

天然氢富集过程及勘探技术研究进展

翟常博¹, 孟庆强¹, 王国建¹, 赵培荣¹, 陶仁彪², 李媛媛¹, 张旺³, 孙士杰¹, 刘友祥¹, 卢宇杭², 傅灿⁴

[1. 中国石化石油勘探开发研究院, 北京 100262; 2. 北京高压科学研究中心, 北京 100120; 3. 中国科学院地质与地球物理研究所, 北京 100026; 4. 中国石油大学(北京), 北京 102249]

摘要:天然氢以其“零碳、低价、可持续”的特性,成为氢能领域的重要方向,其富集过程是形成天然氢气藏及其高效利用的基础。在系统调研国内外相关研究的基础上,围绕天然氢形成的物质基础(氢源岩)类型及其生氢差异,天然氢因扩散、溶解和吸附等过程中的散失机制,天然氢与常规油气资源评价方法的异同,以及数值模拟在天然氢研究领域的应用优势等方面进行了研究。研究结果表明:①天然氢分布受大地构造控制显著,深大断裂不仅是深源氢气的上涌通道,也制约着有效氢源岩的分布。②当前氢与氦同位素判别方法在天然氢成因研究中存在氢与氦是否同源、氢同位素演变过程不明等问题。③天然氢的保存条件复杂,扩散、水溶和吸附是造成天然氢损失的主要因素,对天然氢资源量评估影响最大。④在资源评价方面,沿用常规油气方法评估天然氢资源面临评价逻辑不同、评价标准差异明显及核心参数与量化方法根本不同等3个方面主要挑战。⑤数值模拟是评估天然氢资源量的关键手段,二次开发后更可广泛应用于天然氢运移与富集机理研究。

关键词:数值模拟;富集过程;资源评价;氢源岩;生氢;天然氢

中图分类号:TE132.2

文献标识码:A

Research progress in enrichment processes and exploration technologies of natural hydrogen

ZHAI Changbo¹, MENG Qingqiang¹, WANG Guojian¹, ZHAO Peirong¹, TAO Renbiao², LI Yuanyuan¹,
ZHANG Wang³, SUN Shijie¹, LIU Youxiang¹, LU Yuhang², FU Can⁴[1. *Petroleum Exploration and Production Research Institute, SINOPEC, Beijing 100262, China*; 2. *Center for High Pressure Science & Technology Advanced Research, Beijing 100120, China*; 3. *Institute of Geology and Geophysics, Chinese Academy of Sciences, Beijing 100026, China*; 4. *China University of Petroleum (Beijing), Beijing 102249, China*]

Abstract: Natural hydrogen, characterized by its zero-carbon emission, low price, and sustainable supply, has emerged as a pivotal frontier in the development of hydrogen energy. Its enrichment process is fundamental to the formation and efficient utilization of natural hydrogen reservoirs. Based on a systematic review of relevant studies from both domestic and international sources, this study investigated the types of material foundations for natural hydrogen generation (hydrogen source rocks) and their differences in hydrogen-generation capacity, the dissipation mechanisms (including diffusion, dissolution, and adsorption) of natural hydrogen, the methodological similarities and differences between natural hydrogen and conventional oil and gas resource assessment, and the value of numerical simulation in advancing natural hydrogen research. As indicated by the research results, the distribution of natural hydrogen varies significantly due to diverse geotectonic structures; specifically, deep-seated faults serve both as pathways for deep-sourced hydrogen upwelling and as primary constraints on the distribution of effective hydrogen source rocks. However, current genetic identification using hydrogen and helium isotopes remains challenged by uncertainties regarding the co-genetic nature of hydrogen and helium, as well as the ambiguous evolutionary pathways of hydrogen isotopes. Furthermore, natural hydrogen faces complex preservation conditions. Diffusion, aqueous dissolution, and adsorption were identified as the primary drivers of hydrogen loss, which represent the most critical factors affecting the accuracy of resource assessment.

收稿日期:2026-01-05;修回日期:2026-02-10。

第一作者简介:翟常博(1978—),男,油气成藏与科技综合管理。E-mail: zhaichb_syky@sinopec.com。

通信作者简介:孟庆强(1978—),男,油气与天然氢成藏机理。E-mail: mengqq_syky@sinopec.com。

基金项目:国家自然科学基金项目(U2244209,42172168,U25A202984);中国石化基础性前瞻性研究项目(P25192)。

In terms of resource evaluation, adapting conventional oil and gas assessment methods to natural hydrogen resources poses three major challenges, that is, differing evaluation logic, distinct evaluation criteria, and fundamental disparities in core parameters and quantification methods. Therefore, numerical simulation represents a key approach for quantifying natural hydrogen resource volumes and, following further development, can be more widely applied to studies of the migration and enrichment mechanisms of natural hydrogen.

Key words: numerical simulation, enrichment process, resource evaluation, hydrogen source rock, hydrogen generation, natural hydrogen

引用格式:翟常博,孟庆强,王国建等.天然氢富集过程及勘探技术研究进展[J].石油与天然气地质,DOI:10.11743/oggXXXXXX01.

ZHAI Changbo, MENG Qingqiang, WANG Guojian, et al. Research progress in enrichment processes and exploration technologies of natural hydrogen[J]. Oil & Gas Geology, DOI:10.11743/oggXXXXXX01.

氢能是全球能源清洁转型的重要方向,其可持续发展的关键在于获得低碳甚至零碳、低价、可持续的氢源。天然氢是地质过程中形成的游离态氢气,因其形成过程中不产生人为因素的碳排放,又被称为“地质氢”“金氢”或“白氢”^[1],其井口获取价格低(0.5美元/kg),具有极强的成本优势。据美国地质调查局统计,全球天然氢资源量超 $560 \times 10^{12} \text{ t}$ ^[2],可供人类使用超过 500 a,可持续性强。

前人在板块碰撞带附近的中小型盆地开展过系统的油气勘探,积累了大量的地质、地球物理与地球化学资料。对于尚未实现油气突破的这些中小型盆地而言,若能发现商业化天然氢气藏,则对于重新利用已有资料、盘活区块资产具有重要意义;同时,通过厘清不同构造背景下天然氢富集主控因素,预测天然氢在不同地质背景中的分布,可以推动天然氢的勘探突破。本文通过分析天然氢形成的源岩分布特征、天然氢形成过程的影响因素、有效保存的主控因素以及利用基于物理实验约束的数值模拟方法预测天然氢分布及其资源评价方法等过程,探讨天然氢富集过程的主控因素,为实现天然氢的勘探突破提供新思路。

1888年,门捷列夫报道了东欧一处煤矿断层中的氢气;此后,在美国、澳大利亚及苏联等国家的沉积盆地内发现了天然氢^[1-7],主要赋存在油田和温泉等天然气以及包裹体中^[8-9],其含量分布极其不均,从 0.000 1%~97%不等。近年来,在对古老烃源岩实施钻探的过程中,从钻井泥浆的气泡中检测到含量超过 95%的天然氢,这一发现被认为是这些地层富含天然氢的重要标志^[10]。

1 天然氢分布普遍,受源岩分布控制明显

天然氢(尤其是含量>10%的氢气藏)主要分布在

板块碰撞带附近,如大洋中脊的转换断层附近的热液喷口、西太俯冲带、北美造山带以及特提斯构造带中的蛇绿岩分布区,这是因为:①在洋-陆板块碰撞带附近,洋壳残留的蛇绿岩富含 Fe^{2+} ,是水-岩反应形成氢气的重要源岩类型^[6-7];②在陆-陆板块碰撞带附近,大陆俯冲带特有的“三明治”结构造成铁镁质-超铁镁质岩浆上涌形成氢源岩^[11];③板块碰撞带形成的深大断裂,为深源氢气运移至地表提供了通道。由于板块性质、俯冲形式、流体特征及供应状态等因素的差异,板块碰撞带不同部位的天然氢在赋存形式和含量上表现出显著差异^[12],可形成天然氢气藏(氢气含量高达 60%~80%)、氮气气藏(氮气含量>90%)和无机甲烷气藏(甲烷含量>80%)^[13],这些差异均与各自的构造背景密切相关。

1.1 天然氢分布的构造差异性

板块碰撞带后缘的裂陷或断陷盆地,通常位于上覆板块的浅部地壳。碰撞作用形成的深大断裂可从下伏板块延伸至盆地内部,为深源基性-超基性岩浆及氢气提供运移通道,使其进入盆地,进而成为优质氢源。盆地发育的沉积岩层不仅可以作为天然氢的储集空间,还可以作为天然氢的盖层^[9]。在板内裂谷盆地方面,位于太平洋板块和美洲板块碰撞带后缘的北美中央裂谷系,其内部的堪萨斯盆地是该裂谷系中的典型裂陷盆地^[14],早在 1980 年代,该盆地就发现了高含量天然氢^[15],其主要来源被认为是蛇纹石化作用^[16],且近 30 年来该地区的天然氢含量逐渐升高^[17],表明成氢过程仍在持续进行。在造山带附近盆地方面,位于印度板块与亚欧板块碰撞带后方的楚雄盆地,于 2002 年最早报道了中国含油气盆地中天然氢含量最高的钻井——乌龙 1 井^[18],尽管目前针对该井天然氢来源的研究较少,但该井中发育的 4 层煌斑岩可

能对天然氢的形成与聚集有重要作用。值得注意的是,在2001年3月13—15日,乌龙1井在侏罗系冯家河组(深度2 411~2 425 m井段)试气时,测试数据显示:平均日产水量为45 m³,日产天然气量为25 m³,测试层最高压力为23.70 MPa,压力系数为1.002。4次取样分析中,天然氢含量分别为33.14%,18.33%,43.79%和40.88%。

在同一沉积盆地内,不同构造单元中的天然氢含量差异明显。乌龙1井位于楚雄盆地中部深拗陷区盐丰凹陷乌龙口背斜带上,而云参1井位于该盆地东部浅拗陷区云龙凹陷发窝构造南高点(图1)。老井资料复查发现,云参1井在泥盆系(未分)深度1 385~1 422 m井段试气时显示,实测压力为7.04 MPa,压力系数为0.512,日产水量为3.46 m³,微含气,天然氢含量为28.44%。下伏奥陶系大菁组内发现了一层厚度为130 m的辉绿岩,推测与天然氢的形成密切相关。

1.2 氢源岩差异性控制着天然氢的分布特征

板块缝合带构造活跃区,深源火成岩较为发育,且主要以富含Fe²⁺的基性-超基性岩为主。这些岩石通过水-岩反应形成天然氢,因此在板块缝合带附近氢

源岩广泛分布,易形成高含量天然氢。以楚雄盆地为例,其周边存在澜沧江-金沙江-哀牢山-甘孜-理塘等多条缝合带,盆地内部发育绿汁江深大断裂带,为深源火成岩的发育提供了有利的地质条件。

岩心及野外地质调查表明,楚雄盆地及周缘广泛发育辉绿岩和玄武岩等基性岩体^[19-22]。例如,盆地北部震旦系—奥陶系中多层辉绿岩顺白云岩和砂泥岩层间侵入;早二叠世末—晚二叠世,玄武岩沿程海、普渡河和绿汁江等深大断裂喷溢,同时辉长岩或辉绿岩以侵入体形式分布在奥陶系,其中大菁组辉绿岩厚度可达130 m^[23-25]。这类火成岩通常沿深大断裂侵位,一方面提供富Fe²⁺矿物,另一方面与沿深部断裂逸出的幔源流体发生叠加。例如,相邻的腾冲火山区温泉气体中检测到显著的H₂和He同位素异常^[26-27],指示该区域具备“基性岩水-岩反应产氢”的无机成氢机制。前文所述的乌龙1井与云参1井虽然都发现了高含量天然氢,但其氢源岩存在明显差别:乌龙1井主要以煌斑岩蚀变为主,而云参1井的氢源岩与辉绿岩关系更密切;乌龙1井发育4层煌斑岩,天然氢含量较高,而云参1井仅发现1层辉绿岩,天然氢含量相对较低。两口井中天然氢含量的差别,不仅与氢源岩的类型相关,而且与氢源岩的层数也密切相关。因此,氢源岩的类型及数量,是控制天然氢分布及其含量的关键要素。

2 天然氢来源复杂,影响生氢过程的因素多,造成成因判识标准不完善

天然氢主要包括有机与无机两种来源。在有机来源中,其一是有机质生烃过程产氢。有机质生烃过程造成干酪根演化程度逐渐升高,在干酪根裂解过程中,一方面干酪根逐渐石墨化,造成干酪根碳链上的氢、氧和氮原子脱落;另一方面,碳链断裂也导致部分氢原子脱落。这些脱落的氢原子以氢自由基形式存在,并最终形成天然氢^[28-32]。其二是生氢微生物活动产氢,在煤层^[33]和油藏^[34]中形成高含量天然氢。

2.1 天然氢无机成因及其影响因素

在地幔脱气作用生氢、水-岩反应生氢、岩石新鲜面氢自由基生氢和水被辐照分解生氢等4种无机生氢过程中,富含Fe²⁺岩石的水-岩反应生氢通量最高,每年可达1×10¹² mol^[35]。目前全球唯一商业化开发的马里布拉格布谷天然氢气藏的氢源,被认为是水-岩反应的结果^[3,36]。

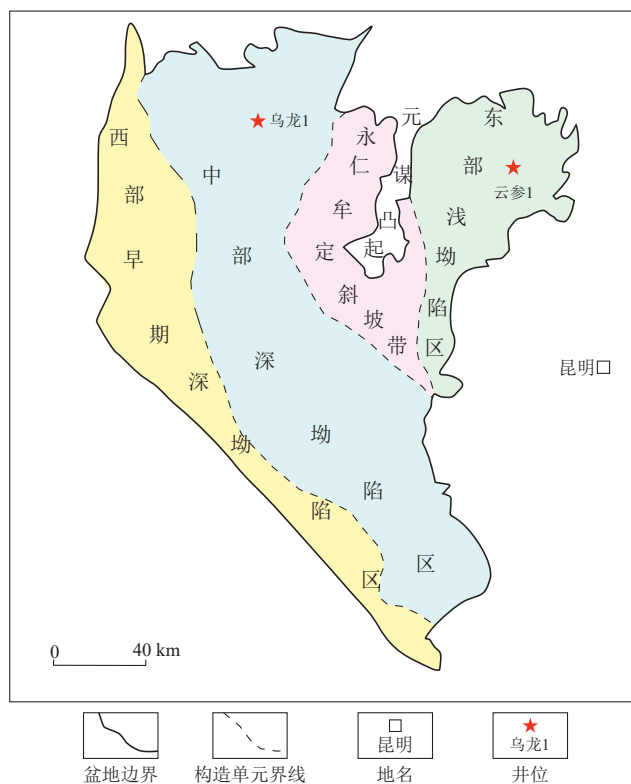


图1 楚雄盆地构造单元划分及典型井位置

Fig. 1 Tectonic divisions of the Chuxiong Basin and locations of typical wells

Huang等^[37]发现,低温条件下($\leq 300\text{ }^{\circ}\text{C}$)二氧化硅会抑制橄榄石生氢,使氢气产率降低1~2个数量级,但高温时($\geq 400\text{ }^{\circ}\text{C}$)影响不大,这可能是因为高温阶段橄榄石生氢效率的增加抵消了二氧化硅的抑制作用。此外,橄榄岩中的尖晶石和辉石对生氢具有截然相反的作用:前者促进橄榄石的蛇纹石化生氢过程,而后者则延缓了这一过程。因此,岩石的矿物组成也是影响岩石生氢的重要因素。然而,这些矿物在不同阶段的影响作用,以及多种矿物同时作用的最终效果,尚需进一步研究。

前人研究已注意到流体的pH值对水-岩反应生氢的影响^[38]。Huang等^[39]发现碱性溶液($\text{pH} = 13.5$)和酸性溶液($\text{pH} = 2.5$)均能促进橄榄岩蛇纹石化生氢的速率和产量,但强酸性溶液($\text{pH} < 2.5$)则会抑制前述过程,使氢气产率降低约2个数量级。流体与岩石的质量比(水/岩比)对水-岩反应生氢的影响目前争议较大。有的学者认为水/岩比与氢气产率呈负相关关系^[40-41],但也有实验表明高水/岩比促进氢气形成^[42]。这一分歧可能与模拟实验的条件不同有关,也进一步证明影响水-岩反应生氢的因素较多^[43]。尽管如此,氢源岩类型及其矿物组成,仍然是控制岩石生氢能力的关键要素。

2.2 天然氢多种成因及多影响因素造成其成因识别较难

天然氢气的来源是精准评估其资源量及储量、制定勘探策略的关键。目前普遍接受的观点是,沉积盆地中的天然氢大多具有有机-无机混合的特征^[43-46],然而如何精准识别天然氢成因,仍存在标准不明、针对性不强的问题。

前文所述影响天然氢形成的各种因素,如矿物种类、水/岩比以及流体酸碱度等,可能改变了生氢过程中矿物元素参与的方式与过程,造成氢气生成的速率和产率的变化,并最终表现在氢气与其他组分含量关系以及氢气中氢同位素组成的改变上。然而,这些过程是否发生、如何改变产物的地球化学特征,目前仍然研究较少,是未来主要的攻关内容。

目前,主要根据氢气及其伴生气体的组分含量和同位素组成等地球化学特征识别沉积盆地天然氢气的成因^[4,44,47-50]。在判识指标方面,金之钧等^[51]提出,幔源氢气的 H_2/He 含量比值一般不超过 6×10^6 ,而壳源氢气与之相反,并据此在渤海湾盆地济阳坳陷识别出壳源、幔源和混合来源的氢气。利用氢气同位素组成对氢气来源进行判识的前提,是二者具有相同的来

源或形成过程,即在同一个系统中形成。然而,由于氢气与氦气性质活泼,氦气可以渗入已经形成的氢气藏中,反之亦然。因此,在利用氢气同位素组成特征对天然氢来源进行识别时,应先论证二者是否同源。但如何确定氦气与氢气同源,目前仍是一个关键的科学问题。

Milkov^[49]统计认为,壳源氢气的氢同位素值(δD)主体小于 -650‰ ,而幔源和地球原始氢气的 δD 则介于 $-650\text{‰} \sim -100\text{‰}$,因此可以根据 δD 来判识氢气的成因,但该研究并未对 -650‰ 这一界限值本身的归属作出判断,造成应用该指标时存在多解性。孟庆强等^[17]则认为越往地球深部,氢同位素组成越轻,因此提出壳源氢气一般 $\delta\text{D} > -700\text{‰}$ 、而 $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2) < -8$,幔源氢气一般 $\delta\text{D} < -700\text{‰}$ 、而 $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2) > -4$,因此可以根据 $\delta\text{D}-\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2)$ 关系图版来鉴别不同成因氢气。这两种观点均基于不同构造背景下天然氢的氢同位素组成统计结果,但关于壳源与幔源氢气的同位素组成存在截然不同的结论。因此,不同地质条件下氢元素演变为氢气的过程及其同位素组成响应,以及氢气形成后在不同地质环境中运移期间发生的同位素改变,不仅是下一步的研究重点,也是解决上述争议的关键所在。

Liu等^[4]根据全球不同地质背景下氢气及其伴生气体的组分和碳、氢同位素组成特征,提出了一套判识氢气成因的指标体系(图2)。该方案认为:幔源氢气 $\delta\text{D} \leq -700\text{‰}$, $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2) = -0.5 \sim 0.5$;有机质热裂解形成的氢气 $\delta\text{D} = -750\text{‰} \sim -600\text{‰}$, $\ln(\text{CH}_4/\text{H}_2) > 5$;而水的辐射分解形成的氢气一般 $\delta\text{D} \leq -700\text{‰}$ 。该方法综合考虑了不同成因甲烷、氦气以及氢气之间的含量关系和同位素组成特征。由于氦气含量及同位素组成是识别壳幔来源的灵敏指标,因此该判识体系具有准确度高、适用性广、可靠性强的特点。

利用上述方法,对典型地区氢气成因进行了初步识别。鄂尔多斯盆地大牛地气田上古生界天然气中,甲烷和氢气的氢同位素值呈较好的正相关性,表明氢气与甲烷成因类似,均来自上古生界煤系烃源岩^[52]。济阳坳陷天然气的 H_2/He 比值多小于 6×10^6 , R/R_a (R 为样品中的 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 含量比, R_a 为标准大气中的 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 含量比)比值最高为3.262,前人认为氢气以幔源为主^[44];然而,其 δD 介于 $-798\text{‰} \sim -628\text{‰}$,具有壳源特征^[49],这一现象可能与这些天然气中的氢气和氦气在生成、运移和保存方面具有一定的相似性^[49-50]有关。美国Kansas州Forest City盆地高含量氢气的氢和氦同位素特征研究表明,其氢气可能主要来源于含

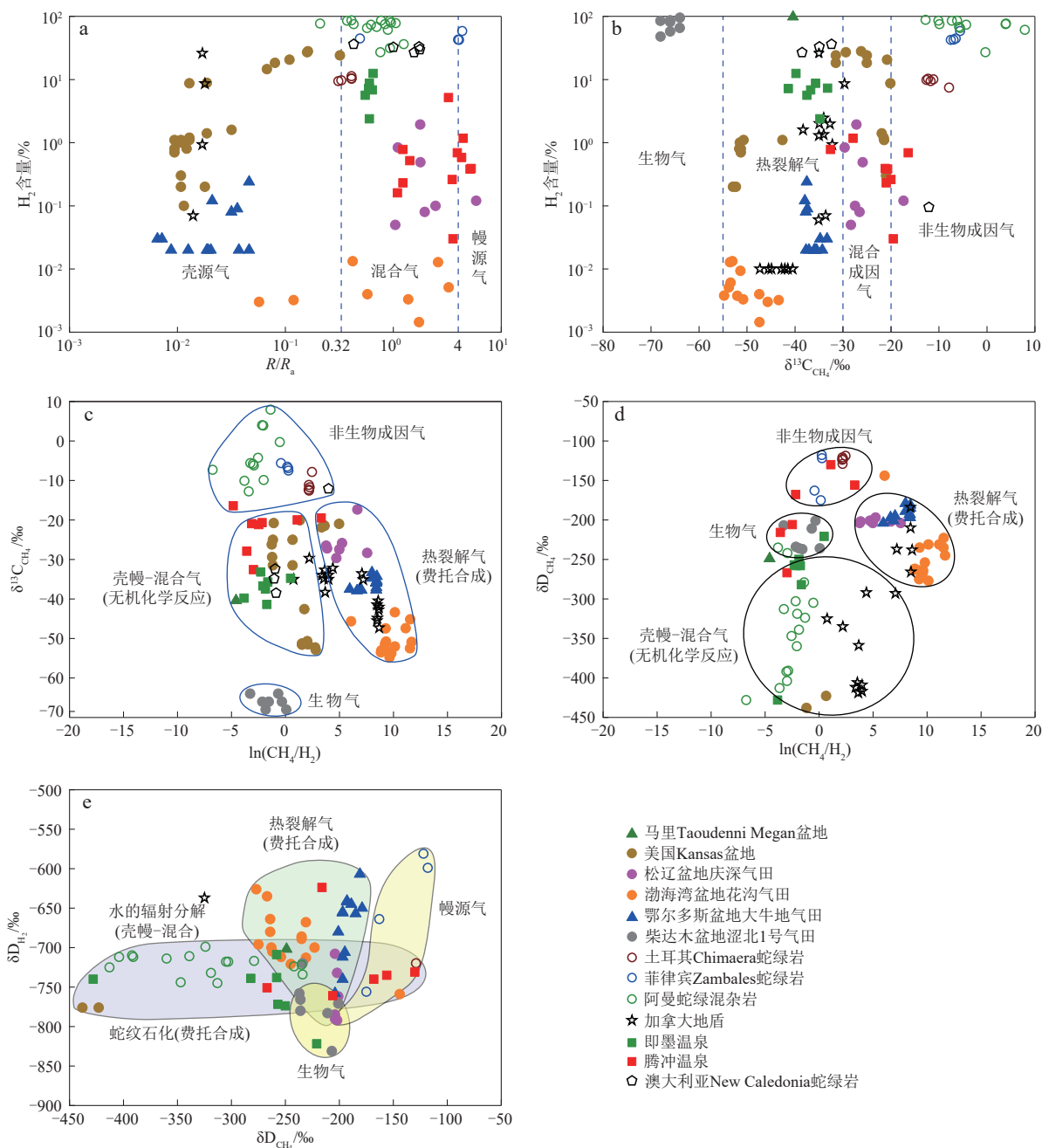


图2 天然氢成因多因素综合判识图版(修改自文献[4])

Fig. 2 Integrated identification template for multi-genetic mechanisms of natural hydrogen (modified after reference [4])

a. H₂含量与R/R_a相关图; b. H₂含量与δ¹³C_{CH₄}相关图; c. δ¹³C_{CH₄}与ln(CH₄/H₂)相关图; d. δD_{CH₄}与ln(CH₄/H₂)相关图; e. δD_{H₂}与δD_{CH₄}相关图(R为样品中的He³/He⁴含量比, R_a为标准大气中的He³/He⁴含量比。)

亚铁矿物与地下水的氧化还原反应(如蛇纹石化作用)^[53],这与该州大陆中央裂谷系Scott和Heins钻井的高含量氢气的成因一致^[54]。松辽盆地松科2井天然气H₂/He和R/R_a比值相关图显示其氢气成因复杂多样。这些相对高含量氢气的成因仍然存在争议,与其发育的复杂构造环境及可能的多种来源有关^[50,55]。因此,建立可靠的天然氢成因识别方法,仍然是下一步工作的重点。

3 天然氢非构造散失与保存效率是资源评价准确性的关键控制因素

与甲烷相比,氢气的分子直径更小、动力黏度更小、扩散系数更大,具有很强的流动性和较高的渗漏风险^[56]。因此,地质条件下天然氢气的保存条件比天然气要求更苛刻。天然氢气在地下运移过程中,除构造

活动导致的泄漏外,非构造因素引发的散失过程同样显著,直接影响资源的富集与保存效率。非构造因素散失主要包括3种形式:地层吸附散失、地层水溶解散失和扩散散失^[2,57]。

3.1 扩散作用是影响天然氢保存效率的主控因素

扩散作用是天然氢散失的主要机制之一。在地质盖层系统中,氢气的扩散系数是表征其运移散失能力的核心参数,直接决定天然氢气的保存效率。氢气扩散系数普遍比甲烷高2~4个数量级^[56,58]。全球多个天然氢气显示区的地质研究表明,如果缺乏有效的封盖条件,氢气的扩散散失量可达生成量的30%以上^[2,36]。

盖层的封闭性能对天然氢气的扩散散失具有决定性作用。前人认为马里 Bourakebougou 天然氢气田中的辉绿岩可同时作为盖层,辉绿岩越厚,天然氢含量越高,表明其低孔隙度与低渗透率特性有效抑制了氢气的扩散散失,使得该气田能够长期稳定生产^[36](图3)。

Zgonnik^[2]研究认为,盖层的扩散系数小于 $1 \times 10^{-12} \text{ m}^2/\text{s}$ 时,才能有效封隔天然氢气。扩散系数作为天然氢气保存条件评价的关键量化指标,可应用于天然氢气盖层封闭性分级^[59]。

目前,天然氢气扩散系数的获取主要依靠实验模拟与数值模拟方法^[58-61]。然而,受技术和实验周期所限,很多泥页岩和盐岩盖层扩散实验条件难以代表深度2 000 m以深天然氢盖层的实际扩散系数^[62-64]。

3.2 地层水溶解是造成天然氢资源量降低的主要过程之一

地层水溶解散失也可以造成天然氢非构造散失。现有研究通过实验、模拟及地质分析,明确了天然氢与甲烷溶解行为的本质差异,为两类气体成藏机理与资源评估提供关键依据。Baranenko 和 Kirov^[66]认为纯水体系中氢气溶解度为甲烷的1/3~1/2;而Muhammed等^[67]则认为标准条件下氢气溶解度是甲烷的1/14;吴小奇等^[68]在四川盆地实测数据也验证了该

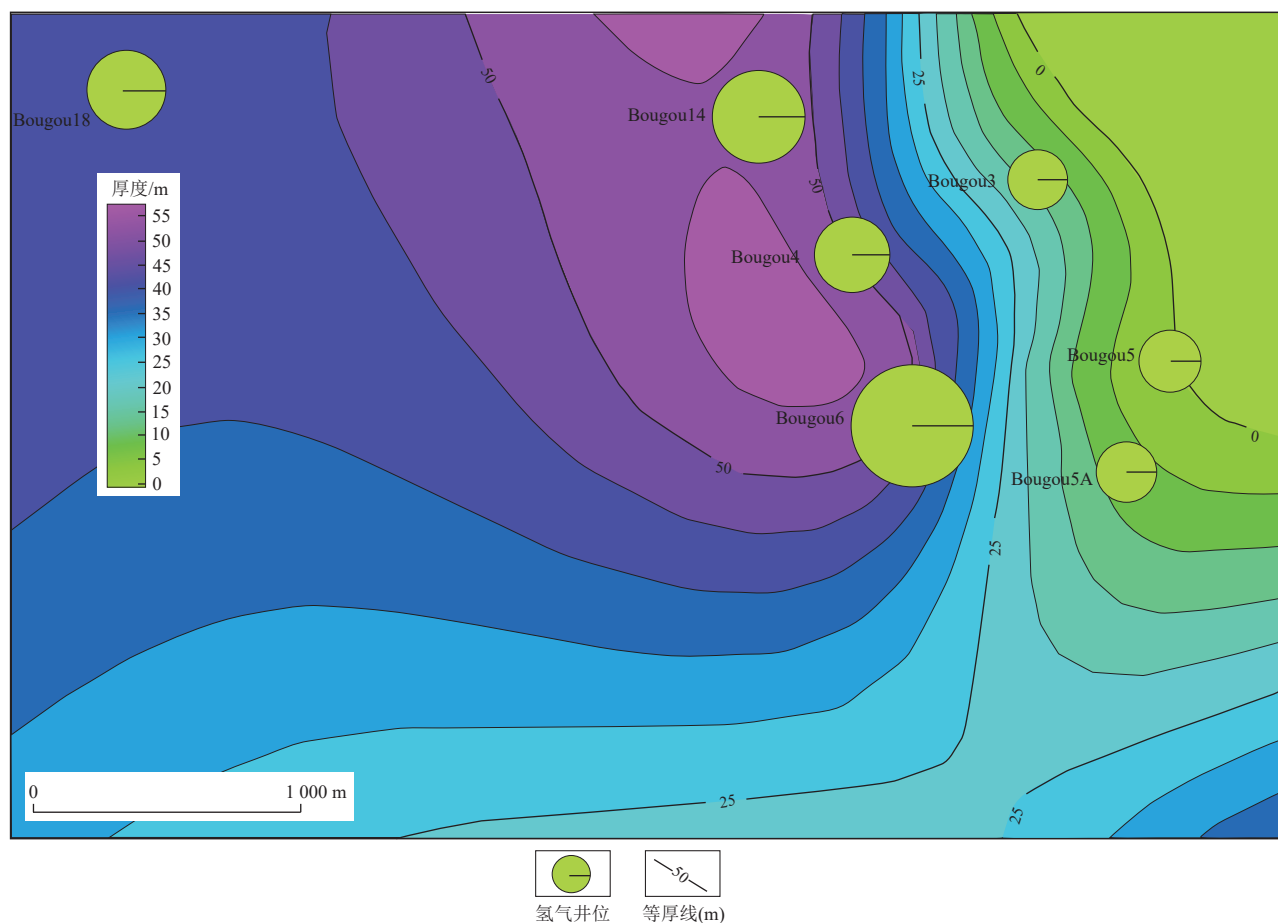


图3 马里 Bourakebougou 天然氢气藏辉绿岩厚度与天然氢含量关系^[65]

Fig. 3 Relationship between diabase thickness and natural hydrogen content in natural hydrogen reservoirs of Bourakebougou, Mali^[65]

(图中亮绿色圆圈代表井中天然氢含量,半径越大,含量越高。)

规律。这一差异源于氢气分子小、极性弱,与水分子相互作用弱,而甲烷与水分子的空腔熵贡献更显著。

天然氢在地层水中的溶解度受温度、压力和盐度等因素控制。Chabab 等^[85]发现,氢气溶解度随压力呈线性增长,但受温度抑制显著(每升高 10 °C 下降 15% ~ 20%),符合亨利定律修正模型;而甲烷溶解度的压力响应较为复杂,在高压下会出现突变。在地质储层常见温-压区间内,氢气溶解度随压力的增幅远低于甲烷,且温度的抑制效应更强烈。盐度方面,Chabab 等^[69]证实两者均存在盐析效应,但氢气受影响更为显著:NaCl 盐度增至 5 mol/kg 时,氢气溶解度下降 40% ~ 50%,而甲烷仅下降 20% ~ 25%。针对氢气在地层水的溶解度数值模拟,Chabab 等^[70]提出氢气模型多采用 e-PR-CPA 和 Duan-type 等热力学模型,侧重盐度与离子相互作用;甲烷模型则注重孔隙吸附与相态转换。这与氢气以溶解态迁移及甲烷易脱溶形成游离相的散失特点相关,混合体系中二者还存在溶解协同效应。但上述研究是在以甲烷为主要组分的天然气实验中得到的结论,对于天然氢的针对性研究较少。

3.3 吸附作用对天然氢非构造耗散贡献相对有限

因分子特性与岩石相互作用的差异,天然氢气吸附容量显著低于甲烷^[71-73]。氢分子与矿物表面主要通过范德华力结合形成物理吸附,且该过程具有可逆性,即温-压条件变化时可快速脱附。

近年来,学者围绕天然氢的吸附特征开展了一系列研究。韩双彪等^[73]以松辽盆地松科 2 井为对象,明确了气体组分和矿物组成是氢气吸附的主控因素。Temoor 等^[74]通过 GCMC 模拟发现,压力升高能够促进吸附,而温度升高则抑制吸附;二氧化碳与甲烷通过竞争吸附显著降低氢气吸附量,高岭石中硅原子吸附贡献最大。Wang 等^[72]及 Pawel 等^[71]针对黏土矿物的研究表明,海泡石和坡缕石等矿物对氢气的吸附量较高,微孔是主要吸附位点;氢气吸附量随压力升高而增加,随温度升高而下降。因此,影响氢气吸附的核心因素包括气体组分、岩石成分、孔隙结构及温-压条件,但吸附实验尚需改进以更好地匹配地层的温-压条件^[72]。

4 天然氢资源评价方法处于探索阶段,尚未形成统一的标准化方法

天然氢资源量评价是规模化和商业化开发的关键

前提。由于天然氢成因复杂、赋存状态特殊,常规的基于 Tissot-Welte 生烃模型精准量化^[75]的油气资源量评价方法难以直接应用于天然氢资源量评价。目前,通过融合多学科理论,初步形成了质量平衡模型法、油气系统类比法和数值模拟法等天然氢资源量评价方法,并在国外得到了应用,而目前中国尚未报道过基于天然氢资源评价方法得到的天然氢资源量。

4.1 天然氢资源量初步评价方法与应用实例

质量平衡模型法可以用于全球尺度的天然氢资源量评价,该方法通过量化“生成—圈闭—耗散”全链条过程并构建平衡方程逐步计算。Ellis 和 Gelman^[1]基于该方法建立全球随机模型,选取氢气生成速率($0.025 \times 10^9 \sim 25.000 \times 10^9$ t/a)、圈闭效率(0.001 ~ 0.100)和储层滞留时间($1 \times 10^4 \sim 5 \times 10^9$ a)等关键参数,预测全球原位天然氢资源量为 $1 \times 10^9 \sim 1 \times 10^{16}$ t, P50 置信资源量为 5.6×10^{12} t。该模型指出,与生物消耗相关的滞留时间对资源量影响最大(相关系数 $R^2 = 0.72$),其次是生成速率($R^2 = 0.44$),为全球资源潜力评估提供了经典案例。该方法中,各种参数的取值直接影响最终资源量,因此需要进一步开展精细化研究,确保各项参数更接近真实值,才能保证利用该方法获取精准的天然氢资源量。

油气系统类比法借鉴油气“源-运-储-盖-保”体系并针对性调整相关参数。该方法被成功应用于澳大利亚的天然氢资源评价,明确了天然氢系统的核心要素包括:富 Fe^{2+} 或富铀基底岩石(源岩)、深大断裂(运移通道)、沉积储层与蒸发岩(盖层)。基于此,估算澳大利亚陆上深度 1 km 以浅区域的天然氢资源潜量为 $(1.6 \sim 58.0) \times 10^6$ m³/a^[76]。该方法借助成熟的油气资源评价方法,特别适用于勘探程度高、氢源岩范围刻画清晰、氢气含量数据丰富的含油气盆地。然而,在上述研究中,所获取的天然氢含量多为地表或浅层气样数据,未能对深层天然氢资源量开展进一步研究。

数值模拟法通过耦合地质过程与化学反应动力学,实现了天然氢资源量的精细化预测。以澳大利亚 Cooper 盆地为例,研究人员针对过成熟有机质生烃过程中的热成因天然氢,利用 Zetaware 软件,结合盆地埋藏史和热史数据开展了数值模拟研究。模拟结果表明,当镜质体反射率(R_o)大于 3.5% 时,煤系烃源岩可生成大量游离氢气,在盆地深部存在氢气的“甜点区”,其浓度堪比非常规页岩气中甲烷的浓度^[76]。这一研究为盆地深部有机成因天然氢的资源评价提供了新的

技术途径。

上述天然氢资源评价方法主要适用于常见的生氢反应过程,如水-岩反应和有机质生氢等,但对于放射性物质辐照分解水这一特殊的生氢过程,评价方法尚不成熟。Parnell 和 Blamey^[77]尝试通过岩石放射性元素含量计算产氢率,但未明确孔隙度与流体活动所占的权重,因此也无法准确评价该类成因的天然氢资源量。

中国学者在该领域也进行过积极探索。苏宇通等^[78]参考马里 Bourakebougou 氢气田的天然氢资源量计算方法对楚雄盆地进行过预测,虽然该研究尚未量化天然氢生成机制和储层类型等关键参数,但仍代表了中国天然氢研究从定性描述向定量评价转变的重要尝试。

4.2 天然氢与油气资源评价方法的核心差异

4.2.1 生成机制的差异决定了评价逻辑的根本不同

油气生成以有机质为唯一物质基础,依赖热成熟作用或生物降解,其评价核心是量化有机质丰度(总有机碳含量 TOC)、类型、成熟度(R_o)及生烃转化率^[75]。而天然氢形成过程则更为多样,既包括无机成因(如蛇纹石化、岩浆脱气和水辐射分解等),又涵盖有机成因(如有机质厌氧发酵和热裂解等),因此,资源评价需针对不同成因选择关键参数:蛇纹石化生氢需量化富 Fe^{2+} 矿物含量与流体循环强度^[40];辐射分解生氢则依赖 U 、 Th 和 K 放射性活度与孔隙水含量^[77]。此外,天然氢生成具有持续性^[17],随着开发过程的进行,其资源量可能维持不变甚至增加;而油气资源一旦形成,在开发过程中其资源量将逐渐减少。这一本质区别将带来资源评价方法的根本性变革。

4.2.2 圈闭与保存条件的评价标准截然不同

油气分子直径较大(如甲烷分子直径约 0.380 nm)、扩散系数相对较小,常规砂岩、碳酸盐岩储层与泥岩盖层即可满足圈闭要求,评价重点关注圈闭闭合度与盖层突破压力。而氢分子直径仅 0.289 nm ,扩散系数是甲烷的 $3\sim 4$ 倍,化学活性极强,因此需要特殊的保存条件^[56]。在天然氢评价中,蒸发岩被认为是最优盖层类型,其低孔隙度和化学惰性可有效抑制氢气的逸散。例如,澳大利亚 Amadeus 盆地的蒸发岩盖层使氢气得以保存达数百万年^[79]。储层方面,天然氢主要赋存于裂缝型基底岩石和蛇纹岩化超镁铁质岩中,评价重点

在于裂缝发育程度与连通性,这与油气评价中关注的孔隙度和渗透率形成鲜明对比。

4.2.3 核心参数与量化方法存在本质区别

油气评价的核心参数($TOC \geq 0.5\%$ 、 R_o 和排烃效率等)已形成行业标准,可通过测井和实验分析直接获取。天然氢评价关键指标包括富 Fe^{2+} 岩石分布范围、放射性元素含量(U 含量 $> 2 \times 10^{-6}$ 、 Th 含量 $> 8 \times 10^{-6}$)、断裂密度(面密度 ≥ 0.5 条/ km^2)、盖层厚度(蒸发岩厚度 $\geq 100\text{ m}$)及氢气通量(壤气浓度 $> 10 \times 10^{-6}$)^[31],需通过遥感、地球物理以及地球化学多手段联合反演。例如,氢气同位素值可区分成因类型,伴生气体 CH_4/H_2 含量比值可指示保存条件(比值 < 0.1 为高效保存)^[17, 49]。

4.2.4 勘探与验证逻辑差异显著

油气评价可通过地震反射剖面识别储层构造,结合钻井取心与试油测试验证资源量,具有较高的确定性。而天然氢勘探需依赖多学科联合验证:地表指标包括氢气渗漏点、植被异常(“仙女圈”)及水化学异常;地下指标包括钻井气样氢气摩尔含量(通常以 $> 1.00\%$ 为异常值)、伴生气体同位素组成及岩石蚀变特征;地球物理指标主要为磁大地电磁探测的深部导电带(流体通道)^[80]。以澳大利亚 North Perth 盆地为例,研究团队通过卫星影像识别“仙女圈”,并结合壤气监测与(大地电磁)探测,成功圈定渗漏区,后续钻井验证氢气摩尔含量达 2.23% ,体现了天然氢“地表筛查—地下验证—量化”的评价逻辑。

尽管天然氢与油气在资源评价的底层逻辑及方法上存在显著差异,导致油气资源评价方法难以完全直接应用于天然氢资源评价,但天然氢的成藏要素与油气具有相似之处,如需要具备源岩、一定的储集空间和保存条件^[81-82],从而使天然氢可以被成功勘探并利用,进而展现出广阔的产业化前景^[83]。

5 数值模拟技术在天然氢研究领域具有广泛应用前景

前人提出的天然氢富集模式,如天然氢扩散模式^[81]、地球氢工厂^[84]、断裂-火山输氢模式^[8]等,虽较全面地总结了其研究区天然氢富集过程,或建立了更具普适性的基础模型,但这些模型均基于天然氢气藏或者气苗“点”上的详细工作。目前,天然氢成功勘探的案例较少,因此,在将这些“点”的理论推广至盆地范围

内的“面”或者“体”时,由于“点”外资料匮乏,导致模型适应性不强,对天然氢形成、运移和耗散等过程在不同构造部位的物理化学过程认识不足,预测结果的准确度也较差。

天然氢气成藏过程呈现出显著的“生成-运移-泄漏-消耗”动态平衡特征,而非传统油气的长期封闭保存模式。数值模拟正是解析这一复杂动态过程、降低勘探风险的关键工具。然而,目前针对天然氢的模拟研究仍处于探索初期,需在继承常规油气、CO₂地质封存及地下储氢(UHS)技术的基础上,针对氢气分子小、扩散快、活性强的特点,发展多尺度、多物理场耦合的方法体系^[85-86]。

5.1 储层微观尺度的数值模拟

在储层微观尺度上,氢气的运移与保存受控于多相流、扩散及生物地球化学反应的强耦合作用。目前,针对天然氢成藏的全流程多场耦合数值模拟案例仍较为稀缺,相关认识主要借鉴地下储氢领域的研究成果。

在物理运输机制方面,Wang等^[87]针对低渗枯竭油藏的注氢模拟研究表明,氢气极易发生重力分异并在构造高部位富集,但同时也面临通过盖层微裂缝发生残余气滞留及渗漏的风险。Saeed等^[88]及 Hematpur等^[89]研究认为,现有的多相流模拟平台(如TOUGH2, CMG-GEM和ECLIPSE等)已具备处理非等温多相流和地质力学耦合的能力,通过修改边界条件,理论上可用于描述天然氢在储-盖系统中的运移行为。与此同时,生物地球化学反应构成了氢气地下成藏的关键“汇”项。Vasile^[90]系统整理了微生物耗氢、硫酸盐还原及铁还原等过程的数值表达与动力学参数区间,指出微生物活动主要集中在浅部地层,是模拟中不可忽视的氢气消耗项。

5.2 盆地尺度的数值模拟过程

从单井机理走向盆地尺度的系统模拟,是重建天然氢富集过程的核心环节。目前的研究主要集中在断裂输导机制与盆地模拟器适应性改造两个方面。

在断裂与构造带尺度,Donzé等^[91]利用MRST模拟器构建了“断裂阀控模型”。研究揭示,在深部持续供给与低渗盖层耦合的条件下,地表氢气通量并非恒定,而是表现为“周期性脉冲”特征;当深部通量过大或盖层变薄时,则转为持续泄漏。这一发现挑战了静态封闭的传统认识。

在盆地模拟方面,国际上已尝试将氢气作为独立组分引入Petromod和Temisflow等工业级模拟器。

Hidalgo等^[92]构建了从氢源建模到运移通道识别的工作流程,模拟了氢气随地下水的对流迁移。Nicoletti等^[93]进一步比较了溶解态对流、分子扩散与自由气达西流3种模式,发现含水层对流可能导致溶解态氢与自由气富集区的空间错位。Schneider等^[94]则针对前陆盆地进行了时空演化预测。然而,现有的盆地模拟仍存在显著缺陷。Palmowski等^[95]明确指出,直接沿用烃类参数(如生、排烃门限)会严重高估资源量并低估泄漏风险,必须重新标定氢的物性参数,并在盆地尺度上合理参数化氧化还原反应与微生物耗散过程。

5.3 数值模拟在天然氢资源评价中的应用

随着数值模拟技术的介入,天然氢资源评价正逐步从定性分析向半定量空间预测转变。在资源量估算方面,Ellis和Gelman^[1]基于全球地壳结构和多种产氢反应模型,利用数值模拟方法计算全球天然氢的“原位资源量”。在有利区预测方面,美国地质调查局(USGS)整合了产氢机制、运移通道和盖层条件,利用GIS技术绘制了全国尺度的“成藏有利性”图件^[96],成为利用数值模拟方法预测天然氢有利分布区的典型案例。

因此,在目前全球天然氢气藏数量较少、资料占有程度不高的背景下,数值模拟技术在建立盆地模型、恢复天然氢单点富集过程以及预测盆地范围内天然氢形成、耗散、富集及分布的整个过程方面有着显著的技术优势,但需要对目前的主流模拟软件进行针对性的二次开发或功能补充。

6 结论

1) 天然氢的形成受大地构造和氢源岩的分布控制明显。板块碰撞带附近构造活跃,氢源岩更为发育,是天然氢形成的有利区,也是天然氢勘探的有利区,这可能会改变“在盆地内部勘探能源”的传统思路,而且在板块碰撞带附近中小型盆地勘探天然氢,将进一步盘活这些盆地的勘探区块价值。

2) 天然氢的形成过程复杂,不仅受温度和压力等因素制约,还受到流体类型、盐度以及水/岩比等多重因素影响,这些因素往往会造成天然氢同位素组成的改变。天然氢来源的判识标准目前仍未统一,利用氦气同位素组成特征判识氢气来源时,氢气与氦气是否同源决定着判识结果的可靠性,但目前关于如何判断氢气与氦气是否同源的研究薄弱。

3) 天然氢的高效保存是富集的主要影响作用。扩散、溶解与吸附是沉积盆地内常见的天然氢损耗过程,在研究天然氢的资源潜力时,要优先考虑这些因素。

4) 常规油气资源评价方法难以完全直接用于天然氢资源评价。目前常用的质量平衡模型法、油气系统类比法和数值模拟法在天然氢资源评价方面发挥了重要作用,但需要通过更深入的研究提升这些方法在参数选取和模型建立等方面的精度。

5) 目前可供解剖的天然氢气藏数量较少,难以在盆地甚至更广的范围内对天然氢的富集与分布形成更准确的系统认识。常用数值模拟软件经二次开发,可以用于天然氢成藏过程的数字化重建,并在预测天然氢有利分布区方面具有优势。

致谢:本文撰写过程中,中国石化勘探分公司帮助提供了关键探井资料。两位匿名评审专家的意见提高了本文的研究质量。对上述单位和专家的帮助,致以诚挚感谢!

参 考 文 献

- [1] ZGONNIK V. The occurrence and geoscience of natural hydrogen: A comprehensive review[J]. *Earth-Science Reviews*, 2020, 203: 103140.
- [2] ELLIS G S, GELMAN S F. Model predictions of global geologic hydrogen resources [J]. *Science Advances*, 2024, 10 (50) : eado0955.
- [3] PRINZHOFER A, TAHARA CISSÉ C S, DIALLO A B. Discovery of a large accumulation of natural hydrogen in Bourakebougou (Mali) [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2018, 43(42): 19315–19326.
- [4] LIU Quanyou, WU Xiaohui, HUANG Xiaohui, et al. Integrated geochemical identification of natural hydrogen sources [J]. *Science Bulletin*, 2024, 69(19): 2993–2996.
- [5] HAN Shuangbiao, HUANG Jie, PRINZHOFER A, et al. Advances in global natural hydrogen research and exploration [J]. *Advances in Geo-Energy Research*, 2025, 15(2): 91–94.
- [6] 孟庆强, 金之钧, 刘全有, 等. 天然氢气研究的现状、进展及展望[J]. *石油与天然气地质*, 2024, 45(5): 1483–1501.
MENG Qingqiang, JIN Zhijun, LIU Quanyou, et al. Current status, advances, and prospects of research on natural hydrogen [J]. *Oil & Gas Geology*, 2024, 45(5): 1483–1501.
- [7] 房大任, 裴秋明, 王海华, 等. 天然氢气成因与全球氢资源勘探进展[J]. *成都理工大学学报(自然科学版)*, 2024, 51(6): 989–1007, 1021.
FANG Daren, PEI Qiuming, WANG Haihua, et al. Genesis of natural hydrogen and progress in global hydrogen resource exploration [J]. *Journal of Chengdu University of Technology (Science & Technology Edition)*, 2024, 51 (6) : 989–1007, 1021.
- [8] 李伟, 陈践发, 王杰, 等. 松辽盆地天然气中稀有气体地球化学特征及其地质意义[J]. *石油实验地质*, 2024, 46(3): 576–589.
LI Wei, CHEN Jianfa, WANG Jie, et al. Geochemical characteristics and geological significance of noble gases in natural gas from Songliao Basin, China [J]. *Petroleum Geology and Experiment*, 2024, 46(3): 576–589.
- [9] 孟庆强. 天然氢对页岩油的资源意义——以阳信洼陷为例[J]. *中国地质调查*, 2025, 12(2): 1–8.
MENG Qingqiang. Resource significance of natural hydrogen for shale oil: A case study of Yangxin Sag [J]. *Geological Survey of China*, 2025, 12(2): 1–8.
- [10] WANG Xiaomei, HE Kun, YANG Chunlong, et al. High-purity (95%) natural hydrogen accumulation uncovered in 1.6-billion-year-old strata [J]. *Science Bulletin*, 2026, 71(1): 72–75.
- [11] 郑永飞, 陈伊翔, 戴立群, 等. 发展板块构造理论: 从洋壳俯冲带到碰撞造山带[J]. *中国科学: 地球科学*, 2015, 45(6): 711–735.
ZHENG Yongfei, CHEN Yixiang, DAI Liqun, et al. Developing plate tectonics theory from oceanic subduction zones to collisional orogens [J]. *Science China Earth Sciences*, 2015, 45 (6) : 711–735.
- [12] VACQUAND C, DEVILLE E, BEAUMONT V, et al. Reduced gas seepages in ophiolitic complexes: Evidences for multiple origins of the H₂-CH₄-N₂ gas mixtures [J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 2018, 223: 437–461.
- [13] 孟庆强, 金之钧, 孙冬胜, 等. 高含量氢气赋存的地质背景及勘探前景[J]. *石油实验地质*, 2021, 43(2): 208–216.
MENG Qingqiang, JIN Zhijun, SUN Dongsheng, et al. Geological background and exploration prospects for the occurrence of high-content hydrogen [J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2021, 43 (2): 208–216.
- [14] GUÉLARD J, BEAUMONT V, ROUCHON V, et al. Natural H₂ in Kansas: Deep or shallow origin? [J]. *Geochemistry, Geophysics, Geosystems*, 2017, 18(5): 1841–1865.
- [15] GOEBEL E D, COVENEY R M, Jr, ANGINO E E, et al. Naturally occurring hydrogen gas from a borehole on the western flank of Nemaha anticline in Kansas [J]. *AAPG Bulletin*, 1983, 67(8): 1324.
- [16] GOEBEL E D, COVENEY R M, Jr, ANGINO E E, et al. Naturally occurring hydrogen gas from a borehole on the western flank of Nemaha anticline in Kansas [J]. *AAPG Bulletin*, 1983, 67 (8) : 1324.
- [17] 孟庆强. 地质体中天然氢气成因识别方法初探[J]. *石油实验地质*, 2022, 44(3): 552–558.
MENG Qingqiang. Identification method for the origin of natural

- hydrogen gas in geological bodies [J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2022, 44(3): 552–558.
- [18] 李秀梅, 刘映辉, 温景萍. 楚雄盆地乌龙1井天然气的地球化学特征和地质意义[J]. *天然气工业*, 2002, 22(5): 16–19.
- LI Xiumei, LIU Yinghui, WEN Jingping. Geochemical characteristics of the natural gas from Well Wulong-1, Chuxiong Basin, and its geological significance [J]. *Natural Gas Industry*, 2002, 22(5): 16–19.
- [19] 杨航, 吴鹏, 张艳, 等. 滇中楚雄盆地 Pb-Ag-Au 多金属矿床成因联系: 金属矿物微量元素和硫同位素的证据[J]. *地质学报*, 2021, 95(12): 3799–3819.
- YANG Hang, WU Peng, ZHANG Yan, et al. Genetic connection of Pb-Ag-Au polymetallic deposit in the Chuxiong Basin, central Yunnan Province: evidence from trace elements and S isotope of metallic minerals [J]. *Acta Geologica Sinica*, 2021, 95(12): 3799–3819.
- [20] 韦振权. 楚雄盆地构造特征与岩浆活动及热液作用[D]. 西安: 长安大学, 2004.
- WEI Zhenquan. Structural features and magmatism & hydrothermalism in Chuxiong Basin [D]. Xi'an: Chang'an University, 2004.
- [21] 杨庆道. 楚雄盆地构造演化及油气成藏条件研究[D]. 青岛: 中国石油大学(华东), 2014.
- YANG Qingdao. Tectonic evolution and hydrocarbon accumulation conditions in Chuxiong Basin [D]. Qingdao: China University of Petroleum (East China), 2014.
- [22] 吕财. 楚雄盆地构造演化及油气成藏条件研究[D]. 荆州: 长江大学, 2015.
- LYU Cai. Study of tectonic evolution and oil and gas reservoir forming conditions of Chuxiong Basin [D]. Jingzhou: Yangtze University, 2015.
- [23] ZHOU Meifu, MALPAS J, SONG Xieyan, et al. A temporal Link between the Emeishan large igneous province (SW China) and the end-Guadalupian mass extinction [J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2002, 196(3/4): 113–122.
- [24] 宋谢炎, 侯增谦, 汪云亮, 等. 峨眉山玄武岩的地幔热柱成因[J]. *矿物岩石*, 2002, 22(4): 27–32.
- SONG Xieyan, HOU Zengqian, WANG Yunliang, et al. The mantle plume features of Emeishan basalts [J]. *Mineralogy and Petrology*, 2002, 22(4): 27–32.
- [25] SHELLNUTT J G. The Emeishan large igneous province: A synthesis [J]. *Geoscience Frontiers*, 2014, 5(3): 369–394.
- [26] 上官志冠, 白春华, 孙明良. 腾冲热海地区现代幔源岩浆气体释放特征[J]. *中国科学: 地球科学*, 2000, 30(4): 407–414.
- SHANGGUAN Zhiguan, BAI Chunhua, SUN Mingliang. Release characteristics of modern mantle-derived magmatic gases in the Rehai area, Tengchong [J]. *Science China Earth Sciences*, 2000, 30(4): 407–414.
- [27] 赵慈平, 冉华, 王云. 腾冲火山区的现代幔源氢释放: 构造和岩浆活动意义[J]. *岩石学报*, 2012, 28(4): 1189–1204.
- ZHAO Ciping, RAN Hua, WANG Yun. Present-day mantle-derived helium release in the Tengchong volcanic field, Southwest China: Implications for tectonics and magmatism [J]. *Acta Petrologica Sinica*, 2012, 28(4): 1189–1204.
- [28] PAN Changchun, JIANG Lanlan, LIU Jinzhong, et al. The effects of calcite and montmorillonite on oil cracking in confined pyrolysis experiments [J]. *Organic Geochemistry*, 2010, 41(7): 611–626.
- [29] LI Xiaoqiang, KROOSS B M, OSTERTAG-HENNING C, et al. Liberation of hydrogen-containing gases during closed system pyrolysis of immature organic matter-rich shales [J]. *International Journal of Coal Geology*, 2018, 185: 23–32.
- [30] HANSON J, HANSON H. Hydrogen's organic genesis [J]. *Unconventional Resources*, 2024, 4: 100057.
- [31] MORETTI I, BOUTON N, AMMOUAL J, et al. The H₂ potential of the Colombian coals in natural conditions [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2024, 77: 1443–1456.
- [32] 李志明, 刘惠民, 刘鹏, 等. 渤海湾盆地沾化凹陷BYP5导眼井古近系沙河街组三段下亚段岩心富氢气逸散气特征及其地质意义[J]. *石油实验地质*, 2024, 46(5): 979–988.
- LI Zhiming, LIU Huimin, LIU Peng, et al. Characteristics and geological significance of escaping gas rich in natural hydrogen from pilot Well BYP5 cores of lower sub-member of third member of Shahejie Formation in Zhanhua Sag, Bohai Bay Basin [J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2024, 46(5): 979–988.
- [33] 肖栋, 元雪芳, 段月岚, 等. 寺河矿15号煤层中产氢产乙酸微生物的富集和群落结构研究[J]. *中国煤炭*, 2020, 46(12): 95–104.
- XIAO Dong, YUAN Xuefang, DUAN Yuelan, et al. Research on enrichment and community structure of hydrogen and acetic acid producing microorganisms in Sihe No. 15 coal seam [J]. *China Coal*, 2020, 46(12): 95–104.
- [34] 帅燕华, 张水昌, 苏爱国, 等. 柴达木盆地三湖地区产甲烷作用仍在强烈进行的地球化学证据[J]. *中国科学: 地球科学*, 2009, 39(6): 734–740.
- SHUAI Yanhua, ZHANG Shuichang, SU Aiguo, et al. Geochemical evidence for strong ongoing methanogenesis in Sanhu region of Qaidam Basin [J]. *Science China Earth Sciences*, 2009, 39(6): 734–740.
- [35] KLEIN F, TARNAS J D, BACH W. Abiotic sources of molecular hydrogen on earth [J]. *Elements*, 2020, 16(1): 19–24.
- [36] MAIGA O, DEVILLE E, LAVAL J, et al. Characterization of the spontaneously recharging natural hydrogen reservoirs of Bourakebougou in Mali [J]. *Scientific Reports*, 2023, 13(1): 11876.
- [37] HUANG Ruifang, SUN Weidong, DING Xing, et al. The influence of silica on reaction rates and molecular hydrogen (H₂) generation during olivine hydrothermal alteration [J]. *Science*

- China Earth Sciences, 2024, 67(1): 222–233.
- [38] LAFAY R, MONTES-HERNANDEZ G, JANOTS E, et al. Simultaneous precipitation of magnesite and lizardite from hydrothermal alteration of olivine under high-carbonate alkalinity [J]. Chemical Geology, 2014, 368: 63–75.
- [39] HUANG Ruifang, SUN Weidong, SONG Maoshuang, et al. Influence of pH on molecular hydrogen (H_2) generation and reaction rates during serpentinization of peridotite and olivine [J]. Minerals, 2019, 9(11): 661.
- [40] MCCOLLOM T M, BACH W. Thermodynamic constraints on hydrogen generation during serpentinization of ultramafic rocks [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2009, 73(3): 856–875.
- [41] 黄瑞芳, 孙卫东, 丁兴, 等. 蛇纹石化过程中铁活动性的高温高压实验研究[J]. 岩石学报, 2015, 31(3): 883–890.
- HUANG Ruifang, SUN Weidong, DING Xing, et al. Experimental investigation of iron mobility during serpentinization [J]. Acta Petrologica Sinica, 2015, 31(3): 883–890.
- [42] KLEIN F, BACH W, JÖNS N, et al. Iron partitioning and hydrogen generation during serpentinization of abyssal peridotites from 15° N on the Mid-Atlantic Ridge [J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 2009, 73(22): 6868–6893.
- [43] 于志琪, 刘汇川, 朱光有, 等. 基于蛇纹石化生氢影响因素的制氢方式新思考[J]. 天然气工业, 2023, 43(8): 156–169.
- YU Zhiqi, LIU Huichuan, ZHU Guangyou, et al. New thoughts on hydrogen production method based on the influencing factors of hydrogen generation in serpentinization reaction [J]. Natural Gas Industry, 2023, 43(8): 156–169.
- [44] MENG Qingqiang, SUN Yuhua, TONG Jianyu, et al. Distribution and geochemical characteristics of hydrogen in natural gas from the Jiyang Depression, eastern China [J]. Acta Geologica Sinica (English Edition), 2015, 89(5): 1616–1624.
- [45] 尹路, 李博, 齐雯, 等. 天然气气规模生成的成因类型与成藏特点[J]. 岩性油气藏, 2024, 36(6): 1–11.
- YIN Lu, LI Bo, QI Wen, et al. Origins and accumulation characteristics of large-scale generation of natural hydrogen [J]. Lithologic Reservoirs, 2024, 36(6): 1–11.
- [46] 韩双彪, 王缙, 黄劼, 等. 松辽盆地大陆科学钻探井天然氢气吸附特征及赋存规律[J]. 石油与天然气地质, 2025, 46(2): 462–477.
- HAN Shuangbiao, WANG Jin, HUANG Jie, et al. Adsorption characteristics and occurrence pattern of natural hydrogen in a continental scientific drilling well of the Songliao Basin [J]. Oil & Gas Geology, 2025, 46(2): 462–477.
- [47] FRERY E, LANGHI L, MAISON M, et al. Natural hydrogen seeps identified in the North Perth Basin, Western Australia [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2021, 46(61): 31158–31173.
- [48] WANG Xiaomei, HE Kun, YANG Chunlong, et al. Formation mechanism of deep natural hydrogen in the Sichuan Basin [J]. Science China Earth Sciences, 2025, 68(2): 581–597.
- [49] MILKOV A V. Molecular hydrogen in surface and subsurface natural gases: Abundance, origins and ideas for deliberate exploration [J]. Earth-Science Reviews, 2022, 230: 104063.
- [50] HAN Shuangbiao, XIANG Chaohan, DU Xin, et al. Geochemistry and origins of hydrogen-containing natural gases in deep Songliao Basin, China: Insights from continental scientific drilling [J]. Petroleum Science, 2024, 21(2): 741–751.
- [51] 金之钧, 王骏, 张生根, 等. 滨里海盆地盐下油气成藏主控因素及勘探方向[J]. 石油实验地质, 2007, 29(2): 111–115.
- JIN Zhijun, WANG Jun, ZHANG Shenggen, et al. Main factors controlling hydrocarbon reservoirs and exploration directions in the pre-salt sequence in PreCaspian Basin [J]. Petroleum Geology & Experiment, 2007, 29(2): 111–115.
- [52] LIU Quanyou, JIN Zhijun, MENG Qingqiang, et al. Genetic types of natural gas and filling patterns in Daniudi Gas Field, Ordos Basin, China [J]. Journal of Asian Earth Sciences, 2015, 107: 1–11.
- [53] NEWELL K D, DOVETON J H, MERRIAM D F, et al. H_2 -rich and hydrocarbon gas recovered in a deep Precambrian well in northeastern Kansas [J]. Natural Resources Research, 2007, 16(3): 277–292.
- [54] COVENEY R M Jr, GOEBEL E D, ZELLER E J, et al. Serpentinization and the origin of hydrogen gas in Kansas [J]. AAPG Bulletin, 1987, 71(1): 39–48.
- [55] HAN Shuangbiao, TANG Zhiyuan, WANG Chengshan, et al. Hydrogen-rich gas discovery in continental scientific drilling project of Songliao Basin, Northeast China: New insights into deep Earth exploration [J]. Science Bulletin, 2022, 67(10): 1003–1006.
- [56] 张俊法, 曾大乾, 陈诗望, 等. 地下储氢技术现状及在中国加快发展的可行性[J]. 世界石油工业, 2024, 31(4): 114–119.
- ZHANG Junfa, ZENG Daqian, CHEN Shiwang, et al. Global status and China rapid development feasibility of underground hydrogen storage technology [J]. World Petroleum Industry, 2024, 31(4): 114–119.
- [57] WEI Yongbo, LIU Quanyou, ZHU Dongya, et al. Helium and natural hydrogen in the Bohai Bay Basin, China: Occurrence, resources, and exploration prospects [J]. Applied Energy, 2025, 383: 125398.
- [58] SONG Yujia, SONG Rui, LIU Jianjun, et al. Evaluation on H_2 , N_2 , He & CH_4 diffusivity in rock and leakage rate by diffusion in underground gas storage [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2025, 100: 234–248.
- [59] 吕泽宇, 金之钧, 张盼盼, 等. 地下储氢系统中氢气扩散机制研究进展[J]. 天然气地球科学, 2025, 36(11): 2165–2178.
- LYU Zeyu, JIN Zhijun, ZHANG Panpan, et al. Research progress on hydrogen diffusion mechanisms in underground hydrogen storage systems [J]. Natural Gas Geoscience, 2025, 36

- (11): 2165–2178.
- [60] VACQUAND C. Genesis and mobility of natural hydrogen: energy source or storable energy carrier? [Z]. Institut de Physique du Globe de Paris, 1 Rue Jussieu, 75005 Paris, (France), 2011.
- [61] KHAJOIE S, GAUS G, SEEMANN T, et al. Exploring effective diffusion coefficients in water-saturated reservoir rocks via the pressure decay technique: Implications for underground hydrogen storage[J]. *Transport in Porous Media*, 2025, 152(2): 12.
- [62] STRAUCH B, PILZ P, HIEROLD J, et al. Experimental simulations of hydrogen migration through potential storage rocks [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2023, 48(66): 25808–25820.
- [63] SALINA BORELLO E, BOCCHINI S, CHIODONI A, et al. Underground hydrogen storage safety: Experimental study of hydrogen diffusion through caprocks [J]. *Energies*, 2024, 17(2): 394.
- [64] SONG Rui, SONG Yujia, LIU Jianjun, et al. Multiscale experimental and numerical study on hydrogen diffusivity in salt rocks and interlayers of salt cavern hydrogen storage [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2024, 79: 319–334.
- [65] MAIGA O, DEVILLE E, LAVAL J, et al. Trapping processes of large volumes of natural hydrogen in the subsurface: The emblematic case of the Bourakebougou H₂ field in Mali [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2024, 50: 640–647. DOI:10.1016/j.ijhydene.2023.10.131.
- [66] BARANENKO V I, KIROV V S. Solubility of hydrogen in water in a broad temperature and pressure range [J]. *Soviet Atomic Energy*, 1989, 66(1): 30–34.
- [67] MUHAMMED N S, HAQ B, AL SHEHRI D, et al. A review on underground hydrogen storage: Insight into geological sites, influencing factors and future outlook [J]. *Energy Reports*, 2022, 8: 461–499.
- [68] 吴小奇, 刘光祥, 刘全有, 等. 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[J]. *天然气地球科学*, 2015, 26(11): 2155–2165.
- WU Xiaoqi, LIU Guangxiang, LIU Quanyou, et al. Geochemical characteristics and genetic types of natural gas in the Changxing-Feixianguan Formations from Yuanba gasfield in the Sichuan Basin [J]. *Natural Gas Geoscience*, 2015, 26(11): 2155–2165.
- [69] CHABAB S, KERKACHE H, BOUCHKIRA I, et al. Solubility of H₂ in water and NaCl brine under subsurface storage conditions: Measurements and thermodynamic modeling [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2024, 50(Part B): 648–658.
- [70] CHABAB S, THÉVENEAU P, COQUELET C, et al. Measurements and predictive models of high-pressure H₂ solubility in brine (H₂O+NaCl) for underground hydrogen storage application [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2020, 45(56): 32206–32220.
- [71] ZIEMIAŃSKI P P, DERKOWSKI A. Structural and textural control of high-pressure hydrogen adsorption on expandable and non-expandable clay minerals in geologic conditions [J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2022, 47(67): 28794–28805.
- [72] WANG Lu, CHENG Jiewei, JIN Zhijun, et al. High-pressure hydrogen adsorption in clay minerals: Insights on natural hydrogen exploration[J]. *Fuel*, 2023, 344: 127919.
- [73] 韩双彪, 王缙, 黄劼, 等. 全球天然氢气研究现状与发展趋势[J]. *石油与天然气地质*, 2025, 46(3): 790–808.
- HAN Shuangbiao, WANG Jin, HUANG Jie, et al. Current status and future trends of global research on natural hydrogen[J]. *Oil & Gas Geology*, 2025, 46(3): 790–808.
- [74] MUTHER T, KALANTARI DAHAGHI A. Monte-Carlo simulations on H₂ adsorption in kaolinite nanopore in the presence of CO₂ and CH₄ gases[J]. *Fuel*, 2024, 365: 131249.
- [75] TISSOT B P, WELTE D H. *Petroleum formation and occurrence* [M]. Berlin: Springer, 1984.
- [76] BOREHAM C J, EDWARDS D S, FEITZ A J, et al. Modelling of hydrogen gas generation from overmature organic matter in the Cooper Basin, Australia[J]. *The APPEA Journal*, 2023, 63(2): S351–S356.
- [77] PARNELL J, BLAMEY N. Hydrogen from radiolysis of aqueous fluid inclusions during diagenesis [J]. *Minerals*, 2017, 7(8): 130.
- [78] 苏宇通, 金之钧, 刘润超, 等. 非洲马里气田天然氢气井勘探案例介绍及全球天然氢气勘探进展[J]. *石油与天然气地质*, 2024, 45(5): 1502–1510.
- SU Yutong, JIN Zhijun, LIU Runchao, et al. Natural hydrogen exploration: A case study of hydrogen wells in the Mali Gas Field in Africa and global advances[J]. *Oil & Gas Geology*, 2024, 45(5): 1502–1510.
- [79] BOREHAM C J, EDWARDS D S, CZADO K, et al. Hydrogen in Australian natural gas: Occurrences, sources and resources[J]. *The APPEA Journal*, 2021, 61(1): 163–191.
- [80] LANGHI L, STRAND J. Exploring natural hydrogen hotspots: A review and soil-gas survey design for identifying seepage [J]. *Geoenergy*, 2023, 1(1): 1–15.
- [81] CATHLES L, PRINZHOFER A. What pulsating H₂ emissions suggest about the H₂ resource in the Sao Francisco Basin of Brazil [J]. *Geosciences*, 2020, 10(4): 149.
- [82] EVERTS A J W, BONNIE J, LOOSVELD R. Natural hydrogen development-potential and challenges[J]. *International Journal of Hydrogen Energy*, 2025, 142: 26–39.
- [83] HASSANPOURYOUBAND A, ARMITAGE T, COWEN T, et al. The search for natural hydrogen: A hidden energy giant or an elusive dream? [J]. *ACS Energy Letters*, 2025, 10(8): 3887–3891.
- [84] ELLIS G, GELMAN S E. A preliminary model of global subsurface natural hydrogen resource potential [J]. *Geological*

- Society of America Abstracts with Programs, 2022, 54(5): 215–5.
- [85] MAO Shaowen, YU Siqin, XU Jianping, et al. Geologic hydrogen: A review of resource potential, subsurface dynamics, exploration, production, transportation, and research opportunities [J]. Energy & Environmental Science, 2025, 18(23): 9991–10035.
- [86] LIU Mengwei, WARNER T, ZHAO Yumeng, et al. Geologic hydrogen: From natural occurrences to anthropogenic generation—A review of fundamentals, potential, challenges and prospects [J]. Earth-Science Reviews, 2026, 274: 105338.
- [87] WANG Jinkai, WU Rui, ZHAO Kai, et al. Numerical simulation of underground hydrogen storage converted from a depleted low-permeability oil reservoir [J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2024, 69: 1069–1083.
- [88] SAEED M, JADHAWAR P. Modelling underground hydrogen storage: A state-of-the-art review of fundamental approaches and findings [J]. Journal of Natural Gas Science and Engineering, 2024, 121: 205196.
- [89] HEMATPUR H, ABDOLLAHI R, ROSTAMI S, et al. Review of underground hydrogen storage: Concepts and challenges [J]. Advances in Geo-Energy Research, 2023, 7(2): 111–131.
- [90] VASILE N S. A comprehensive review of biogeochemical modeling of underground hydrogen storage: A step forward in achieving a multi-scale approach [J]. Energies, 2024, 17(23): 6094.
- [91] DONZÉ F V, BOURDET L, TRUCHE L, et al. Modeling deep control pulsing flux of native H₂ throughout tectonic fault-valve systems[J]. International Journal of Hydrogen Energy, 2024, 58: 1443–1456.
- [92] HIDALGO J C, KAUEAUF A, DE LIND VAN WIJNGAARDEN M, et al. Application of basin modeling technologies in the exploration of natural hydrogen systems [C]// 85th EAGE Annual Conference & Exhibition, Oslo, 2024. Bunnik: European Association of Geoscientists & Engineers, 2024: 1–5.
- [93] NICOLETTI L, HIDALGO J C, STRAPOČ D, et al. H₂ transport in sedimentary basin[J]. Geosciences, 2025, 15(8): 298.
- [94] SCHNEIDER F, DUBILLE M, PATIÑO C, et al. Natural hydrogen system assessment with basin modeling applied to the Colombian foreland basins[Z]. AAPG Hydrogen, 2022.
- [95] PALMOWSKI D, FERNANDEZ N, LEFEUVRE N, et al. Modelling natural hydrogen systems. Extending the basin modeler's comfort zone[C]//85th EAGE Annual Conference & Exhibition, Oslo, 2024. Bunnik: European Association of Geoscientists & Engineers, 2024: 1–5.
- [96] GELMAN S E, HEARON J S, ELLIS G S. Prospectivity mapping for geologic hydrogen: Professional paper 1900[R]. Reston: U. S. Geological Survey, 2025.

(编辑 张玉银)