

川东北飞仙关组鲕滩气藏天然气运聚效率

李吉君¹, 卢双舫¹, 薛海涛¹, 胡国艺², 谢增业², 徐庆霞¹

1. 大庆石油学院地球科学学院, 黑龙江大庆 163318

2. 中国石油勘探开发研究院廊坊分院, 河北廊坊 065007

摘要: 设计进行了封闭体系下原油裂解成气的模拟实验, 建立并标定了原油裂解成气及其碳同位素分馏的化学动力学模型, 以罗家寨气田罗家 7 井为例分别进行了地质应用。生烃动力学研究发现, 飞仙关组古油藏具备“高效气源灶”的特点, 原油在中晚侏罗世 172~151 Ma 约 20 Ma 时期内裂解殆尽, 且原油裂解气的生成与其运聚成藏作用具有良好的时空匹配关系, 由此可促成飞仙关组气藏天然气的高效运聚。碳同位素分馏动力学研究证实甲烷成藏参与率达 87%。利用生烃动力学与碳同位素分馏动力学结合的方法对天然气的运聚效率进行探讨是一个新的有效途径。

关键词: 原油裂解气; 碳同位素分馏; 化学动力学; 运聚效率; 飞仙关组; 川东北。

中图分类号: P618.130.1

文章编号: 1000-2383(2008)04-0565-07

收稿日期: 2007-09-27

Migration and Accumulation Efficiency of Natural Gas in Feixianguan Formation Oolitic Gas Reservoirs, Northeastern Sichuan Basin

LI Ji-jun¹, LU Shuang-fang¹, XUE Hai-tao¹, HU Guo-yi², XIE Zeng-ye², XU Qing-xia¹

1. College of Earth Sciences, Daqing Petroleum Institute, Daqing 163318, China

2. Langfang Branch of PetroChina Exploration and Development Research Institute, Langfang 065007, China

Abstract: An oil cracking experiment in a closed system was designed and carried out. Based on this, kinetic models for describing gas generation from oil cracking and carbon isotope fractionation during this process were established, calibrated and then applied to LuoJia 7 well located in the LuoJiazhai gas field respectively. From the hydrocarbon generation kinetics research, it is found that Feixianguan Formation ancient oil reservoirs are “high efficiency gas sources”. Their oil almost cracked completely in only about 20 Ma, the period of 172–151 Ma in the Middle–Late Jurassic. And along vertical faults, the oil-cracking gas migrated fast into the Feixianguan Formation oolitic reservoir with a high porosity and permeability and sealed perfectly by gypsum caprocks in the fourth member of Feixianguan Formation, Jialingjiang Formation and Leikoupo Formation. Consequently, a highly efficient migration and accumulation of natural gas could be formed. Carbon isotope fractionation kinetics research proves that the accumulation participation rate of methane amounts to 87%. It is a new and effective method to evaluate the migration and accumulation efficiency of natural gas with a combination of hydrocarbon generation kinetics and carbon isotope fractionation kinetics.

Key words: oil-cracking gas; carbon isotope fractionation; chemical kinetics; migration and accumulation efficiency; Feixianguan Formation; northeastern Sichuan.

随着四川盆地东北部渡口河、铁山坡、罗家寨、滚子坪和普光气田的相继发现, 川东北下三叠统飞仙关组(T_1f)作为川东石炭系的接替层系越发显示出良好的勘探前景, 截至 2005 年底累计探明天然气

储量超过 $3\,000 \times 10^8 \text{ m}^3$ 。近年来很多学者对飞仙关组气藏天然气的地化特征及其形成机理进行了细致的研究, 发现该组天然气为含 H_2S 、 CO_2 高的典型干气, 具有较重的碳同位素组成, 明显区别于川东其

他层位天然气, TSR 反应是形成上述特征的主要原因(王一刚等, 2002; 杨家静等, 2002; 谢增业等, 2004a; 朱光有等, 2005a, 2005b, 2006a)。飞仙关组储层中广泛分布着焦沥青, 对其及烃源岩的地球化学特征研究(杨家静等, 2002)表明, 储层沥青主要来源于川东北上二叠统长兴组(P_2ch)暗色泥晶灰岩, 且从其产状可以看出它们是液态烃类运移进入储层后因热裂解作用形成的残留物, 从而可以确定上二叠统碳酸盐主力烃源岩的地位, 与其具有相似干酪根类型和显微组分的飞仙关组暗色泥晶灰岩可作为次要烃源岩。另外, 谢增业等(2004b, 2005a)也研究发现飞仙关组储层沥青抽提物的正构烷烃、甾萜类生物标志物分布均正常, 没有遭受降解破坏的迹象, 沥青含量与单井日产气量之间表现出较好的正相关, 且飞仙关组天然气具有 C_1/C_2 比值变化小, 而 C_2/C_3 比值变化大的原油裂解气特征。综上所述, 飞仙关组天然气主要源于上二叠统长兴组碳酸盐烃源岩所生原油运移至飞仙关储层后的二次裂解, 储层沥青为原油裂解的残留产物。

相对天然气成因类型、形成机理的研究, 有关川东北飞仙关组气藏天然气运聚效率的研究还显得很薄弱, 仅谢增业等(2005b)通过对天然气的净聚集速率的研究侧面考察过罗家寨飞仙关组气藏天然气的聚集效率, 而对于基于热模拟实验的定量研究更是无人涉及。鉴于上述原因, 本文根据川东北飞仙关组鲕滩气藏的地质背景进行了针对性的原油裂解成气及其碳同位素分馏的化学动力学研究, 对其天然气的运聚效率进行了定量评价。

1 样品与实验

由于飞仙关组气藏的主力烃源岩——上二叠统

长兴组暗色泥晶灰岩已达到高一过成熟阶段, 早期所生原油也已裂解为沥青和干气, 无法取到合适的油样进行热模拟实验, 而与主力烃源岩具有相似干酪根类型和显微组分的飞仙关组碳酸盐有机质目前正处于成熟晚期阶段(杨家静等, 2002), 其所生原油应具有较好的代表性。为此, 本文选用飞仙关组源岩所生原油(源岩抽提物)进行了封闭体系下的原油裂解实验。采用目前国际上比较流行和认可的小金管实验装置(帅燕华等, 2003; 卢双舫等, 2006a), 将装样品后的黄金管置于氩气箱中, 置换出管中空气, 焊封后置于同一温、压(50 MPa)系统下的高压釜中, 然后分别以 $2\text{ }^\circ\text{C/h}$ 和 $20\text{ }^\circ\text{C/h}$ 的升温速率由 $200\text{ }^\circ\text{C}$ 升温至 $600\text{ }^\circ\text{C}$ 以上, 在目标温度点(温度间隔约为 $25\text{ }^\circ\text{C}$)取出高压釜, 冷却后取出金管, 置于特制的气体收集装置中刺破, 用 HP6890 气相色谱仪进行气体的精确计量, 用 ISOCHROM II 型 GC-IRMS 进行同位素分析。图 1 绘出了实验过程中原油裂解成甲烷、总气(C_1-C_5)的转化率曲线及油成甲烷的碳同位素值演化曲线。

2 模型的选取与标定

就油成气(生烃)动力学模型的选取与标定, 卢双舫(1996)已做过深入系统的研究, 发现平行一级反应化学动力学模型具有广泛的适用性。对于天然气生成过程中碳同位素分馏模型的选取, 笔者曾进行过各类分馏模型的对比研究(李吉君, 2005; 卢双舫等, 2006b), 本文从中选取了目前应用效果最好的 Cramer III 碳同位素动力学模型(Cramer *et al.*, 2001)。该模型与最初的静态模型(Stahl, 1977)和以 Rayleigh 方程为基础的分馏模型(Galimov, 1988)相比, 认识到同位素分馏的本质是同位素组分生成

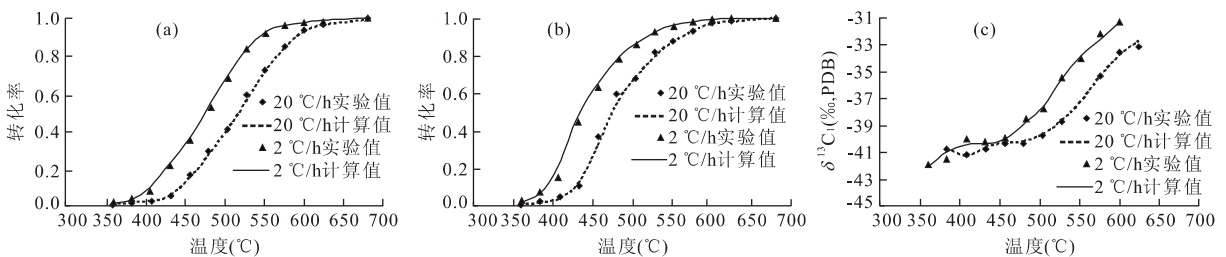


图 1 飞仙关组原油裂解成甲烷(a)、总气(C_1-C_5)(b)的转化率曲线及油成甲烷的碳同位素值演化曲线(c)

Fig. 1 Transformation ratio curves of methane (a) and total gas (C_1-C_5) (b) from the cracking of Feixianguan Formation oil, and carbon isotope value evolution curves of the methane (c)

表 1 飞仙关组油样裂解生气反应化学动力学参数 ($A=1 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$)

Table 1 Chemical kinetic parameters of methane generation from the cracking of Feixianguan Formation oil

$E(\text{kJ/mol})$	反应分数		
	$^{12}\text{CH}_4$	$^{13}\text{CH}_4$	总气
150	4.38×10^{-9}	3.34×10^{-4}	4.27×10^{-6}
160	4.38×10^{-9}	1.50×10^{-4}	2.20×10^{-5}
170	4.38×10^{-9}	1.58×10^{-4}	2.34×10^{-5}
180	4.38×10^{-9}	1.59×10^{-4}	2.42×10^{-5}
190	3.91×10^{-9}	2.31×10^{-4}	1.97×10^{-3}
200	9.65×10^{-3}	8.50×10^{-3}	6.87×10^{-3}
210	2.85×10^{-9}	2.44×10^{-10}	2.52×10^{-6}
220	3.78×10^{-6}	3.70×10^{-10}	3.03×10^{-5}
230	1.55×10^{-1}	1.54×10^{-1}	3.94×10^{-1}
240	1.28×10^{-1}	1.27×10^{-1}	2.15×10^{-1}
250	2.13×10^{-1}	2.12×10^{-1}	1.74×10^{-1}
260	2.19×10^{-1}	2.17×10^{-1}	8.39×10^{-2}
270	1.84×10^{-1}	1.88×10^{-1}	8.96×10^{-2}
280	5.54×10^{-2}	4.92×10^{-2}	8.59×10^{-3}
290	1.20×10^{-7}	2.27×10^{-2}	2.37×10^{-2}
300	3.21×10^{-2}	2.46×10^{-13}	1.67×10^{-3}
310	3.62×10^{-3}	1.81×10^{-13}	6.90×10^{-4}
320	1.10×10^{-7}	4.01×10^{-13}	1.81×10^{-5}
330	7.27×10^{-8}	3.22×10^{-12}	1.62×10^{-5}
340	5.87×10^{-8}	2.06×10^{-2}	1.94×10^{-5}
$\bar{E}(\text{kJ/mol})$	254.49	255.29	243.49

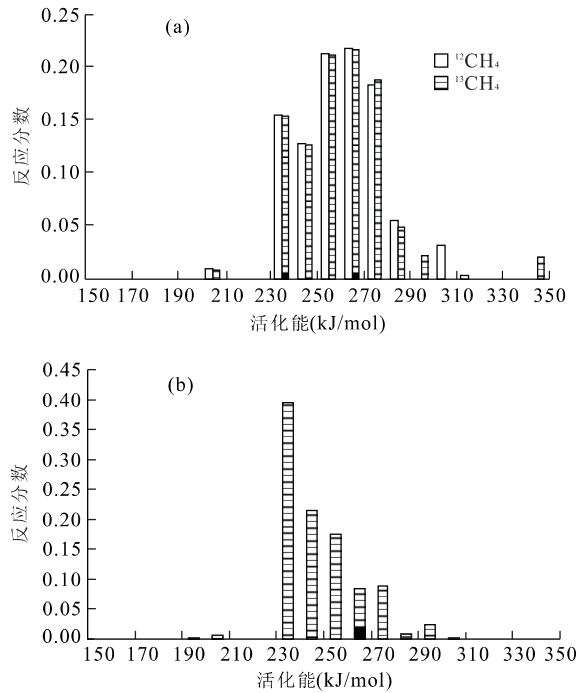


图 2 飞仙关组原油裂解成甲烷(a)、总气(C₁-C₅)(b)反应活化能分布

Fig. 2 Hydrocarbon generation activation energy distribution of methane (a) and total gas (C₁-C₅) (b) generated from the cracking of Feixianguan Formation oil

速率不同所造成的生成量的差异,且回避了早期 Cramer I、Cramer II 动力学模型(Cramer *et al.*, 1998)在分馏机理上的不足,具有更加良好、稳定的拟合效果. 首先,它利用各温度点气体组分的生成量和碳同位素值得出 ^{12}C 组分和 ^{13}C 组分的生成量,而后再将各温度点碳同位素组分的累积产气量分别除以各自的最终产气量得到生气转化率-温度的关系曲线,再利用生烃动力学模型分别予以标定,即可得出 ^{12}C 组分和 ^{13}C 组分各自的生烃动力学参数. 由此可计算出任意条件下 ^{12}C 组分和 ^{13}C 组分的生成量,进而可以求取相应的碳同位素值. 其中,对于 ^{12}C 组分和 ^{13}C 组分总生烃潜量的求取,是由最终热解产物中气体组分的碳同位素值换算求得,而不是由总有机质(全岩、干酪根、原油)的碳同位素值换算求取. 因为总有机质中的碳元素并非全部转化进入气体组分中,有相当一部分会进入残碳等其他产物中. 而对于 $A^{13}\text{C}/A^{12}\text{C}$ 比值的选取,Cramer *et al.* (1998)认为在高温反应过程中同位素分馏已基本结束,而将该值定为 1,这与 Tang *et al.* (2000)利用量子化学理论计算得出的短链正构烷烃($\leq \text{C}_6$)失去甲基

官能团的平均 $A^{13}\text{C}/A^{12}\text{C}$ 值(1.021)相比有一定出入. 对此,笔者曾利用不同样品热解生气的碳同位素分馏数据对其进行数学优化选取(李吉君,2005),发现该比值与 1 十分相近,为此笔者将该值定为 1.

由图 1 可以看出,应用上述模型计算得出的实验条件下原油裂解成甲烷、总气的转化率曲线和油成甲烷的碳同位素值演化曲线对实验点均有良好的拟合效果,反映出所选模型的可行性,同时也让我们有理由相信,应用这 2 个模型可以对实际地质条件下原油裂解成气的过程和该过程中的碳同位素分馏情况进行良好的再现. 表 1 列出了由模型标定得出的实验油样裂解成气反应的化学动力学参数,图 2 绘出了相应的活化能分布. 可以看出,与油成甲烷相比油成总气(C₁-C₅)的活化能分布总体上偏低,这是由于相当一部分甲烷源于油成重烃气(C₂-C₅)的继续裂解,且原油裂解成 $^{12}\text{CH}_4$ 反应的活化能略低于裂解成 $^{13}\text{CH}_4$ 反应的,反映出 $^{12}\text{C}-^{13}\text{C}$ 键的断裂较 $^{12}\text{C}-^{12}\text{C}$ 键的断裂要困难.

3 地质应用

罗家寨气田地处四川宣汉县及重庆开县境内,区域构造位置位于川东北五宝场坳陷的东南侧,川东断褶带的北部,地质储量超过 $500 \times 10^8 \text{ m}^3$,为飞仙关组气藏的代表性气田之一(谢增业等,2005b).笔者此次将其作为代表性区块,以罗家 7 井(完钻井深 4 100 m)为例进行原油裂解成气及其碳同位素分馏的化学动力学应用.

首先,将已求取的原油裂解成甲烷、总气($\text{C}_1\text{-C}_5$)的化学动力学参数(表 1),结合罗家 7 井飞仙关组的热史(图 3b),可得到该井区原油裂解成甲烷(图 4a)、总气(图 4b)的生烃史,两者的差值即为重烃气($\text{C}_2\text{-C}_5$)(图 4c).图 4 中的生烃转化率均由产气量对原油最大裂解气量归一化得出.由于原油裂解的最终气态产物为甲烷,重烃气为中间产物,原油在裂解为重烃气的同时重烃气也在向甲烷裂解.在原油裂解的早期阶段原油裂解为重烃气的速度会大于重烃气的裂解速度,晚期则相反,因此重烃气的产量会先上升后下降(图 4c).由图 4 还可看出,原油裂解主要发生在中晚侏罗世(172~151 Ma)约 20 Ma 的时期内,这主要是川东北地区在该期快速沉降(图 3a),地温大幅上升(图 3b)造成的.目前油成甲烷、总气的转化率分别达到 94% 和 97%,重烃气含量为 3%,天然气干燥系数为 97%,达到了干气的标准,与川东嘉陵江组以下其他层位天然气大体相当,但低于川东北飞仙关组高含硫气藏天然气的干燥系数(谢增业等,2004a),反映出 TSR 反应对天然气干燥系数的影响.谢增业等(2006)通过对储层流体包裹体均一化温度的研究得出川东北飞仙关组天然气的充注期也为中晚侏罗世,表明飞仙关组原油裂解气在生成的同时运移到了储层中,具有短期内生成并成藏的特点,有利于减小天然气成藏过程

中的散失量(赵文智等,2005;付广等,2007).除此之外,飞仙关组气藏还具备高效的断裂输导体系、优质的储集空间和良好的封堵条件,天然气生成后可沿沟通上二叠统烃源岩与飞仙关组储层的断裂快速垂向运移至高孔渗的飞仙关组鲕粒岩储层中(谢增业等,2005b,2005c;李宏义等,2006;朱光有等,2006b),且上覆飞四段直接盖层及嘉陵江组、雷口坡组的区域性盖层均为封闭性极佳的膏盐层(谢增业等,2005b,2005c;朱光有等,2006b),这将进一步提高天然气的运聚效率.综上所述,飞仙关组古油藏具备“高效气源灶”(赵文智等,2005)的特点,原油在短期内裂解为气,且原油裂解气的生成与其运聚成藏作用具有良好的时空匹配关系.这无疑将大大减小天然气的散失量,从而促成天然气的高效运聚,碳同位素分馏动力学的应用研究证实了这一观点.

根据前面的模型介绍,将原油裂解成甲烷的碳同位素动力学参数(表 1)与罗家 7 井飞仙关组的热史(图 3b)结合,可得出地质时期油成 $^{12}\text{CH}_4$ 与 $^{13}\text{CH}_4$ 的转化率,再结合各自的生烃潜量便可获得 $^{12}\text{CH}_4$ 与 $^{13}\text{CH}_4$ 的生成量,进而可以求取相应的碳同位素值.考虑到晚期所生天然气易于成藏,笔者做出了该区不同地质时期(横轴坐标)至今,累积所生成天然气运聚成藏所对应的甲烷碳同位素值曲线(图 5).表 2 列出了川东北飞仙关组部分气藏天然气的碳同位素组成,明显可以看出,由于 TSR 反应的发生,高含硫天然气的碳同位素组成明显重于低含硫天然气的碳同位素组成,前者 $\delta^{13}\text{C}_1$ 分布在 $-31.5\text{‰} \sim -29\text{‰}$ 之间,后者分布在 $-33.8\text{‰} \sim -33\text{‰}$ 之间.朱光有等(2005a,2005b)通过对川东北下三叠统飞仙关组高含 H_2S 气藏的研究发现,TSR 反应会使甲烷的碳同位素组成增重 2‰ 左右,且重烃气体的增重幅度高于甲烷.照此标准,罗家 7 井天然气的初始 $\delta^{13}\text{C}_1$ 应约为 -33.5‰ ,这与飞仙关组

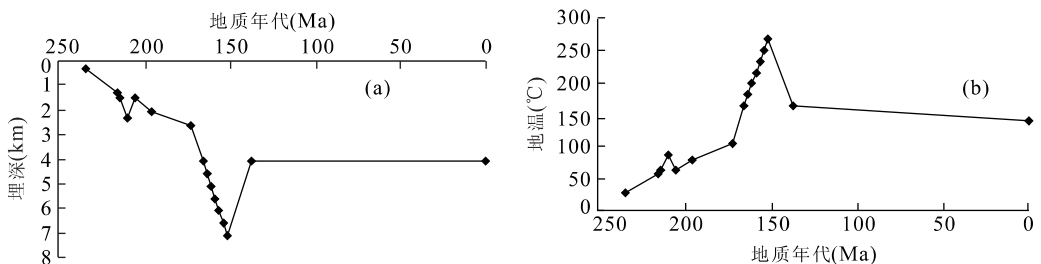


图 3 罗家寨气田罗家 7 井飞仙关组沉积埋藏史(a)与热史(b)(黄先平和王世谦,2002)

Fig. 3 Burial (a) and thermal (b) histories of Feixianguan Formation of Luoja 7 well in the Luojiashai gas field

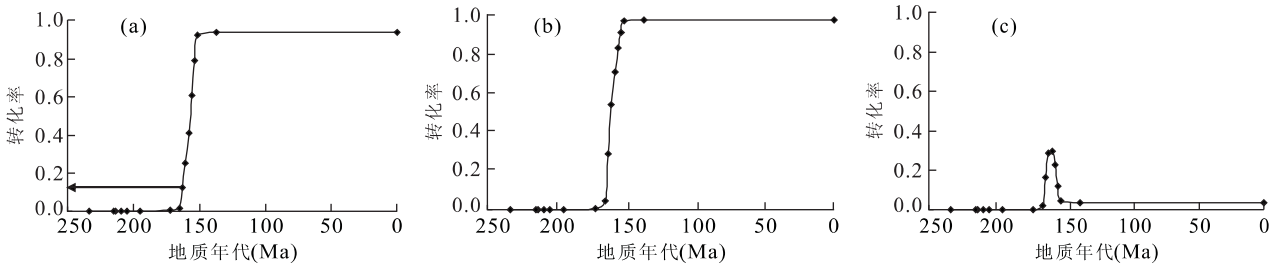


图 4 罗家 7 井飞仙关组古油藏原油裂解成甲烷(a)、总气(C₁-C₅)(b)、重烃气(C₂-C₅)(c)转化率曲线

Fig. 4 Transformation ratio curves of methane (a), total gas (C₁-C₅) (b) and heavy hydrocarbon gas (C₂-C₅) (c) from oil cracking of Feixianguan Formation ancient oil reservoir of LuoJia 7 well in the LuoJiazhai gas field

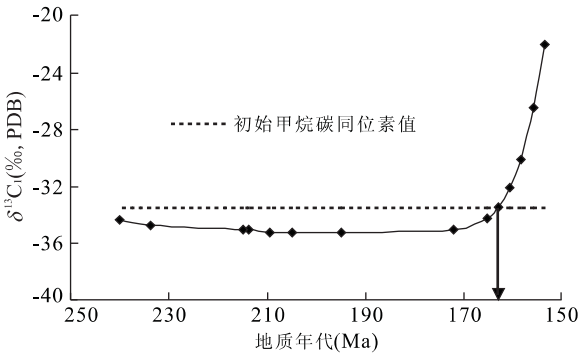


图 5 罗家 7 井飞仙关组古油藏原油不同地质时期至今累积裂解所生天然气的甲烷碳同位素值曲线

Fig. 5 Carbon isotope value curve of methane cumulatively generated from oil cracking of Feixianguan Formation ancient oil reservoir of LuoJia 7 well from different geological times to the present

表 2 川东北飞仙关组气藏天然气碳同位素组成(谢增业等,2004a)

Table 2 Stable carbon isotope composition of Feixianguan Formation natural gas in the northeastern Sichuan basin

井号	层位	埋深 (m)	$\delta^{13}C_1$ (‰, PDB)	$\delta^{13}C_2$ (‰, PDB)	H ₂ S (%)	备注
坡 1	T ₁ f ³⁻¹	3 400~3 460	-30.1		14.19	高含硫
坡 2	T ₁ f ³⁻¹	4 022~4 162	-29.5		16.24	高含硫
渡 4	T ₁ f ³⁻¹	4 191~4 220	-29.8	-32.4	9.81	高含硫
罗家 6	T ₁ f ³⁻¹	—	-30.4		—	高含硫
罗家 7	T ₁ f ³⁻¹	3 856~3 956	-31.5	-29.4	10.41	高含硫
紫 2	T ₁ f ³⁻¹	—	-29.0		—	高含硫
铁山 11	T ₁ f ³⁻¹	2 824~2 970	-33.0	-35.2	0.12	低含硫
铁山 13	T ₁ f ³⁻¹	—	-33.0	-34.7	—	低含硫
成 16	T ₁ f ³⁻¹	2 563~2 669	-33.5	-37.4	0.11	低含硫
成 22	T ₁ f ³⁻¹	3 024~3 040	-33.8	-36.5	0.11	低含硫

低含硫天然气的甲烷碳同位素值相符(表 2)。由图 5 可以看出,该值大致相当于 163 Ma 至今所生天然气聚集所对应的甲烷碳同位素值,对应油成甲烷转

化率为 12%(图 4a),之前所生甲烷可能未运聚成藏或成藏后散失,而油成甲烷的最终转化率为 94%(图 4a),由此可得,甲烷成藏参与率为 87%。由此可以看出,飞仙关组原油裂解气确实具有较高的运聚效率,天然气的高效运聚应是飞仙关组气藏天然气在经历了强烈的 TSR 反应消耗(朱光有等,2006b)后还能保持现有规模的重要原因。同时,生烃动力学与碳同位素分馏动力学应用研究所得出结论的一致性说明利用生烃动力学与碳同位素分馏动力学结合的方法对天然气的运聚效率进行探讨是一个有效途径。

4 结论

飞仙关组古油藏具备“高效气源灶”的特点,原油在中晚侏罗世 172~151 Ma 约 20 Ma 时期内裂解殆尽,TSR 反应使气藏中原本已为干气的天然气干燥系数进一步增大,且原油裂解气的生成与其运聚成藏作用具有良好的时空匹配关系。上述特点大大减小了天然气运聚成藏过程中的散失量,促成了天然气的高效运聚,甲烷成藏参与率达 87%。天然气的高效运聚是飞仙关组气藏天然气在经历了强烈的 TSR 反应消耗后还能保持现有规模的基础。利用生烃动力学与碳同位素分馏动力学结合的方法探讨天然气的运聚效率是一个新的有效途径。

References

Cramer, B., Faber, E., Gerling, P., et al., 2001. Reaction kinetics of stable carbon isotopes in natural gas—Insights from dry, open system pyrolysis experiments. *Energy & Fuels*, 15(3): 517–532.
 Cramer, B., Krooss, B. M., Littke, R., 1998. Modelling isotope fractionation during primary cracking of natural

- gas: A reaction kinetic approach. *Chemical Geology*, 149:235–250.
- Fu, G., Lü, Y. F., Yu, D., 2007. Major factors controlling formation of large and intermediate gas fields with high gas accumulation efficiency in different types of basins in China. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 32(1):82–88 (in Chinese with English abstract).
- Galimov, E. M., 1988. Sources and mechanisms of formation of gaseous hydrocarbons in sedimentary rocks. *Chemical Geology*, 71:77–95.
- Huang, X. P., Wang, S. Q., 2002. Resource assessment of oil and gas in Sichuan basin. Exploration and Development Research Institute of CNPC Southwest Oil and Gas Field Branch, Chengdu (in Chinese).
- Li, H. Y., Jiang, Z. X., Pang, X. Q., et al., 2006. Dominant migration pathway and its control on oil-gas migration in the northern edge of Qaidam basin. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences*, 31(2):214–220 (in Chinese with English abstract).
- Li, J. J., 2005. Study of carbon isotope fractionation during the process of natural gas generation. Daqing Petroleum Institute, Daqing, 14–31 (in Chinese).
- Lu, S. F., 1996. Kinetics theory of hydrocarbon generation from organic matter and its applications. Petroleum Industry Press, Beijing, 37–129 (in Chinese).
- Lu, S. F., Li, J. J., Xue, H. T., et al., 2006a. Chemical kinetics of carbon isotope fractionation of oil-cracking methane and its initial application. *Journal of Jilin University (Earth Science Edition)*, 36(5):825–829 (in Chinese with English abstract).
- Lu, S. F., Li, J. J., Xue, H. T., et al., 2006b. Comparison of fractionation models of carbon isotope. *Natural Gas Industry*, 26(7):1–4 (in Chinese with English abstract).
- Shuai, Y. H., Zou, Y. R., Peng, P. A., 2003. Kinetics modeling of stable carbon isotopes of coal-generated methane and its significance for gases accumulation in the Kuqa depression, Tarim basin. *Geochimica*, 32(5):469–475 (in Chinese with English abstract).
- Stahl, W. J., 1977. Carbon and nitrogen isotopes in hydrocarbon research and exploration. *Chemical Geology*, 20:121–149.
- Tang, Y., Perry, J. K., Jenden, P. D., et al., 2000. Mathematical modeling of stable carbon isotope ratios in natural gases. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 64(15):2673–2687.
- Wang, Y. G., Dou, L. R., Wen, Y. C., et al., 2002. Origin of H₂S in Triassic Feixianguan Formation gas pools, northeastern Sichuan basin, China. *Geochimica*, 31(6):517–524 (in Chinese with English abstract).
- Xie, Z. Y., Tian, S. C., Li, J., et al., 2004a. Geochemical characteristics and origin of Feixianguan Formation oolitic shoal natural gases in northeastern Sichuan basin. *Geochimica*, 33(6):567–573 (in Chinese with English abstract).
- Xie, Z. Y., Wei, G. Q., Li, J., et al., 2004b. Feixianguan Formation oolitic beach reservoir bitumens and gas reservoiring process in Northeast Sichuan. *Natural Gas Industry*, 24(12):17–19 (in Chinese with English abstract).
- Xie, Z. Y., Tian, S. C., Wei, G. Q., et al., 2005a. The study on bitumen and foregone pool of Feixianguan oolitic in Northeast Sichuan basin. *Natural Gas Geoscience*, 16(3):283–288 (in Chinese with English abstract).
- Xie, Z. Y., Li, J., Shan, X. Q., et al., 2005b. Reservoiring process and accumulation efficiency of Feixianguan Formation gas pool in Luoziashai, northeastern Sichuan basin. *Oil & Gas Geology*, 26(6):765–769 (in Chinese with English abstract).
- Xie, Z. Y., Tian, S. C., Shan, X. Q., et al., 2005c. Features of gas accumulation and exploration foreground in oolitic reservoir of Feixianguan Formation in Sichuan basin. *Petroleum Exploration and Development*, 32(2):31–34 (in Chinese with English abstract).
- Xie, Z. Y., Shan, X. Q., Li, J., et al., 2006. The characteristics of fluid inclusions in carbonate of the Feixianguan Formation in northeastern Sichuan basin and its application to identify gas reservoirs. *Bulletin of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 25(1):49–54 (in Chinese with English abstract).
- Yang, J. J., Wang, Y. G., Wang, L. S., et al., 2002. The origin of natural gases and geochemistry characters of Changxing reef and Feixianguan oolitic beach gas reservoirs in eastern Sichuan basin. *Acta Sedimentologica Sinica*, 20(2):349–353 (in Chinese with English abstract).
- Zhao, W. Z., Wang, Z. Y., Wang, Z. C., et al., 2005. Concept, connotation and evaluation index of high effective gas source kitchen and its action to the formation of high effective gas pool. *Acta Sedimentologica Sinica*, 23(4):709–718 (in Chinese with English abstract).
- Zhu, G. Y., Zhang, S. C., Liang, Y. B., et al., 2005a. Alteration of thermochemical sulfate reduction to hydrocar-

bons. *Acta Petrolei Sinica*, 26(5): 48—52 (in Chinese with English abstract).

Zhu, G. Y., Zhang, S. C., Liang, Y. B., et al., 2005b. Isotopic evidence of TSR origin for natural gas bearing high H₂S contents within the Feixianguan Formation of the northeastern Sichuan basin, southwestern China. *Science in China (Series D)*, 35(11): 1037—1046 (in Chinese).

Zhu, G. Y., Zhang, S. C., Liang, Y. B., et al., 2006a. Distribution of high H₂S-bearing natural gas and evidence of TSR origin in the Sichuan basin. *Acta Geologica Sinica*, 80(8): 1208—1218 (in Chinese with English abstract).

Zhu, G. Y., Zhang, S. C., Liang, Y. B., et al., 2006b. Characteristics of gas reservoirs with high content of H₂S in the northeastern Sichuan basin and the consumption of hydrocarbons due to TSR. *Acta Sedimentologica Sinica*, 24(2): 300—308 (in Chinese with English abstract).

附中文参考文献

付广, 吕延防, 于丹, 2007. 我国不同类型盆地高效大中型气田形成的主控因素. *地球科学——中国地质大学学报*, 32(1): 82—88.

黄先平, 王世谦, 2002. 四川盆地油气资源评价研究. 成都: 西南油气田分公司勘探开发研究院.

李宏义, 姜振学, 庞雄奇, 等, 2006. 柴北缘油气运移优势通道特征及其控油气作用. *地球科学——中国地质大学学报*, 31(2): 214—220.

李吉君, 2005. 天然气生成过程中的碳同位素分馏作用研究. 大庆: 大庆石油学院, 14—31.

卢双舫, 1996. 有机质成烃动力学理论及其应用. 北京: 石油工业出版社, 37—129.

卢双舫, 李吉君, 薛海涛, 等, 2006a. 油成甲烷碳同位素分馏的化学动力学及其初步应用. *吉林大学学报(地球科学版)*, 36(5): 825—829.

卢双舫, 李吉君, 薛海涛, 等, 2006b. 碳同位素分馏模型比较研究. *天然气工业*, 26(7): 1—4.

帅燕华, 邹艳荣, 彭平安, 2003. 塔里木盆地库车坳陷煤成气甲烷碳同位素动力学研究及其成藏意义. *地球化学*, 32(5): 469—475.

王一刚, 窦立荣, 文应初, 等, 2002. 四川盆地东北部三叠系飞仙关组高含硫气藏 H₂S 成因研究. *地球化学*, 31(6): 517—524.

谢增业, 田世澄, 李剑, 等, 2004a. 川东北飞仙关组鲈滩天然气地球化学特征与成因. *地球化学*, 33(6): 567—573.

谢增业, 魏国齐, 李剑, 等, 2004b. 川东北飞仙关组鲈滩储层沥青与天然气成藏过程. *天然气工业*, 24(12): 17—19.

谢增业, 田世澄, 魏国齐, 等, 2005a. 川东北飞仙关组储层沥青与古油藏研究. *天然气地球科学*, 16(3): 283—288.

谢增业, 李剑, 单秀琴, 等, 2005b. 川东北罗家寨飞仙关组气藏成藏过程及聚集效率. *石油与天然气地质*, 26(6): 765—769.

谢增业, 田世澄, 单秀琴, 等, 2005c. 川东北飞仙关组鲈滩天然气富集成藏特征及勘探前景. *石油勘探与开发*, 32(2): 31—34.

谢增业, 单秀琴, 李剑, 等, 2006. 川东北飞仙关组包裹体特征及其在天然气成藏研究中的应用. *矿物岩石地球化学通报*, 25(1): 49—54.

杨家静, 王一刚, 王兰生, 等, 2002. 四川盆地东部长兴组—飞仙关组气藏地球化学特征及气源探讨. *沉积学报*, 20(2): 349—353.

赵文智, 王兆云, 汪泽成, 等, 2005. 高效气源灶及其对形成高效气藏的作用. *沉积学报*, 23(4): 709—718.

朱光有, 张水昌, 梁英波, 等, 2005a. 硫酸盐热化学还原反应对烃类的蚀变作用. *石油学报*, 26(5): 48—52.

朱光有, 张水昌, 梁英波, 等, 2005b. 川东北地区飞仙关组高含 H₂S 天然气 TSR 成因的同位素证据. *中国科学(D 辑)*, 35(11): 1037—1046.

朱光有, 张水昌, 梁英波, 等, 2006a. 四川盆地高含 H₂S 天然气的分布与 TSR 成因证据. *地质学报*, 80(8): 1208—1218.

朱光有, 张水昌, 梁英波, 等, 2006b. 川东北飞仙关组高含 H₂S 气藏特征与 TSR 对烃类的消耗作用. *沉积学报*, 24(2): 300—308.