

https://doi.org/10.3799/dqkx.2018.605



海相油气成藏定年技术及其对元坝气田长兴组 天然气成藏年代的反演

王杰^{1,2}, 刘文汇^{1,2}, 陶成^{1,2}, 腾格尔^{1,2}, 席斌斌^{1,2}, 王萍^{1,2}, 杨华敏^{1,2}

1. 中国石油化工集团公司油气成藏重点实验室, 江苏无锡 214126

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

摘要:我国海相叠合盆地的油气特征及成藏过程表现出很强的复杂性, 确定油气成藏年代极其困难, 建立有效的成藏定年技术显得尤为迫切。为此基于稀有气体 He 年代积累效应和油气藏保存机制, 建立了油气藏⁴He 成藏定年地质模型及年龄估算公式, 明确其为油气成藏定型时间; 基于天然气⁴⁰Ar/³⁶Ar 比值与源岩钾丰度及地质时代的关系, 建立了追溯油气源岩时代的 Ar 同位素估算模型。磷灰石、锆石(U-Th)/He 定年体系的封闭温度与含油气盆地生油气窗的温度范围较为一致, 磷灰石、锆石(U-Th)/He 年龄可以揭示含油气盆地抬升剥蚀时间、由构造抬升导致的油气藏调整时间, 建立了固体沥青、原油中沥青质提取、溶样、Re-Os 纯化富集及分离等 Re-Os 同位素测年前处理技术, 可以直接确定固体沥青、原油等的形成时间。按照含油气系统成藏地质要素形成时间或发生时间先后顺序, 提出了从确定源岩形成—油气生成—运移充注—调整改造—成藏定型等成藏过程的定年技术序列。开展四川盆地元坝气田源岩时代、生排烃、运移充注、调整改造及成藏定型等关键过程的时间节点综合研究, 明确了元坝气田的主力气源为上二叠统龙潭组烃源岩, 两期原油充注时间分别为 220~175 Ma、168~140 Ma; 油裂解气发生在 140~118 Ma, 元坝地区约 97 Ma 以来发生构造抬升, 尤其 15 Ma 以来气—水界面发生调整, 约在 12~8 Ma 气藏最终定型并形成现今的气藏格局。

关键词: He、Ar 成藏定年模型; Re-Os 同位素定年法; U-Th/He 定年; 元坝气田; 成藏关键时间节点; 石油地质。

中图分类号: P597

文章编号: 1000-2383(2018)06-1817-13

收稿日期: 2018-03-04

Key Dating Methods of Reservoir Accumulation in Marine Strata and Their Applications to Natural Gas of the Changxing Formation in Yuanba Gas Field

Wang Jie^{1,2}, Liu Wenhui^{1,2}, Tao Cheng^{1,2}, Tenger^{1,2}, Xi Binbin^{1,2}, Wang Ping^{1,2}, Yang Huamin^{1,2}

1. Key Laboratory of Petroleum Accumulation Mechanisms, SINOPEC, Wuxi 214126, China

2. Wuxi Research Institute of Petroleum Geology, Exploration and Production Research Institute, SINOPEC, Wuxi 214126, China

Abstract: Petroleum characteristics and accumulation of the marine superimposed basins show strong complexity, which makes it difficult to determine key time of reservoir accumulation. It is urgent to establish effective dating methods for hydrocarbon source age, hydrocarbon generation and expulsion time, reservoir adjustment and stabilization time. On the basis of helium age accumulation effect and reservoir preservation mechanism, the helium dating model and age estimating formulas are put forward to determine the time of reservoir formation and stabilization retention after large scale of petroleum charging in this paper. According to the relationships between the ⁴⁰Ar/³⁶Ar ratio of natural gas, potassium abundance of source rock and the geological time, argon isotopic estimation model on the source rock age is fitting by many parameters. Based on the closure temperature on U-Th/He dating system of apatite and zircon being consistent with the temperature scope of hydrocarbon genera-

基金项目: 中国石化股份公司科技部四川项目群(No.P16079); 国家重点基金项目(No.U1663201)。

作者简介: 王杰(1975—), 男, 高级工程师, 博士, 主要从事油气地质及有机地球化学研究。ORCID: 0000-0001-5351-365X。

E-mail: wangjie.syky@sinopec.com

引用格式: 王杰, 刘文汇, 陶成, 等, 2018. 海相油气成藏定年技术及其对元坝气田长兴组天然气成藏年代的反演. 地球科学, 43(6): 1817—1829.

tion in sedimentary basin, uplift time and reservoir transformation time induced by tectonic uplift are revealed by means of time and closure temperature difference of close system in apatite and zircon, and geothermal gradient of sedimentary basin. By means of a series of condition test, pretreatment techniques including asphaltene extraction, acid dissolving, rhenium-osmium purity, enrichment and separation are established. Re-Os isotopic dating can be used to directly date hydrocarbon source rock, solid bitumen, oil and oil sand and offer hydrocarbon generation and migration time. According to priority of the formation time or occurrence time of geological part of reservoir, the key dating technologies to determine source rock age, hydrocarbon generating time, charging time, reservoir adjustment and stabilization time are established. By means of dating technologies, the key time including source rock age, hydrocarbon charging time, gas reservoir adjustment and stabilization time are determined in Yuanba gas field in Sichuan basin. It is indicated that the main gas source is composed of the Longtan Formation hydrocarbon source rocks, and two stages crude oil charging time being from 220 Ma to 175 Ma and from 168 Ma to 140 Ma, large scale crude oil began to crack into gas between 140 Ma and 118 Ma. Tectonic uplift began to occur since 97 Ma, especially since 15 Ma, gas and water interface began to adjust until gas reservoir kept stabilization between 12 Ma and 8 Ma.

Key words: He and Ar dating model; Re-Os isotopic chronology; U-Th/He dating method; Yuanba gas field; crucial time of reservoir accumulation; petroleum geology.

0 引言

我国海相叠合盆地油气勘探潜力巨大,但在多期构造活动背景下,具有多套烃源、多期生排烃、多期成藏和后期调整改造等特点,油气成藏期次及成藏时间的确定是油气勘探的关键问题,主要面临以下难题,一是由于烃源岩层系时代多、时代老,需要确定源岩年龄;二是成藏演化过程长,需要确定生烃、排烃、聚集、保存时间节点;三是多源生烃、多期油气运聚混合成藏过程复杂,需要不同的定年体系相互印证、衔接,上述问题直接影响着海相油气的勘探效率和资源评价.传统的成藏期及定年分析主要根据盆地构造—热演化史、烃源岩生烃史、油气运移充注史、圈闭形成史,从油气藏的生、储、盖、运、聚、保各项成藏地质要素的有效配置关系和时间次序来综合判断,主要依据烃源岩的主生烃期、圈闭形成期、油藏饱和压力等分析油气藏形成期,这些方法是间接的定性研究.随着油气地球化学分析技术及其仪器设备的发展,自 20 世纪 90 年代以来,结合构造演化史、沉积成岩史、埋藏—热演化史等地质历史分析,主要利用有机地球化学、放射性同位素测年和流体包裹体分析等获得了油气成藏时间的地球化学证据,实现了由早期传统的定性方法向半定量或定量方法的重要转变,但上述方法为间接、定性或半定量/定量研究,只是针对单一成藏要素时间的定年方法,主要用于约束油气运聚期次和成藏时间(Saigal *et al.*, 1992; Thiéry *et al.*, 2002; 肖贤明等, 2002; 赵靖舟, 2002; 张有瑜等, 2007; 刘文汇等, 2013),且有人利用稀有气体 Ar 同位素组成估算气源岩年龄(Liu and Xu, 1993; 徐永昌, 1996),但国内外还没有

建立起系统的反演油气成藏关键过程的定年技术序列,用于确定海相油气成藏关键过程的时间节点.

元坝气田构造上位于四川盆地东北缘川中低缓构造带北缘,九龙山构造带南翼及通南巴构造带西南侧,处于川北坳陷与川中隆起的过渡带,属于川中低缓构造带的一部分(图 1).元坝气田是我国目前埋藏最深的高含硫海相大气田,以上二叠统长兴组生物礁为主要目的层,气藏平均埋深 6 673 m,最深之处达到 7 400 多 m;截止到 2012 年底,元坝气田海相地层累计探明天然气地质储量 2 195 亿方,三级探明储量 5 150 亿方(马永生等, 2014).作为四川盆地埋藏最深的海相气田,理清元坝气田的气源及其成藏过程,确定元坝气田成藏关键过程的时间节点,进而揭示四川盆地海相层系油气成藏过程及成藏规律,对快速推进四川盆地乃至全国海相深层天然气勘探具有重大的指导意义.

本区存在震旦系陡山沱组、下寒武统筇竹寺组、上奥陶统五峰组—下志留统龙马溪组、上二叠统龙潭组(吴家坪组)和大隆组、上三叠统须家河组等多套烃源岩.前人通过对天然气—烃源岩碳同位素、储层沥青—干酪根之间的碳同位素、烃源岩地球化学特征及其分布规律、生储盖的匹配关系大致定性推断出元坝气田长兴组天然气的主力气源为上二叠统 P_2w 、 P_2l 优质烃源岩(郭彤楼, 2011; 严丽等, 2011; 郭旭升等, 2014; 吴小奇等, 2015),来自志留系及以下地层的可能性较小;个别学者认为可能来自于志留系烃源岩(范小军, 2012),缺乏气源岩时代的定年方法.前人通过流体包裹体均一温度分析得出元坝古油藏具有 2 期原油充注的特点(张元春等, 2010; 段金宝等, 2013),但两期充注的时间不相同,因此对

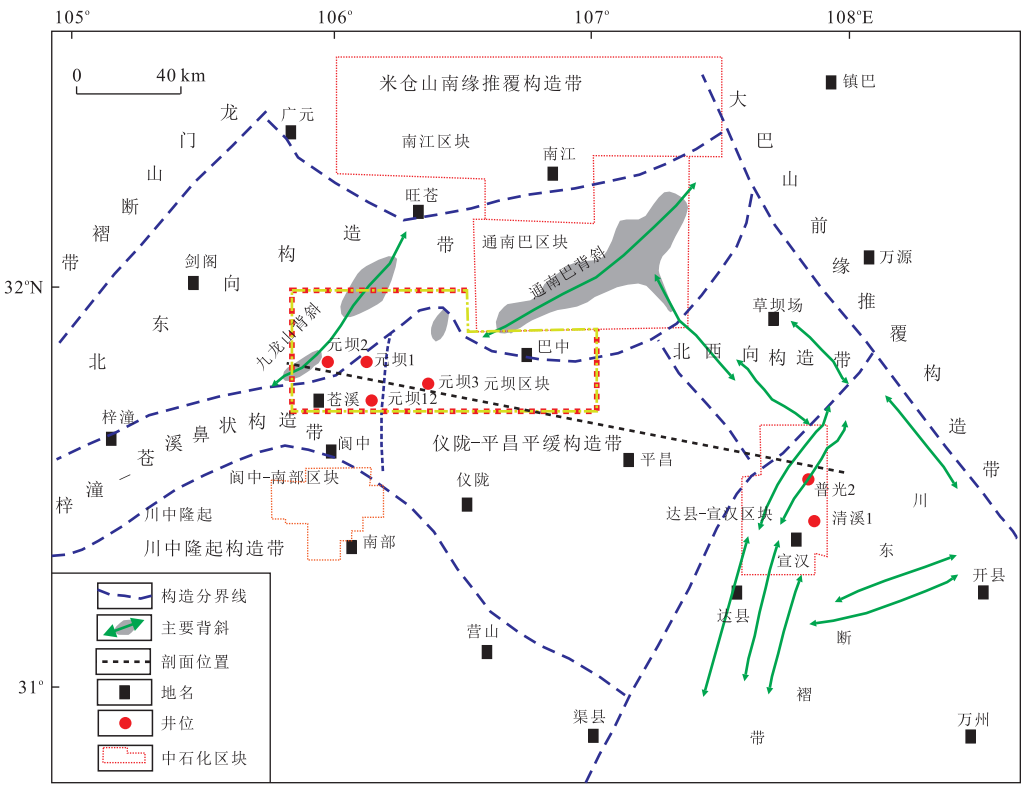


图 1 四川盆地元坝气田构造位置

Fig.1 The structural location map of Yuanba gas field in Sichuan basin

元坝古油藏充注期次及时间还存在较大分歧,且元坝古油藏中原油晚期裂解成气的期次及时间还缺乏厘定.元坝地区在印支—燕山期受周边山系强烈隆升的影响,发生局部隆升,该期构造运动促使元坝气藏发生调整改造,但现有的定年技术手段无法推断出由构造抬升引起的油气藏调整时间以及气藏调整定型的时间.为此,笔者建立了稀有气体氦—氩定年、流体包裹体古温压定年、磷灰石(U-Th)/He定年等技术,在此基础上反演元坝气田长兴组天然气成藏关键过程的时间节点.

1 油气成藏定年新方法

1.1 Ar 同位素定年模型反演气源岩时代

油气中稀有气体的丰度和同位素组成主要受岩石中放射性衰变(时间效应)和吸附、溶解等物理过程的影响,氦、氩同位素具有明显的年代累积效应,因此是对复杂油气成藏过程进行定年的最有效手段之一.在以壳源气为主的天然气中,随着气源岩时代越老,源岩中放射性成因⁴⁰Ar和⁴He累积越多,相应地进入油气藏中的⁴⁰Ar和⁴He也越多,因此时代越老,天然气中³He/⁴He比值越小、⁴⁰Ar/³⁶Ar比值

越大.天然气氩同位素比值主要在天然气成因及气源追溯、壳—幔物质相互作用判识等方面发挥了独特优势,不适宜用于气源岩时代的判识,氩同位素组成是判别烃源岩时代最有效的指标(王杰等,2010).前人基于对我国中东部天然气氩同位素组成特征和气源岩时代关系的综合研究,利用数理统计的方法建立了⁴⁰Ar/³⁶Ar比值与气源岩年代的数学公式(Liu and Xu,1993;徐永昌,1996),该公式主要适用于泥质烃源岩(K含量普遍高,大于2.6%).而我国海相层系普遍发育碳酸盐岩地层,源岩中元素K含量不高,不能满足先前的数学公式所需条件.一般来说,天然气中⁴⁰Ar/³⁶Ar比值常受气源岩中放射性元素K含量、盆地构造活动强度、大地热流、深部岩浆侵入、深大断裂发育等因素的影响.我国绝大部分气田的天然气³He/⁴He比值介于10⁻⁸~10⁻⁷,接近于壳源氦值,区域构造稳定,可忽略幔源Ar的影响.在构造活动相对不太稳定的含油气区,对于幔源⁴⁰Ar的影响,可通过天然气中³He/⁴He同位素比值来剔除,采用壳—幔二元复合模式计算幔源氩的贡献,进而推断出幔源⁴⁰Ar含量的比例,扣除后得到的⁴⁰Ar主要由烃源岩中⁴⁰K衰变产生.基于此,理清天然气中Ar的源岩年代累积效应,确定了合理的模型假

设条件,从 ^{40}K 外层电子捕获形成稳定同位素 ^{40}Ar 的衰变方程,着手重新构建天然气藏源岩 Ar 年龄模型.在烃源岩生烃演化过程中,源岩中 ^{40}K 蜕变产生的 ^{40}Ar 析出宿主矿物随油气载体一起运移扩散到天然气藏中,由于 ^{40}Ar 和 ^{36}Ar 成比例运移, $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值不会发生变化,因此天然气藏中氩同位素组成代表了源岩特征.可以作如下近似性假设:烃源岩一天然气藏体系中放射性元素母体及其蜕变产物是一个相对封闭的平衡体系,氩组分在气、固两相中达到动态平衡.依据稀有气体氩同位素年代效应和其在油气藏中的聚散机制,气藏中天然气 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 比值主要受源岩中放射性元素 K 丰度、储层物性、在气固两相的扩散系数、衰变时间等影响,因此建立了油气藏中氩年代积累效应的数学模型和数学公式,即:

$$^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} = 1\,120[\text{K}]^2 \times (e^{\lambda t} - 1)^2 + 2\,024[\text{K}] \times (e^{\lambda t} - 1) + 295.5, \quad (1)$$

其中, $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 为天然气氩同位素比值; $[\text{K}]$ 为源岩中元素 K 的丰度, $\%$; λ 为 ^{40}K 衰变成 ^{40}Ar 和 ^{40}Ca 的衰变常数; t 为源岩的时代, Ma .该公式有效约束了油气源岩时代,不仅适用天然气、伴有溶解气的原油,而且还可用于储层岩石脱附气.

1.2 固体沥青、原油 Re-Os 同位素定年方法推断油气生成时间

油气生成时间的直接、定量确定是国内外石油地质界面临的一个具有挑战性的科学难题. Re-Os 同位素测年方法就是基于放射性 ^{187}Re 通过 β 衰变成 ^{187}Os ,导致钨同位素组成($^{187}\text{Os}/^{188}\text{Os}$)随时间变化来计算地质年代.由于 ^{188}Os 不是放射性成因,因此用以 ^{188}Os 为标准的 Re-Os 等时线方程来计算年龄. Re-Os 同位素测年方法被广泛应用于同位素地质年代学、金属矿床成矿年龄的研究(Stein *et al.*, 1998; Selby and Creaser, 2001; Lawley *et al.*, 2013).近些年来, Re-Os 同位素测年法作为一种新的油气成藏定年方法(Selby and Creaser, 2005; Selby *et al.*, 2007; Rooney *et al.*, 2012),可以直接对油气成藏的沉积有机质(烃源岩、固体沥青、原油和油砂等)进行定年,进而获得源岩时代、油气生成时间等年龄信息. Re 、 Os 元素具有亲铁、亲硫和亲有机质的特性,主要以有机络合物的形式长期稳定地存在于固体沥青、干酪根、原油等有机质中并发生相对富集(Selby *et al.*, 2007; Yamashita *et al.*, 2007).在烃源岩生烃演化过程中,烃源岩中的 Re 、 Os 元素进入原油系统后 Re-Os 同位素地质时钟开始启动,不同

期次生成的原油地质计时器的启动时间不同.原油的生成与热成熟作用不会影响 Re-Os 同位素体系的封闭性.同时该体系油气从源岩迁移到油气藏中,不受途经岩石或储层围岩中 Re 、 Os 元素的干扰以及后期蚀变、破坏改造作用影响而保持很好的封闭性(王杰等, 2016).因此,原油和固体沥青中 Re 、 Os 等同位素组成反映的是烃源岩生成石油时的同位素组成(Rooney *et al.*, 2012),原油和固体沥青 Re-Os 等同位素定年体系确定的是油气生成时间(Selby and Creaser, 2005; Rooney *et al.*, 2012). Re-Os 同位素测年技术的关键在于对赋存于沥青质、干酪根等极性化合物中的 Re 、 Os 进行纯化富集、提取分离, Re-Os 同位素分析的主要过程包括样品制备、样品加酸热化学消解、 Re 和 Os 的纯化富集与化学分离、 Re 和 Os 含量和同位素比值的质谱分析等(王杰等, 2016).用Isoplot软件处理实验分析得到的 Re-Os 含量和同位素分析数据,根据等时线的斜率计算出年龄,进而推断出油气生成的时间.为了保证定年数据的可靠性,实验分析时要保证一定样品数量及数据离散性(子母体元素含量具有足够的分异).

1.3 流体包裹体古温压恢复反演油气运移充注时间

在含油气盆地中伴随着储层自生矿物的生长,由于受各种地质因素的影响,常使矿物产生解理、裂隙或晶格缺陷,在油气向储层运聚成藏过程中常可以形成大量流体包裹体,这些包裹体含有丰富的油气成藏信息,保留了油气流体形成条件和成分特征,可以反映油气成藏时的温度、压力、成矿溶液盐度和密度等信息.运用包裹体方法确定成矿的地质年龄方面早已得到广泛应用,在20世纪90年代才开始广泛应用于油气藏的成藏年代学研究,许多学者应用油气储层中与烃类包裹体共生的盐水包裹体均一温度,结合埋藏史和热演化史进一步推测出油气成藏期次及成藏时间,是成藏年代分析最常用的方法之一(肖贤明等, 2002; 陈红汉等, 2003; 米敬奎等, 2006).包裹体均一温度受捕获流体的相态特征、包裹体的体积及成分等是否发生后期的不可逆变化等因素的影响,因此均一温度并不一定等同于捕获温度,所以利用包裹体古温压恢复反演包裹体捕获时的温压条件,结合热埋藏史,可以更准确地厘定油气运移充注的时间/深度(刘德汉等, 2010; 施伟军和席斌斌, 2016).

当不同气液比、不同类型包裹体共生分布时,表明包裹体捕获时流体处于气+液±固不混溶状态.前人研究表明,气-液不混溶包裹体组合中代表气

相端元的包裹体和液相端元的包裹体均一温度近似相等,且其均一温度及均一压力等于捕获温度和捕获压力.采用刘斌和沈昆(1999)提出的气-液不混溶体系包裹体古压力计算方法对捕获压力进行计算,在忽略代表气相端元的包裹体中所含有水的基础上,求得其等容线,使其与伴生的液相端元的包裹体均一温度相交,烃包裹体和盐水包裹体等容线的交点即为捕获温度和压力(图 2).为了计算纯气相包裹体等容线,在室温条件下定量测定包裹体的气相组成及内压,利用自主研发的流体拉曼光谱标定仪标定流体包裹体中 CH₄、CO₂、H₂S 等气体的定量因子,以及气体 CH₄ 的拉曼位移与内压的关系,并在此基础上利用 PVTsim 软件结合激光拉曼测定的包裹体的气相组成以及室温下包裹体的 CH₄ 拉曼位移值与内压的关系进行计算.

1.4 磷灰石等 (U-Th)/He 定年方法推断由构造抬升导致的油气藏调整改造时间

(U-Th)/He 定年原理是基于磷灰石、锆石等矿物颗粒中 U、Th 放射性元素蜕变产生⁴He,并在一定温度点由于某种地质事件而使矿物颗粒进入 He 封闭体系,进而启动地质时钟进行定年,矿物 (U-Th)/He 年龄是岩石冷却到相应矿物从 (U-Th)/He 体系封闭到现在的时间,记录了从矿物经历封闭温度后的构造演化历史.岩石冷却到锆石封闭之前时,锆石和磷灰石 (U-Th)/He 体系处于开放体系,当岩石冷却进入锆石封闭温度时,锆石 (U-Th)/He 体系进入封闭状态,He 年龄记录了进入封闭状态后到现在的时间;当岩石冷却进入磷灰石封闭温度时,磷灰石 (U-Th)/He 体系进入封闭体系,He 年龄记录了从当时到现在的时间.利用四级

杆质谱测定磷灰石、锆石等矿物中的母体同位素 ²³⁸U、²³⁵U、²³²Th 和放射性产物子体⁴He 含量,然后再根据衰变方程:

$${}^4\text{He}=8\times {}^{238}\text{U}(\text{e}^{\lambda {}^{238}\text{t}}-1)+7\times {}^{235}\text{U}(\text{e}^{\lambda {}^{235}\text{t}}-1)+6\times {}^{232}\text{Th}(\text{e}^{\lambda {}^{232}\text{t}}-1),$$

(2)

进行计算即可得到矿物的 (U-Th)/He 年龄.目前 (U-Th)/He 热定年技术作为一种低温热年代学研究的新技术,在地质体定年、差异剥蚀、热演化、古地形地貌演化和沉积物源分析等得到了广泛应用(House *et al.*, 1998; Reiners *et al.*, 2002, 2003; Green *et al.*, 2003; Stock *et al.*, 2006),同时为盆地热演化历史的恢复提供了一条新的手段(Qin *et al.*, 2008).目前,学者们正在利用这项技术开展沉积盆地的剥蚀厚度恢复、热史动态演化评价及烃源岩生烃转化时代等方面的研究(邱楠生等, 2008; Wang *et al.*, 2013),对确定构造形成后石油生成的时代及识别可能已导致聚集间断的构造幕以及更加有效地进行石油勘探均有很重要的意义.通过系统的条件试验和探索,构建了磷灰石、锆石 (U-Th)/He 定年分析平台及技术方法(王杰等, 2012),主要过程包括:(1)磷灰石、锆石颗粒制备、挑选、描述、测量、照相和装载;(2)矿物颗粒在 980 nm 激光下释气和⁴He 定量分析;(3)磷灰石、锆石颗粒矿物酸热化学消解;(4)加入同位素稀释剂测定磷灰石、锆石矿物颗粒的 U、Th 含量;(5)根据衰变方程计算磷灰石、锆石 (U-Th)/He 年龄;(6) (U-Th)/He 年龄校正模型的建立与年龄校正,建立了针对沉积盆地的年龄校正模型.

目前,用于 (U-Th)/He 定年分析的矿物主要有磷灰石、锆石、榍石、角闪石和石榴子石等,最常用的为磷灰石和锆石.不同矿物的 (U-Th)/He 体系的封

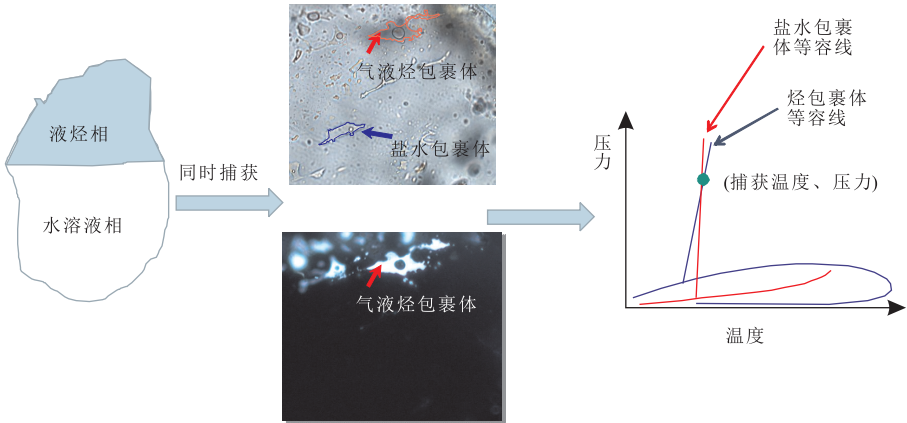


图 2 流体包裹体古温压恢复过程示意

Fig.2 The process diagram of the paleo temperature-pressure recovery of fluid inclusions

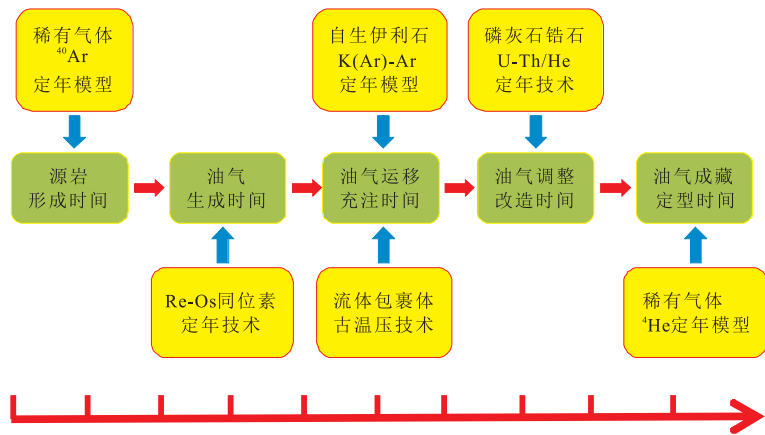


图 3 反演油气成藏关键过程的定年技术序列

Fig.3 The dating technique series to infer the key time of petroleum accumulation process

闭温度差别较大,磷灰石 He 封闭温度为 $75\pm 7\text{ }^{\circ}\text{C}$, 锆石 He 封闭温度介于 $170\sim 190\text{ }^{\circ}\text{C}$ (Reiners *et al.*, 2002). 基于磷灰石和锆石之间 He 定年体系封闭温度差异较大、He 封闭温度范围处于含油气盆地生油气温度窗范围内等特点,利用磷灰石和锆石 He 体系的年龄差、封闭温度差以及含油气盆地的地温梯度等信息,揭示含油气盆地温度—时间的动态演化历程,反演沉积盆地中构造抬升剥蚀时间、剥蚀厚度、热史动态演化以及由构造抬升造成的对油气藏调整改造时间及成藏年代的约束等。(U-Th)/He 定年方法是一种间接的油气成藏定年方法,在反演含油气盆地中构造抬升、沉积盆地动态热史、油气成藏过程及其成藏时代等方面具有独特的优势,但该方法不适用于持续沉降性和先抬升后沉降性盆地。

1.5 He 同位素用于约束油气成藏定型时间

前人常用稀有气体³He/⁴He 比值判断沉积盆地的构造活动性、天然气成因、大地热流和气源追溯等(陶明信等, 1996; 杜建国等, 1998; 刘文汇等, 2007),用于成藏定年研究仅见个别文献有报道(刘文汇等, 2013)。³He 主要来源于地球形成时的宇宙星云,放射成因⁴He 主要通过放射性 U、Th 等元素 α 衰变产生,具有极强的渗透性和扩散性,受扩散、地热、核反冲和地质外力等作用下脱离宿主矿物成为游离气态,和油气一样受生、储、运、聚等地质要素影响并在油气藏中聚集,呈现一定的年代累积效应。当油气大规模聚集成藏时,由于 He 在液相中溶解度极低,相对在气相中更容易发生聚集,He 在气相中开始累积,此时油气藏中 He 定年时钟开始启动。油气藏形成是一个运聚动态平衡的过程,He 随着油气的聚集不断累积,但由于 He 具有很强的扩散

性和渗透性,即使有很好的盖层油气藏中 He 也会发生散失。综合考虑稀有气体 He 的所有来源,从油气藏形成的初始 He、由储层原位产生的 He、外部来源的 He 以及 He 的散失等 4 个方面对油气藏中 He 的累积进行量化,油气藏中初始 He 近似为零,其他 3 个方面 He 的内涵及量化详见文献(Liu *et al.*, 2017)。在 He 达到聚散平衡前,基于相关地质模型,引入气藏特征参数,对天然气藏中 He 的累积速率及累积量、He 散失量以及气藏形成的时间之间的关系进行数学模型量化,进而建立了约束天然气藏形成时代的 He 定年公式(Liu *et al.*, 2017),明确其定年地质意义为油气大规模充注后油气藏形成并保持稳定的地质时间,即油气藏调整改造之后的定型时间。

现今发现的海相层系油气藏都经历了成源—成储—成烃—成藏—调整和动态保存过程,不过由于不同含油气盆地地质背景的差异,不同油气藏的源—藏—保存的动态过程可能会有些差异,对于我国复杂的海相叠合盆地,基本上都涉及到了成藏要素的全过程,因此每一个节点的时间确定,对油气勘探至关重要。为此,按照含油气系统地质要素形成时间或发生时间的先后顺序,建立了从确定源岩形成—油气生成—油气运移充注—油气藏调整改造—油气成藏定型等油气成藏关键过程的定年技术序列(图 3)。

2 元坝气田天然气成藏关键过程时间的确定

根据所研究油气藏的类型选取相应的定年技术组合,再结合区域地质特征、油气地质和地球化学特

征,利用油气成藏定年技术序列推断元坝气田长兴组天然气成藏关键过程的时间节点,为此需要选取一定数量的具有空间分布的天然气样品(最好为钢瓶气)、有代表性的含有方解石脉或石英脉的储层岩石、储层上覆和下伏砂岩,在此基础上开展定年分析。

2.1 元坝气田天然气的源岩时代

元坝长兴组天然气以甲烷为主,C₂⁺含量很低,为高热演化程度的干气,主要为原油二次裂解的产物.前人通过对天然气—烃源岩碳同位素、储层沥青—干酪根之间的碳同位素、烃源岩地球化学特征及其分布规律、生储盖的匹配关系大致定性推断出元坝气田的主力气源岩为上二叠统 P_{2w}、P_{2l} 优质烃源岩,缺乏气源岩时代的定量评价.在此应用建立的源岩时代 Ar 同位素估算公式反演元坝长兴组天然气的源岩时代,定量识别其主力气源岩.元坝长兴组气藏 6 个天然气样品的 Ar 同位素分析数据见表 1.利用所建立的多参数拟合源岩年代 Ar 同位素估算新模型公式,估算出对应的源岩时代约为 250±12 Ma,结合天然气为原油裂解气,且下三叠统(TOC 平均值低于 0.4%)不发育烃源岩,推断出元坝长兴组天然气主力气源岩应为上二叠统龙潭组(吴家坪组),上二叠统大隆组应该也有部分贡献。

2.2 元坝气田油气运移充注的时间

包裹体样品采自元坝 9 井、元坝 27 井、元坝 224 井的长兴组和飞仙关组储层,共 13 个样品,其中 11 个样品来自长兴组,采样深度为 6 302.0~7 071.8 m,2 个样品来自飞仙关组,采样深度为 6 678.0~6 680.3 m,镜下观察包裹体的产状主要有 4 种:(1)分布于裂隙充填的方解石中,主要为气液两相盐水包裹体(图 4a),可见少量纯气相包裹体与其共生,包裹体个体较大,丰度较高;(2)分布于溶孔(洞)充填的白云石中,以气液两相盐水包裹体为主(图 4b),包裹体个体较小,丰度较低;(3)分布于溶孔(洞)充填的方解石中,以气液两相盐水包裹体为主,个体较小(图 4c),丰度较低;(4)分布于晶洞充填的石英中,包裹体类型丰富,气液两相、纯气相、含沥青包裹体均有发育,包裹体丰度较高,个体较大(图 4d 和图 4e),石英颗粒间还可见沥青充填,表明储集层曾经历原油充注和原油裂解,推测该产状中的包裹体可能形成于气藏主成藏期。

根据流体包裹体的产状以及发育情况,结合均一温度,可以划分出 2 期油充注,1 期气充注.早期发育裂隙充填方解石,均一温度从 98~130 ℃;晚期发育溶孔充填白云石和方解石,均一温度从 110~

表 1 元坝气田长兴组天然气氩同位素组成数据
Table 1 The argon isotope compositions of the Changxing Formation natural gas in Yuanba gas field

| 井号 | 层位 | 深度(m) | Ar 浓度(%) | ⁴⁰ Ar/ ³⁶ Ar |
|---------|------------------|-----------------|----------|------------------------------------|
| 元坝 1 | P _{2ch} | 7 330.7~7 367.6 | 0.001 | 507.0 |
| 元坝 221 | P _{2ch} | 6 686~6 720 | 0.010 | 304.9 |
| 元坝 222 | P _{2ch} | 7 020~7 030 | 0.008 | 353.3 |
| 元坝 224 | P _{2ch} | 6 625~6 636 | 0.029 | 458.0 |
| 元坝 273 | P _{2ch} | 6 811~6 880 | 0.036 | 475.0 |
| 元坝 103H | P _{2ch} | 7 729.8 | 0.001 | 595.0 |

150 ℃,对应于两期油充注,结合元坝地区热史—埋藏史,两期油充注时间分别为 220~175 Ma 和 168~140 Ma,对应于晚三叠世—早侏罗世、中侏罗世—早白垩世.根据流体包裹体产状分析表明,元坝 224 井长兴组(采样深度为 6 652 m)溶洞充填的石英中包裹体较发育,可见不同气液比的包裹体伴生分布,保存了气藏充注时的包裹体组合,镜下观察发现在溶洞壁上以及石英粒间有沥青充填,说明该溶洞是油气储集的有利空间.该包裹体组合可能代表了主成气期的流体特征,因此对该样品进行了激光拉曼分析.激光拉曼分析结果表明伴生的气包裹体主要由 CH₄+H₂S+CO₂ 组成,利用席斌斌等(2014)提出的方法计算得到包裹体的捕获温度约为 190~210 ℃,捕获压力约为 100.66~145.63 MPa,结合元坝地区热史—埋藏史分析,天然气捕获时间约在 140~118 Ma,对应时代为早白垩世。

2.3 元坝气田油气藏调整改造时间

关于构造抬升对油气藏调整时间的厘定,国内外都缺乏有效的技术手段,为此尝试用油气储层的上覆岩层和下伏岩层的砂岩(或火山岩)开展(U-Th)/He定年分析,依此约束由构造抬升运动引起的对油气藏调整改造的时间.对取自川东北元坝地区 T₃x²-K_{1j} 砂岩样品中磷灰石、锆石开展(U-Th)/He定年分析,磷灰石 He 年龄分布于 0.1~60.5 Ma,都远小于样品的地层年龄,说明上述样品在地质演化历史中都进入了磷灰石 He 封闭温度.元坝气田 K_{1j} 样品磷灰石 He 年龄分布介于 13.1~60.5 Ma,说明该样品比较接近于磷灰石 He 封闭体系,其余层位 He 年龄均值介于 0.2~14.9 Ma,这说明该区中生代地层在古近纪—新近纪遭受快速抬升剥蚀事件(王杰等,2012).该区锆石 He 年龄及变化范围随现今地温或埋藏深度的增加逐渐变大,表明该区中生代地层锆石年龄反映其沉积物源信息,处于He部分保留区,其经历的最高古地温曾接近于

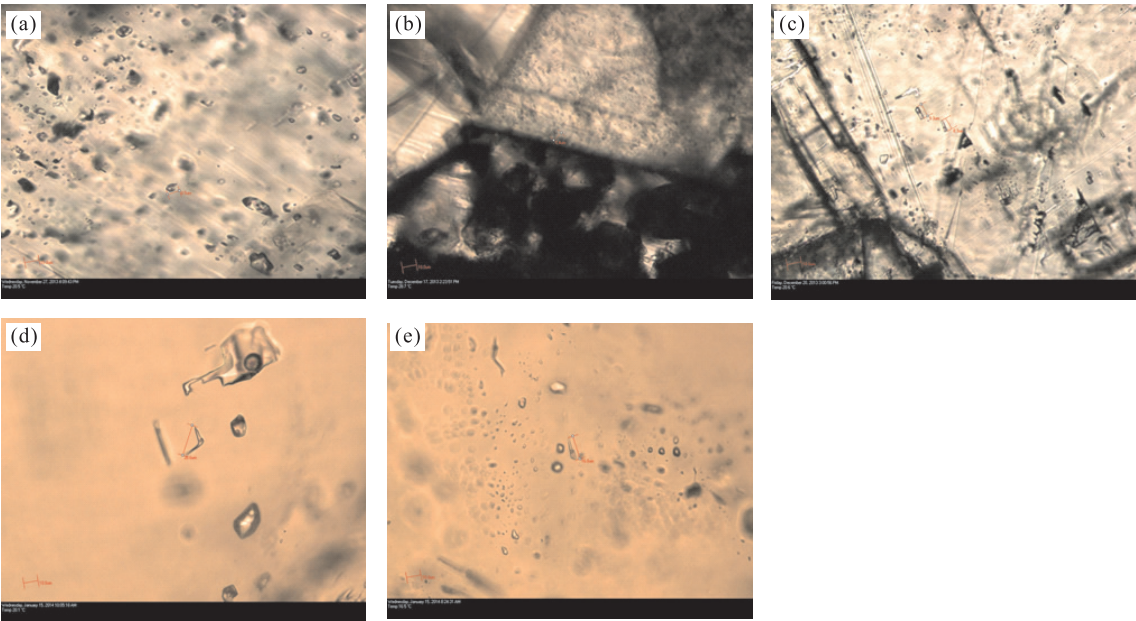


图 4 元坝气田流体包裹体显微照片

Fig.4 Microscopic photographs of fluid inclusions in Yuanba gas field

表 2 元坝气田长兴组天然气⁴He 丰度、氦同位素组成数据

Table 2 The ⁴He abundances and helium isotope compositions of the Changxing Formation natural gas in Yuanba gas field

| 气井 | 地层 | 井深(m) | ⁴ He(10 ⁻⁶) | ²⁰ Ne(10 ⁻⁶) | ³ He/ ⁴ He | ⁴ He/ ²⁰ Ne |
|--------|-------------------|-------|------------------------------------|-------------------------------------|----------------------------------|-----------------------------------|
| 元坝 9 | P ₂ ch | 6 840 | 112 | 0.5 | 1.1×10 ⁻⁸ | 245 |
| 元坝 27 | P ₂ ch | 6 280 | 227 | 0.2 | 1.0×10 ⁻⁸ | 1 115 |
| 元坝 204 | P ₂ ch | 6 550 | 121 | 0.2 | 0.8×10 ⁻⁸ | 517 |
| 元坝 224 | P ₂ ch | 6 625 | 120 | — | 5.5×10 ⁻⁹ | — |
| 元坝 273 | P ₂ ch | 6 811 | 160 | — | 6.2×10 ⁻⁹ | — |
| 元坝 103 | P ₂ ch | 7 729 | 87 | 0.34 | 7.2×10 ⁻⁹ | 256 |
| 平均值 | | | 138 | 0.3 | 1.0×10 ⁻⁸ | 626 |

锆石封闭温度,但没有达到锆石封闭温度。

根据该区磷灰石、锆石(U-Th)/He 定年数据分析表明,在早白垩世(约 97 Ma)该区开始发生构造抬升,中生代及其以上地层剥蚀厚度约 4 000 m,受米仓山和大巴山先后隆起构造影响,该区在 15 Ma 开始发生快速强烈抬升事件,但由于九龙山、通南巴等大型背斜构造的遮挡,元坝地区内构造运动较弱,此时构造—岩性复合圈闭发生调整,同时气、水关系发生调整,但幅度较小,造成不同圈闭具有不同的气水界面,形成了现今气藏内部高气、低水的整体面貌(郭旭升和胡东风,2011)。

2.4 元坝气田油气藏稳定定型时间

元坝气田天然气氦同位素比值在 10⁻⁸量级,为典型壳源放射性成因,可以忽略幔源 He 的影响。部分天然气的⁴He 丰度在(87~227)×10⁻⁶范围内,平均为 138×10⁻⁶(见表 2)。

为计算普气藏储集层原位⁴He 的累积速率,首先要明确气藏体积、储层中 U 和 Th 含量及孔隙度参数。前期对元坝气田储集岩中 U、Th 的含量进行测量,其特征值 U=1.58×10⁻⁶,Th=0.24×10⁻⁶。元坝气田的一些气藏特征参数采用前人研究成果,元坝气田长兴组气藏平均埋深超过 6 530 m,具有横向变化大和非均质性强的特点,储集层有效厚度介于 20~70 m,气藏含气面积为 155.33 km²,探明地质储量为 2 194×10⁸ m³。据长兴组岩心样品分析统计,其孔隙度平均值为 5.2%,孔隙度大于 2.0%的样品占总样品数的 86.2%(冯明刚等,2012)。依据所建立的⁴He 成藏定年公式,结合元坝气田长兴组天然气⁴He 含量和气藏特征参数,估算出元坝气田长兴组气藏成藏定型时间介于 12~8 Ma,对应于新近纪的中新世(喜山晚期),气藏调整结束,构造—岩性复合圈闭格局形成并保持稳定,此时天然气逐渐富集

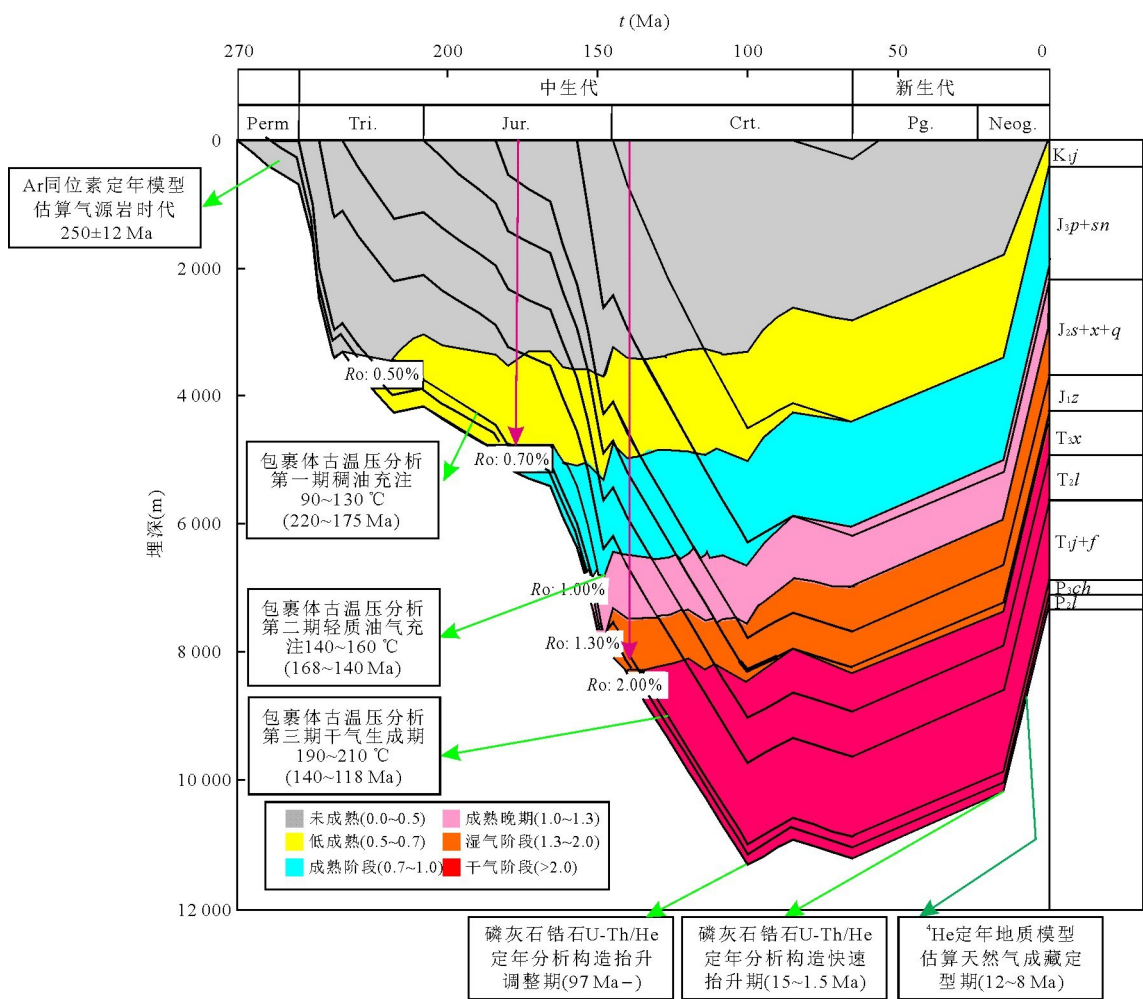


图 5 元坝气田热史—埋藏史及成藏关键过程的时间节点

Fig.5 The key time of petroleum accumulation and thermal-burial history of Yuanba gas field

形成现今的天然气藏。

2.5 元坝成藏时间及关键过程反演

依据所建立的油气成藏关键过程的定年技术序列,结合元坝地区热史—埋藏史等区域地质特征,厘定了元坝气田油气源岩时代为 250±12 Ma(主力气源为上二叠统龙潭组),2 期油充注及 1 期气运移充注时间分别为 220~175 Ma(T₃-J₁)、168~140 Ma(J₂-K₁)及 140~118 Ma(K₁),气藏调整改造时间从 97 Ma 开始,15 Ma 以来发生较强的气—水调整,最终气藏稳定定型时间介于 12~8 Ma(图 5)。根据烃源岩的生烃史、储集体发育演化史、油气运移充注史及输导体系演化史,元坝气田的油气聚集成藏过程约为 4 个过程:(1)晚印支期—早燕山期(T₃末—K₁)。晚印支期,上二叠统烃源岩处于成熟演化阶段,开始大量生油,但元坝地区在该时期没有发生大的构造运动,断层和裂缝不发育,长兴组储层没有形成有效的输导体系和运移通道。在早燕山期,烃源岩进

入生油高峰,大规模原油生成并发生运移,此时长兴组礁滩相储层发育层间裂缝和构造节理,在垂向上与烃源岩相通,储层孔隙与裂缝一起构成油气垂向输导与侧向汇聚的输导体系,同时元坝地区还处在继承性古构造相对较高的部位,使得原油得以在长兴组聚集并形成构造—岩性古油藏。(2)早燕山晚期(K₁,距今约 140 Ma)。此时期受盆缘造山运动的影响,该区继续发生沉降,古油藏埋藏深度达到 4 500 m,古油藏温度超过 160 °C。在中晚侏罗世,古油藏原油开始大量裂解形成气藏。此时期在高温条件下硫酸盐热化学还原作用产生的 H₂S、CO₂ 等酸性流体促进了储层埋藏溶蚀,且构造作用产生了大量裂缝,这不仅促进了优质储层的形成与发育,也使得气藏发生调整与富集,使得天然气在长兴组孔隙和裂缝中聚集形成古气藏。(3)晚燕山期以来(K₂,距今约 97 Ma)。受米仓山和大巴山强烈活动和隆起的影响,约 97 Ma 以来元坝地区整体发生构造抬升,尤其

在 15 Ma 左右以来,该区发生强烈构造抬升,长兴组天然气藏在构造抬升作用下气—水界面发生调整.但元坝地区飞仙关组第三段至雷口坡组数百米厚的膏岩为区域性优质盖层,不会破坏已经形成的天然气藏.(4)喜山晚期(距今约 12~8 Ma).元坝地区整体上还处于构造抬升活动,但此时气藏调整结束,最终定型并保持相对稳定,形成现今的气藏格局.

3 结论

(1)依据放射性元素的同位素年代积累效应和油气藏保存机制,按照含油气系统地质要素形成时间或发生时间的先后顺序,建立了从确定源岩形成—油气生成—油气运移充注—油气调整改造—油气成藏定型的油气成藏关键过程的定年技术序列.

(2)依据所建立的油气成藏关键过程的定年技术序列,结合元坝地区热史—埋藏史等区域地质特征,厘定了元坝气田油气源岩时代为 250 ± 12 Ma (主力气源为上二叠统龙潭组),2 期油充注及 1 期气运移充注时间分别为 $220 \sim 175$ Ma (T_3-J_1)、 $168 \sim 140$ Ma (J_2-K_1) 及 $140 \sim 118$ Ma (K_1),气藏调整改造时间从 97 Ma 开始,15 Ma 以来发生较强的气—水调整,约在 12~8 Ma 气藏最终定型并保持稳定.

(3)结合元坝地区储层演化、圈闭形成、烃源岩热演化史等地质特征,推断出元坝气田成藏过程为 4 个阶段:①在晚印支期—早燕山期(T_3 末— K_1)形成元坝古油藏,此时裂缝和储层孔隙已经形成,形成构造—岩性古油藏;②在早燕山晚期(K_1)原油开始大量裂解,形成元坝古气藏;③在晚燕山期以来,元坝地区发生抬升,造成构造—岩性圈闭和气—水界面的调整;④在喜山晚期约 12~8 Ma 期间,气藏调整结束,最终定型并保持相对稳定,形成现今的天然气藏.

References

- Chen, H. H., Li, C. Q., Zhang, X. M., et al., 2003. Using Fluid Inclusions Determine Hydrocarbon Accumulation Times and the Main Reservoir Formation Periods in Tahe Oilfield. *Earth Science Frontiers*, 10(1): 190 (in Chinese with English abstract).
- Du, J. G., Xu, Y. C., Sun, M. L., 1998. Helium Isotopes and Heat Flow in the Oil and Gas Bearing Basins in China's Continent. *Acta Geophysica Sinica*, 41(4): 494—501 (in Chinese with English abstract).
- Duan, J. B., Li, P. P., Chen, D., et al., 2013. Formation and Evolution of the Reef Flat Facies Lithologic Gas Reservoir of Changxing Formation in Yuanba Gas Field, Sichuan Basin. *Lithologic Reservoirs*, 25(3): 43—47, 91 (in Chinese with English abstract).
- Fan, X. J., 2012. Causes of Differences of Natural Gas Pooling between the Changxing Formation and the Feixianguan Formation in Yuanba, Sichuan Basin. *Natural Gas Industry*, 32(6): 15—20 (in Chinese with English abstract).
- Feng, M. G., Yan, L., Wang, X. L., et al., 2012. Lower Limit for Physical Property of Effective Reservoir in Changxing Formation, Yuanba Gas Field. *Petroleum Geology & Experiment*, 34(5): 535—538 (in Chinese with English abstract).
- Green, P. F., Duddy, I. R., Crowhurst, P. V., et al., 2003. Integrated (U-Th)/He Dating, AFTA and Vitrinite Reflectance Results in Seven Otway Basin Wells Confirm Regional Late Miocene Exhumation and Validate Helium Diffusion Systematic. *Annual Meeting Expanded Abstracts—American Association of Petroleum Geologists*, 12: 67.
- Guo, T. L., 2011. Basic Characteristics of Deep Reef-Bank Reservoirs and Major Controlling Factors of Gas Pools in the Yuanba Gas Field. *Natural Gas Industry*, 31(10): 12—16 (in Chinese with English abstract).
- Guo, X. S., Hu, D. F., 2011. Newest Progress and Key Techniques in Gas Exploration of Reef-Bank Reservoirs in the Northeastern Sichuan Basin. *Natural Gas Industry*, 31(10): 6—11 (in Chinese with English abstract).
- Guo, X. S., Huang, R. C., Fu, X. Y., et al., 2014. Gas Accumulation and Exploration Direction of the Permian and Triassic Reservoirs of Reef-Bank Facies in Sichuan Basin. *Oil & Gas Geology*, 35(3): 295—302 (in Chinese with English abstract).
- House, M. A., Wernicke, B. P., Farley, K. A., 1998. Dating Topography of the Sierra Nevada, California, Using Apatite (U-Th)/He Ages. *Nature*, 396: 66—69. <https://doi.org/10.1038/23926>
- Lawley, C., Selby, D., Imber, J., 2013. Re-Os Molybdenite, Pyrite, and Chalcopyrite Geochronology, Lupa Goldfield, Southwestern Tanzania: Tracing Metallogenic Time Scales at Midcrustal Shear Zones Hosting Orogenic Au Deposits. *Economic Geology*, 108(7): 1591—1613. <https://doi.org/10.2113/econgeo.108.7.1591>
- Liu, B., Shen, K., 1999. Fluid Inclusion Thermodynamics. Geological Publishing House, Beijing, 200—268 (in Chinese).
- Liu, D. H., Dai, J. X., Xiao, X. M., et al., 2010. High Density Methane Inclusions in Puguang Gasfield: Discovery and

- a T-P Genetic Study. *Science Bulletin*, 55 (Suppl.): 359—366(in Chinese).
- Liu, W. H., Chen, M. J., Guan, P., et al., 2007. Ternary Geochemical-Tracing System in Natural Gas Accumulation. *Science in China (Series D)*, 37(7): 908—915(in Chinese).
- Liu, W. H., Tao, C., Borjigin, T., et al., 2017. Formation Time of Gas Reservoir Constrained by the Time-Accumulation Effect of ^4He ; Case Study of the Puguang Gas Reservoir. *Chemical Geology*, 469: 246—251. <https://doi.org/10.13039/501100001809>
- Liu, W. H., Wang, J., Tao, C., et al., 2013. The Geochronology of Petroleum Accumulation of China Marine Sequence. *Natural Gas Geoscience*, 24(2): 199—209 (in Chinese with English abstract).
- Liu, W. H., Xu, Y. C., 1993. Significance of the Isotopic Composition of He and Ar in Natural Gas. *Chinese Science Bulletin*, 38(20): 1726—1730. <https://doi.org/10.1360/sb1993-38-20-1726>
- Ma, Y. S., Cai, X. Y., Zhao, P. R., 2014. Characteristics and Formation Mechanisms of Reef-Shoal Carbonate Reservoirs of Changxing-Feixianguan Formations, Yuanba Gas Field. *Acta Petrolei Sinica*, 35(6): 1001—1011 (in Chinese with English abstract).
- Mi, J. K., Zhang, S. C., Tu, J. Q., et al., 2006. Formation of Hadedun Oilfield in Tarim Basin, NW China. *Geochimica*, 35(4): 405—412(in Chinese with English abstract).
- Qin, J. Z., Wang, J., Qiu, N. S., 2008. Evidence of Thermal Evolution History of Northeast Sichuan Basin—(U-Th)/He Low Temperature Thermochronometry of Apatite and Zircon. *Journal of Earth Science*, 19(6): 591—601.
- Qiu, N. S., Qin, J. Z., McInner, B. I. A., et al., 2008. Tectono-thermal Evolution of the Northeastern Sichuan Basin: Constraints from Apatite and Zircon (U-Th)/He Ages and Vitrinite Reflectance Data. *Geological Journal of China Universities*, 14(2): 223—230 (in Chinese with English abstract).
- Reiners, P. W., Farley, K. A., Hickes, H. J., 2002. He Diffusion and (U-Th)/He Thermochronometry of Zircon: Initial Results from Fish Canyon Tuff and Gold Butte. *Tectonophysics*, 349(1—4): 297—308. [https://doi.org/10.1016/S0040-1951\(02\)00058-6](https://doi.org/10.1016/S0040-1951(02)00058-6)
- Reiners, P. W., Zhou, Z. Y., Ehlers, T. A., et al., 2003. Post-Orogenic Evolution of the Dabie Shan, Eastern China, from (U-Th)/He and Fission Track Thermochronology. *American Journal of Science*, 303(6): 489—518. <https://doi.org/10.2475/ajs.303.6.489>
- Rooney, A. D., Selby, D., Lewan, M. D., et al., 2012. Evaluating Re-Os Systematics in Organic-Rich Sedimentary Rocks in Response to Petroleum Generation Using Hydrous Pyrolysis Experiments. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 77(2): 275—291. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2011.11.006>
- Saigal, G. C., Bjorlykke, K., Later, S., 1992. The Effects of Oil Emplacement on Diagenetic Processes; Examples from the Fulmar Reservoir Sandstones, Central North Sea. *AAPG Bulletin*, 76(7): 1024—1033.
- Selby, D., Creaser, R. A., 2001. Re-Os Geochronology and Systematics in Molybdenite from the Endako Porphyry Molybdenum Deposit, British Columbia, Canada. *Economic Geology*, 96(1): 197—204. <https://doi.org/10.2113/gsecongeo.96.1.197>
- Selby, D., Creaser, R. A., 2005. Direct Radiometric Dating of Hydrocarbon Deposits Using Rhenium-Osmium Isotopes. *Science*, 308(5726): 1293—1295. <https://doi.org/10.1126/science.1111081>
- Selby, D., Creaser, R. A., Fowler, M. G., 2007. Re-Os Elemental and Isotopic Systematics in Crude Oils. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71(2): 378—386. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2006.09.005>
- Shi, W. J., Xi, B. B., 2016. Calculation of Paleo-Pressure in Gas Reservoirs Using Fluid Inclusions. *Petroleum Geology & Experiment*, 38(1): 128—134(in Chinese with English abstract).
- Stein, H. J., Sundblad, K., Markey, R. J., et al., 1998. Re-Os Ages for Archean Molybdenite and Pyrite, Kuittila-Kivisuo, Finland and Proterozoic Molybdenite, Kabeliai, Lithuania: Testing the Chronometer in a Metamorphic and Metasomatic Setting. *Mineralium Deposita*, 33(4): 329—345. <https://doi.org/10.1007/s001260050153>
- Stock, G. M., Ehlers, T. A., Farley, K. A., 2006. Where does Sediment Come from? Quantifying Catchment Erosion with Detrital Apatite(U-Th)/He Thermochronometry. *Geology*, 34(9): 725. <https://doi.org/10.1130/G22592.1>
- Tao, M. X., Xu, Y. C., Shen, P., et al., 1996. Tectonic and Geochemical Characteristics and Reserved Conditions of a Mantle Source Gas Accumulation Zone in Eastern China. *Science in China (Series D)*, 26(6): 531—536 (in Chinese).
- Thiéry, R., Pironon, J., Walgenwitz, F., et al., 2002. Individual Characterization of Petroleum Fluid Inclusions (Composition and P-T Trapping Conditions) by Microthermometry and Confocal Laser Scanning Microscopy: Inferences from Applied Thermodynamics of Oils. *Marine and Petroleum Geology*, 19(7): 847—859. [https://doi.org/10.1016/S0264-8172\(02\)00110-1](https://doi.org/10.1016/S0264-8172(02)00110-1)
- Wang, J., Boltsjun, T., Qin, J. Z., et al., 2013. Mesozoic Tectonic Evolution and Thermal History of the Yuanba Ar-

- ea of Northeast Sichuan Basin—Low Temperature Thermochronology of Apatite and Zircon. *Journal of Earth Science*, 24 (4): 599—605. <https://doi.org/10.1007/s12583-013-0355-9>
- Wang, J., Liu, W. H., Tao, C., et al., 2010. ⁴⁰Ar Dating Model of Gas Source Rocks and the Quantitative Identification of Mixture Ratios for Duality Sourced Gases in Gas Reservoirs. *Natural Gas Geoscience*, 21(1): 125—131 (in Chinese with English abstract).
- Wang, J., Qin, J. Z., Liu, W. H., et al., 2012. Mesozoic Tectonics and Dynamic Thermal History in Yuanba Area of Northeastern Sichuan Basin: Application of (U-Th)/He Dating of Apatite and Zircon. *Petroleum Geology & Experiment*, 34(1): 19—24 (in Chinese with English abstract).
- Wang, J., Tenger, Liu, W. H., et al., 2016. Definition of Petroleum Generating Time for Lower Cambrian Bitumen of the Kuangshanliang in the West Sichuan Basin, China: Evidence from Re-Os Isotopic Isochron Age. *Natural Gas Geoscience*, 27 (7): 1290—1298 (in Chinese with English abstract).
- Wu, X. Q., Liu, G. X., Liu, Q. Y., et al., 2015. Geochemical Characteristics and Genetic Types of Natural Gas in the Changxing-Feixianguan Formations from Yuanba Gas Field in the Sichuan Basin. *Natural Gas Geoscience*, 26 (11): 2155—2165 (in Chinese with English abstract).
- Xi, B. B., Shi, W. J., Jiang, H., et al., 2014. Synthesis of N₂-CH₄ and N₂-CO₂ Gas Mixtures as an Online Standard and Determination of Their Raman Quantification Factors of CH₄ and CO₂. *Rock and Mineral Analysis*, 33 (5): 655—660 (in Chinese with English abstract).
- Xiao, X. M., Liu, Z. F., Liu, D. H., et al., 2002. Dating Formation of Natural Gas Pools Using Fluid Inclusion Data from Reservoirs. *Chinese Science Bulletin*, 47 (12): 957—960 (in Chinese).
- Xu, Y. C., 1996. The Mantle Noble Gas of Natural Gases. *Earth Science Frontiers*, 3 (3—4): 63—71 (in Chinese with English abstract).
- Yamashita, Y., Takahashi, Y., Haba, H., et al., 2007. Comparison of Reductive Accumulation of Re and Os in Seawater-Sediment System. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 71(14): 3458—3475. <https://doi.org/10.1016/j.gca.2007.05.003>
- Yan, L., Feng, M. G., Zhang, C. Y., 2011. Hydrocarbon Accumulation Mode of Changxing Formation in YB Area of Northeastern Sichuan Basin. *Journal of Yangtze University (Natural Science Edition)*, 8 (10): 19—21 (in Chinese with English abstract).
- Zhang, Y. C., Zou, H. Y., Li, P. P., et al., 2010. Fluid Inclusion Feature and Hydrocarbon Charge History of Changxing Formation in Yuanba Area in Northeastern Sichuan Basin. *Xinjiang Petroleum Geology*, 31(3): 250—251 (in Chinese with English abstract).
- Zhang, Y. Y., Horst, Z., Liu, K. Y., et al., 2007. K-Ar Isotopic Dating of Authigenic Illite and Its Application to the Investigation of Hydrocarbon Accumulation History of the Silurian Bituminous Sandstone Reservoirs in the Tazhong Uplift, Tarim Basin. *Oil & Gas Geology*, 28 (2): 166—174 (in Chinese with English abstract).
- Zhao, J. Z., 2002. Geochronology of Petroleum Accumulation: New Advances and the Future Trend. *Advance in Earth Sciences*, 17(3): 378—383 (in Chinese with English abstract).

附中文参考文献

- 陈红汉, 李纯泉, 张希明, 等, 2003. 运用流体包裹体确定塔河油田油气成藏期次及主成藏期. 地学前缘, 10(1): 190.
- 杜建国, 徐永昌, 孙明良, 1998. 中国大陆含油气盆地的氦同位素组成及大地热流密度. 地球物理学报, 41(4): 494—501.
- 段金宝, 李平平, 陈丹, 等, 2013. 元坝气田长兴组礁滩相岩性气藏形成与演化. 岩性油气藏, 25(3): 43—47, 91.
- 范小军, 2012. 川东北元坝地区长兴组与飞仙关组天然气成藏差异性成因. 天然气工业, 32(6): 15—20.
- 冯明刚, 严丽, 王雪玲, 等, 2012. 元坝气田长兴组气藏有效储层物性下限标准研究. 石油实验地质, 34(5): 535—538.
- 郭彤楼, 2011. 元坝深层礁滩气田基本特征与成藏主控因素. 天然气工业, 31(10): 12—16.
- 郭旭升, 胡东风, 2011. 川东北礁滩天然气勘探新进展及关键技术. 天然气工业, 31(10): 6—11.
- 郭旭升, 黄仁春, 付孝悦, 等, 2014. 四川盆地二叠系和三叠系礁滩天然气富集规律与勘探方向. 石油与天然气地质, 35(3): 295—302.
- 刘斌, 沈昆, 1999. 流体包裹体热力学. 北京: 地质出版社, 200—268.
- 刘德汉, 戴金星, 肖贤明, 等, 2010. 普光气田中高密度甲烷包裹体的发现及形成的温度和压力条件. 科学通报, 55 (增刊): 359—366.
- 刘文汇, 陈孟晋, 关平, 等, 2007. 天然气成藏过程的三元地球化学示踪体系. 中国科学(D辑), 37(7): 908—915.
- 刘文汇, 王杰, 陶成, 等, 2013. 中国海相层系油气成藏年代学. 天然气地球科学, 24(2): 199—209.
- 马永生, 蔡勋育, 赵培荣, 2014. 元坝气田长兴组—飞仙关组礁滩相储层特征和形成机理. 石油学报, 35(6): 1001—1011.
- 米敬奎, 张水昌, 涂建琪, 等, 2006. 哈得逊油田成藏研究. 地球化学, 35(4): 405—412.
- 邱楠生, 秦建中, McInner, B. I. A., 等, 2008. 川东北地区构

造—热演化探讨——来自 (U-Th)/He 年龄 R_o 的约束. 高校地质学报, 14(2): 223—230.

施伟军, 席斌斌, 2016. 应用包裹体技术恢复气藏古压力. 石油实验地质, 38(1): 128—134.

陶明信, 徐永昌, 沈平, 等, 1996. 中国东部幔源气藏聚集带的大地构造与地球化学特征及成藏条件. 中国科学 (D 辑), 26(6): 531—536.

王杰, 刘文汇, 陶成, 等, 2010. 天然气藏二元混源比例定量判识探讨及气源岩 ^{40}Ar 年龄模型. 天然气地球科学, 21(1): 125—131.

王杰, 秦建中, 刘文汇, 等, 2012. 川东北元坝地区中生代构造与动态热演化史——磷灰石、锆石 (U-Th)/He 定年分析. 石油实验地质, 34(1): 19—24.

王杰, 腾格尔, 刘文汇, 等, 2016. 川西矿山梁下寒武统沥青脉油气生成时间的厘定——来自固体沥青 Re-Os 同位素等时线年龄的证据. 天然气地球科学, 27(7): 1290—1298.

吴小奇, 刘光祥, 刘全有, 等, 2015. 四川盆地元坝气田长兴组—飞仙关组天然气地球化学特征及成因类型. 天然气地球科学, 26(11): 2155—2165.

席斌斌, 施伟军, 蒋宏, 等, 2014. $\text{N}_2\text{-CH}_4(\text{CO}_2)$ 混合气体在线标样制备及其拉曼定量因子测定. 岩矿测试, 33(5): 655—660.

肖贤明, 刘祖发, 刘德汉, 等, 2002. 应用储层流体包裹体信息研究天然气气藏的成藏时间. 科学通报, 47(12): 957—960.

徐永昌, 1996. 天然气中的幔源稀有气体. 地学前缘, 3(3—4): 63—71.

严丽, 冯明刚, 张春燕, 2011. 川东北元坝地区长兴组油气藏成藏模式. 长江大学学报 (自然版), 8(10): 19—21.

张元春, 邹华耀, 李平平, 等, 2010. 川东北元坝地区长兴组流体包裹体特征及油气充注史. 新疆石油地质, 31(3): 250—251.

张有瑜, Horst, Z., 刘可禹, 等, 2007. 塔中隆起志留系沥青砂岩油气储层自生伊利石 K-Ar 同位素测年研究与成藏年代探讨. 石油与天然气地质, 28(2): 166—174.

赵靖舟, 2002. 油气成藏年代学研究进展及发展趋势. 地球科学进展, 17(3): 378—383.