина показателя  $U/Th > 1$  характеризует гидротермальные условия образования осадков, а его значения меньше 1 – гидрогенные условия. Что касается значений показателя  $U/Th$  для нефтей, то они варьируют в широком диапазоне от 0.75 до 15.38. Состав элементов в образцах нефти также различается. Нефти пласта II+6 (региональная номенклатура) в нижней части тиманской свиты характеризуются следующими показателями и их значениями:  $U/Th < 1$ ;  $Sr/Ba > 1$ ;  $As/Cr < 1$ ;  $Fe > V > Ba$ . В нефтях из разных пластов верхней части тиманской свиты (в основном пласты А, I по региональной номенклатуре) расчетные значения показателя  $U/Th$  изменяются от 1.15 до 15.38. Значения показателей имеют фактически противоположные характеристики:  $U/Th > 1$ ;  $Sr/Ba = 1$ ,  $As/Cr > 1$ ,  $V < Ba$  [8]. Такие различия, по нашему мнению, свидетельствует о различных способах поступления U и Th и других элементов в нефтепродуктивные пласты тиманской свиты. К основному способу обогащения нефти элементами отнесено гидротермальное влияние на нефть пластов А и I (которое контролируется величиной  $U/Th > 1$ . В пласте II + Б это влияние либо понижено, либо отсутствует, что определяется по пониженными значениями  $U/Th$  от 0.75 до 1.45. На этом основании выделены два типа нефти, металлоносность которых определяется совокупным влиянием различных процессов (магматических, гидротермальных и др.). В качестве подтверждения вхождения продуктов деления  $U^{235}$  на состав нефтей и вмещающих пород может служить факт обнаружения криптона в нефти на основе применения экспериментальной установки [8]. Заметим, что сами нефти в районе работ являются миграционными, так как отсутствуют отложения, способные генерировать нефть.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Применение показателя  $A(U)/A(Th)$  в совокупности с массами и массовыми соотношениями количества урана и тория позволило охарактеризовать вулканогенно-осадочные толщи с наложенным поствулканическим гидротермальным влиянием. Установлено, что для магматических пород (обратная корреляционная зависимость между содержанием U и Th) расчетным путем установлено уменьшение средних значений показателя  $U/Th$  от 10.5 для пород основного состава (базальты) до 0.11 для пород наиболее кислого состава (граниты). В осадочных породах на примере сланцев (прямая корреляционная зависимость между содержанием U и Th) установлено, что показатель  $U/Th$  изменяется от 4.04 для наименее термически преобразованных сланцев (см. табл. 4) и до 0.36–0.44 для черных сланцев (см. табл. 1). Гидротермально преобразованные породы на глубинах свыше 3500 м характеризуются более низкими значениями  $U/Th$  (менее  $< 0.08$ ) за счет выноса U. В зоне разгрузки гидротерм (области пониженного давления, геохимические барьеры) значения показателя  $U/Th$  возрастают по нашим данным до 6.5–8.6 (см. табл. 3).

Выявлено повышенное количество урана в разрезах скважин, вскрывших доманиковые отложения (в табл. 3 и 4 превышение содержания урана в гидротермально неизмененных породах в 5 и более раз по сравнению с кларком).

Определены значения показателя  $U/Th$ , характеризующие туфовые прослои (для наших условий значения показателя  $U/Th$  равны 0.22), что является благоприятным условием формирования коллекторов (см. табл. 2–4).

На основе различия величин показателя  $U/Th$  в нефтях установлен различный характер поступления металлов: металлоносные нефти в нижней части тиманской свиты имеют признаки влияния магматических образований, тогда как нефти в ее верхней части обогащены элементами за счет гидротермального влияния (см. табл. 4).

Разнообразие элементов в составе вулканогенно-осадочных образований объяснено за счет накопления “осколочных элементов” при делении урана-235.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Косарев А.М., Голованова И.В., Шафигуллина Г.Т. // Литосфера. 2009. № 6. С. 17.
2. Питулько В.М., Мкртычян А.К., Юркевич Л.Г. Теория и практика интенсивной технологии геохимических работ при прогнозировании и поисках золоторудных месторождений. СПб: Нестор-История, 2014. 424 с.
3. Makarova I.R., Laptev N.N., Gorobets S.A. et al. // Georesources. 2021. No. 1. P. 17.

4. Суханов А.А., Макарова И.Р., Чельшев С.С. и др. // Сб. докл. Междун. конф. СПб: ВНИГРИ, 2015. С. 8.
5. Багай-оол Ю.С., Букреева Л.Н., Мягкая И.Н. и др. // Журн. СФУ. Хим. 2020. Т. 13. № 4. С. 593.
6. Makarova I.R. // Proc. 3rd World Cong. Mater. Sci. Engin. Oil Gas Petrochem. (Barcelona, 2017). P. 94.
7. Гептнер А.Р. Вулканогенно-осадочный литогенез в наземной рифтовой зоне Исландии. М.: ГЕОС, 2014. 236 с.
8. Горобец С.А., Лантев Н.Н., Макарова И.Р. и др. // Урал. геолог. журн. 2021. № 5(143). С. 32.
9. Мурин А.Н. // в кн.: Физика деления атомных ядер. М.: Атомиздат, 1957. С. 32.

## The application of gamma-spectrometry with a germanium detector for oil and ore geology

I. R. Makarova<sup>a</sup>, F. F. Valiev<sup>b</sup>, S. A. Gorobets<sup>a</sup>, N. N. Laptev<sup>a</sup>, A. M. Yafyasov<sup>b</sup>, V. O. Sergeev<sup>a</sup>

<sup>a</sup> LLC "Petrophysik", Ukhta, Russia

<sup>b</sup> St. Petersburg State University, St. Petersburg, Russia

The measured spectra allowed us to calculate the ratio of activity  $A(U)/A(Th)$ , mass and mass ratio  $U/Th$  for the study of rocks and oils. The obtained results show the influence of hydrotherms on the rocks of the basic and acidic composition. The values of detection rates in tuff rocks and oil migration paths have been determined.