

doi: 10.11720/wtyht.2022.1244

杨志斌,周亚龙,张富贵,等.中国陆域冻土区浅表烃类地球化学特征及其成因分析[J].物探与化探,2022,46(3):628-636.http://doi.org/10.11720/wtyht.2022.1244

Yang Z B, Zhou Y L, Zhang F G, et al. Geochemical characteristics and genesis of hydrocarbons in superficial soil in continental permafrost regions in China [J]. Geophysical and Geochemical Exploration, 2022, 46(3): 628-636. http://doi.org/10.11720/wtyht.2022.1244

中国陆域冻土区浅表烃类地球化学特征及其成因分析

杨志斌^{1,2,3}, 周亚龙¹, 张富贵¹, 张舜尧¹, 孙忠军¹

(1. 中国地质科学院地球物理地球化学勘查研究所, 河北 廊坊 065000; 2. 国家现代地质勘查工程技术研究中心, 河北 廊坊 065000; 3. 西藏自治区地质调查院, 西藏 拉萨 850000)

摘要: 基于中国羌塘盆地、祁连山、漠河盆地冻土区浅表土壤样品资料, 进行了烃类气体组分地球化学特征、成因及性质分析。结果表明, 冻土区浅表烃类气体主要成分为甲烷, 还含有少量乙烷、乙烯、丙烷、丙烯、丁烷和戊烷。羌塘盆地和漠河盆地烃类气体主要为热解成因, 气体类型为油型气及其与煤层气的混合气; 祁连山冻土区浅表土壤中烃类气体具有热解成因和生物成因, 气体类型包括油型气、煤层气和生物气。烃类地球化学调查为我国陆域冻土区水合物等油气资源勘查提供了依据。

关键词: 陆域冻土区; 地球化学特征; 天然气水合物; 酸解烃; 顶空气

中图分类号: P632 **文献标识码:** A **文章编号:** 1000-8918(2022)03-0628-09

0 引言

中国陆域多年冻土分布范围广, 面积达 $215 \times 10^4 \text{ km}^2$, 是世界第三冻土大国, 主要分布于青藏高原、大兴安岭及其他高山地区^[1]。研究表明, 青藏高原、东北漠河盆地、祁连山等陆域多年冻土区具备良好的油气资源形成条件和找矿前景^[2]。2008 年, 中国地质调查局在青海祁连山木里地区成功地钻获了天然气水合物实物样品, 取得了找矿工作的重大突破^[3-4]。

以往科学家提出的油气形成演化模式中, 油气在成藏过程中伴有烃类游离气的微渗漏和运移的动态过程^[5]。冻土区油气的运移以及天然气水合物的形成和分解, 均导致烃类气体迁移到地表, 在沉积物中富集并形成异常。沉积物中烃类气体一般以游离气和吸附气两种不同形式存在, 分别通过顶空气法和酸解烃法将它们释放出来^[6]。针对烃类气体

的不同赋存方式, 分别选择顶空气和酸解烃检测方法检测 $C_1 \sim C_5$ 的轻烃组分, 包括甲烷 (CH_4)、乙烷 (C_2H_6)、乙烯 (C_2H_4)、丙烷 (C_3H_8)、丙烯 (C_3H_6)、异丁烷 (iC_4H_{10})、正丁烷 (nC_4H_{10})、异戊烷 (iC_5H_{12}) 和正戊烷 (nC_5H_{12}) 9 个指标^[7-8]。

1 方法技术

1.1 样品采集

样品主要采集于羌塘盆地中北部、祁连山木里三露天以及漠河盆地西北部冻土区, 羌塘盆地北羌塘地区选取面积 5000 km^2 , 采集样品 5011 件, 祁连山木里地区选取面积 150 km^2 , 采集样品 300 件, 漠河盆地选取面积 1000 km^2 , 采集样品 2001 件, 共计 7312 件土壤和顶空气样品。

土壤样品主要采集冻土区浅表第四系覆盖区 30~60 cm 黏土层或砂土层沉积物。顶空气样品采样时取一定量的土壤样品立即装入盛有饱和盐水的

收稿日期: 2021-04-30; 修回日期: 2021-07-22

基金项目: 中国地质调查局国家海洋地质专项项目“青青藏北冻土区天然气水合物资源勘查(物化探所)”(GZHL20140301); 中国地质科学院地球物理地球化学勘查研究所中央财政科研项目结余资金项目(JY201705)

第一作者: 杨志斌(1984-), 男, 硕士, 高级工程师, 主要从事能源与环境地球化学相关研究工作。Email: yzhibin@mail.cgs.gov.cn

专用容器中,容器上部留有一定的空间,然后密封保存,在运输过程中和室内均倒置摆放。

1.2 分析方法及依据

分析测试由中国石化石油勘探开发研究院勘查地球化学实验室和中国地质科学院地球物理地球化学勘查研究所完成,分析方法和检出限依据《石油天然气行业标准》(SY/T 6009—2003)执行。在分析检测过程中,采用空白监控、标准样品仪器监控、重复密码样监控、异常点复测等方法保证数据质量,分析测试质量结果符合标准要求(表 1)。

酸解烃测量方法:试样在真空和恒温(35 °C)条

件下加酸脱气,释放出来的气体经过 NaOH 吸收去除 CO₂,其余气体经碱液驱赶至量气管并记录气体体积,取适量脱出的气体,用气相色谱测定 C₁~C₅ 烃类组分含量,然后用外标法进行定量计算。

顶空间轻烃测量方法:顶空气样品取回待气液两相平衡后,用气相色谱仪检测顶空气采样容器上部空间气体中 C₁~C₅ 烃类组分含量。

甲烷稳定碳同位素($\delta^{13}\text{C}_1$)检测:首先进行脱气处理,然后将制备好的烃类气体通过 CuO 氧化成 CO₂,利用质谱法测定 $\delta^{13}\text{C}_1$ 的组成。

表 1 样品分析质量统计

Table 1 Analysis quality statistics of sample

地区	指标	酸解烃	顶空间轻烃
祁连山木里地区	样品数	300	300
	管理样	15	0
	异常复测及重复密码样数	30	30
	总合格率/%	95.5	100
漠河盆地	样品数	2001	2001
	管理样	100	0
	异常复测及重复密码样数	210	210
	总合格率/%	100	100
羌塘盆地	样品数	5011	5011
	管理样	280	0
	异常复测及重复密码样数	550	550
	总合格率/%	99.75	99.25

2 烃类地球化学特征

2.1 酸解烃地球化学特征

羌塘盆地和祁连山木里地区浅表土壤酸解烃检测均有 CH₄、C₂H₆、C₂H₄、C₃H₈、C₃H₆、nC₄H₁₀、iC₄H₁₀、nC₅H₁₂和 iC₅H₁₂组分,漠河盆地土壤样品均检测出酸解烃 CH₄、C₂H₆、C₂H₄、C₃H₈、C₃H₆,部分样品可以检测到 nC₄H₁₀、iC₄H₁₀、nC₅H₁₂和 iC₅H₁₂。冻土区所有样品酸解烃均具有 C₁>C₂>C₃>C₄>C₅ 的含量特征。

祁连山木里地区酸解烃 CH₄ 含量平均值为 55.50 μL/kg,酸解烃重烃(C₂₋₅)平均值为 7.52 μL/kg;漠河地区酸解烃 CH₄ 平均值为 3.89 μL/kg,酸解烃 C₂₋₅平均值为 0.41 μL/kg;羌塘地区酸解烃含量整体较高,组分齐全,变化范围大,酸解烃 CH₄ 平均值为 3 225.54 μL/kg,酸解烃 C₂₋₅平均值为 205.15 μL/kg(表 2);酸解烃类含量整体均值羌塘盆地>祁连山木里地区>漠河盆地。浅表沉积物酸解烃的明显富集,表明冻土区在历史演化过程中大量的烃类气体从深部迁移至地表,并在地表沉积物中吸附富

集,具有很好的烃源供给,为冻土区水合物等油气资源的形成提供了较好的气源条件^[9]。祁连山木里地区已发现天然气水合物地区酸解烃含量变化较大,变异系数达 2.68,其来源可能受多种因素控制。

2.2 游离烃地球化学特征

羌塘盆地、祁连山木里地区和漠河盆地顶空气样品,除极少数样品外,均能检测出游离 CH₄、C₂H₆、C₂H₄、C₃H₈ 和 C₃H₆ 组分,nC₄H₁₀、iC₄H₁₀、nC₅H₁₂和 iC₅H₁₂检出率较低(表 3)。

祁连山木里地区游离烃含量的平均值表现为 C₁>C₂>C₃>C₅>C₄,其中 CH₄ 体积含量为 3.01~13 092.85 μL/L,平均值 600.00 μL/L,变异系数 2.71;C₂H₆ 体积含量为 0.10~3.41 μL/L,平均值 0.51 μL/L;C₃H₈ 体积含量为 0.07~3.69 μL/L,平均值 0.44 μL/L。顶空游离 CH₄ 含量均值远远大于 C₂H₆ 和 C₃H₈,是 C₂H₆ 均值的 1 176 倍,是 C₃H₈ 均值的 1 364 倍,且甲烷变异系数大于 1,可能为多种成因^[10]。

漠河地区游离烃 CH₄ 体积含量为 1.64~644.45 μL/L,平均值 10.95 μL/L;羌塘盆地 CH₄ 体积含量为 0.10~118.39 μL/L,平均值 3.30 μL/L。相比祁

表 2 冻土区土壤酸解烃指标统计特征

Table 2 Statistics of various indexes of acidolytic hydrocarbon in the permafrost area

地区	指标	检出样本数	均值	最小值	最大值	标准离差	变异系数
			$/(\mu\text{L} \cdot \text{kg}^{-1})$	$/(\mu\text{L} \cdot \text{kg}^{-1})$	$/(\mu\text{L} \cdot \text{kg}^{-1})$	$/(\mu\text{L} \cdot \text{kg}^{-1})$	
祁连山 木里地区	CH ₄	300	55.50	1.17	1687.86	148.63	2.68
	C ₂ H ₆	300	4.43	0.01	144.45	13.77	3.11
	C ₂ H ₄	299	0.27	0	1.28	0.21	0.77
	C ₃ H ₈	299	1.48	0	60.66	5.35	3.60
	C ₃ H ₆	295	0.14	0	1.01	0.10	0.75
	nC ₄ H ₁₀	272	0.45	0	19.87	1.82	3.64
	iC ₄ H ₁₀	275	0.30	0	11.53	1.11	3.43
	nC ₅ H ₁₂	280	0.23	0	9.63	0.78	3.14
	iC ₅ H ₁₂	226	0.22	0	8.74	0.93	3.17
漠河盆地	CH ₄	2001	3.89	0.89	17.83	1.46	0.38
	C ₂ H ₆	1870	0.04	0	0.40	0.03	0.70
	C ₂ H ₄	1976	0.14	0	1.45	0.13	0.95
	C ₃ H ₈	1937	0.04	0	0.24	0.03	0.68
	C ₃ H ₆	1956	0.07	0	0.53	0.04	0.65
	nC ₄ H ₁₀	215	0.03	0	0.17	0.02	0.76
	iC ₄ H ₁₀	84	0.02	0	0.09	0.01	0.70
	nC ₅ H ₁₂	88	0.04	0	1.13	0.12	2.94
	iC ₅ H ₁₂	72	0.03	0	0.11	0.02	0.66
羌塘盆地	CH ₄	5011	3225.54	14.23	103309.19	3575.09	1.17
	C ₂ H ₆	5011	123.68	0.43	2485.51	120.83	0.98
	C ₂ H ₄	5011	0.56	0.06	2.62	0.26	0.46
	C ₃ H ₈	5011	42.96	0.25	632.55	41.55	0.97
	C ₃ H ₆	5011	0.41	0.03	3.99	0.21	0.51
	nC ₄ H ₁₀	5011	14.08	0.07	250.98	13.74	0.98
	iC ₄ H ₁₀	5011	10.50	0.04	205.49	11.05	1.05
	nC ₅ H ₁₂	5011	5.14	0.04	94.82	5.21	1.01
	iC ₅ H ₁₂	5011	7.82	0.08	182.35	8.48	1.09

表 3 冻土区顶空游离烃指标统计特征

Table 3 Statistics of various indexes of hydrocarbon gas detected with headspace gas technique in the permafrost area

地区	指标	检出样本数	均值	最小值	最大值	标准离差	变异系数
			$/(\mu\text{L} \cdot \text{L}^{-1})$	$/(\mu\text{L} \cdot \text{L}^{-1})$	$/(\mu\text{L} \cdot \text{L}^{-1})$	$/(\mu\text{L} \cdot \text{L}^{-1})$	
祁连山 木里地区	CH ₄	300	600.00	3.01	13092.85	1624.19	2.71
	C ₂ H ₆	300	0.51	0.10	3.41	0.43	0.85
	C ₂ H ₄	300	0.93	0.09	4.72	0.64	0.69
	C ₃ H ₈	300	0.44	0.07	3.69	0.44	1.00
	C ₃ H ₆	295	0.49	0	1.47	0.36	0.74
	nC ₄ H ₁₀	256	0.14	0	1.01	0.10	0.69
	iC ₄ H ₁₀	256	0.13	0	0.57	0.09	0.68
	nC ₅ H ₁₂	74	0.18	0	0.48	0.09	0.47
	iC ₅ H ₁₂	77	0.34	0	1.83	0.39	1.15
漠河盆地	CH ₄	2001	10.95	1.64	644.45	17.99	1.64
	C ₂ H ₆	2000	2.37	0	621.27	21.84	9.23
	C ₂ H ₄	2001	8.25	0.07	39.22	5.56	0.67
	C ₃ H ₈	2001	2.22	0.04	405.02	13.95	6.27
	C ₃ H ₆	2000	0.81	0.04	4.13	0.50	0.61
	nC ₄ H ₁₀	1993	0.98	0	172.68	6.04	6.14
	iC ₄ H ₁₀	1874	0.12	0	11.24	0.45	3.63
	nC ₅ H ₁₂	2000	2.77	0	55.97	3.58	1.29
	iC ₅ H ₁₂	1974	0.42	0	11.11	0.55	1.33
羌塘盆地	CH ₄	5011	3.30	0.10	118.39	4.70	1.42
	C ₂ H ₆	5005	0.43	0	300.62	5.27	12.30
	C ₂ H ₄	5006	0.65	0	6.70	0.57	0.88
	C ₃ H ₈	5009	0.27	0	136.57	2.41	8.91
	C ₃ H ₆	5006	0.18	0	13.00	0.23	1.28
	nC ₄ H ₁₀	4961	0.13	0	59.64	1.07	8.03
	iC ₄ H ₁₀	4998	0.10	0	2.63	0.09	0.92
	nC ₅ H ₁₂	4828	0.15	0	6.27	0.23	1.61
	iC ₅ H ₁₂	4860	0.16	0	6.58	0.26	1.65

连山木里地区,其游离烃 CH_4 均值是漠河地区的 55 倍,是羌塘盆地的 182 倍。根据以往研究,这可能与不同地区受地表土壤类型和冻土条件限制有关^[11],致使游离态烃类气体向上运移能力较弱,对水合物的保存相对比较有利。

3 烃类气体成因和性质

3.1 甲烷干燥系数、湿度指数

以往在油气地球化学研究中通常利用甲烷干燥系数、烃类湿度指数等方法来判别甲烷成因。甲烷干燥系数用 C_1/C_{2-5} 表示,干燥系数大于 0.99 时指

示生物成因,小于 0.99 时指示热解成因。烃类湿度指数用 $C_1/(C_2+C_3)$ 表示,湿度指数大于 100 时指示生物成因,小于 100 时指示热解成因^[11]。从羌塘盆地、祁连山木里地区、漠河盆地冻土区浅表土壤酸解烃类干燥系数与烃类湿度指数投点图看出(图 1),祁连山地区和羌塘盆地主要为热解成因气,还有少量点位为微生物成因气,漠河盆地土壤酸解烃类均为热解成因气。图 2 为冻土区土壤游离气 C_1/C_{2-5} 与 $C_1/(C_2+C_3)$ 投点图,祁连山木里地区土壤顶空游离气由生物成因气和热解成因气组成,漠河盆地和羌塘盆地为热解成因气。

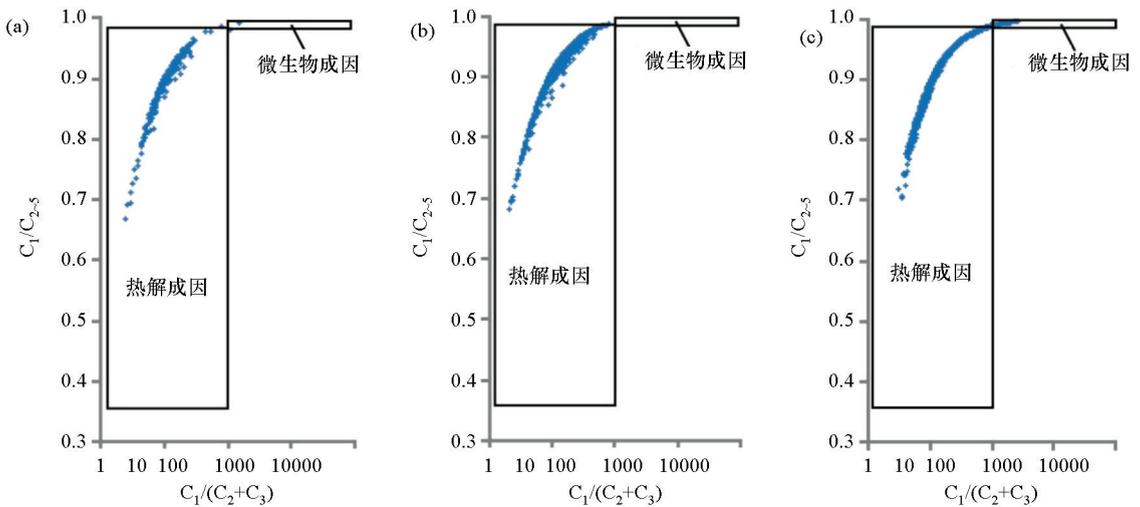


图 1 祁连山木里地区(a)、漠河盆地(b)和羌塘盆地(c)土壤酸解烃 C_1/C_{2-5} 与 $C_1/(C_2+C_3)$ 投点

Fig.1 Point diagram of C_1/C_{2-5} and $C_1/(C_2+C_3)$ from acidolysis soil in Muli area of the Qilian Mountain (a), Mohe Basin (b) and Qiangtang Basin (c)

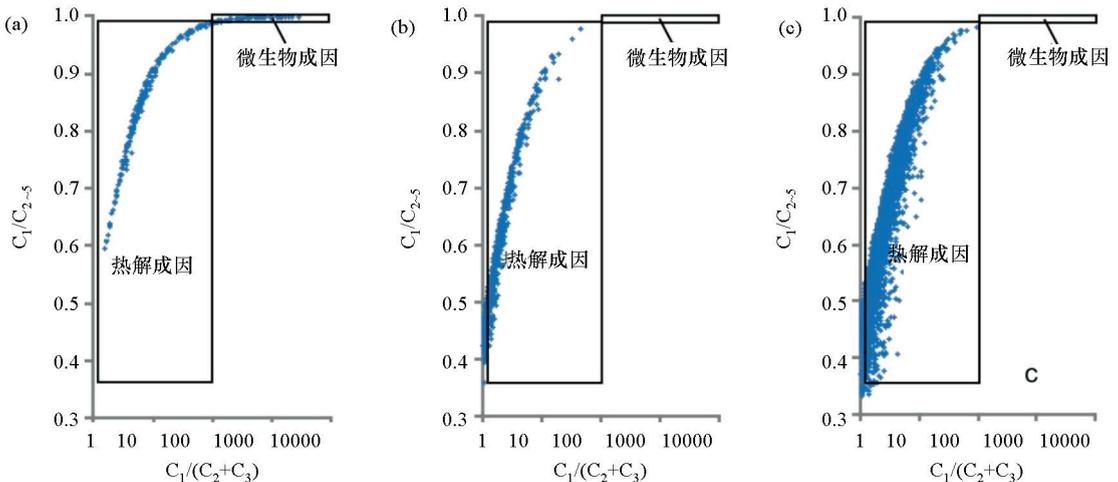


图 2 祁连山木里地区(a)、漠河盆地(b)和羌塘盆地(c)顶空轻烃 C_1/C_{2-5} 与 $C_1/(C_2+C_3)$ 投点

Fig.2 Point diagram of C_1/C_{2-5} and $C_1/(C_2+C_3)$ from head-space gas soil in Muli area of the Qilian mountain (a), Mohe Basin (b) and Qiangtang Basin (c)

储层含油气性质判别主要运用烃类丰度及其结构组成判别法、轻烷烃比率参数及轻烃组成图解法,漆富成等^[12]对国内外油气田产地大量的酸解烃 C_1/C_{1-5} 和 C_1/C_{2-5} 特征参数进行了统计,结果表明,生物成因气分布于 C_1/C_{1-5} 值(0.99~1)和 C_1/C_{2-5} 值(>100)区间,煤成气分布于 C_1/C_{1-5} 值(0.90~0.99)和 C_1/C_{2-5} 值(>10)区间,而油型气分布于 C_1/C_{1-5} 值(0.70~0.98)和 C_1/C_{2-5} 值(>2)区间。从图3和图4可以看出,羌塘盆地、祁连山木里地区和漠河盆地酸解烃方法检测的吸附烃主要为油型气或油型气与煤层气的混合气,而顶空气法检测的游离烃具有油型气、煤成气和生物气多种类型,其中生物气主

要在祁连山地区表层土壤中检测出,羌塘盆地和漠河盆地以油型气为主。

3.2 甲烷稳定碳同位素

由于生物地球化学作用和碳同位素生物分馏作用,生物成因烃类气体组成和甲烷碳同位素组分与热成因具有明显差异,可以应用烃类气体的($C_1/(C_2+C_3)$)值以及甲烷的碳同位素($\delta^{13}C_1$)组成有效的区分沉积物中烃类成因^[13]。一般来说, $C_1/(C_2+C_3) > 1\ 000$ 、 $\delta^{13}C_1 < -60\text{‰}$ (PDB)指示气体为微生物成因; $C_1/(C_2+C_3) < 1\ 000$ 、 $\delta^{13}C_1 > -50\text{‰}$ (PDB)指示气体为热解成因;介于两者之间表明为混合成因气。

对羌塘盆地和祁连山木里地区土壤样品中酸解

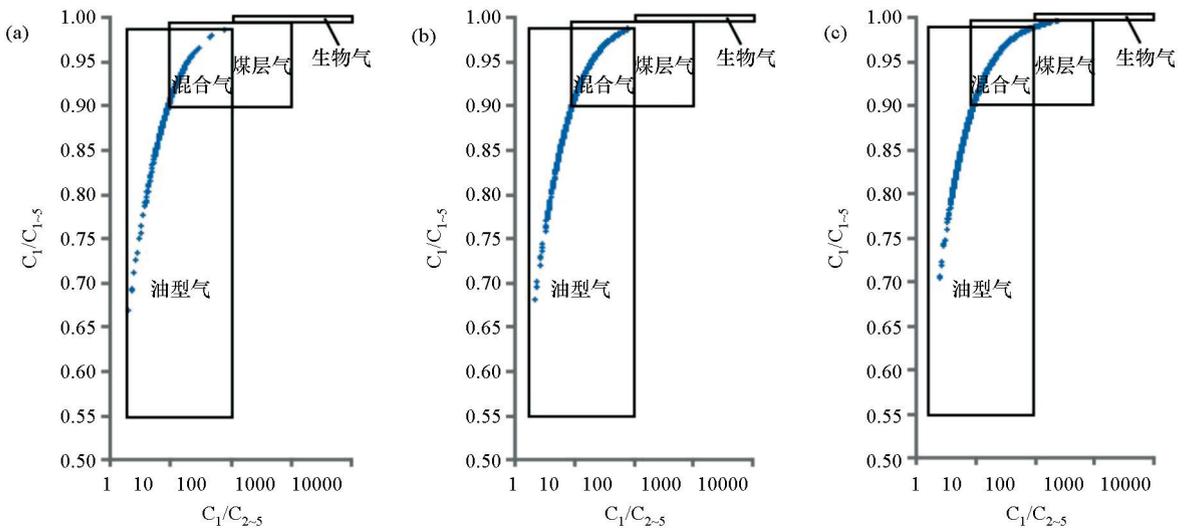


图3 祁连山木里地区(a)、漠河盆地(b)和羌塘盆地(c)酸解烃 C_1/C_{1-5} 与 C_1/C_{2-5} 投点

Fig.3 Point diagram of C_1/C_{1-5} and C_1/C_{2-5} from acidolysis soil in Muli area of the Qilian mountain(a), Mohe Basin(b) and Qiangtang Basin(c)

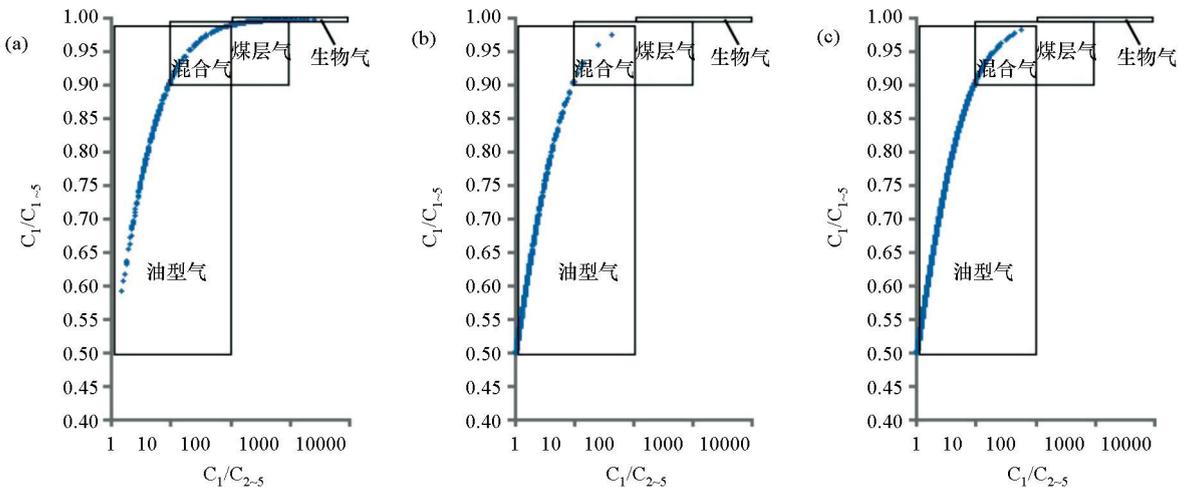


图4 祁连山木里地区(a)、漠河盆地(b)和羌塘盆地(c)顶空轻烃 C_1/C_{1-5} 与 C_1/C_{2-5} 投点

Fig.4 Point diagram of C_1/C_{1-5} and C_1/C_{2-5} from head-space gas soil in Muli area of the Qilian mountain(a), Mohe Basin(b) and Qiangtang Basin(c)

烃异常点甲烷稳定碳同位素及烃类组分分析测试,绘制 $C_1/(C_2+C_3)$ 与 $\delta^{13}C_1$ 交汇图(图 5)^[14],从图中可以看出,羌塘盆地土壤酸解烃类为深部热解气成因,主要为原油伴生气,这个结论与羌塘地区发现的油苗点事实相符^[15-17]。祁连山地区土壤酸解烃类组分是热解成因,为原油伴生气、凝析油伴生气和煤层气混合成因^[18]。资料表明,羌塘盆地是大型海相碳酸盐岩盆地,而祁连山为海陆相盆地,祁连山发现的天然气水合物被认为是凝析油气和煤层气两种成因^[19-24]。

3.3 三维荧光光谱

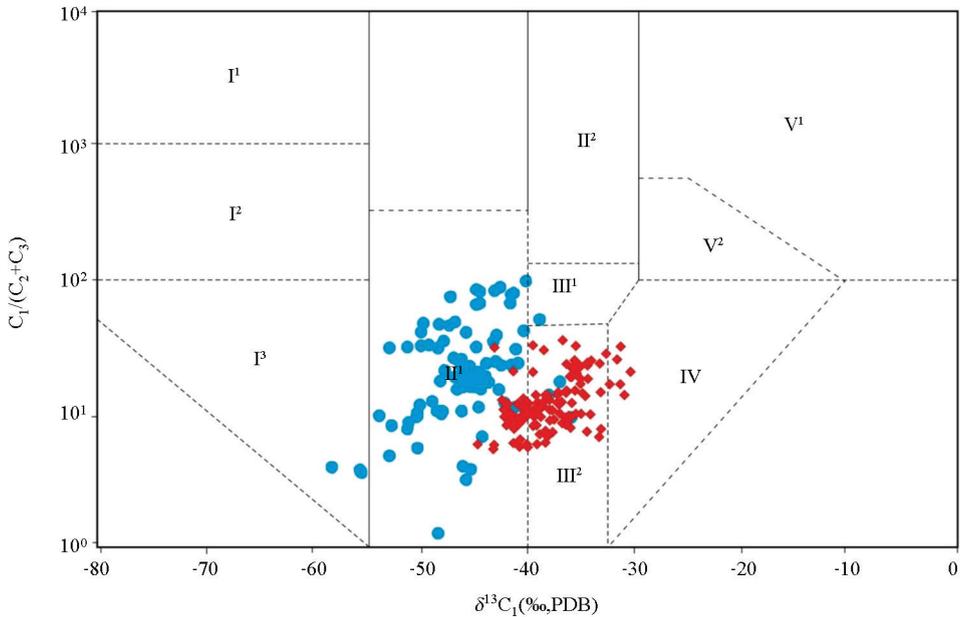
三维荧光光谱能够完整、直观地提供地质样品荧光光谱的全部信息,根据不同芳烃化合物在不同激发、发射波长的荧光光谱来判别烃类地球化学异常成因,判断烃类油气属性^[25](表 4)。

三维荧光图谱的特征参数包括峰位置(T_1 、 T_2 和

T_3)、峰强度(F)、主峰陡度(K)和特征波长对之间强度比值(R)等。在三维荧光光谱特征参数中, T_1 特征峰指示单环及其同系物, T_3 特征峰指示二环及其同系物, T_2 特征峰指示三环及其同系物^[26]。

从表 5 中看出,冻土区样品三维荧光光谱均发育 3 个峰(T_1 、 T_2 、 T_3),峰强度 $F_1 > F_2 > F_3$ 。羌塘盆地 R 值为 3.4~7.0, K 值为 0.46~0.83,是凝析油和普通油的特征峰;祁连山木里地区 R 值为 2.33~7.35, K 值为 0.65~0.81,是煤层气和凝析油特征;三维荧光特征峰判断结果与甲烷稳定同位素判定结果一致^[27]。

漠河盆地土壤三维荧光光谱 R 值为 5.3~25.0, K 值为 0.75~0.89,是凝析油的重要特征,反映了该地区曾发生较大规模油气运移,与以往研究成果一致,说明漠河盆地具有良好的水合物和油气成藏条件^[28-30]。



I¹—生物气; I²—生物气和亚生物气; I³—亚生物气; II¹—原油伴生气; II²—油型裂解气; III¹—油型裂解气和煤层气; III²—凝析油伴生气和煤层气; IV—煤层气; V¹—无机气; V²—无机气和煤层气; ●—羌塘盆地检测点; ◆—祁连山地区检测点

I¹—biogas; I²—biogas and sub-biogas; I³—sub-biogas; II¹—oil-associated gas; II²—oil cracking gas; III¹—oil cracking gas and coal gas; III²—condensate oil-associated gas and coal gas; IV—coal gas; V¹—inorganic gas; V²—inorganic gas and coal gas; ●—detection point of Qiangtang Basin; ◆—detection point of Qilian mountain

图 5 羌塘盆地和祁连山木里地区土壤酸解烃 $C_1/(C_2+C_3)$ - $\delta^{13}C_1$ 交汇图(据戴金星^[14]修改)

Fig.5 Relationships of $C_1/(C_2+C_3)$ and $\delta^{13}C_1$ in acidolysis soil from Qiangtang Basin and Muli area

(modified according to Dai J X^[14])

表 4 地表样品三维荧光技术油气属性评价的量化指标^[25]

Table 4 Quantitative indicators for evaluation of oil and gas properties of surface samples by 3D fluorescence technique

原油性质	主峰陡度 K	主次峰比 R
凝析油	0.70~80.00	>6.0
普通油	0.45~0.70	2.0~6.0
重质油	0.30~0.45	<2.0
煤成油	0.67~0.75	2.5~6.0

表 5 地表土壤样品三维荧光数值

Table 5 Quantitative indicators of surface samples by 3D fluorescence technique

分区	样号	T_1	F_1	T_2	F_2	T_3	F_3	R	K
羌塘盆地	WG218	232/340	50.0	252/370	8.7	248/312	45.0	5.7	0.73
	WG324	232/340	108.0	252/370	38.8	248/312	53.7	2.8	0.63
	WG385	228/340	45.6	252/370	8.1	248/312	50.5	5.6	0.70
	XC048	228/340	33.5	252/370	5.8	248/312	45.3	5.8	0.81
	XC161	228/340	35.2	252/370	5.8	248/312	43.5	6.1	0.81
	XC198	232/340	43.6	252/370	4.9	248/312	45.3	8.9	0.75
	XC237	232/340	40.3	252/370	3.9	248/312	42.6	10.3	0.81
	XC255	228/340	27.6	252/370	3.8	248/312	41.2	7.3	0.83
	XC274	228/340	39.3	252/370	6.8	248/312	43.4	5.8	0.78
	XC308	232/340	38.7	252/370	4.9	248/312	41.6	7.9	0.76
XY038	232/340	93.8	252/370	16.2	248/312	49.8	5.8	0.72	
祁连山木里地区	QLH1810	232/344	551.0	252/375	144.0	288/344	128.0	3.8	0.73
	QLH1911	232/344	601.0	252/375	190.0	288/340	146.0	3.2	0.68
	QLH1912	232/344	47.4	252/375	8.7	288/340	8.2	5.5	0.72
	QLH1913	232/344	60.0	252/375	9.6	282/330	11.7	6.3	0.83
	QLH1915	232/344	110.0	252/375	23.4	282/330	21.0	4.7	0.75
	QLH1916	232/344	47.0	252/375	9.5	282/330	9.7	5.0	0.71
	QLH2010	232/344	676.0	252/375	267.0	288/340	203.0	2.5	0.72
	QLH2011	228/340	520.0	252/375	183.0	288/340	134.0	2.8	0.66
	QLH2012	228/340	386.0	252/375	68.0	288/340	83.7	5.7	0.79
	QLH2108	228/340	45.8	252/375	9.8	280/330	8.8	4.7	0.72
QLH2109	228/340	90.5	252/375	13.3	280/330	17.1	6.8	0.83	
QLH2110	228/340	76.4	252/375	10.4	280/330	13.5	7.4	0.79	
漠河地区	T236	228/340	158.0	248/375	14.0	264/320	25.6	11.3	0.80
	T237	228/340	415.0	248/375	14.7	264/320	50.7	28.2	0.89
	T238	228/340	339.0	248/375	21.0	264/320	74.0	16.1	0.83
	T242	228/340	266.0	248/375	21.0	264/320	49.0	12.7	0.82
	T243	228/340	198.0	248/375	16.0	264/320	37.0	12.4	0.80
	T244	228/340	242.0	248/375	22.0	264/320	44.0	11.0	0.80
	T245	228/340	311.0	248/375	40.0	264/320	54.0	7.8	0.78
	T185	228/340	87.0	248/375	6.4	264/320	19.0	13.6	0.87
	T191	228/340	118.0	248/375	6.8	264/320	18.4	17.4	0.83
	T193	228/340	70.0	248/375	7.0	264/320	13.5	10.0	0.82
	T194	228/340	75.6	248/375	6.8	264/320	15.6	11.1	0.85
	T198	228/340	102.0	248/375	8.6	264/320	23.0	11.9	0.84
T199	228/340	153.0	248/375	13.4	264/320	39.0	11.4	0.84	
T200	228/340	172.0	248/375	20.0	264/320	50.8	8.6	0.82	

4 结论

1) 祁连山木里地区、漠河盆地、羌塘盆地冻土区浅表层均检出酸解烃、顶空气烃类。不同冻土区酸解烃方法检测的吸附烃主要为油型气,少量为与煤成气的混合气。顶空气方法检测的游离烃在祁连山木里地区具有包括油型气、煤层气和生物气多种类型,羌塘盆地和漠河盆地主要为油型气。

2) 烃类气体组成、甲烷稳定同位素和三维荧光光谱判定结果显示,祁连山木里地区土壤游离气由生物成因气和热解成因气组成,土壤酸解烃类均为热解成因气,主要是凝析油成因气和煤层气。漠河

盆地和羌塘盆地土壤游离气为热解成因气,土壤酸解烃类大部分为热解成因气,气体成因为凝析油气,极少数为微生物成因气。

3) 中国陆域冻土区具有较大的油气资源潜力,土壤烃类地球化学可以反映陆域冻土区深部气源特征和性质,为陆域冻土区天然气水合物等油气资源勘查起到重要辅助作用。

参考文献 (References):

- [1] 周幼吾,郭东信,邱国庆,等.中国冻土[M].北京:科学出版社,2000.
Zhou Y W, Guo D X, Qiu G Q, et al. Frozen ground of China [M]. Beijing: Science Press, 2000.
- [2] 张洪涛,张海启,祝有海.中国天然气水合物调查研究现状及其

- 进展[J].中国地质,2007,34(6):953-961.
- Zhang H T, Zhang H H, Zhu Y H. Gas hydrate investigation and research in China: Present status and progress[J].Geology in China, 2007, 34(6):953-961.
- [3] 祝有海,张永勤,文怀军,等.青海祁连山冻土区发现天然气水合物[J].地质学报,2009,83(11):1762-1771.
- Zhu Y H, Zhang Y Q, Wen H J, et al. Gas hydrates in the Qilian Mountain permafrost, Qinghai, northwest China[J].Acta Geologica Sinica, 2009, 83(11):1762-1771.
- [4] Lu Z, Zhu Y, Zhang Y, et al. Gas hydrate occurrences in the Qilian Mountain permafrost, Qinghai Province, China [J].Cold Regions Science and Technology, 2011, 66(2-3):93-104.
- [5] 孙春岩,牛滨华,王宏语,等.西沙海槽研究区天然气水合物地球化学勘探及成藏模式研究[J].地学前缘,2005,12(1):243-251.
- Sun C Y, Niu B H, Wang H Y, et al. A study of gas hydrate geochemical exploration and deposit formation patterns in the Xisha ocean[J].Earth Science Frontiers, 2005, 12(1):243-251.
- [6] 金庆焕,张光学,杨木壮,等.天然气水合物资源概论[M].北京:科学出版社,2006.
- Jin Q H, Zhang G X, Yang M Z, et al. Introduction to natural gas hydrate resources[M].Beijing: Science Press, 2006.
- [7] 卢振权,吴必豪.海底水合物地球化学探测方法的试验研究[J].现代地质,2002,16(3):299-304.
- Lu Z Q, Wu B H. Experimental research on geochemical methods for prospecting gas hydrates in marine sediments[J].Geoscience, 2002, 16(3):299-304.
- [8] 梁世容,寇新琴.利用地球化学异常探测水合物[J].南海地质研究,2004:115-121.
- Liang S R, Kou X Q. Prospecting gas hydrates by geochemical anomaly methods [J]. Gresearch of Ecological South China Sea, 2004:115-121.
- [9] Sun Z J, Yang Z B, Mei H, et al. Geochemical characteristics of the shallow soil above the Muli gas hydrate reservoir in the permafrost region of the Qilian Mountains, China [J]. Journal of Geochemical Exploration, 2014, 139: 160-169.
- [10] Lu Z, Zhu Y, Liu H, et al. Gas source for gas hydrate and its significance in the Qilian Mountain permafrost, Qinghai [J]. Marine and Petroleum Geology, 2013, 43: 341-348.
- [11] 邢学文,刘松,周红英,等.木里冻土带天然气水合物赋存区浅层土壤地球化学特征及指示意义[J].石油与天然气地质,2014,35(2):159-166.
- Xing X W, Liu S, Zhou H Y, et al. Geochemical behaviors of shallow oil in Muli permafrost and their significance as gas hydrate indicators[J].Oil and Gas Geology, 2014,35(2):159-166.
- [12] 漆富成,秦明宽,刘武生,等.鄂尔多斯盆地直罗组赋储油沉积相与油气蚀变带的时空配置[J].铀矿地质,2007,23(2):65-70.
- Qi F C, Qin M K, Liu W S, et al. Time-space configuration of uranium mineralization, sedimentary facies and oil & gas induced alteration zone in Zhiluo formation, Ordos basin [J]. Uranium Geology, 2007, 23(2):65-70.
- [13] 戴金星,倪云燕,黄士鹏,等.中国天然气水合物气的成因类型[J].石油勘探与开发,2017,44(6):837-848.
- Dai J X, Ni Y Y, Huang S P, et al. Genetic types of gas hydrates in China [J]. Petroleum Exploration and Development, 2017, 44(6):837-848.
- [14] 戴金星.天然气碳氢同位素特征和各类天然气鉴别[J].天然气地球科学,1993,4(2/3):1-40.
- Dai J X. Natural gas hydrocarbon isotope characteristics and identification of various natural gas [J]. Natural Gas Earth Sciences, 1993,4(2/3):1-40.
- [15] Liu S, Jiang Z, Liu H, et al. The natural-gas hydrate exploration prospects of the Nayixiong Formation in the Kaixinling-Wuli Permafrost, Qinghai-Tibet Plateau [J]. Marine and Petroleum Geology, 2016, 72: 179-192.
- [16] 季长军,尹海生,夏国清,等.羌塘盆地隆鄂尼地区油苗芳烃分布特征及意义[J].沉积学报,2014,32(2):391-398.
- Ji C J, Yin H S, Xia G Q, et al. Geochemical characteristics and significance of omatic hydrocarbon of Long'en area crude oil in Qiangtang Basin [J]. Acta Sedimentologica Sinica, 2014, 32(2):391-398.
- [17] 王成善,尹海生,刘池洋,等.西藏羌塘盆地古油藏发现及其意义[J].石油与天然气地质,2004,25(2):139-143.
- Wang C S, Yin H S, Liu C Y, et al. Discovery of paleo-oil-reservoir in Qiangtang basin in Tibet and its geological significance [J]. Oil and Gas Geology, 2004, 25(2):139-143.
- [18] 谭富荣,刘世明,崔伟雄,等.木里煤田聚乎更矿区天然气水合物气源探讨[J].地质学报,2017,91(5):1158-1167.
- Tan F Y, Liu S M, Cui W X, et al. Origin of gas hydrate in the Juhugeng mining area of Muli coalfield [J]. Acta Geologica Sinica, 2017, 91(5):1158-1167.
- [19] Li B, Sun Y, Guo W, et al. The mechanism and verification analysis of permafrost-associated gas hydrate formation in the Qilian Mountain, Northwest China [J]. Marine and Petroleum Geology, 2017, 86: 787-797.
- [20] 黄霞,刘晖,张家政,等.祁连山冻土区天然气水合物烃类气体成因及其意义[J].地质科学,2016,51(3):934-945.
- Huang X, Liu H, Zhang J Z, et al. Genetic-type and its significance of hydrocarbon gases from permafrost-associated gas hydrate in Qilian Mountain [J]. Chinese Journal of Geology, 2016, 51(3):934-945.
- [21] 刘昌岭,贺行良,孟庆国,等.祁连山冻土区天然气水合物分解气碳氢同位素组成特征[J].岩矿测试,2012,31(3):489-494.
- Liu C L, He X L, Meng Q G, et al. Carbon and hydrogen isotopic compositions characteristics of the released gas from natural gas hydrates in the Qilian Mountain Permafrost [J]. Rock and Mineral Analysis, 2012,31(3):489-494.
- [22] 卢振权,祝有海,张永勤,等.青海祁连山冻土区天然气水合物的气源条件及其指示意义[J].矿床地质,2013,32(5):1035-1044.
- Lu Z Q, Zhu Y H, Zhang Y Q, et al. Gas source conditions for gas hydrate in Qilian Mountain permafrost of Qinghai and their implications [J]. Mineral Deposits, 2013, 32(5):1035-1044.
- [23] 刘圣乾,刘晖,姜在兴,等.青海南部冻土区天然气水合物成藏控制因素[J].地学前缘,2017,11(6):242-253.
- Liu S Q, Liu H, Jiang Z X, et al. Controlling factors of gas hydrate

- formation in southern Qinghai permafrost[J]. *Earth Science Frontiers*, 2017, 11(6): 242-253.
- [24] 庞守吉, 苏新, 何浩, 等. 祁连山冻土区天然气水合物地质控制因素分析[J]. *地学前缘*, 2013, 20(1): 223-239.
Pang S J, Su X, He H, et al. Geological controlling factors of gas hydrate occurrence in Qilian Mountain permafrost China[J]. *Earth Science Frontiers*, 2013, 20(1): 223-239.
- [25] 宋继梅, 吴杰颖, 王凌峰. 荧光分析法在油气化探中的应用[J]. *物探与化探*, 2002, 26(5): 347-349.
Song J M, Wu J Y, Wang L F. The application of fluorescence spectral analytical method to oil and gas geochemical exploration [J]. *Geophysical and Geochemical Exploration*, 2002, 26(5): 347-349.
- [26] 汤玉平, 丁湘玉, 吴向华, 等. 中国主要含油气盆地区域地球化学场参数特征及其成因研究[J]. *石油勘探与开发*, 2001, 28(3): 1-4.
Tang Y P, Ding X Y, Wu X H, et al. Features and genesis of regional geochemical fields of the main hydrocarbon-bearing basins in China[J]. *Petroleum Exploration and Development*, 2001, 28(3): 1-4.
- [27] Cheng B, Xu J, Lu Z, et al. Hydrocarbon source for oil and gas indication associated with gas hydrate and its significance in the Qilian Mountain permafrost, Qinghai, Northwest China[J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2018, 89: 202-215.
- [28] Zhao X, Deng J, Li J, et al. Gas hydrate formation and its accumulation potential in Mohe permafrost, China [J]. *Marine and Petroleum Geology*, 2012, 35(1): 166-175.
- [29] 赵省民, 邓坚, 饶竹, 等. 漠河盆地多年冻土带生物气的发现及对陆域天然气水合物勘查的重要意义[J]. *石油学报*, 2015, 36(8): 954-965.
Zhao X M, Deng J, Rao Z, et al. Occurrence of biogenic gas in the permafrost of Mohe Basin and its implication for gas hydrate exploration in continental permafrost, China [J]. *Acta Petrolei Sinica*, 2015, 36(8): 954-965.
- [30] 吴河勇, 辛仁臣, 杨建国. 漠河盆地中侏罗统沉积演化及含油气远景[J]. *石油实验地质*, 2003, 25(2): 116-121.
Wu H Y, Xin R C, Yang J G. The middle Jurassic sedimentary evolution and petroleum potential of the Mohe Basin [J]. *Experimental Petroleum Geology*, 2003, 25(2): 116-121.

Geochemical characteristics and genesis of hydrocarbons in superficial soil in continental permafrost regions in China

YANG Zhi-Bin^{1,2,3}, ZHOU Ya-Long¹, ZHANG Fu-Gui¹, ZHANG Shun-Yao¹, SUN Zhong-Jun¹

(1. Institute of Geophysical and Geochemical Exploration, Chinese Academy of Geological Sciences, Langfang 065000, China; 2. State Research Center of Modern Geological Exploration Engineering Technology, Langfang 065000, China; 3. Tibet Institute of Geological Survey, Lhasa 850000, China)

Abstract: This study analyses the geochemical characteristics, genesis, and properties of hydrocarbon components using data of surface soil samples collected from the permafrost regions in the Qiangtang Basin, the Qilian Mountains, and the Mohe Basin. The results revealed that the hydrocarbon gases in the superficial soils in the permafrost regions mainly comprise methane, as well as a small amount of ethane, ethylene, propane, butane, and pentane. The hydrocarbon gases in the Qiangtang and Mohe basins are mainly of pyrolytic genesis and their types include soil-formed gas and the mixed gas of soil-formed gas and coalbed methane. In contrast, hydrocarbon gases in the superficial soil in the permafrost zone in the Qilian Mountains are of pyrolytic and biogenic genesis and their types include soil-formed gas, coalbed methane, and biogenetic gas. The study provides a basis for exploring oil and gas resources such as natural gas hydrates in the continental permafrost regions in China.

Key words: continental permafrost region; geochemical characteristics; natural gas hydrate; acidolysis hydrocarbon; headspace gas

(本文编辑: 蒋实)