

松辽盆地庆深气田天然气成因类型鉴别

杨 春¹, 刘全有^{2*}, 周庆华³, 李 剑⁴, 冯子辉⁵, 李志生⁴

1. 浙江大学地球科学系, 浙江杭州 310027
2. 中石化石油勘探开发研究院, 北京 100083
3. 中国石油勘探开发研究院, 北京 100083
4. 中国石油勘探开发研究院廊坊分院, 河北廊坊 065007
5. 中国石油大庆油田勘探开发院, 黑龙江大庆 163712

摘要: 通过对松辽盆地徐家围子烃源岩和原油热模拟实验、烷烃气碳同位素组成分析, 认为在高演化阶段单一热力作用可以引起重烃气($\delta^3\text{C}_2 > \delta^3\text{C}_3 > \delta^3\text{C}_4$)碳同位素组成倒转, 但 CH_4 与 C_2H_6 ($\delta^3\text{C}_1 > \delta^3\text{C}_2$)却很难发生倒转。庆深气田天然气重甲烷碳同位素组成、烷烃气碳同位素完全倒转、高稀有气体同位素组成($R/\text{Ra} > 1.0$), 说明该气田天然气来源具有多样性。利用 R/Ra 与 $\text{CO}_2/{}^3\text{He}$ 和 R/Ra 与 $\text{CH}_4/{}^3\text{He}$ 关系对庆深气田天然气成因类型进行识别, 认为该气田烷烃气中甲烷有部分为无机成因, 重烃气则为有机成因。该地区高地温梯度导致有机成因重烃气碳同位素组成发生倒转, 而 CH_4 与 C_2H_6 碳同位素组成倒转主要与重碳同位素的无机甲烷混入有关。

关键词: 庆深气田; 热模拟实验; 碳同位素组成; 无机成因气; 有机成因气。

中图分类号: P618.13

文章编号: 1000-2383(2009)05-0792-07

收稿日期: 2009-02-20

Genetic Identification of Natural Gases in Qingshen Gas Field, Songliao Basin

YANG Chun¹, LIU Quan-you^{2*}, ZHOU Qing-hua³, LI Jian⁴, FENG Zi-hui⁵, LI Zhi-sheng⁴

1. Department of Earth Sciences, Zhejiang University, Hangzhou 310027, China
2. Exploration and Production Research Institute, SINOPEC, Beijing 100083, China
3. Research Institute of Petroleum Exploration and Development, PetroChina, Beijing 100083, China
4. Langfang Branch, Research Institute of Petroleum Exploration and Development, PetroChina, Langfang 065007, China
5. Daqing Oil Company, PetroChina, Daqing 163712, China

Abstract According to measurement of carbon isotopes of gaseous alkanes thermally cracked from the hydrocarbon sources and oil under closed system pyrolysis, the results suggest that the reversal occurrence for carbon isotopes of heavy gaseous alkanes ($\delta^3\text{C}_2 > \delta^3\text{C}_3 > \delta^3\text{C}_4$) would be caused by single thermal dynamics, whereas the reversal trends of $\delta^3\text{C}_1$ and $\delta^3\text{C}_2$ ($\delta^3\text{C}_1 > \delta^3\text{C}_2$) could not be observed. The natural gases in the Qingshen gas field are characterized by the less negative $\delta^3\text{C}_1$ values, reversal series of carbon isotopes for gaseous alkanes and high R/Ra values ($R/\text{Ra} > 1.0$), indicating natural gases should have stemmed from multi-sources. Based on the correlation of R/Ra and $\text{CO}_2/{}^3\text{He}$, R/Ra and $\text{CH}_4/{}^3\text{He}$, the genesis of natural gases from the Qingshen gas field were identified. The hydrocarbon gases in the Qingshen gas field are a mixture of alkanes in which the heavy gaseous alkanes were derived from the thermal decomposition of organic matters due to the high geothermal gradient, whereas mixing of inorganic methane into organic gas caused the reversal of the carbon isotopic trend of CH_4 and C_2H_6 .

Key words: Qingshen gas field; pyrolysis experiment; carbon isotope; inorganic gas; organic gas.

在沉积盆地中, 天然气一般包括生物气与热成因气 (Schoell, 1983; Galimov; 1988; Xu and Shen, 1996). 虽然在沉积盆地已证明幔源 CO_2 的存在 (Welhan, 1988; Sherwood *et al.*, 1997; Ballentine *et*

基金项目: 国家自然科学基金项目(No. 40802028); 国家基础研究“973”项目(No. 2005CB422108); 中国石油天然气股份有限公司科学研究与技术开发项目(No. 07-01C-01-07).

作者简介: 杨春(1981-), 男, 博士, 主要从事天然气地质学及地球化学研究。*通讯作者: 刘全有, E-mail: qyoliu@sohu.com

al., 2001; Sherwood *et al.*, 2002; Dai *et al.*, 2005a; Hopp and Trieloff, 2005; Basu *et al.*, 2006), 但达到工业性烃类气体并没有发现. 因此, 科学家一直认为不存在无机成因工业性烃类气藏. 关于无机气鉴别也有许多地化指标, 如 $\delta^3\text{C}_1$ 、 $\delta^3\text{CO}_2$ 、反序烷烃气碳同位素 ($\delta^3\text{C}_1 > \delta^3\text{C}_2 > \delta^3\text{C}_3 > \delta^3\text{C}_4$)、 $\text{CH}_4/{}^3\text{He}$ 、 $\text{CO}_2/{}^3\text{He}$ 以及 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 比值等 (Fuex, 1977; Oxburgh *et al.*, 1986; Hiyagon and Kennedy, 1992; Xu *et al.*, 1995a; Sherwood *et al.*, 1997, 2002; Horita and Berndt, 1999; Ballentine *et al.*, 2001; Dai *et al.*, 2005a). 但是对于烷烃气碳同位素组成倒转是否一定是无机成因天然气仍存在争议 (Sherwood *et al.*, 2002; Dai *et al.*, 2004). 如在塔里木盆地一些非工业性气藏也发现有烷烃气碳同位素倒转现象, 但它们为有机成因气 (Liu *et al.*, 2007), 因为那里至古生代以来没有深大断裂或与地幔连通的深大构造带. 这样, 庆深气田的发现为地球化学家进一步认识无机和有机成因天然气提供了地质实例. 本文通过对庆深气田不同时代可能烃源岩热模拟气态物产和天然气地球化学特征进行对比分析, 力图有效鉴别庆深气田天然气成因类型, 并建立不同成因天然气鉴别指标.

1 地质背景

庆深气田为近期在徐家围子断陷首次发现的以烃类气体为主的工业性气藏, 2005 年底探明天然气地质储量超过 $1\,000 \times 10^8 \text{ m}^3$, 其位于徐家围子断陷中部, 面积约 $5\,350 \text{ km}^2$. 徐家围子断陷是由徐西、宋西两条边界断裂控制的箕状断陷, 由宋站低隆起和丰乐低隆起分割成 3 个局部深断陷 (付广等, 2007; 戴金星等, 2008; 付广和王有功, 2008). 徐西断裂总体走向 NNW, 延伸长度 96 km, 东倾, 倾角 $7^\circ \sim 35^\circ$, 其断距在基岩顶面一般 1 800 m, 最大 4 328 m, 最小 954 m, 平面延伸近 S 形. 宋西断裂也是徐家围子断陷一条重要的边界断裂, 总体走向 NNW, 延伸长度 93 km, 东倾, 倾角 $10^\circ \sim 20^\circ$, 垂直断距在基岩顶面一般为 1 860 m, 最大 2 947 m, 最小 366 m, 平面延伸近 S 形, 其与徐西断裂共同控制了徐家围子断陷两个西陡东缓斜列的箕状断陷.

2 实验结果

把时间和温度作为主要参数, 提高受热温度补

偿漫长的地质效应, 并进行烃源岩及有机质生烃过程的热解模拟实验, 是近 30 年来国内外石油地球化学研究中普遍采用的较有效的方法. 这些模拟油气生成与演化的实验研究, 为评价烃源岩的成烃能力、成烃过程与推导成烃模式与动力学机制, 提供了野外地质研究难以获得的重要信息. 在模拟实验过程中, 根据研究目的选用不同的实验样品, 如纯天然物质、近代天然物质及古代沉积物, 如不同类型的烃源岩、干酪根和沉积物的抽提物等. 表 1 为松辽盆地徐家围子断陷不同时代烃源岩和原油在不同介质下的热模拟实验中烷烃气碳同位素组成 (冯子辉等, 2002; Yang *et al.*, 2008). 不同类型烃源岩在热模拟实验中生成烷烃气碳同位素与温度之间具有规律性变化; 一般来自腐泥型 (碳质页岩) 生成的烷烃具有较轻碳同位素组成, 而腐殖型形成烷烃气碳同位素明显偏重. 这种变化特征与沉积盆地有机成因天然气相一致. 甲烷碳同位素变化与天然气中甲烷略有不同; 热模拟实验中随着温度的升高, 碳同位素一般具有先重后轻, 然后再变重的变化特征; 天然气中烷烃气碳同位素随着热成熟度的增加始终呈变重趋势. 热模拟实验中重烃气 (C_2H_6 、 C_3H_8) 碳同位素较好地反映了天然气中重烃气碳同位素的热演化特征, 即随着热成熟度的增加, 重烃气碳同位素逐渐变重. 通过对徐家围子不同类型烃源岩在封闭体系热模拟实验, 重烃气碳同位素组成在高温阶段出现倒转现象; 即热模拟温度大于 450°C 时, $\delta^3\text{C}_2 > \delta^3\text{C}_3 > \delta^3\text{C}_4$. 根据冯子辉等 (2002) 对芳深 2 井登楼库组轻质油在砂岩和火山岩中热模拟实验, 原油热模拟温度在 $500 \sim 550^\circ\text{C}$ 时, 热成熟度 R_o 大于 $2.3\% \sim 2.8\%$, 重烃中的 C_3H_6 和 C_4H_{10} 碳同位素先发生倒转, 即 $\delta^3\text{C}_3 > \delta^3\text{C}_4$; 随着热模拟温度升高 ($> 550^\circ\text{C}$), C_2H_6 与 C_3H_8 也出现倒转, 即 $\delta^3\text{C}_2 > \delta^3\text{C}_3 > \delta^3\text{C}_4$, 热成熟度 R_o 大于 2.8% . 这说明在高演化阶段 ($R_o > 2.3\%$) 通过单一热力作用可以使烷烃气碳同位素组成发生局部倒转. 虽然 Du *et al.* (2003) 利用超高压 ($p = 1 \sim 3 \text{ GP}$) 条件下对煤的热模拟实验发现 $\delta^3\text{C}_1 > \delta^3\text{C}_2$, 但是在非超压条件下无论烃源岩还是原油在热模拟实验中均没有出现 CH_4 与 C_2H_6 碳同位素组成的倒转. 由于在实际地质体中是否存在超高压 ($p = 1 \sim 3 \text{ GP}$) 仍然存在异议, 所以 CH_4 与 C_2H_6 碳同位素组成的倒转是否也能通过单一热力作用形成, 值得进一步研究. 如果来自有机质的烷烃气体通过单一热力作用难以形成 $\delta^3\text{C}_1 > \delta^3\text{C}_2$, 那么造成庆深气田烷烃气碳同位素组

表 1 松辽盆地徐家围子烃源岩与原油热模拟实验烷烃气碳同位素组成

Table 1 Carbon isotope compositions of alkane gases from possible source rocks and crude oils in the closed system pyrolysis

样品	模拟温度(°C)	R ₀ (%)	δ ³ C ₁ (‰)	δ ³ C ₂ (‰)	δ ³ C ₃ (‰)	δ ³ C ₄ (‰)	资料
肇深 6 井板岩	300	/	-25.7	-29.9	-25.6	-25.4	Yang <i>et al.</i> , 2008
	350	/	-24.9	-25.9	-24.9	-25.8	
	400	/	-31.4	-26.3	-25.2	-24.7	
	450	/	-30.1	-23.2	-24.6	-24.2	
	500	/	-22.3	-18.1	-25.3	/	
	550	3.47	-24.4	-15.2	/	/	
营城组煤样	250	/	-23.6	-29.5	-27.3	-27.1	
	300	/	-28.3	-26.6	-24.9	-24.9	
	350	/	-32.8	-26.9	-25.4	-24.7	
	400	/	-31.5	-23.5	-20.7	-19.2	
	450	/	-23.4	-14.8	-17.6	-22.1	
	500	/	-19.6	-16.7	-20.6	-21.4	
杜 13 井泥岩	250	/	-32.5	-27.9	-21.7	/	
	300	/	-33.6	-31.4	-30.7	-29.6	
	350	/	-38.9	-31.3	-28.8	-27.5	
	400	/	-33.8	-25.6	-23.1	-22.7	
	450	/	-24.8	-17.5	-21.8	-26.8	
	500	/	-22.4	-15.4	-23.7	-27.6	
砂岩+油+水	450	1.84	-48.5	-35.0	-31.4	-30.9	冯子辉等, 2002
	500	2.33	-37.0	-29.6	-26.6	-28.0	
	550	2.80	-39.6	-34.8	-25.7	-27.4	
火山岩+水+油	400	1.35	-50.9	-41.4	-37.9	-36.4	冯子辉等, 2002
	450	1.84	-48.5	-38.3	-34.5	-33.4	
	500	2.33	-39.3	-30.9	-29.1	-32.2	
	550	2.80	-24.0	/	/	/	
	600	3.40	-24.3	-19.4	-25.8	-27.3	

成倒转可能存在其他原因,如深部幔源气混入,因为幔源气中主要以 CH₄ 和其他非烃气体为主(CO₂、H₂ 和 He 等),重烃含量很少,可忽略不计(Janecky and Seyfried, 1986; Horita and Berndt, 1999)。

3 庆深气田天然气地球化学与成因类型

在庆深气田,除芳深 9 和芳深 701 井天然气化学组分以 CO₂ 为主外,其余天然气均以烃类气体为主,其次为 N₂ 和 CO₂;含有少量氢气和稀有气体(氦和氩)。虽然庆深气田天然气主要以烃类气体为主,但烷烃气碳同位素组成随着碳数的增加呈变轻趋势,且 δ³C₁ > -30‰,烷烃气碳同位素序列关系具有无机成因特征;δ³C_{CO₂} 值介于 -16.5‰ ~ -5.1‰ 之间。R/R_a 变化范围为 0.77 ~ 5.84,多数样品 R/R_a 大于 1.0。在庆深气田,烷烃气重烃含量较高,暗示了庆深气田重烃气可能来源于有机质热

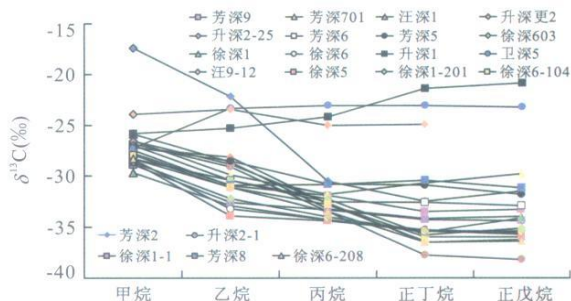


图 1 庆深气田烷烃气碳同位素组成变化

Fig. 1 Plot of $\delta^3\text{C}$ values of individual n -alkanes vs. carbon number for gas samples from the Qingshen gas field, Songliao basin

降解(Chung *et al.*, 1988; Galimov, 1988; Dai *et al.*, 2005b),但烷烃气碳同位素组成随着碳数增加逐渐呈变轻趋势,与传统认为有机质在单一热动力作用下形成的烷烃气地球化学特征不同,因为有机质在单一热动力作用下形成的烷烃气碳同位素组成具有随着碳数增加逐渐变重的趋势(Des Marais *et*

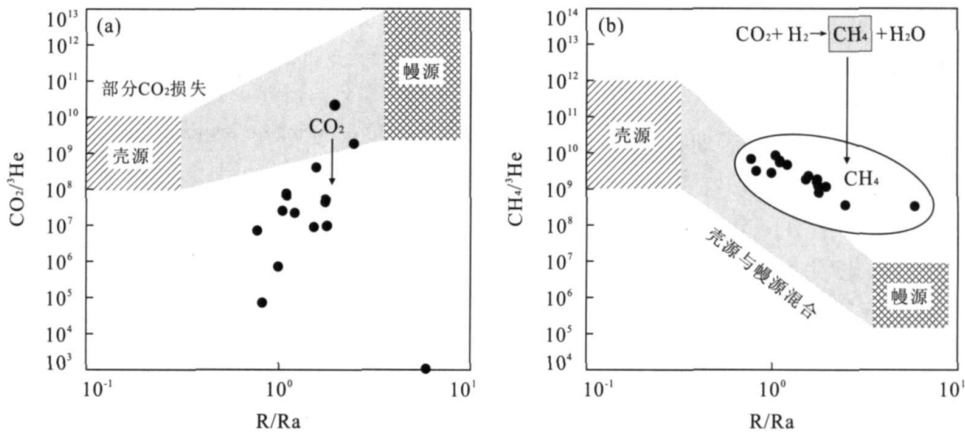


图 2 庆深气田 R/Ra 与 CO₂/³He(a)和 R/Ra 与 CH₄/³He(b)关系

Fig. 2 Plots of R/Ra ratios versus CO₂/³He (a) and CH₄/³He (b) two component mixing of CO₂ between crustal and mantle end members

al., 1981; Schoell, 1983; Galimov, 1988; Cramer *et al.*, 1998; Tang *et al.*, 2005), 即 $\delta^{13}C_1 < \delta^{13}C_2 < \delta^{13}C_3 < \delta^{13}C_4$. 在本次研究中, 烷烃气(除汪 9~12 外)碳同位素组成随着碳数增加呈变轻趋势(图 1). Dai *et al.* (2004)认为天然气烷烃气碳同位素组成局部倒转可能与以下 4 种因素有关;包括有机与无机气相混合、煤型气与油型气混合、同型不同源气或同源不同期气混合和烷烃气被细菌演化导致残留组分碳同位素变重并发生倒转(Schoell, 1983; James, 1990). 但是对于有机成因气无论怎么混合也很难形成甲烷与乙烷碳同位素组成的倒转(Schoell, 1983; Galimov, 1988; Xu and Shen, 1996). 同时, 该研究区域也不存在生物气, 因为生物气具有很轻的甲烷碳同位素组成(Schoell, 1980; Tang *et al.*, 2005; Xu *et al.*, 2006). 虽然硫酸盐还原也可引起甲烷碳同位素组成很重(Cai *et al.*, 2003), 但在庆深气田天然气中并未含有 H₂S, 且储层以火山岩和砂岩为主, 所以在该区不存在硫酸盐对烷烃气还原作用. 这样, 庆深气田烷烃气碳同位素组成倒转可能与无机成因气有关. 无机成因气主要包括深部通过深大断裂直接运移成藏和在一定温度和压力作用下 CO₂ 和 H₂ 费托反应合成烷烃气(Lancet and Anders, 1970; Wakita and Sano, 1983; Wang *et al.*, 1997), 但这些无机气主要以甲烷为主, 乙烷等重烃含量很少, 有时难以检测(Berndt *et al.*, 1996; Horita and Berndt, 1999). 但在庆深气田, 烷烃气重烃含量较高, 暗示了庆深气田重烃气可能来源于有机质热降解.

在火山活动过程中, 会释放大部深部气体, 化学

组分主要以 CO₂、H₂ 和 CH₄ 为主, 同时含有一定量的稀有气体, 如 He、Ar 等(Welhan, 1988). 由于稀有气体的稀少和化学性质上的惰性, 稀有气体在地质作用过程中的丰度和同位素组成变化几乎不受复杂的化学反应的影响, 主要取决于溶解、吸附和核反应等物理过程(Prinzhofer and Battani, 2003). 稀有气体一般没有呈游离态聚集, 它们以掺和物形式存在于天然气中, 其含量不超过 1% (徐永昌等, 1998). 天然气中幔源氦主要是受深大断裂带、火山活动和岩浆活动控制, 幔源挥发分的运移以直接与地幔相连的通道为途径(Xu *et al.*, 1995b; 徐永昌等, 1998), ³He 为原始大气成因的氦, 主要与深部地幔有关(Craig and Lupton, 1976). 在本次研究中, 利用 R/Ra 与 CO₂/³He 和 R/Ra 与 CH₄/³He 关系来识别有机与无机成因相混合模式(图 2), 因为如果天然气中 CO₂ 为简单的壳源与幔源二端元混合, 那么 R/Ra 和 CO₂/³He 应该表现为线性关系. 如图 2a 所示, 庆深气田 CO₂ 数据点落入低于鄂尔多斯盆地作为典型有机质成因气区域(Xu *et al.*, 1995b; Dai *et al.*, 2005b); 尽管 CO₂ 丢失途径很多, 包括以碳酸钙形式沉淀、石墨还原(Sherwood *et al.*, 1997), 但是在特定条件下 CO₂ 可以还原生成 CH₄ (Wakita and Sano, 1983; Horita and Berndt, 1999). 此外, R/Ra 与 CH₄/³He 的负相关性也暗含了有机与无机成因气的混合(Wakita and Sano, 1983; Poreda *et al.*, 1986; Poreda and Craig, 1989; Xu *et al.*, 1995b)(图 2b); 因为有机成因气中 CH₄/³He 为 10⁹ ~ 10¹², 且 R/Ra < 0.32(Dai *et al.*, 2005a), 而东太平洋洋中脊玄武岩、热泉气和

火山喷气等典型无机气中 $\text{CH}_4/{}^3\text{He}$ 为 $10^5 \sim 10^7$, 且 $R/R_a > 1.0$ (Welhan, 1988; Dai *et al.*, 2005a). 这样, 庆深气田高的 $\text{CH}_4/{}^3\text{He}$ 和 R/R_a 比值可能主要与深部活动有关, 因为火山活动过程中 CO_2 和 H_2 可以通过费托反应合成甲烷. 在日本海的油气田中也发现类似情况, $\text{CH}_4/{}^3\text{He}$ 高达 $10^{11} \sim 10^{14}$, 其甲烷主要是通过二氧化碳还原形成的 (Wakita and Sano, 1983). 因此, 在庆深气田, 甲烷主要包括两种气源, 即有机质热降解和无机气 (幔源气和费托合成), 重烃气体为有机成因. 重烃气碳同位素倒转与该地区烃源岩或原油遭受高地温梯度作用有关 (Zhou *et al.*, 2008), 因为这些气源岩在高温演化阶段可以通过热力作用形成碳同位素组成倒转, 而甲烷碳同位素异常主要与部分无机甲烷的混入有关.

4 结论

通过对徐家围子断陷可能气源岩热模拟实验分析, 不同类型干酪根或原油在高温热模拟实验中可以形成重烃气碳同位素组成倒转, 表明在单一热力作用下有机成因气在高演化阶段可以形成烷烃气碳同位素组成倒转, 但甲烷与其他重烃气碳同位素组成倒转很难通过单一热力作用形成. 这样庆深气田烷烃气碳同位素组成倒转可能与存在深部无机气的混入有关. 庆深气田是在特定的地质背景下形成的工业性天然气气田, 储层主要为火山岩和砂岩. 由于庆深气田天然气具有重的甲烷碳同位素组成、烷烃气碳同位素完全倒转和高稀有气体同位素组成 ($R/R_a > 1.0$), 暗示了该气田存在无机成因气. 利用 R/R_a 与 $\text{CO}_2/{}^3\text{He}$ 和 R/R_a 与 $\text{CH}_4/{}^3\text{He}$ 关系对庆深气田天然气成因类型进行识别, 认为该气田烷烃气中甲烷有部分为无机成因, 重烃气则主要为有机成因.

致谢: 在此项研究过程中, 得到中国石油勘探开发研究院戴金星院士的指导和支持, 在此表示衷心的感谢!

References

Ballentine, C. J., Schoell, M., Coleman, D., *et al.*, 2001. 300 Myr-old magmatic CO_2 in natural gas reservoirs of the West Texas Permian basin. *Nature*, 409 (6818): 327–331.

Basu, S., Stuart, F. M., Klemm, V., *et al.*, 2006. Helium isotopes in ferromanganese crusts from the central Pacific

Ocean. Geochimica et Cosmochimica Acta, 70 (15): 3996–4006.

- Berndt, M. E., Allen, D. E., Seyfried, W. E., 1996. Reduction of CO_2 during serpentinization of olivine at 300 °C and 500 bar. *Geology*, 24(4): 351–354.
- Cai, C., Worden, R. H., Bottrell, S. H., *et al.*, 2003. Thermochemical sulphate reduction and the generation of hydrogen sulphide and thiols (mercaptans) in Triassic carbonate reservoirs from the Sichuan basin, China. *Chemical Geology*, 202(1–2): 39–57.
- Chung, H. M., Gorm, J. R., Squires, R. M., 1988. Origin of gaseous hydrocarbons in subsurface environments: Theoretical considerations of carbon isotope distribution. *Chemical Geology*, 71(1–3): 97–104.
- Craig, H., Lupton, J. E., 1976. Primordial neon, helium and hydrogen in oceanic basalts. *Earth and Planetary Science Letters*, 31(3): 369–385.
- Cramer, B., Krooss, B. M., Littke, R., 1998. Modelling isotope fractionation during primary cracking of natural gas: A reaction kinetic approach. *Chemical Geology*, 149 (3–4): 235–250.
- Dai, J. X., Li, J., Luo, X., *et al.*, 2005b. Stable carbon isotope compositions and source rock geochemistry of the giant gas accumulations in the Ordos basin, China. *Organic Geochemistry*, 36(12): 1617–1635.
- Dai, J. X., Yang, S., Chen, H., *et al.*, 2005a. Geochemistry and occurrence of inorganic gas accumulations in Chinese sedimentary basins. *Organic Geochemistry*, 36 (12): 1664–1688.
- Dai, J. X., Xia, X., Qin, S., *et al.*, 2004. Origins of partially reversed alkane $\delta^{13}\text{C}$ values for biogenic gases in China. *Organic Geochemistry*, 35(4): 405–411.
- Dai, J. X., Yang, C., Hu, G. Y., *et al.*, 2008. Coal-formed gas plays a significant role in the natural gas industry of China. *Natural Gas Geoscience*, 19(6): 733–740 (in Chinese with English abstract).
- Des Marais, D. J., Donchin, J. H., Nehring, N. L., *et al.*, 1981. Molecular carbon isotopic evidence for the origin of geothermal hydrocarbons. *Nature*, 292 (5826): 826–828.
- Du, J., Jin, Z., Xie, H., *et al.*, 2003. Stable carbon isotope compositions of gaseous hydrocarbons produced from high pressure and high temperature pyrolysis of lignite. *Organic Geochemistry*, 34(1): 97–104.
- Fu, G., Lu, 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).
- Fu, G., Wang, Y. G., 2008. Time and space matching relation among accumulation essential factors of gas reservoirs in volcanic rock and its controlling to gas accumulation: A case study of deep strata of Xujiaweizi region. *Earth Science—Journal of China University of Geosciences* 33(3): 342–348 (in Chinese with English abstract).
- Feng, Z. H., Chi, Y. L., Du, H. W., et al., 2002. Carbon isotopic composition and yield of gaseous hydrocarbon by oil hydrothermal pyrolysis in rock medium. *Acta Sedimentologica Sinica*, 20(3): 505–509 (in Chinese with English abstract).
- Fuex, A. N., 1977. The use of stable carbon isotopes in hydrocarbon exploration. *Journal of Geochemical Exploration*, 7(2): 155–188.
- Galimov, E. M., 1988. Sources and mechanisms of formation of gaseous hydrocarbons in sedimentary rocks. *Chemical Geology*, 71(1–3): 77–95.
- Hiyagon, H., Kennedy, B. M., 1992. Noble gases in CH₄-rich gas fields, Alberta, Canada. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 56(4): 1569–1589.
- Hopp, J., Tieloff, M., 2005. Refining the noble gas record of the Réunion mantle plume source: Implications on mantle geochemistry. *Earth and Planetary Science Letters*, 240(3–4): 573–588.
- Horita, J., Berndt, M. E., 1999. Abiogenic methane formation and isotopic fractionation under hydrothermal conditions. *Science*, 285(5430): 1055–1057.
- James, A. T., 1990. Correlation of reservoir gases using the carbon isotopic compositions of wet gas components. *AAPG Bulletin*, 74(9): 1441–1458.
- Janecky, D. R., Seyfried, W. E., 1986. Hydrothermal serpentinization of peridotite within the oceanic crust: Experimental investigations of mineralogy and major element chemistry. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 50(7): 1357–1378.
- Lancet, M. S., Anders, E., 1970. Carbon isotope fractionation in the Fischer-Tropsch synthesis and in methane. *Science*, 170(3961): 980–982.
- Liu, Q., Dai, J., Zhang, T., et al., 2007. Genetic types of natural gas and their distribution in Tarim basin, NW China. *Journal of Nature Science and Sustainable Technology*, 1(4): 603–620.
- Oxburgh, E. R., O' Nions, R. K., Hill, R. I., 1986. Helium isotopes in sedimentary basin. *Nature*, 324(6089): 632–635.
- Poreda, R., Craig, H., 1989. Helium isotope ratios in circum-Pacific volcanic arcs. *Nature*, 338(6215): 473–478.
- Poreda, R. J., Jenden, P. D., Kaplan, I. R., et al., 1986. Mantle helium in Sacramento basin natural gas wells. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 50(12): 2847–2853.
- Prinzhofer, A., Battani, A., 2003. Gas isotopes tracing: An important tool for hydrocarbons exploration. *Oil & Gas Science and Technology*, 58(2): 299–311.
- Schoell, M., 1980. The hydrogen and carbon isotopic composition of methane from natural gases of various origins. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 44(5): 649–661.
- Schoell, M., 1983. Genetic characterization of natural gases. *AAPG Bulletin*, 67(12): 2225–2238.
- Sherwood, L. B., Ballentine, C. J., O' Nions, R. K., 1997. The fate of mantle-derived carbon in a continental sedimentary basin: Integration of C/He relationships and stable isotope signatures. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 62(11): 2295–2307.
- Sherwood, L. B., Westgate, T. D., Ward, J. A., et al., 2002. Abiogenic formation of alkanes in the earth's crust as a minor source for global hydrocarbon reservoirs. *Nature*, 416(6880): 522–524.
- Tang, Y., Huang, Y., Ellis, G. S., et al., 2005. A kinetic model for thermally induced hydrogen and carbon isotope fractionation of individual *n*-alkanes in crude oil. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 69(18): 4505–4520.
- Wakita, H., Sano, Y., 1983. ³He/⁴He ratios in CH₄-rich natural gases suggest magmatic origin. *Nature*, 305(5937): 792–794.
- Wang, X., Li, C., Chen, J., et al., 1997. On abiogenic natural gas. *Chinese Science Bulletin*, 42(16): 1327–1336.
- Welhan, J. A., 1988. Origins of methane in hydrothermal system. *Chemical Geology*, 71(1–3): 183–198.
- Xu, S., Nakai, S. I., Wakita, H., et al., 1995b. Mantle-derived noble gases in natural gases from Songliao basin, China. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 59(22): 4675–4683.
- Xu, S., Nakai, S., Wakita, H., et al., 1995a. Helium isotope compositions in sedimentary basins in China. *Applied Geochemistry*, 10(6): 643–656.
- Xu, Y. C., Shen, P., 1996. A study of natural gas origins in China. *AAPG Bulletin*, 80(10): 1604–1614.
- Xu, Y. C., Liu, W., Shen, P., et al., 2006. Carbon and hydrogen isotopic characteristics of natural gases from the Luliang and Baoshan basins in Yunnan Province, China. *Science in China (Ser. D)*, 49(9): 938–946.
- Xu, Y. C., Shen, P., Liu, W. H., et al., 1998. Noble gas geochemistry of natural gases. Science Press, Beijing, 231

(in Chinese).

Yang C., Luo, X., Li J., et al., 2008. Geochemical characteristics of pyrolysis gas from epimetamorphic rocks in the northern basement of Songliao basin, NE China. *Science in China (Ser. D)*, 51(Suppl. 1): 140–147.

Zhou, Q., Feng Z., Men, G., 2008. Present geotemperature and its suggestion to natural gas generation in Xujiawei fault-depression of the northern Songliao basin. *Science in China (Ser. D)*, 51(Suppl. 1): 207–220.

附中文参考文献

戴金星, 杨春, 胡国艺, 等, 2008. 煤成气是中国天然气工业的

主角. 天然气地球科学, 19(6): 733–740.

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.

付广, 王有功, 2008. 火山岩天然气成藏要素时空匹配及对成藏的控制作用: 以徐家围子地区深层为例. 地球科学——中国地质大学学报, 33(3): 342–348.

冯子辉, 迟元林, 杜洪文, 等, 2002. 原油在储层介质中的加水裂解生气模拟实验. 沉积学报, 20(3): 505–509.

徐永昌, 沈平, 刘文汇, 等, 1998. 天然气中稀有气体地球化学. 北京: 科学出版社, 231.

(上接 768 页)

寿建峰, 张惠良, 斯春松, 等, 2005. 砂岩动力成岩作用. 北京: 石油工业出版社, 73–75.

王大锐, 2000. 油气稳定同位素地球化学. 北京: 石油工业出版社, 4–20.

王芙蓉, 何生, 洪太元, 等, 2006. 准噶尔盆地腹部地区深埋储层物性特征及影响因素. 新疆地质, 24(4): 423–428.

王勇, 钟建华, 陈昊, 等, 2006. 东濮凹陷古近系深层次生孔隙垂向分布特征及成因. 石油勘探与开发, 33(5): 576–580.

王震亮, 朱玉双, 陈荷立, 等, 2000. 准噶尔盆地腹部侏罗系流体物理化学特征及其水动力学意义. 地球化学, 29(6): 542–548.

王志章, 吴胜和, 熊琦华, 等, 2003. 油气田渗流场特征. 北京: 石油工业出版社.

武恒志, 孟闲龙, 杨江峰, 等, 2006. 准噶尔盆地腹部车—莫古隆起区隐蔽油气藏形成条件与勘探技术. 石油与天然气地质, 27(6): 779–803.

谢小敏, 曹剑, 胡文瑄, 等, 2007. 叠合盆地储层油气包裹体 GOI 成因与应用探讨—以准噶尔盆地莫索湾地区为例. 地质学报, 81(6): 834–842.

解习农, 李思田, 刘晓峰, 等, 2006. 异常压力盆地流体动力学. 武汉: 中国地质大学出版社, 1–178.

谢寅符, 李洪奇, 孙中春, 等, 2006. 准噶尔盆地石南地区侏罗

系—白垩系间风化壳的发现及其地层学意义. 地质论评, 52(1): 137–144.

徐同台, 王行信, 张有瑜, 等, 2003. 中国含油气盆地粘土矿物. 北京: 石油工业出版社, 422–456.

杨智, 何生, 何治亮, 等, 2008. 准噶尔盆地腹部超压层分布与油气成藏. 石油学报, 29(2): 199–205.

于炳松, 赖兴运, 2006a. 克拉 2 气田储集岩中方解石胶结物的溶解及其对次生孔隙的贡献. 矿物岩石, 26(2): 74–79.

于炳松, 赖兴运, 2006b. 成岩作用中的地下水碳酸体系与方解石溶解度. 沉积学报, 24(5): 627–635.

查明, 张卫海, 曲江秀, 等, 2000. 准噶尔盆地异常高压特征、成因及勘探意义. 石油勘探与开发, 27(2): 31–35.

张义杰, 2002. 准噶尔盆地水岩反应产物的地球化学特征. 新疆石油地质, 23(6): 482–484.

张枝焕, 常象春, 曾溅辉, 等, 1998. 水—岩相互作用研究及其在石油地质中的应用. 地质科技情报, 17(3): 69–74.

郑浚茂, 应凤祥, 1997. 煤系地层(酸性水介质)的砂岩储层特征及成岩模式. 石油学报, 18(4): 19–24.

钟大康, 朱筱敏, 张枝焕, 等, 2003. 东营凹陷古近系砂岩次生孔隙成因与纵向分布规律. 石油勘探与开发, 30(6): 51–53.

钟筱春, 赵传本, 杨时中, 等, 2003. 中国北方侏罗系(II)古环境与油气. 北京: 石油工业出版社.