

中国油气田氦、铅、锶、钕等同位素组成与“二元论”

李爱勇^{1,2,3}, 真允庆^{1,3,4}, 曾朝伟³, 郝红蕾³, 吴金凤³

(1. 江苏省有色金属华东地质勘查局, 南京 210093; 2. 中南大学信息物理工程学院, 长沙 410083; 3. 江苏省有色金属华东地质勘查局 814 队; 镇江 212005; 4. 中国冶金地质勘查工程总局三局; 太原 030002)

摘要: 通过对 He 同位素组成特征研究, 阐述了我国油气盆地的 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比值受控于区域成藏背景的特征。在东部地区由于太平洋板块俯冲, 深大断裂 SN 向分布和火山-岩浆活动剧烈等因素的影响, 该比值最大, 中部的最小, 西部及南部的介于两者之间, 而且其中的壳源、幔源比例也有所不同。克拉玛依油田、辽河油田及塔里木盆地油田的 Pb、Sr、Nd 同位素组成特征显示出他们经历了多源、多期、多灶的成藏作用, 而天然气和天然气水合物的 He-Ar、Ne、Xe、C-D 及 $\delta^{13}\text{C}_1-\text{C}_1/(\text{C}_2+\text{C}_3)$ 的关系特征, 证明它们的成因是壳幔混合的结果。碳同位素组成显示松辽盆地、鄂尔多斯盆地、三水盆地及苏北盆地的油气来源皆和地壳与地幔贡献有关。“二元论”的成藏理论的运用, 有益于找藏工作的开展。

关键词: 石油; 天然气; 同位素组成

中图分类号: P618.130.1

文献标识码: A

文章编号: 1672-4135(2008)04-0353-10

石油和天然气的“有机”和“无机”成因问题争论已持续 240 多年。石油和天然气的成因问题, 是石油地质学的前缘学科之一, 也是石油勘探界的热门话题^[1-8], 据不完全统计有: “生物成因说”、“地幔成因说”、“宇宙成因(石油雨)说”、“地下放电放光成因说”、“古陨石坑成因说”等等。概括起来实质上就是“有机”成因与“无机”成因, 两者持续争论约达 240 年之久。

中国在上世纪中期运用有机成因学说对东部地区的陆相油气田进行了石油勘探, 取得了辉煌的成就。科学的进步和油气勘查实践越来越深入的事实, 证明地幔深部热液活动对油气生成的贡献不应忽视。笔者在本文中从油气田已取得的大量同位素组成资料入手, 首先以 He 同位素组成来阐述我国大地构造骨架背景对油气的控制机理。其次, 运用 Pb、Sr、Nd 同位素组成证实克拉玛依油田、辽河油田及塔里木盆地油田均经历了多源、多期、多灶的成藏作用。第三, 按照稀有元素的同位素组成关系, 探讨天然气和天然气水合物是壳、幔混合成因。第四, 解析典型油气田: 松辽盆地、鄂尔多斯盆地、三水盆地及苏北盆地的天然气为“有机”和“无机”的成因

综合作用的结果。运用“二元论”的成藏理论, 有益于指导找藏工作。

1 氦同位素组成

He 同位素组成表明中国油气盆地与成藏构造背景、断裂展布、岩浆活动关系密切。

刘光鼎^[9,10]认为中国大陆构造的动力学演化, 具有像“跷跷板”一样的效应, 即以呈 SN 向展布的鄂尔多斯盆地-四川盆地轴部, 将中国大陆分成三分图像(图 1)。按照盆地的构造性质划分, 东部为裂谷型盆地, 中部为典型的克拉通型盆地, 西部及南部因受印度板块影响形成挤压型盆地。徐永昌等^[10]对我国 19 个盆地的油气田采集了天然气样品 334 个, 测定了 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 值(表 1), 并用大气氦(Ra)和样品氦(R)的同位素表示, 即 $R/Ra = (^3\text{He}/^4\text{He})_{\text{样品}} / 1.4 \times 10^{-6}$ 。在用 R/Ra 表示气样氦同位素分布特征时, 当 $R/Ra > 1$, 表示气样中幔源氦份额大于 12%; 当 $R/Ra < 0.1$ 时, 可以认为天然气中氦基本来自壳源。

1.1 东部 R/Ra 高值区

如图 1 所示, 从北向南自松辽盆地、渤海湾盆

收稿日期: 2008-04-18

责任编辑: 刘新秒

基金项目: 大庆油田“海拉尔-塔木察格盆地及其邻区断陷盆地分布、结构及上覆层的关系研究”项目

作者简介: 李爱勇(1973-), 男, 江苏镇江, 中南工业大学毕业, 高工, 在读博士生, 长期从事石油物探工作, E-mail: wt814@gina.com, 真允庆: zhenyunqing.1932@yahoo.com.cn.

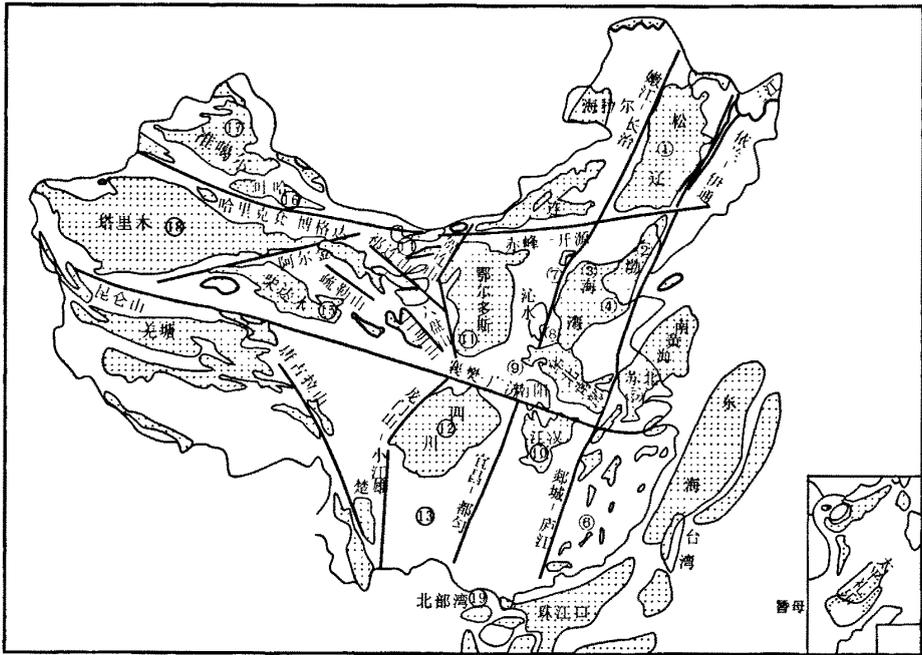


图1 中国大陆不同类型沉积盆地分布图

Fig. 1 Distribution of different sedimentary basins in China

(盆地编号见表1,粗线表示地壳岩石圈断裂)

表1 中国含油气盆地天然气 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比值分布

Table 1 Distribution of $^3\text{He}/^4\text{He}$ ratio of natural gas from Chinese oil/gas-bearing basins

部位 编号	东部						过渡			
	1	2	3	4	5	6	7	8	9	10
盆地或坳陷	松辽盆地	辽河坳陷	黄骅坳陷	济阳坳陷	苏北盆地	三水盆地	冀中坳陷	东濮坳陷	南襄盆地	江汉盆地
$^3\text{He}/^4\text{He}$	3.23×10^{-6}	2.69×10^{-6}	1.69×10^{-6}	1.92×10^{-6}	2.67×10^{-6}	4.89×10^{-6}	6.21×10^{-7}	5.5×10^{-7}	4.9×10^{-8}	1.2×10^{-8}
R/Ra	2.30 (29)	1.30 (45)	1.21 (43)	1.41 (32)	1.87 (33)	3.49 (8)	0.44 (13)	0.40 (13)	0.035 (2)	0.011 (13)
部位 编号	中部			西部					南部	
	11	12	13	14	15	16	17	18	19	
盆地或坳陷	鄂尔多斯盆地	四川盆地	白色盆地	酒西盆地	柴达木盆地	吐哈盆地	准噶尔盆地	塔里木盆地	莺歌海盆地	
$^3\text{He}/^4\text{He}$	3.07×10^{-8}	2.1×10^{-8}	2.99×10^{-8}	2.16×10^{-8}	3.5×10^{-8}	8.22×10^{-8}	1.4×10^{-7}	5.7×10^{-8}	1.8×10^{-7}	
R/Ra	0.022 (16)	0.015 (19)	0.022 (5)	0.015 (1)	0.025 (4)	0.067 (15)	0.1 (18)	0.051 (3)	0.015 (5)	

据徐水昌等^[10]资料统计,括号内为样品数

地的辽河坳陷、黄骅坳陷、济阳坳陷、苏北盆地直至三水盆地的油气田,其 R/Ra 比值皆大于1,其中有很多钻井的氦气总量已达到或超过0.1%,为优质工业氦气(井)藏。上述这些盆地正位于郯庐断裂带的两侧,盆地内及其边缘或盆地中油气田的基底为火山岩或侵入岩,最明显的就是松辽盆地东南部万金塔气田 CO₂ 含量达60%~99.48%,在万5井和万

6井的总氮中,幔源氮的比例可达65.4%~57.2%,以幔源为主。再如广东三水盆地采气样8个,其 R/Ra 均大于1,在水深3、水深24、水深44三口井的氦气中,幔源比例分别达51.9%、57.9%。据钟华^[12]、真允庆等^[13]研究认为松辽盆地、渤海湾盆地以及三水盆地的地质背景与地幔热柱活动有关,亦可能是 R/Ra 高值区的主要原因。

需要说明的是在大兴安岭-太行山-武陵山大断裂东侧的冀中拗陷、东濮拗陷和南襄盆地、江汉盆地的 R/Ra 值较小(图 1、表 1),未见有岩浆岩。但前两者离郯庐大断裂稍近,其 R/Ra 比值为 0.4 ~ 0.44(个别钻井大于 1%),后两者因距鄂尔多斯盆地和四川盆地更近,无岩浆活动痕迹,构造相对简单,故 R/Ra 比值更低。

1.2 中部 R/Ra 低值区

该区位于太行山-武陵山断裂和贺兰山-龙门山断裂(两大地球物理场梯度带)之间,包括鄂尔多斯盆地、四川盆地和百色盆地,其 R/Ra 平均比值最小,为(0.015 ~ 0.022) × 10⁻⁶,反映出稳定的构造环境,莫霍面较深的特征。据邢集善等研究^[14],鄂尔多斯盆地 300 km、四川盆地 240 km 以下为软流圈,反映地壳结构与构造稳定,断裂与岩浆活动极不发育,地层产状平缓,为典型的沉降型(或克拉通型)地区,因此油源基本来自壳源。

1.3 西部 R/Ra 中值区

西部指贺兰山-龙门山以西的地区,³He/⁴He 比值变化较大,在 n × (10⁻⁷ ~ 10⁻⁸)之间,介于东部与中

部之间,受喜山期印度板块俯冲影响,所有盆地皆以先张后压为共同特征。就单一盆地而言,往往在盆地边缘 R/Ra > 0.1,而其腹部 R/Ra < 0.1。例如塔里木盆地塔地隆起沙雅油田的 R/Ra 比值为 0.19,而轮南则为 0.04 ~ 0.08,构造环境制约了壳幔交换,从天然气中氦的 R/Ra 值也得到了体现。

1.4 南部 R/Ra 高值区

南部指我国特提斯-喜马拉雅构造域,西自青藏高原,东到南部海域,地壳变化很大,东薄西厚。腾冲地区温泉附近火山活动非常发育,³He/⁴He 高达 3.12 × 10⁻⁶ ~ 7.18 × 10⁻⁶, R/Ra 值高达 2.29 ~ 5.1,幔源组份达 29% ~ 65%。但南海莺歌地区 R/Ra 比值为 0.15,幔源份额仅有 2%,可见 R/Ra 变化甚大。

2 铅、锶、钕同位素组成特征

克拉玛依油田、辽河油田和塔里木盆地油田的铅、锶、钕同位素组成特征为油气成因提供了多源、多期、多灶的信息。

张景廉(2001)^[1]首先对中国克拉玛依油田、辽河油田和塔里木盆地油田的沥青、原油、干酪根和

表 2 辽河油田、克拉玛依油田、塔里木盆地油田 Pb、Sr、Nd 同位素组成
Table 2 Pb、Sr、Nd isotopic composition of Liaohe oilfield, Karamay oilfield and Tarim oilfield

油田	²⁰⁶ Pb/ ²⁰⁴ Pb	²⁰⁷ Pb/ ²⁰⁴ Pb	²⁰⁸ Pb/ ²⁰⁴ Pb	⁸⁷ Sr/ ⁸⁶ Sr	¹⁴³ Nd/ ¹⁴⁴ Nd	ε _{Nd} (T)	ε _{Sr} (T)	
辽河	可溶 有机质	17.431~17.601	15.378~15.448	37.618~37.870	0.709 95~0.747 591			
	干酪 根	17.470(15)	14.475(15)	37.321(15)	0.717 653(14)			
	原油 ①	17.488~18.656	15.388~15.695	37.656~38.748	0.706 346~0.726 23	0.5116-0.5121		
		18.05(24)	15.566(24)	38.238(24)	0.712 469(24)			
	原油 ②	17.251~18.769	15.375~15.622	37.179~38.671	0.706 025~0.723 305	0.5116-0.5121		
		17.816(51)	15.527(51)	37.936(51)	0.710 294(36)			
	原油 ③	17.638~18.765	15.499~15.633	37.850~38.322	0.709 746~0.722 346			
		17.958(9)	15.546(9)	38.071(9)	0.714 588(6)			
原油 ③	17.337~18.354	15.592~15.626	37.526~38.360	0.708 435~0.719 603				
	17.727(14)	15.497(14)	37.894(14)	0.7110 9(13)				
马克 依拉	18.110~18.675	15.391~15.768	37.703~38.962	0.706 426~0.714 761	0.512 587~0.513 389	1.6~17.4	18.6~73.6	
	18.314(18)	15.578(18)	38.341(18)	0.708 815(17)	0.512 86(16)	6.89(16)	28.76(17)	
塔里 木	17.349~18.587	15.466~15.652	37.899~39.087	0.720 568~0.728 085	0.511 573~0.512 079	-12.15	71.2	
	17.922(15)	15.563(15)	38.460(15)	0.724 43(8)	0.51181(15)	-7.044(11)	-58.35(8)	
	干酪 根	18.055~20.264	15.592~15.890	38.462~40.55		0.512 225~0.512 262(2)	0.92~1.10(2)	
		19.549(11)	15.761(11)	39.412(11)				
	FeS ₂	18.371	15.723	38.55				

据张景廉(2001)资料统计,分子为数值范围,分母为平均数,括号内为样品数

① 辽河油田东部凹陷, ② 辽河油田大民屯凹陷, ③ 辽河油田西部凹陷

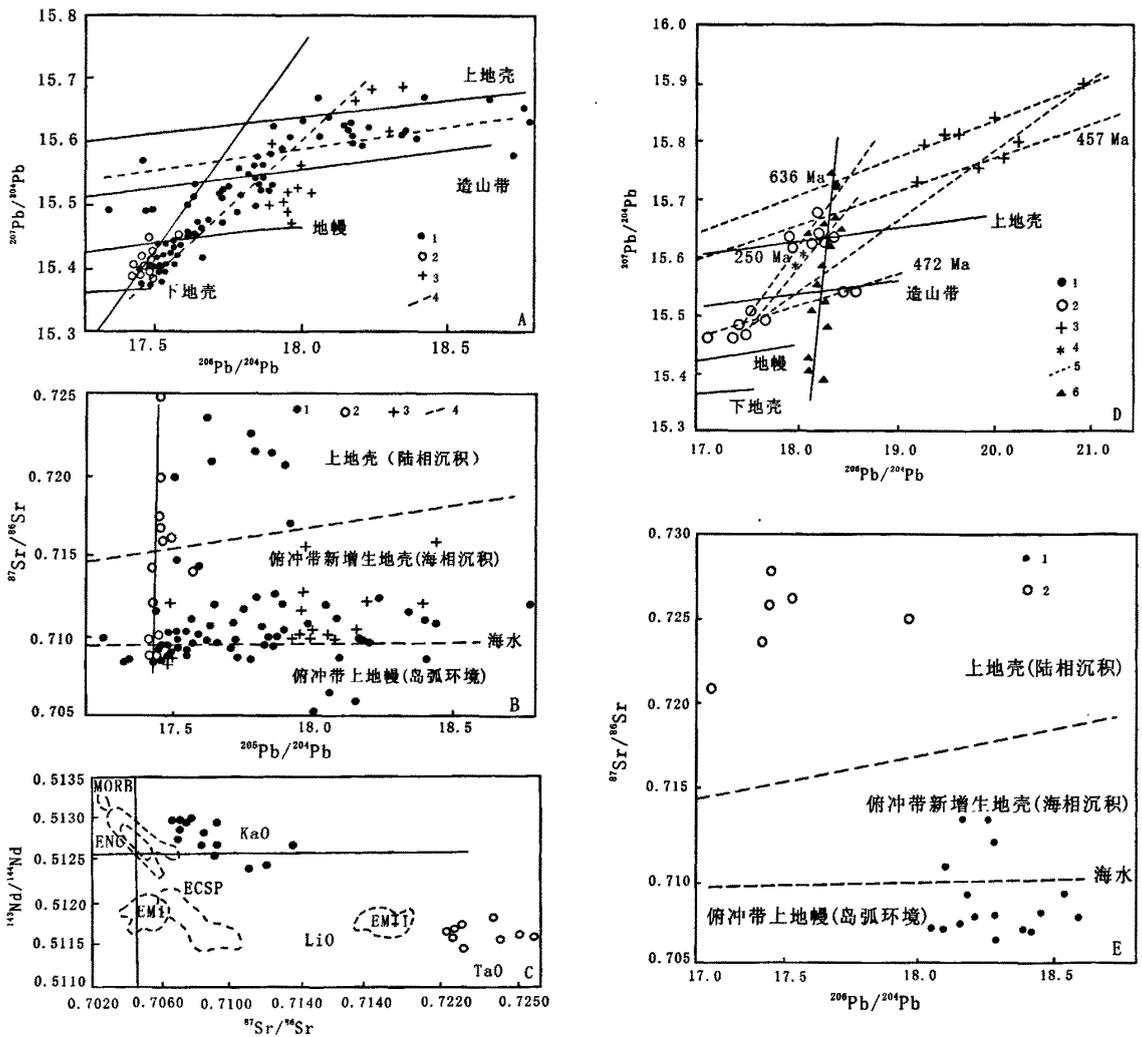


图2 原油、沥青、干酪根的铅、锶、钕同位素组成体系(据张景廉,2001)^[1]

Fig. 2 Pb, Sr, Nd isotopic composition system of crude oil, bitumen and kerogen

A. 辽河油田 $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 图解(1:原油;2:可溶性有机质;3:干酪根;4:等时线);B. 辽河油田 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 图解(同图A);C. 辽河、克拉玛依、塔里木油田 $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ - $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 图解(MORB:洋脊玄武岩;OI:大洋岛弧玄武岩;ENG:中国东部新生代钠质玄武岩;ECSP:郯庐断裂及其邻区中生代钾质玄武岩;KaO:克拉玛依油田;LiO:辽河油田;TaO:塔里木油田;EM I、EM II:富集型地幔端元);D. 塔里木、克拉玛依油田 $^{207}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 图解(1-5为塔里木油田:1. 萨尔干页岩中黄铁矿;2. 沥青;3. 寒武、奥陶纪干酪根;4. 奥陶纪印干页岩干酪根;5. 等时线;6. 克拉玛依油田沥青);E. 塔里木、克拉玛依油田 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 图解(1. 克拉玛依油田;2. 塔里木油田)

可溶有机质分别测定了铅、锶、钕同位素,现将分析数据统计列于表2,并将成果绘成图2。

2.1 辽河油田

该油田的古近系沙河街组的三段、四段为主要生油层,所含干酪根和原有的铅同位素组成变化很大,彼此相互一致,弥散在上地壳、造山带、上地幔范围内,具有B型铅特征,以地壳源占优势的壳幔混合特征。但可溶性有机质铅同位素变化相对较

小,多集中在地幔与下地壳的范围内(图2-A)。对应 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ - $^{206}\text{Pb}/^{204}\text{Pb}$ 的关系图(图2-B)可以看出该可溶性有机质呈线性关系,可能与深部流体活动有关。干酪根局限在俯冲带新增地壳内,这是中、新生代地质事件活动的佐证。区内 Sr 同位素分布有所不同,在东部多以高值为特征,是以陆相成油为主,而西部辽东湾的葵花岛一带为低值区(与海水 Sr 同位素 0.709 2 相近),代表了克拉通边缘前中、

新生代残留盆地的油源区或主要为幔源的贡献。该区 Nd 同位素为 0.511 6 ~ 0.512 1, 在 $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd} - ^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 关系上(图 2-C)大致接近 EM I 和 EM II, 为深部找藏提供了可靠信息。

2.2 克拉玛依油田

该油田因受乌尔禾-克拉玛依大断裂控制,在其东南侧分布有 7 条沥青脉,切穿白垩纪砂岩,以往认为来自二叠系泥岩。印支-燕山运动促使油气运移,形成次生油气藏。从铅同位素在 Zantman 构造模式图上(图 2-D)可以看出呈线性分布,跨越了地幔到上地壳的范围,具有幔壳混合特征,并以幔源成分占优势,而且 $^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 比值为 0.706 568 ~ 0.714 761, 也为壳幔混合特征,两者互为印证。而且低值 Sr(小于 2.3×10^{-6})和 Nd(小于 0.32×10^{-6})的等时线 $293 \pm 8 \text{ Ma}$ 与全区 Sr 同位素等时线年龄 $294 \pm 33 \text{ Ma}$ 一致,成藏时代可能是海西期,而具有高 Sr 与 Nd 样品构成 $122 \pm 39 \text{ Ma}$ 等时线趋向,在二次运移过程中主要是地壳混染所致。当计算成 $\epsilon \text{ Nd}(t)$ 与 $\epsilon \text{ Sr}(t)$ 时,显示出良好的三元混合趋向。同样在 $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd} - ^{87}\text{Sr}/^{86}\text{Sr}$ 关系图上,代表了岛弧俯冲带地幔源和亏损地幔与地壳物质的三元混合(张景廉, 2001)^[17]。

2.3 塔里木盆地油田

该油田的地层中广泛分布固体沥青及油砂,它们的铅同位素(图 2-D)可分为三个组合:1)志留纪沥青砂岩、下奥陶纪及下三叠纪灰岩的沥青铅同位素均落在地幔和造山带之间,具有低的放射成因铅和壳幔混合特征,模式年龄为 497 ~ 438 Ma, 等时线年龄为 472 Ma。2)为寒武纪、奥陶纪烃源岩的干酪根,铅同位素组成两条等时线年龄为 630 Ma 和 457 Ma, 代表了干酪根形成的时代。3)志留纪、二叠纪及少数奥陶纪、印干大湾沟沥青的模式年龄为 329 ~ 133 Ma, 平均为 $(250 \pm 77) \text{ Ma}$, 这可能是原油运移、沥青沉淀年龄信息的反映。

前者为受晋宁运动形成的深部烃源区,与区域内晋宁期花岗岩和基性岩侵入时代相吻合,后者趋向于志留纪,代表了深源原油生成和运移的事件。

无独有偶,该地区志留纪沥青砂岩 Nd 同位素组成在 0.511 573 ~ 0.511 829, $\epsilon \text{ Nd}(0)$ 在 -16 ~ -21 之间,与二叠纪含沥青灰岩 $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ 和 $^{147}\text{Sm}/^{144}\text{Nd}$ 十分相近。所得两组等时线趋向:一组为新元古代年龄 $(1 195 \pm 85) \text{ Ma}$, 另一组为古生代年

龄(500)Ma。而中奥陶纪印干页岩干酪根 $^{143}\text{Nd}/^{144}\text{Nd}$ 比值在 0.512 225 代表了年轻岩石同位素特征。因此 Pb、Nd 同位素均表明沥青与干酪根是异源的。

从二阶段 Nd 模式年龄来看,志留纪沥青为 2.95 ~ 2.53 Ga。二叠纪沥青模式年龄更老,在 3.2 ~ 3.1 Ga。如将志留纪样品直接按 872 Ma 计算, $\epsilon \text{ Nd}(t)$ 值在 -4.6 到 -3.9 之间, $\epsilon \text{ Sr}(t)$ 在 -24.4 到 -144, 在 $\epsilon \text{ Nd}(t) - \epsilon \text{ Sr}(t)$ 图解上,均落在下地壳麻粒岩相的范围内。在图 2-E 上显示了塔里木油田为海相成因,而克拉玛依油田为陆相沉积成因。

综合上述,塔里木油田的太古宙基底最早在晋宁期新元古代即有形成烃源岩,而在加里东期、印支期,甚至在燕山期和喜山期存在多期生烃和运移事件。故在北部有陆相油气田,而在中、南部为海相油气田分布格局,显示了壳幔混合特征,并提供了对前寒武纪基底找藏的预测信息和科学依据。

3 稀有元素同位素组成特征

现将已搜集到天然气和天然气水合物的氦、氩、氙、碳和氦及甲烷碳同位素组成分别绘成图 3。

3.1 天然气的 $^3\text{He}/^4\text{He} - ^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 关系

徐永昌等^[21]将松辽盆地、辽河拗陷、黄骅拗陷、济阳拗陷、苏北盆地及三水盆地的天然气所测的氦和氩同位素组成绘成 $^3\text{He}/^4\text{He} - ^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 关系图(图 3-A),以 $^3\text{He}/^4\text{He} = 1.0 \times 10^{-6}$ 为界,上部 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 与 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 大致呈正相关关系,显示了幔源特征。下部则呈反相关关系,这是壳源放射性成因的范围。两者构成横“人”字图形,徐永昌称其为天然气 He-Ar 横“人”字型模式。

3.2 CO_2 的含量与 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 和 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 的关系

众所周知,天然气可分为两类,即生物成因气和非生物成因气。当 $\text{CO}_2 > 85\%$ 时即为工业气井,通常以 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2} < -10\%$ 为非生物气,反之即为生物气。据徐永昌研究将我国东部油气田的天然气 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 、 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 和 CO_2 含量绘成(图 3-B),具有如下特点:

(1)天然气 CO_2 浓度多分布在小于 30% 或大于 70% 两个端员,中间的含量即 CO_2 为 30% ~ 70% 几乎没有发现。

(2)当 CO_2 低浓度, $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 在 $-17\text{‰} \sim -10\text{‰}$ 至 -20‰ , $^3\text{He}/^4\text{He}$ 分散在大于 1×10^{-6} 的范围内,为非生物成因。

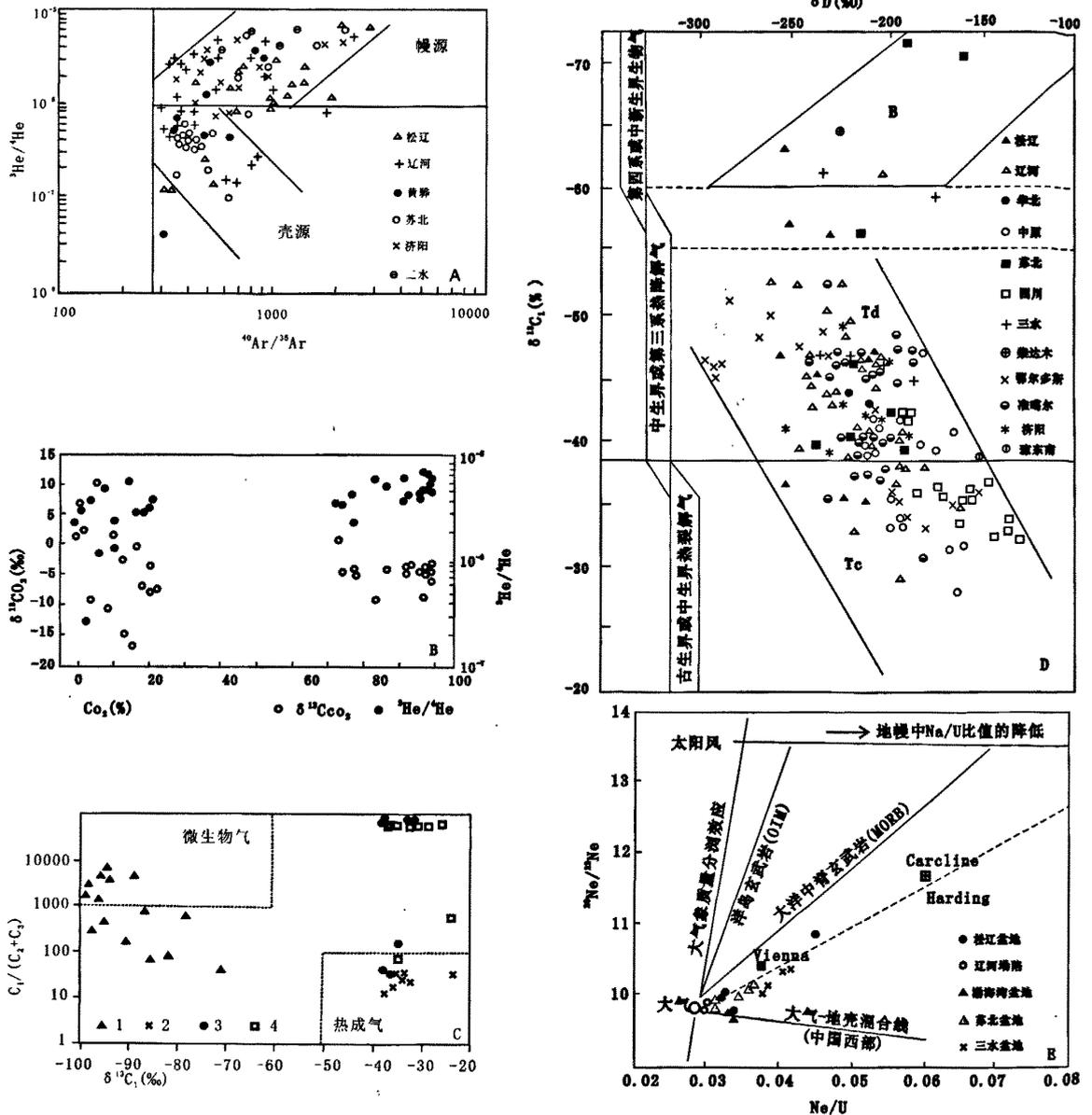


图3 中国天然气及天然气水合物的 He、Ar、C 和 D 同位素组成体系

Fig. 3 He, Ar, C and D isotopic composition system of natural gas and hydrate in China

- A. 我国东部地区天然气 Ar、He 同位素组成图解^[21];
- B. 我国东部地区天然气 CO₂、δ¹³Cco₂和 ³He/⁴He 关系图解^[21];
- C. 南海烃类气体成因图解(底图据 Girsburg 等, 1997; 卢振权等, 2002)^[18]; 1. 南沙海槽区; 2. 西沙海槽区; 3. 莺歌海浅海气苗区; 4. 天然气水合物;
- D. 天然气成因类型(据竇立荣等, 2002; 底图据 Schoell 等, 1982)^[20];
- E. 中国东部天然气氦同位素组成^[21]

(3) 当 CO₂ 高浓度, δ¹³Cco₂ 在 -8‰ ~ ±2‰ 也为非生物成因气, 若 δ¹³Cco₂ 主要分布在 -5‰ 则应视为幔源来源。

(4) 当 CO₂ 浓度高又具有高 ³He/⁴He (> 1 × 10⁻⁶), 且两者呈正相关, 可以认为是幔源成因, 多为

富 CO₂ 的氦工业气井。

3.3 天然气与天然气水合物的 δ¹³Cc₁‰ 和 C₁/(C₂+C₃) 关系

中国南海经钻探已发现天然气水合物, 与南沙、西沙及莺歌海天然气田相邻。现将 δ¹³Cc₁ 和 C₁/

(C₂+C₃)关系绘成图3-C^[18]。南沙海槽区的天然气是以生物气为主,部分为热成气与生物气混合,而西沙与莺歌海天然气和南海的天然气水合物一般为热成气。莺歌海气田内有泥火山(或称为流体柱),其成因应与幔源关系密切,因此南海天然气水合物亦应视为混合成因。正如金兹堡等^[19]指出水热作用模式与水下泥火山作用有关,故天然气水合物聚积成藏。

3.4 天然气的碳和氘同位素组成关系

窦立荣等^[20]测定12个盆地天然气的 $\delta^{13}\text{C}_1$ 、 δD 同位素组成(图3-D),将烃类天然气分为生物成因气、热降解气和高温裂解气。生物作用气的甲烷碳同位素值轻,小于-60‰,氢同位素值在-150‰~-250‰,如柴达木盆地第四系生物气藏;生物降解气的甲烷及其同系物的碳同位素比正常天然气偏重2‰~5‰,丙烷的碳同位素偏重较大,随着降解气增加,乙烷、丙烷和丁烷的含量逐渐减少,丙烷碳同位素随其含量减少而增加,一般与稠油共生,以岩性-构造气藏为主;热降解气指有机质在生油阶段(R_o 为0.5%~1.3%)经热解作用生成的天然气,甲烷碳同位素-55‰~-45‰,凝析气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 为-45‰~-30‰;热裂解气是指有机质在高温裂解作用($R_o > 1.3\%$)由各种烃源岩及已生成烃类进一步裂解所生成的天然气,甲烷含量高 $\text{C}_1/\text{C}_2\text{-C}_5$ 比值一般大于95%,甲烷碳同位素一般大于-38‰,如四川威远气田、鄂尔多斯盆地靖边气田等都以干气为主, $\delta^{13}\text{C}_1$ 大于-35‰,华北古生界和松辽盆地早白垩纪等以热裂解气为主, $\delta^{13}\text{C}_1$ 高达-25‰。从图3-D亦可看出 $\delta^{13}\text{C}_1$ 与 δD 关系是随地质时代由老至新,也呈横“人”字型图式(和 $^3\text{He}/^4\text{He}$ - $^{46}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$,图3-A相似),其机理尚待进一步研究。

3.5 天然气的Ne和Xe组成特征

众所周知,地球物质中 ^{21}Ne 和 ^{22}Ne 的过剩,主要与铀和钍含量有关, ^{20}Ne 过剩则被认为地幔中存在太阳风型氦,它是氦在幔源的贡献。徐胜首先对松辽盆地、辽河拗陷、渤海湾盆地、苏北盆地和三水盆地的天然气测定了Ne同位素,除了渤海湾等5个样品为大气氦与地壳混合的特征外,其余的样品均为 ^{20}Ne 过剩(图3-E),为地幔氦与壳源氦的混合成因^[18]。徐胜还对松辽、苏北和三水盆地的9个天然气样品测定了 $\delta^{129}\text{Xe}$,发现亦有 $\delta^{129}\text{Xe}$ 的过剩,表现有来自幔源的成分^[21]。

4 碳同位素组成特征

有机化学研究业已阐明,烃的生成有两种途径,一是高碳原子集团物质(干酪根)分解;二是小分子碳化合物(如 CO 、 CH_4)的合成。前者为沉积岩中干酪根在分解过程中,由于 ^{12}C - ^{12}C 键能低于 ^{13}C - ^{12}C 键,导致碳同位素组成随碳数的增加而增大,即为 $\delta^{13}\text{C}_1 < \delta^{13}\text{C}_2 < \delta^{13}\text{C}_3 < \delta^{13}\text{C}_4$,称其为正序分布;后者是指重烃含量很少,小分子碳化合物合成反应中新生成碳化合物的碳同位素随碳数的增大而变轻,即 $\delta^{13}\text{C}_1 > \delta^{13}\text{C}_2 > \delta^{13}\text{C}_3 > \delta^{13}\text{C}_4$,称其为反序分布,因此甲烷及其同系物的碳同位素组成分布特征,也是鉴别有机成因和无机成因天然气的重要化学指标^[22]。

为了论证油气的“二元”成因,现列举典型油气田实例如下:

4.1 松辽盆地徐家围子深层气田的碳同位素特征

松辽盆地徐家围子深层气田的碳同位素具有正序分布和反序分布两种特征。徐家围子断陷肇州西、昌德与朝阳沟等地均发现了有机成因和无机成因的天然气,正序分布和反序分布均有表现。甲烷及其同系物的同位素分析如表3所示。

从表3可知,徐家围子地区天然气确实具有碳同位素的正序分布与反序分布同时可见,而且很多样品 $\delta^{13}\text{C}_2 > \delta^{13}\text{C}_3$ 或 $\delta^{13}\text{C}_3 > \delta^{13}\text{C}_4$ 。戴金星院士综合分析其原因认为:1)是有机烃与无机烃混合结果;2)是煤型气和油型气混合;3)是同型不同气源的混合或同源不同期气的混合;4)是地温增高结果;5)是烷烃气全部或某些组分被细菌氧化结果^[20],总之是多元的反映。

4.2 鄂尔多斯盆地气田的碳同位素组成特征

前已叙述,鄂尔多斯的 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比值较低,主要来自地壳。戴金星等^[24]曾采集25口井的奥陶纪系碳酸盐岩和石炭-二叠系煤系地层岩石样品,其 CO_2 碳同位素 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ 值为-10.05‰~-24‰,仅有铺1井 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2} = -6.39\%$,为无机成因,指示其主要来自有机质成分(或壳源)。刘德良等^[22]采自奥陶纪系碳酸盐岩脉,未受石炭-二叠系煤系有机质混染,碳氧同位素结果列于表4。

戴金星认为^[24]:气藏中 CO_2 含量达60%或更高时,该气藏是无机成因; CO_2 含量低于15%时则是有机成因;当 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2} > -8\%$ 时, CO_2 是无机成因;当

表 3 徐家围子地区天然气碳同位素组成特征(‰)

Table 3 Isotopic properties of hydrocarbons of natural gas in Xujiaweizi area, Songliao Basin(‰)

井号	井段	层位	d ¹³ C ₁	d ¹³ C ₂	d ¹³ C ₃	d ¹³ C ₄	井号	井段	层位	d ¹³ C ₁	d ¹³ C ₂	d ¹³ C ₃	d ¹³ C ₄
昌401	2 853.6~3 217.0	K ₁ d ₂	-25.96	-25.28	-28.79	-31.27	升深101	2 842.0~2 858.0	J ₃ h	-28.03	-29.64	-29.61	
芳深5	3 186.4~3 229.8	K ₁ y ₂	-27.33	-25.55			升深101	2 943.0~2 954.4	J ₃ h	-47.78	-25.62	-31.62	
芳深7	2 988.7~3 102.4	K ₁ d ₃	-27.82	-25.66	-24.23	-27.6	升深101	3 017.0~3 025.0	J ₃ h	-26.68	-22.98		
芳深7	3 285.2~3 321.6	K ₁ d ₁	-28.01	-23.84	-29.1	-30.87	宋深1	3 550.1~3 558.1	K ₁ S ₁₊₂	-26.44	-23.44	-32.82	-25.02
芳深7	3 380.2~3 482.0	K ₁ y ₁	-29.52	-30.72	-29.9	-27.83	汪 902	2 651.8~2 670.8	K ₁ d ₂	-28.6	-24.3	-25.87	-22.26
升深1	2 645.2~2 737.4	K ₁ d ₃	-27.82	-24.92	-24.7		汪 902	2 716.6~2 727.8	K ₁ d ₂	-26.96	-21.82	-26.13	-29.95
升深1	2 778.6~2 824.2	K ₁ d ₂	-27.73	-24.23	-24.28	-26.6	汪 902	2 795.0~2 806.0	K ₁ y ₁	-27.64	-24.42	-29.42	-30.86
升深2	2 681.0~2 694.4	K ₁ d ₃	-27.29	-28.53	-31.13		汪 902	2 829.0~2 869.0	K ₁ y ₁	-26.5	-23.82	-26.95	-27.26
升深2	2 880.0~2 904.0	K ₁ d ₃	-28.71	-28.95	-35.01	-37.58	汪 903	2 193.6~2 202.0	K ₁ q ₁	-31.06	-27.76	-28.62	-31.33
升深3	2 706.4~2 805.0	K ₁ d ₃	-26.99	-24.46	-41.43	-29.09	汪 903	2 394.4~2 452.0	K ₁ q ₁	-23.01	-22.99		
升深3	2 723.6~2 724.8	K ₁ d ₃	-26.46	-21.76	-28.03	-28	汪 903	2 688.2~2 693.4	K ₁ d ₃	-27.95	-26.55	-30.58	-30.66
升深4	2 779.0~3 003.8	K ₁ d ₁	-30.74	-23.01	-25.7		汪 903	2 937.6~3 053.2	基底	-25.34	-33.52	-32.4	-32.45
升深4	3 054.4~3 073.4	K ₁ d ₁	-28.85	-36.5	-36.67	-38.51	汪 903	2 962.0~3 007.0	基底	-26.96	-29.72	-31.2	-30.01
升深6	3 082.0~3 095.2	K ₁ S ₁₊₂	-29.5	-29.71	-23.8	-22	肇 293	1 545.4~1 573.0	K ₁ gn ₂₋₃	-51.35	-36.28	-28.01	-25.37

据黄海平等资料(2000)^[23]

表 4 鄂尔多斯盆地奥陶纪系碳酸盐脉流体包裹体碳氧同位素测试结果^[25]

Table 4 The test result of carbon and oxygen isotope of fluid inclusions in Ordovician carbonate veins of Ordos Basin

井号	碳酸盐岩(‰)		流体包裹体(‰)		井号	碳酸盐岩(‰)		流体包裹体(‰)	
	d ¹⁸ O	d ¹³ C	d ¹⁸ O _{H₂O}	d ¹³ C _{CO₂}		d ¹⁸ O	d ¹³ C	d ¹⁸ O _{H₂O}	d ¹³ C _{CO₂}
陕 21	-17.69	-1.05	-30.4	-2.93	陕 101	-11.81	-0.53	-23.28	-1.64
156	-17.4	0.34	-33.06	-3.18	定样1	-15.12	-4.76	-26.9	-6.07
144	-17.28	-1.3	-29.14	-2.65	陕参1	-16.98	-8.31	-30.68	-9.37
陕参1	-16.94	-8.65	-30.75	-11.15	陕75	-15.23	-8.65	-28.4	-10.59
陕 53	-14.44	-4.32	-26.44	-5.15	定样1	-18.07	-1.56	-30	-2.95
53	-10.73	-4.02	-22.12	-6.33	定样1	-18.91	-1.08	-30	-2.75

δ¹³Cco₂ < -10‰时则是有机成因的。对照表 4, 本区 δ¹³Cco₂ 值为 -11.5‰ ~ -1.64‰, 其中仅有 3 例小于 -8‰, 因此该区碳酸盐岩脉流体包裹体中的 CO₂ 基本是无机成因的。由于所测包裹体温度在 100 ~ 160 ℃, 是处于成熟 - 高成熟阶段, 取样深度为 3 000 ~ 4 000 m。据中生代中晚期古地温梯度(3.5 ~ 4.5 ℃/km)估算, 古地温度为 100 ~ 180 ℃, 又因碳酸盐岩中富含 Mg、Fe、Al 等杂质, 促使流体中有机成因 CO₂ 与深部流体中无机 CO₂ 交换, 成为无机 CO₂ 与有机 CO₂ 混合的重要因素。

4.3 三水盆地 CO₂ 气藏的碳同位素组成特征

广东三水盆地为中、新生代叠合盆地, 火山 - 岩浆活动剧烈。其 CO₂ 气藏田经同位素测定如表 5。

傅学斌等(2004)^[26]通过对比研究^[23], 在盆地东部为流纹岩分布区, 纯 CO₂ 气藏的 δ¹³Cco₂‰ 为 -3.43‰ ~ -7.7‰, 与次流纹岩及灰岩的 δ¹³Cco₂‰ (-3.17‰ ~ -5.4‰) 相近, 应属无机成因(中国无机成因 δ¹³Cco₂ > -8‰)。而西部如遇石炭 - 二叠纪碳酸盐岩是含 CO₂ 气藏的主要前提条件, 为有机成因(中国有机成因的 δ¹³Cco₂ 值在 -10‰ ~ -30‰ 之间)。

4.4 苏北黄桥气田的碳同位素组成特征

黄桥气田^[27] O₂ 含量与 CO₂ 中碳同位素成正相关关系, 当 CO₂ 在天然气中为优势时, 碳同位素指示为无机成因(δ¹³Cco₂ 为 -5.88 ~ -2.56‰); 当 CO₂ 含量降低至 < 20% 时, 逐渐呈现为有机来源, 而

表5 三水盆地碳同位素测定结果

Table 5 The test result of carbon isotope in Sanshui Basin, Guangdong Province

类别	气藏					岩石			成因
	井号	层位	井段 (m)	CO ₂ 含量	d ¹³ C (%)	岩性	层位	d ¹³ C (‰)	
纯CO ₂ 气藏	SHA1			99.8	-3.43	灰岩	P	-3.17	无机成因(岩浆-幔源碳酸盐岩变质)
	SS9	EB ₂	1429.2~1432.7	99.6	-4.6	灰岩	C	-5.6	
	SS24	EB ₃	1632.0~1732.0	99.54	-5.8	次流纹岩	EX ₁	-4.5	
	罗村水井	Eh	135	97.41	-7.7	次流纹岩	Eh	-5.4	
含CO ₂ 油气藏	SS44	EB ₃	1161.4~1163.8	89.64	-10.59				有机成因(有机质热解)
	SS3	EB ₃	1103.5~1106.6	12.54	-16.9	玄武岩	Eh ₁	-10.6	
	N18	EB ₃	1135.0~1140.0	17.97	-14.87	粗面岩	Eh ₂	-20.6	
	B1	EB ₃	754.0~776.0	1.62	-19.5				

据李春光(1994)^[26]修改

且存在“此消彼长”关系,因此可以认为经历两次成藏过程,油气成藏在先,CO₂成藏在后。该区 ³He/⁴He 很高,如溪桥的比值为(3.7~4.89)×10⁻⁶;黄桥的比值为(4.9~5.54)×10⁻⁶,可能沿深大断裂地幔脱气有关。

综上所述,列举的四个油气田的成因,是“有机”与“无机”的混合,或者是“幔源”和“壳源”二元成因的典范实例。

5 结语

不言而喻,“自然界一切石油地质现象与过程都不是孤立的、静止的,它们的相互关系及发展演化都受到地球内能的控制”^[7]。石油、天然气的成因亦符合这一规律,既有深部地幔流体的供给,又需沉积物有机质的参与,随着地质条件特别是燕山运动和喜山运动引起的“成矿成藏大爆发”,形成油气田的地质背景为前提,不应忽视。

周炎如等^[28]提出,在基底拆离(滑脱)构造体系,作为深部热液运动和烃类演化的先决条件,形成以中地壳富含热水的高温高压低速塑性层,作为有机质或烃的特殊环境。所谓微观成烃、宏观成藏机理^[29],实际是油气田“二元”成藏的理论基础。

通过初步研究,油气田同位素组成提供成因信息,概括以下几点:

(1)³He/⁴He 比值与深大断裂、岩浆活动和来自幔源的比例有关;

(2)Pb、Sr、Nd 同位素组成显示了克拉玛依油田、辽河油田及塔里木油田具有“多元、多期、多灶”的成藏特征;

(3)从 He-Ar、Ne、Xe、C-D 及 δ¹³C₁-C₂/(C₁+C₂)

的关系特征,证明存储物质来自幔源与壳源;

(4)从松辽盆地、鄂尔多斯盆地、三水盆地及苏北盆地碳同位素组份阐明油气来源皆和地壳与地幔贡献有关,即有机与无机成因兼而有之。

简而言之,具体运用“二元论”观点,有益于深部找藏工作,扩大找藏思路,预期有望取得良好的找藏效果。

参考文献:

- [1] 张景廉. 论石油的无机成因 [M]. 北京: 石油工业出版社, 2001, 87-268.
- [2] 张之一. 关于石油深部起源的若干问题[J]. 新疆石油地质, 2006, 27(1): 112-117.
- [3] Ю.Р. Каграманов, А.Г. Егикян. 论石油成因[J]. 新疆石油地质, 2006, 23(3): 265-269.
- [4] 刘光志. 石油、天然气、金刚石底下放电发光成因说[J]. 新疆石油地质, 2006, 27(1): 121-123.
- [5] Ю.А. Романов, В.Н. Фомин, 任俞译. 石油成因的无机说和有机说 [J]. 新疆石油地质, 2004, 27(5): 75-83.
- [6] 李庆忠. 打破思想禁锢, 重新审视生油理论——关于生油理论的争鸣[J]. 新疆石油地质, 2001, 22(3): 75-83.
- [7] 张厚福, 方朝亮. 盆地油气成藏动力学初探——21世纪油气地质勘探新理论探索[J]. 石油学报, 2002, 23(4): 7-9.
- [8] 郭占谦. 郭占谦石油地质论文集(2001~2005)[M]. 北京: 石油工业出版社, 2006, 1-263.
- [9] 刘光鼎. 中国大陆构造格架的动力学演化 [J]. 地学前缘, 2007, 14(3): 39-45.
- [10] 刘光鼎. 前新生代海相残留盆地[J]. 地球物理进展, 2001, 16(2): 1-7.
- [11] 徐永昌. 天然气氦同位素分布及构造环境 [J]. 地学前缘, 1997, 4(3~4): 185-190.

- [12] 钟华,周锡明,真允庆.地幔热柱与油气田成因——以东北及华北油田为例[J]. 桂林工学院学报,2003,23(3):258-265.
- [13] 真允庆,郝红蕾,付怀林,等. 广东三水盆地油气田与金属矿床的成因关系[J]. 地质学报,2008,82(6):795-804.
- [14] 邢集善,杨魏然,邢作云,等. 中国东部深部构造特征及其矿集区关系[J]. 地学前缘,2007,14(3):114-130.
- [15] 王先彬,徐胜陈跋发腾冲火山区温泉气体组分和氦的同位素特征[J]. 科学通报 1993 38(9) 814-817.
- [16] 徐永昌,沈平,刘文化,等. 东部油气区天然气中幔源挥发份的地球化学[J]. 石油学报,2007,28(3):68-74.
- [17] 张景廉,冯有奎,李相博. 无机生油理论与21世纪中国油气勘探战略[J]. 新疆石油地质 2002,23(2):248-251.
- [18] 卢振义. 南海天然气水合物藏的成因及形成模式初探[J]. 矿床地质,2002,21(2):231-237.
- [19] 金兹堡 П.А., 索洛菲也非 А.Б. 天然气水合物的地质模式[J]. 天然气地球科学,1999,9(3,4):1-8.
- [20] 胡见义. 石油地质学的前缘[M]. 北京:石油工业出版社,2002,1-332.
- [21] 徐永昌. 天然气中的幔源稀有气体[J]. 地学前缘,1996,3(3-4):63-70.
- [22] 王连生,郭占谦,马光红,等. 无机成因天然气的地球化学特征探讨[J]. 吉林大学学报,2004,34(4):542-545.
- [23] 黄海平,杨玉峰,陈发荣,等. 徐家围子断陷天然气的成因[J]. 地学前缘,2000,7(4):515-521.
- [24] 戴金星. 天然气碳同位素特征和各类天然气鉴别[J]. 天然气地球科学,1993,4(23):1-40.
- [25] 刘德良,孙先如,李振生,等. 鄂尔多斯盆地奥陶系碳酸盐岩脉流体包裹体碳同位素分析 [J]. 石油学报,2007,28(3):68-74.
- [26] 傅学斌,李春光,王旭东,等. 三水盆地 CO₂ 气藏形成条件[J]. 天然气地球科学,2004,15(4):428-431.
- [27] 马水生. 中国海相油气勘探 [M]. 北京:地质出版社,2007,415-432.
- [28] 周炎如,袁剑英,李相博,等. 改造型盆地中地壳低速塑性层高温高压下有机质成烃机制初探[J]. 新疆石油地质,1999,20(1):22-25.
- [29] 周炎如. 有机质微观成烃和宏观成藏机理[J]. 新疆石油地质,2006,27(2):135-141.

He,Pb,Sr and Nd Isotopic Composition in China Oil-gas Fields and the "Dualism Theory"

LI Ai-yong^{1,2,3}, ZHENG Yun-qing^{1,3,4}, ZENG Chao-wei³,
HAO Hong-lei³, WU Jing-feng³

(1. Eastern China Geological & Mining Organization for Non-ferrous Metals in Nanjing, 210093, Jiangsu, China; 2. School of info-physics geomatics engineering, Central South University, Changsha, 410083, China; 3. Team 814, Eastern China Geological & Mining Organization for Non-ferrous Metals in Zhenjiang, Jiangsu 212005, China; 4. No.3 Bureau, China Exploration & Engineering Bureau, Taiyuan, 030002, China

Abstract: The organic and inorganic origin of oil and gas have been debated for about 240 years. Based on the He isotopic composition, this paper has proposed that ³He/⁴He ratio of gas-oil basin in China is controlled by regional reservoir-forming background. Owing to the subduction of Pacific Plate and S-N deep-faults and dramatic volcanic-magmatic activities in the eastern China, the values of ³He/⁴He are the biggest, while that values of ³He/⁴He in the hinterland of China are the smallest, and in the western and southern China the values of ³He/⁴He are intervenient. The proportion of crustal and mantle sources of petroleum is uncertain. The Pb,Sr and Nd isotopes of Karamay, Liaohe and Tarim oilfields showed the multi-source, multi-stages and multi-focal hydrocarbon accumulation. The relations between He-Ar,Ne,Xe,C-D and δ¹³C₁-C₁/ (C₂+C₃) of natural gas and its hydrate sufficiently demonstrated that they are from crust and mantle. For example, the carbon isotope results showed that the oil and gas in Songliao Basin, Ordos Basin, Sanshui Basin and Subei Basin are all contributed by crust and mantle. The Dualism theory of crust and mantle origins of petroleum may be favorable to find deep oil-gas reservoirs.

Key words: oil-gas; isotopic composition; dualism theory; China