

# 徐家围子断陷火山岩包裹体组分和同位素组成分析及应用

李吉君<sup>1</sup>,曹喜铨<sup>2</sup>,王伟明<sup>1</sup>,师磊<sup>3</sup>,李景坤<sup>4</sup>,霍秋立<sup>4</sup>

[1. 中国石油大学(华东)非常规油气与新能源研究院,山东 青岛 266580; 2. 东北石油大学 地球科学学院,黑龙江 大庆 163318;  
3. 中国石油 大庆油田分公司 第三采油厂,黑龙江 大庆 163314; 4. 中国石油 大庆油田分公司 勘探开发研究院,黑龙江 大庆 163712]

**摘要:**应用真空机械破碎法对徐家围子断陷火山岩包裹体的组分和同位素组成进行了热爆前、后的对比分析,进而结合气井产出天然气的相应特征及热模拟实验结果对天然气的成因进行了探讨。结果表明,徐家围子地区火山喷发过程中的岩浆脱气烃类含量较高,暗示该区烃类天然气存在无机成因的可能,有必要对火山喷发脱气与普通岩浆活动脱气的差别做进一步研究;徐家围子断陷烃类天然气的碳同位素序列倒转主要是由不同期次/源天然气的混合作用造成,而非后期盖层散失过程中的组分和同位素分馏,同位素序列倒转不能单独用于判断天然气的成因;相对有机成因气,无机成因气(甲烷、乙烷和CO<sub>2</sub>)碳同位素值常较重,用甲烷碳同位素值重于-20‰作为无机成因气的判别标准有一定的适用性,但过于苛刻;徐家围子断陷CO<sub>2</sub>以无机成因为主,主要源于拗陷期地壳活动过程中的地幔岩浆脱气,无机成因CO<sub>2</sub>能够聚集成藏与其未经历初次运移,与地层水接触少等因素有关。上述认识有益于对徐家围子断陷天然气的成因作出正确判断。

**关键词:**碳同位素;包裹体;天然气成因;火山岩;徐家围子断陷

中图分类号:TE122.1

文献标识码:A

## Analysis and application of components and isotopic compositions of fluid inclusions in volcanic reservoirs of the Xujiaweizi fault depression

Li Jijun<sup>1</sup>, Cao Xicheng<sup>2</sup>, Wang Weiming<sup>1</sup>, Shi Lei<sup>3</sup>, Li Jingkun<sup>4</sup>, Huo Qiuli<sup>4</sup>

(1. Research Institute of Unconventional Oil & gas and New Energy, China University of Petroleum, Qingdao, Shandong 266580, China;  
2. College of Earth Sciences, Northeast Petroleum University, Daqing, Heilongjiang 163318, China; 3. No. 3 Oil Production Plant, PetroChina Daqing Oilfield Company, Daqing, Heilongjiang 163314, China; 4. Research Institute of Petroleum Exploration & Development, PetroChina Daqing Oilfield Company, Daqing, Heilongjiang 163712, China)

**Abstract:** A comparative analysis of components and isotopic compositions of gas inclusion in volcanic reservoirs of the Xujiaweizi fault depression before and after thermal decrepitation was performed by using the vacuum mechanical crushing method. The origin of natural gas was further discussed in combination with the corresponding characteristics of natural gas produced from wells and the results of thermal simulating test. The hydrocarbon content of gas from magma degassing is high, indicating that some hydrocarbon gases may be of inorganic origin, thus it is necessary to further research on the differences between gas from volcanic action and that from magmatic action. The main cause of reversal carbon isotopic sequence of hydrocarbon gas in the study area is the mixing of natural gases generated in different times or from different sources, rather than the component and isotopic fractionation during dissipation of natural gas through the caprock. Therefore, the reversal phenomenon can not be used individually to confirm the genesis of natural gas. In comparison with organic gas, inorganic gas (including CH<sub>4</sub>, C<sub>2</sub>H<sub>6</sub>, CO<sub>2</sub>) often has a heavier carbon isotopic value. It is applicable to some extent to use the the  $\delta^{13}\text{C}_1$  value over -20‰ as the criteria for determining inorganic gas, but this criteria is over strict. The CO<sub>2</sub> in Xujiaweizi fault depression is mainly sourced from magma degassing. The inorganic CO<sub>2</sub> did not experience primary migration and had no chance to contact with formation water, being favorable for their accumulation. These understandings are helpful to determine the origin of natural gas in Xujiaweizi fault depression.

**Key words:** carbon isotope, fluid inclusion, natural gas origin, volcanic rock, Xujiaweizi fault depression

收稿日期:2013-06-21;修订日期:2013-12-27。

第一作者简介:李吉君(1981—),男,博士、副教授,油气地质与地球化学。E-mail:ljjdqi@aliyun.com。

通讯作者简介:王伟明(1981—),男,博士、讲师,油气地质与地球化学。E-mail:wangweiming6686@163.com。

基金项目:国家自然科学基金项目(41002044);高等学校博士学科点专项科研基金项目(20102322120003);黑龙江省高校青年学术骨干支持计划项目(1251G003)。

自 1763 年罗蒙诺索夫提出泥炭生油的有机成因论和 1876 年门捷列夫提出水与碳化物生油的无机成因论以来,油气的起源就一直存在有机与无机两种学说,其间的争论也从未停止。在勘探实践与大量模拟实验证实下,有机成因论日趋完善并得到多数人认可,多数烃类被认为来自于有机质的热降解或微生物过程。然而前寒武地盾或火山岩中一些无机或疑似无机烷烃气的发现也使人们意识到一定地质条件下无机气藏存在的可能性<sup>[1]</sup>。徐家围子断陷火山岩储层中烃类天然气同位素特征与常规有机成因天然气有所不同,由此引发了很多学者对其成因的争论。

徐家围子断陷是松辽盆地北部近北北西展布的西断东超式箕状断陷,其演化经历了火石岭期-沙河子期强烈断陷阶段和营城期断陷向坳陷转化阶段,其中前者为主要发育阶段<sup>[2]</sup>。断陷自西向东发育徐西、徐中和徐东三条基底断裂,次级断裂亦十分发育,断裂对天然气成藏具有明显控制作用<sup>[3]</sup>。徐家围子断陷是松辽盆地北部深层天然气勘探的重点,截至目前探明天然气地质储量  $2\,457 \times 10^8\text{ m}^3$ ,储层以营城组火山熔岩为主<sup>[4]</sup>。对该区烃类天然气成因类型的研究一直存在两种不同观点:①煤型气或以煤型气为主的混合有机气,对应主力源岩为沙河子组煤系地层,包括暗色泥岩和煤层<sup>[5-6]</sup>;②幔源无机气<sup>[7]</sup>或其占有相当比例<sup>[8-10]</sup>。前一种观点的理论依据是徐家围子断陷具有良好的生储盖组合,能够形成规模性气藏,天然气地球化学特征(组分、碳同位素值、成熟度)的分析结果也基本证实了这一观点。后一种观点的判断依据主要是同位素方面的证据,即具重碳同位素异常、负碳同位素序列烃类气体的发现和高含量  $\text{CO}_2$  气藏、幔源氦等无机非烃气藏的发现。作为辅助证据,无机非烃气藏的发现不能作为烃类天然气为无机成因的直接证据,两种观点间的争论更多地集中在判别无机成因气所用同位素依据的可信度上。因为,徐家围子断陷天然气呈负碳同位素序列分布也可能是具正碳同位素序列的有机烷烃气,经混合<sup>[11]</sup>、盖层散失<sup>[5]</sup>等次生作用所导致的碳同位素序列倒转的特例(全部倒转),而并非无机天然气才表现出的特征。而且,煤系源岩的高过成熟及天然气的散失还可造成天然气的重碳同位素异常<sup>[12]</sup>。实际上,天然气的生成本身具有“多源复合、多阶连续”的特点<sup>[13-15]</sup>,且由于分子半径较小,盖层难以将其完全封闭,因此混合和盖层散失作用都是绝对的,这将不可避免地造成同位素组成特征的变化<sup>[16-17]</sup>,且其程度是难以直接定量的。因此依据气藏产出天然气的特征判断天然气的成因具有一定的不确定性。为此本文通过对储层流体包裹体的组分和同位素组成分析,进而结合气藏产出天然气的特征对该区天然气的成因进行了探讨。因为包含在矿物晶体中

的流体包裹体处于相对封闭的地质环境,可较好地保存古流体的温压和成分信息<sup>[18-19]</sup>。

# 1 样品与实验

本次研究共选取 16 块营城组火山岩岩心样品,如表 1 所示。以往国内对包裹体成分的分析多采用显微荧光测定、显微激光拉曼测定(LRM)、显微红外光谱分析等光学测试手段<sup>[20]</sup>。该类分析方法基本为原位(in situ)无损分析,检测过程中包裹体所处环境不发生改变,可增加检测数据的客观真实性;还可针对单个包裹体,分析数据具有确定的指示意义。不过该类方法也有其固有的缺陷,它们是基于光学特征而进行的一种间接测定方式,只能是定性或半定量的,要进行直接的精确检测需借助破坏性分析。以目前常用的显微激光拉曼为例,测定过程中,除饱和烃外,其它族分(芳烃、非烃和沥青质)会产生强荧光干扰而难以测定,另外因相同基团组分拉曼光谱图相同,无法准确分析低碳烃组分含量<sup>[21]</sup>,而且激光能量还可造成包裹体组分的热解。为此,本次选用真空机械破碎法,将岩心样品粉碎、清洗后在真空条件下压碎,之后抽取气体组分进行组分和同位素分析。从镜下观察情况看,徐家围子断陷火山岩储层包裹体总体较为丰富,既有沿裂隙、节理等分布的呈串珠状的次生包裹体(图 1a),也有孤立的不规则分布的原生包裹体(图 1b),这为本次的实验分析奠定了基础。另外,为对天然气的成因进行综合判别,本次还进行了相应井天然气的组分和同位素组成分析。

包裹体样品粉碎力求最大限度地节约样品,并减小对包裹体的破坏,先将岩心样品用鄂式破碎机破碎

表 1 实验样品基本信息  
Table 1 Basic information of samples

| 井号     | 层位                | 埋深/m      | 岩性       | 气井产能  |
|--------|-------------------|-----------|----------|-------|
| 达深 1   | K <sub>1</sub> yc | 3 224. 82 | 灰色安山岩    | 低产气流井 |
| 达深 401 | K <sub>1</sub> yc | 3 184. 19 | 凝灰岩      | 工业气流井 |
| 达深 X5  | K <sub>1</sub> yc | 3 787. 56 | 安山岩      | 工业气流井 |
| 芳深 9   | K <sub>1</sub> yc | 3 694. 78 | 凝灰岩      | 工业气流井 |
| 徐深 1   | K <sub>1</sub> yc | 3 634. 55 | 灰白色火山角砾岩 | 工业气流井 |
| 徐深 12  | K <sub>1</sub> yc | 3 665. 47 | 灰白色凝灰岩   | 见气显示井 |
| 徐深 141 | K <sub>1</sub> yc | 4 026. 86 | 黑色角砾熔岩   | 工业气流井 |
| 徐深 19  | K <sub>1</sub> yc | 3 796. 38 | 流纹岩      | 工业气流井 |
| 徐深 23  | K <sub>1</sub> yc | 3 899. 28 | 含气孔灰白流纹岩 | 工业气流井 |
| 徐深 27  | K <sub>1</sub> yc | 3 984. 89 | 流纹质熔岩    | 工业气流井 |
| 徐深 28  | K <sub>1</sub> yc | 4 210. 24 | 灰白色流纹岩   | 工业气流井 |
| 徐深 301 | K <sub>1</sub> yc | 3 948. 48 | 灰色安山岩    | 工业气流井 |
| 徐深 902 | K <sub>1</sub> yc | 3 762. 20 | 灰白色凝灰岩   | 工业气流井 |
| 徐深 903 | K <sub>1</sub> yc | 3 864. 10 | 灰色流纹岩    | 工业气流井 |
| 莺深 2   | K <sub>1</sub> yc | 4 197. 81 | 灰白色流纹岩   | 工业气流井 |
| 肇深 10  | K <sub>1</sub> yc | 2 957. 70 | 灰色流纹岩    | 工业气流井 |

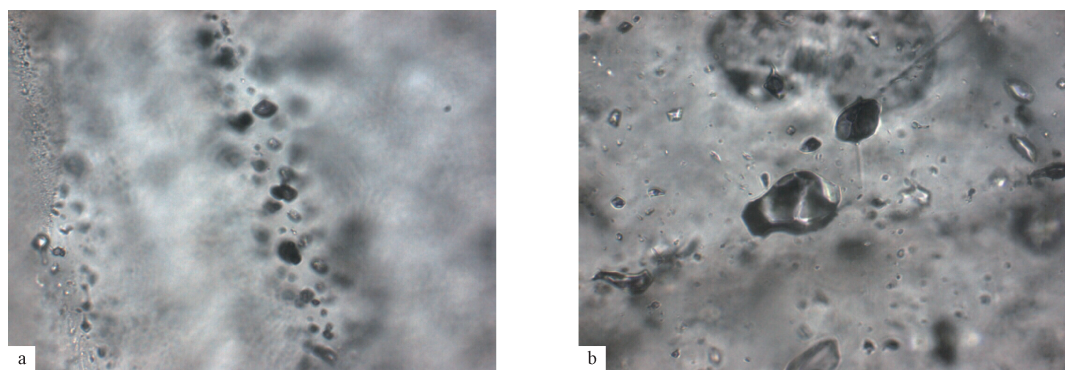


图 1 徐家围子断陷徐深 19 井流纹岩包裹体分布

Fig. 1 Distribution of fluid inclusions in rhyolite samples from Xushen-19 well, the Xujiaweizi fault depression

a. 次生包裹体; b. 原生包裹体

至 1 cm 左右,后手工碎至 1 ~ 2 mm。清洗过程要求将包裹体以外有机质彻底去除,本次主要借鉴澳大利亚 CSIRO 处理方法<sup>[19]</sup>,步骤如下:①加双氧水浸泡搅拌直至没有气泡产生,用蒸馏水将样品洗净、烘干(60 ℃);②用王水、铬酸洗液分别在加热磁力搅拌下处理样品 1 h,各自处理完后用蒸馏水将样品洗净、烘干(60 ℃);③依次用甲醇、二氯甲烷和甲醇的混合溶液(93 : 7)、二氯甲烷分别超声抽提样品 3 次,每次 10 min,收集最后二氯甲烷溶液,浓缩后进行色谱分析,确认样品表面的有机质是否被完全除去,如有残留,重复该步骤。清洗合格后的包裹体样品分为两组,一组直接进行检测,另一组于马弗炉内在 500 ℃ 开放条件下热爆处理 2 h,之后进行检测。其中,前一组实验反映的是水溶液包裹体与岩浆包裹体的总成分,后一组实验则仅反映岩浆包裹体的成分。对于水溶液包裹体,其内气体组分可能是有机成因,也可能是无机成因,而对于岩浆包裹体其内组分只能是无机成因。

包裹体样品清洗合格后采用机械撞击法进行分析,其基本流程是将清洗后的包裹体样品、不锈钢球置于不锈钢桶,密封、抽真空后置于振荡器上,不锈钢球震动将样品击碎,气体释放,之后取气分析。包裹体及天然气组分分析采用 Wasson ECE - Agilent 7890A 型气相色谱,色谱柱型号为 Poraplot Q 型色谱柱(30 m × 0.25 mm × 0.25 μm),载气为高纯 He。升温程序:由室温以 10 ℃/min 升温至 68 ℃,恒温 7 min,然后升温至 90 ℃,恒温 1.5 min,最后以 15 ℃/min 升温至 175 ℃,恒温 5 min。同位素分析采用 Thermo Delta V Advantage 型 GC - IRMS 同位素质谱仪,色谱柱型号为 CP - PoraPLOT Q 型色谱柱(27.5 m × 0.32 mm × 10 μm)。程序升温:从 33 ℃ 以 8 ℃/min 升温至 210 ℃;进样口温度:200 ℃;载气(He)流速:1.5 mL/min;氧化炉温度:980 ℃;还原炉温度:640 ℃;离子源真空度:(8.6 - 8.9) × 10<sup>-5</sup> Pa,离子源电压:3.07 kV。

## 2 结果与讨论

热爆前后包裹体气体的组分组成如表 2 所示。从中可以看出以下几点:①热爆前很多样品包裹体中含有 CO<sub>2</sub>,热爆后流体包裹体(岩浆包裹体)气体中 CO<sub>2</sub> 含量大多大幅减小,很多不含 CO<sub>2</sub>,说明 CO<sub>2</sub> 多存在于水溶液包裹体中。②岩浆包裹体中以甲烷为主的烃气占有很高的比例,说明该区幔源物质中确实存在大量的以甲烷为主的烷烃气体,徐家围子断陷烃类天然气不排除有无机成因气贡献的可能。Wang<sup>[10]</sup>曾通过拉曼探针分析在该区储层火山岩中检测到高含甲烷的原生包裹体。徐家围子断陷在断陷期有 3 次较大规模的火山活动,以营城期火山活动持续时间最长<sup>[22]</sup>,这些火山活动会伴随大量的气体喷出,但因上部缺乏盖层,这些气体不会被保存。不过后期拗陷期幔源气体仍有可能在地壳活动过程中通过深大断裂运移至上部火山岩储层。对于火山喷发脱气与普通岩浆活动脱气的差别有待进一步研究,对此比较可行的方案是对比岩浆包裹体与温泉气体的组分和同位素特征。③对比储层产出天然气的组分与同位素组成(表 3),包裹体中 CO<sub>2</sub> 含量有的相差无几,如徐深 19 和徐深 28 井,有的明显较低,如芳深 9 井,有的则较高,如徐深 301 和徐深 903 井。这一现象主要是由 CO<sub>2</sub>、烃气充注期的匹配关系和包裹体的形成条件决定的。由于水溶液包裹体只能在有水的条件下才能形成,因此若 CO<sub>2</sub> 的充注期晚于烃气,在储层被烃气部分占据后包裹体的形成将受到抑制,从而造成包裹体组分中 CO<sub>2</sub> 含量较低,反之将造成包裹体组分中 CO<sub>2</sub> 含量较高。而若 CO<sub>2</sub> 的充注期与烃类气体相近则包裹体的气体组分与天然气则可能较为接近。在不考虑无机成因烃类气体的情况下,徐家围子断陷煤系烃源岩生气主要发生于中生代 95.5 ~ 73 Ma(K<sub>1</sub>qn—K<sub>2</sub>s)约 20 Ma 的时期内<sup>[23]</sup>,而无机 CO<sub>2</sub> 却存在多期充注的可能。断陷期火山活动

表 2 热爆前、后包裹体气体组分比较

Table 2 Comparison of gas composition of fluid inclusions before and after thermal decrepitation

| 井号     | 热爆前包裹体气体组分含量/%  |                 |                               |                               |                                | 热爆后包裹体气体组分含量/%  |                 |                               |                               |                                |
|--------|-----------------|-----------------|-------------------------------|-------------------------------|--------------------------------|-----------------|-----------------|-------------------------------|-------------------------------|--------------------------------|
|        | CO <sub>2</sub> | CH <sub>4</sub> | C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> | C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> | C <sub>4</sub> H <sub>10</sub> | CO <sub>2</sub> | CH <sub>4</sub> | C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> | C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> | C <sub>4</sub> H <sub>10</sub> |
| 达深 1   | 0               | 100             | 0                             | 0                             | 0                              | —               | —               | —                             | —                             | —                              |
| 达深 401 | —               | —               | —                             | —                             | —                              |                 |                 |                               |                               |                                |
| 达深 X5  | 14. 47          | 85              | 0. 53                         | 0                             | 0                              | 0               | 100             | 0                             | 0                             | 0                              |
| 芳深 9   | 15. 55          | 84. 45          | 0                             | 0                             | 0                              | 0               | 100             | 0                             | 0                             | 0                              |
| 徐深 1   | 15. 48          | 83. 55          | 0. 97                         | 0                             | 0                              | 0               | 93. 96          | 2. 41                         | 3. 63                         | 0                              |
| 徐深 12  | 0               | 100             | 0                             | 0                             | 0                              | 0               | 100             | 0                             | 0                             | 0                              |
| 徐深 141 | 0               | 100             | 0                             | 0                             | 0                              | —               | —               | —                             | —                             | —                              |
| 徐深 19  | 90. 24          | 9. 66           | 0. 07                         | 0. 03                         | 0                              | 77. 68          | 22. 32          | 0                             | 0                             | 0                              |
| 徐深 23  | 13. 24          | 82. 71          | 3. 16                         | 0. 79                         | 0. 1                           | 0               | 95. 08          | 2. 58                         | 0                             | 2. 34                          |
| 徐深 27  | 22. 62          | 77. 38          | 0                             | 0                             | 0                              | 0               | 100             | 0                             | 0                             | 0                              |
| 徐深 28  | 82. 89          | 14. 13          | 0. 08                         | 0                             | 2. 9                           | 56. 03          | 43. 97          | 0                             | 0                             | 0                              |
| 徐深 301 | 29. 48          | 70. 45          | 0. 07                         | 0                             | 0                              | 0               | 100             | 0                             | 0                             | 0                              |
| 徐深 902 | 9. 48           | 89. 35          | 1. 17                         | 0                             | 0                              | 0               | 100             | 0                             | 0                             | 0                              |
| 徐深 903 | 45. 88          | 54. 12          | 0                             | 0                             | 0                              | 0               | 100             | 0                             | 0                             | 0                              |
| 莺深 2   | 21. 20          | 78. 80          | 0                             | 0                             | 0                              |                 |                 |                               |                               |                                |
| 肇深 10  | 0               | 100             | 0                             | 0                             | 0                              | —               | —               | —                             | —                             | —                              |

注:“—”表示未检测出;空格表示未检测。

表 3 天然气组分及同位素组成

Table 3 Gas components and isotopic composition of natural gas

| 井号     | 层位                | 深度/m             | 天然气组分含量/%       |                 |                               |                               |                                | 天然气碳同位素组成/‰                                 |                                |                                |                                                                 |
|--------|-------------------|------------------|-----------------|-----------------|-------------------------------|-------------------------------|--------------------------------|---------------------------------------------|--------------------------------|--------------------------------|-----------------------------------------------------------------|
|        |                   |                  | CO <sub>2</sub> | CH <sub>4</sub> | C <sub>2</sub> H <sub>6</sub> | C <sub>3</sub> H <sub>8</sub> | C <sub>4</sub> H <sub>10</sub> | δ <sup>13</sup> C <sub>CO<sub>2</sub></sub> | δ <sup>13</sup> C <sub>1</sub> | δ <sup>13</sup> C <sub>2</sub> | δ <sup>13</sup> C <sub>1</sub> - δ <sup>13</sup> C <sub>2</sub> |
| 达深 1   | K <sub>1</sub> yc | 3 279 ~ 3 288    | 0. 00           | 95. 41          | 3. 72                         | 0. 87                         | 0. 00                          |                                             | - 28. 73                       |                                |                                                                 |
| 达深 401 | K <sub>1</sub> yc | 3 177. 5 ~ 3 197 | 0. 14           | 97. 19          | 2. 37                         | 0. 25                         | 0. 05                          |                                             | - 28. 04                       | - 22. 8                        | - 5. 24                                                         |
| 达深 X5  | K <sub>1</sub> yc | 3 852 ~ 3 907. 2 | 0. 74           | 96. 75          | 2. 36                         | 0. 14                         | 0. 01                          | - 19. 25                                    | - 29. 03                       | - 21. 4                        | - 7. 63                                                         |
| 芳深 9   | K <sub>1</sub> yc | 3 602 ~ 3 632    | 91. 43          | 8. 40           | 0. 17                         | 0. 00                         | 0. 00                          | - 8. 22                                     | - 27. 45                       | - 32. 11                       | 4. 66                                                           |
| 徐深 1   | K <sub>1</sub> yc | 3 379            | 2. 10           | 95. 02          | 2. 47                         | 0. 37                         | 0. 04                          | - 7. 16                                     | - 27. 90                       | - 28. 27                       | 0. 37                                                           |
| 徐深 12  | K <sub>1</sub> yc | 3 625 ~ 3 642    | 1. 88           | 94. 77          | 2. 52                         | 0. 66                         | 0. 17                          |                                             | - 28. 13                       | - 33. 77                       | 5. 64                                                           |
| 徐深 141 | K <sub>1</sub> yc | 3 923 ~ 4 033    | 0. 04           | 98. 97          | 0. 92                         | 0. 07                         | 0. 00                          |                                             | - 28. 79                       | - 32. 68                       | 3. 89                                                           |
| 徐深 19  | K <sub>1</sub> yc | 3 775. 55        | 92. 53          | 7. 42           | 0. 05                         | 0. 00                         | 0. 00                          | - 5. 28                                     | - 34. 88                       | - 35. 86                       | 0. 98                                                           |
| 徐深 23  | K <sub>1</sub> yc | 3 987 ~ 3 992    | 14. 06          | 80. 66          | 5. 28                         | 0. 00                         | 0. 00                          | - 6. 62                                     | - 24. 28                       | - 29. 49                       | 5. 21                                                           |
| 徐深 27  | K <sub>1</sub> yc | 3 933. 5 ~ 3 976 | 4. 70           | 91. 92          | 2. 52                         | 0. 76                         | 0. 10                          | - 0. 52                                     | - 28. 34                       | - 33. 79                       | 5. 45                                                           |
| 徐深 28  | K <sub>1</sub> yc | 4 167 ~ 4 201    | 90. 33          | 9. 46           | 0. 21                         | 0. 00                         | 0. 00                          | - 7. 02                                     | - 33. 56                       |                                |                                                                 |
| 徐深 301 | K <sub>1</sub> yc | 3 943 ~ 3 950    | 4. 80           | 90. 30          | 3. 29                         | 1. 14                         | 0. 47                          |                                             |                                |                                |                                                                 |
| 徐深 902 | K <sub>1</sub> yc | 3 770 ~ 3 778. 5 | 2. 82           | 94. 67          | 2. 12                         | 0. 32                         | 0. 07                          | - 7. 37                                     | - 28. 45                       | - 33. 53                       | 5. 08                                                           |
| 徐深 903 | K <sub>1</sub> yc | 3 861 ~ 3 866    | 10. 83          | 86. 49          | 2. 14                         | 0. 45                         | 0. 09                          | - 5. 39                                     | - 27. 69                       | - 31. 43                       | 3. 74                                                           |
| 莺深 2   | K <sub>1</sub> yc | 3 883 ~ 3 907    | 4. 52           | 93. 63          | 1. 48                         | 0. 27                         | 0. 10                          |                                             |                                |                                |                                                                 |
| 肇深 10  | K <sub>1</sub> yc | 2 948            | 0. 21           | 96. 45          | 2. 51                         | 0. 62                         | 0. 21                          |                                             | - 23. 05                       | - 26. 3                        | 3. 25                                                           |

注:空格表示未检测。

结束后,较长一段时间内无大的构造热事件发生,青山口组沉积时期,地壳再次活动,只不过地壳活动强度较弱,岩浆未能涌至火石岭组及上部地层,但其中析出的 CO<sub>2</sub> 气可沿断层向上运移,进入到火石岭组一营城组火山岩储层,且此时登二段泥岩盖层已形成封闭能力,可形成气藏<sup>[24]</sup>。另外,新生代松辽盆地边缘,如五大连池地区(其火山岩包裹体组分和同位素组成将作为下一步研究内容)所发生的火山活动

也可诱发幔源 CO<sub>2</sub> 沿深大断裂向上运移<sup>[25]</sup>。若考虑无机成因烃类气体,CO<sub>2</sub>、烃气充注期的匹配关系将更为复杂。

热爆前后包裹体气体及储层产出天然气的同位素组成如表 3 与表 4 所示。从中我们可以发现几点重要的认识。①除徐深 19 井外,储层中天然气甲、乙烷的同位素序列与热爆前包裹体的均一致,这反映了目前造成天然气同位素序列倒转的主要原因是不同期次/源天然

表 4 热爆前、后包裹体气体同位素组成

Table 4 Comparison of gas isotopic composition of fluid inclusions before and after thermal decrepitation

| 井号     | 热爆前包裹体气体碳同位素组成/‰                    |                         |                         |                                                 | 热爆后包裹体气体碳同位素组成/‰                    |                         |                         |                                                 |
|--------|-------------------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------------------------------|-------------------------------------|-------------------------|-------------------------|-------------------------------------------------|
|        | $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ | $\delta^{13}\text{C}_1$ | $\delta^{13}\text{C}_2$ | $\delta^{13}\text{C}_1 - \delta^{13}\text{C}_2$ | $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$ | $\delta^{13}\text{C}_1$ | $\delta^{13}\text{C}_2$ | $\delta^{13}\text{C}_1 - \delta^{13}\text{C}_2$ |
| 达深 1   | —                                   | -28.5                   | —                       | —                                               | —                                   | -11.2                   | —                       | —                                               |
| 达深 401 | —                                   | -26.6                   | —                       | —                                               | —                                   | —                       | —                       | —                                               |
| 达深 X5  | -5.7                                | -28.1                   | -17.0                   | -11.1                                           | —                                   | -24.0                   | —                       | —                                               |
| 芳深 9   | —                                   | -25.0                   | —                       | —                                               | —                                   | -19.4                   | —                       | —                                               |
| 徐深 1   | -5.6                                | -26.9                   | -30.7                   | 3.8                                             | —                                   | -30.4                   | -22.3                   | -8.1                                            |
| 徐深 12  | —                                   | -25.0                   | —                       | —                                               | —                                   | -18.2                   | —                       | —                                               |
| 徐深 141 | —                                   | -28.2                   | —                       | —                                               | —                                   | -24.2                   | —                       | —                                               |
| 徐深 19  | -0.9                                | -29.5                   | -26.1                   | -3.4                                            | -0.8                                | -29.2                   | —                       | —                                               |
| 徐深 23  | -5.5                                | -27.3                   | -30.1                   | 2.8                                             | —                                   | -26.3                   | -25.7                   | -0.6                                            |
| 徐深 27  | 2.5                                 | -28.2                   | -31.7                   | 3.5                                             | —                                   | -27.6                   | —                       | —                                               |
| 徐深 28  | —                                   | -34.6                   | -30.7                   | -3.9                                            | -0.9                                | -35.3                   | —                       | —                                               |
| 徐深 301 | -11.4                               | -27.8                   | —                       | —                                               | —                                   | -22.2                   | —                       | —                                               |
| 徐深 902 | -11.5                               | -25.3                   | -32.3                   | 7.0                                             | —                                   | -27.5                   | —                       | —                                               |
| 徐深 903 | -4.6                                | -26.1                   | -31.3                   | 5.2                                             | —                                   | -16.8                   | —                       | —                                               |
| 莺深 2   | 5.2                                 | -29.8                   | —                       | —                                               | —                                   | —                       | —                       | —                                               |
| 肇深 10  | —                                   | —                       | —                       | —                                               | —                                   | —                       | —                       | —                                               |

注：“—”表示未检测出；空格表示未检测。

气的混合,而不是后期盖层微渗漏过程中低分子量和轻碳同位素组分优先散失等因素<sup>[5]</sup>。另外,与包裹体相比烃类天然气的碳同位素组成并未偏重,也在一定程度上说明了这一点。②受检测下限的影响,热爆后包裹体的乙烷碳同位素值多数不能检测出,但检测出结果的徐深 1 和徐深 23 井的组分碳同位素值均呈正碳同位素序列,并非负碳同位素序列,这说明我们需要重新审视无机成因气的碳同位素特征。李景坤等<sup>[26]</sup>利用徐家围子断陷幔源二氧化碳进行了费-托合成实验,其烃产物大部分未发生碳同位素反序。以上研究表明无机成因天然气碳同位素序列不一定反序,加之天然气的混合作用可造成其同位素序列的倒转,因此仅用天然气的同位素序列判断其成因缺乏充分依据。③相对未爆裂样品,热爆裂后包裹体中天然气(甲烷、乙烷和 CO<sub>2</sub>)的碳同位素值多数变重,这可能体现了有机和无机成因气的差异,因为相对有机成因天然气,无机成因天然气碳同位素值常较重。热爆后包裹体的甲烷碳同位素值有的重于-20‰,有的则轻于该值,热爆前普遍轻于该值,说明用甲烷碳同位素值是否重于-20‰作为无机与有机成因气的判别标准对有机成因气有一定的适用性,但对无机成因气则过于苛刻。④包裹体和天然气  $\delta^{13}\text{C}_{\text{CO}_2}$  多重于-8‰,少数样品轻于-8‰,如达深 X5 井,轻于-8‰样品对应组分均以甲烷为主,根据戴金星等<sup>[27]</sup>提出的判别标准,徐家围子断陷 CO<sub>2</sub> 应以无机成因为主,主要源于岩浆活动过程的脱气作用,少数为有机成因。

松辽盆地深层烃源岩为一套煤系地层,其有机质中

氧元素含量较高,热解生气过程中必不可少地会生成大量的 CO<sub>2</sub>,对此我们所开展的热模拟实验证明了这一点<sup>[28]</sup>。实验选用目前国际上比较流行的密闭小金管实验,可灵活控制温压条件。实验压力为 50 MPa,升温速率 2 ℃/h,从 200 ℃升温至各目标温度点。实验分别选用松辽盆地杜 13 井沙河子组暗色泥岩( $R_o=0.56\%$ )、营城煤矿营城组煤样( $R_o=0.50\%$ ),成气过程中各温度点组分产率如图 2 所示。从中可以看出,松辽盆地煤系源岩生烃过程中 CO<sub>2</sub> 具有很高的产率,甚至超过甲烷。但从包裹体及天然气中 CO<sub>2</sub> 的含量及碳同位素组成判断,有机成因的 CO<sub>2</sub> 多数未参与成藏或保存下来。因为 CO<sub>2</sub> 是一种溶解度非常高的气体,地质条件下天然气由源岩向储集层的运移始终是以地层水作为载体的,CO<sub>2</sub> 很容易溶解到地层水中,等到达圈闭聚集时,二氧化碳含量已经很低<sup>[29]</sup>。而无机成因的 CO<sub>2</sub> 是通过深大断裂由地幔直接运移至储层聚集成藏,未经历初次运移,大大减少了与地层水的接触,因而相对易于聚集成藏。另外,无机成因气可存在多期充注,气源充足,且晚期充注时储层内的水已因充气、压实作用而明显减少,这些因素也有利于无机成因 CO<sub>2</sub> 的聚集。

3 结论

1) 徐家围子火山喷发过程中的岩浆脱气烃类含量较高,暗示该区烃类天然气存在无机成因的可能,有必要对火山喷发脱气与普通岩浆活动脱气的差别做进一步研究。

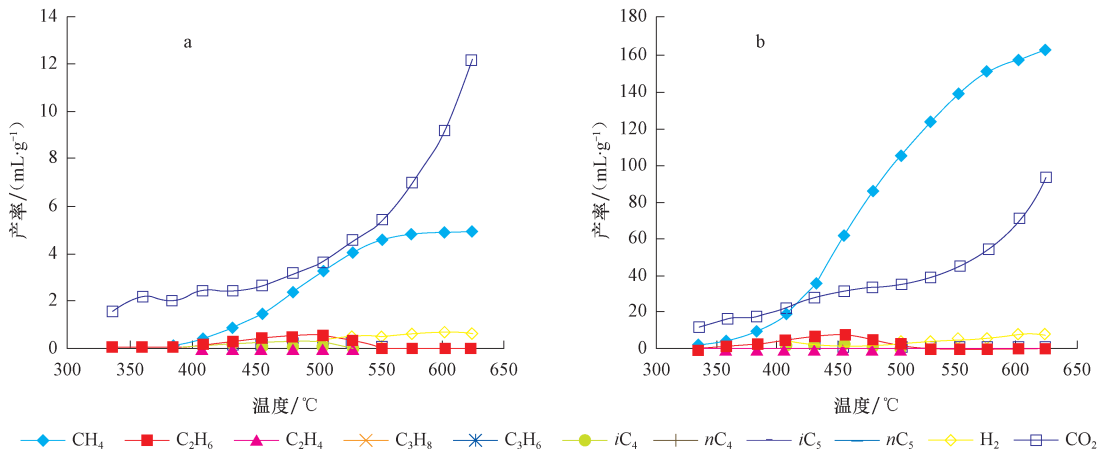


图 2 松辽盆地沙河子组暗色泥岩及营城组煤样热解成气组分产率曲线  
Fig. 2 Component yield curves of pyrolysis gas from dark mudstone of the Shahezi Formation and coal of the Yingcheng Formation, Songliao Basin

2) 徐家围子断陷烃类天然气的碳同位素序列倒转主要是由不同期次/源天然气的混合作用造成,而非后期天然气经盖层散失过程中的组分和同位素分馏,碳同位素序列倒转不能单独用于判断天然气的成因。

3) 相对有机成因气,无机成因气(甲烷、乙烷和CO<sub>2</sub>)碳同位素值常较重,用甲烷碳同位素值重于-20‰作为无机成因气的判别标准有一定的适用性,但过于苛刻。

4) 徐家围子断陷CO<sub>2</sub>以无机成因为主,主要源于拗陷期地壳活动过程中的地幔岩浆脱气,无机成因CO<sub>2</sub>能够聚集成藏与其未经历初次运移,与地层水接触少等因素有关。

参 考 文 献

[1] Sherwood Lollar B, Westgate T D, Ward J A, et al. Abiogenic formation of gaseous alkanes in the Earth's crust as a minor source of global hydrocarbon reservoirs[J]. Nature, 2002, 416: 522-524.

[2] 殷进根, 刘和甫, 迟海江. 松辽盆地徐家围子断陷构造演化[J]. 石油学报, 2002, 23(2): 26-29.

Yin Jinyin, Liu Hefu, Chi Haijiang. Evolution and gas-accumulation of Xujiaweizi depression in Songliao Basin[J]. Acta Petrolei Sinica, 2002, 23(2): 26-29.

[3] 蒙启安, 杨永斌, 金明玉. 断裂对松辽盆地庆深大气田的控制作用[J]. 石油学报, 2006, 27(S1): 14-17.

Meng Qi'an, Yang Yongbin, Jin Mingyu. Controlling role of faults to giant Qingshen Gas Field in Songliao Basin[J]. Acta Petrolei Sinica, 2006, 27(S1): 14-17.

[4] 刘为付, 朱筱敏. 松辽盆地徐家围子断陷营城组火山岩储集空间演化[J]. 石油实验地质, 2005, 27(1): 44-49.

Liu Weifu, Zhu Xiaomin. Reservoir space evolution of volcanic rocks in the Yingcheng Formation of the Xujiaweizi Fault Depression, the Songliao Basin[J]. Petroleum Geology & Experiment, 2005, 27(1): 44-49.

[5] 黄海平. 松辽盆地徐家围子断陷深层天然气同位素倒转现象研究[J]. 地球科学——中国地质大学学报, 2000, 25(6): 617-622.

Huang Haiping. Isotopic reversal in natural gas: an example of deep-strata gases from Xujiaweizi depression, Songliao basin [J]. Earth Science—Journal of China University of Geosciences, 2000, 25(6): 617-622.

[6] 冯子辉, 刘伟. 徐家围子断陷深层天然气的成因类型研究[J]. 天然气工业, 2006, 26(6): 18-20.

Feng Zihui, Liu Wei. A study of genetic type of deep gas in Xujiaweizi fault depression[J]. Natural Gas Industry, 2006, 26(6): 18-20.

[7] 崔永强, 崔永胜. 松辽盆地油气无机成因与勘探方向[J]. 化工矿产地质, 2004, 26(3): 129-133.

Cui Yongqiang, Cui Yongsheng. The inorganic oil and gas in Songliao basin and their exploration prospects[J]. Geology of Chemical Minerals, 2004, 26(3): 129-133.

[8] 郭占谦, 王先彬, 刘文龙. 松辽盆地非生物成因气的成藏特征[J]. 中国科学(D辑), 1997, 27(2): 143-148.

Guo Zhanqian, Wang Xianbin, Liu Wenlong. Reservoir-forming features of abiogenic origin gas in Songliao Basin[J]. Science in China (Series D), 1997, 27(2): 143-148.

[9] 付晓飞, 宋岩. 松辽盆地无机成因气及气源模式[J]. 石油学报, 2005, 26(4): 23-28.

Fu Xiaofei, Song Yan. Inorganic gas and its resource in Songliao Basin[J]. Acta Petrolei Sinica, 2005, 26(4): 23-28.

[10] Wang P J, Hou Q J, Wang K Y, et al. Discovery and significance of high CH<sub>4</sub> primary fluid inclusions in reservoir volcanic rocks of the Songliao Basin, NE China[J]. Acta Geologica Sinica, 2007, 81(1): 113-120.

[11] 戴金星, 夏新宇, 秦胜飞, 等. 中国有机烷烃气碳同位素系列倒转的成因[J]. 石油与天然气地质, 2003, 24(1): 1-6.

Dai Jinxing, Xia Xinyu, Qin Shengfei, et al. Causation of partly reversed orders of δ<sup>13</sup>C in biogenic alkane gas in China[J]. Oil & Gas Geology, 2003, 24(1): 1-6.

[12] 戴金星, 邹才能, 张水昌, 等. 无机成因和有机成因烷烃气的鉴别[J]. 中国科学(D辑), 2008, 38(11): 1329-1341.

Dai Jinxing, Zou Caineng, Zhang Shuichang, et al. Identification of inorganic and organic alkane gases[J]. Science in China (Series D), 2008, 38(11): 1329-1341.

[13] 徐永昌, 沈平. 天然气成因新模式——(I). 多源复合、主源定型[J]. 中国科学(B辑), 1993, 23(6): 632-636.

- Xu Yongchang, Shen Ping. New genesis mode of natural gas: ( I ). multi sources contribute and the main source determine the type[ J ]. Science in China( Series B ), 1993, 23( 6 ): 632 - 636.
- [ 14 ] 徐永昌, 沈平. 天然气成因新模式——( II ). 多阶连续、主阶定名[ J ]. 中国科学( B 辑 ), 1993, 23( 7 ): 1389 - 1395.  
Xu Yongchang, Shen Ping. New genesis mode of natural gas: ( II ). multi stages continue and the main stage determine the name[ J ]. Science in China( Series B ), 1993, 23( 7 ): 1389 - 1395.
- [ 15 ] 卢双舫, 李宏涛, 付广, 等. 天然气富集的主控因素剖析[ J ]. 天然气工业, 2003, 23( 6 ): 7 - 11.  
Lu Shuangfang, Li Hongtao, Fu Guang, et al. Analysis of the main control factors of natural gas enrichment[ J ]. Natural Gas Industry, 2003, 23( 6 ): 7 - 11.
- [ 16 ] 赵孟军, 宋岩, 柳少波, 等. 扩散作用对天然气成藏后的影响——以大宛齐油田为例[ J ]. 天然气地球科学, 2003, 14( 5 ): 393 - 397.  
Zhao Mengjun, Song Yan, Liu Shaobo, et al. The diffusion influence on gas pool: Dawanqi oilfield as an example[ J ]. Natural Gas Geoscience, 2003, 14( 5 ): 393 - 397.
- [ 17 ] 李剑, 刘朝露, 李志生, 等. 天然气组分及其碳同位素扩散分馏作用模拟实验研究[ J ]. 天然气地球科学, 2003, 14( 6 ): 463 - 468.  
Li Jian, Liu Zhaolu, Li Zhisheng, et al. Experiment investigation on the carbon isotope and composition fractionation of methane during gas migration by diffusion[ J ]. Natural Gas Geoscience, 2003, 14( 6 ): 463 - 468.
- [ 18 ] Liu D H, Xiao X M, Mi J K, et al. Determination of trapping pressure and temperature of petroleum inclusion using PVT simulation inclusion of Lower Ordevician carbonates from the Lunnan Low Uplift, Tarim Basin[ J ]. Marine and Petroleum Geology, 2003, 20: 29 - 43.
- [ 19 ] George S C, Volk H, Ahmed M. Oil-bearing fluid inclusions: geochemical analysis and geological applications[ J ]. Acta Petrologica Sinica, 2004, 20( 6 ): 1320 - 1332.
- [ 20 ] 刘德汉, 卢焕章, 肖贤明. 油气包裹体及其在石油勘探和开发中的应用[ M ]. 广州: 广东科技出版社, 2007.  
Liu Dehan, Lu Huanzhang, Xiao Xianming. Oil and gas inclusions and their application in petroleum exploration & development[ M ]. Guangzhou: Science and Technology Press of Guangdong, 2007.
- [ 21 ] 张翥, 田作基, 冷莹莹, 等. 烃和烃类包裹体的拉曼特征[ J ]. 中国科学( D 辑 ), 2007, 37( 7 ): 900 - 907.  
Zhang Nai, Tian Zuoji, Leng Yingying, et al. Raman characteristics of hydrocarbon and hydrocarbon fluid inclusion[ J ]. Science in China( Series D ), 2007, 37( 7 ): 900 - 907.
- [ 22 ] 金晓辉, 林壬子, 邹华耀, 等. 松辽盆地徐家围子断陷火山活动期次与烃源岩演化[ J ]. 石油与天然气地质, 2005, 27( 3 ): 349 - 355.  
Jin Xiaohui, Lin Renzi, Zou Huayao, et al. Volcanic activities and evolution of source rocks in Xujiaweizi fault depression, Songliao basin[ J ]. Oil & Gas Geology, 2005, 27( 3 ): 349 - 355.
- [ 23 ] Li J J, Lu S F, Xue H T, et al. A study of the migration and accumulation efficiency and the genesis of hydrocarbon natural gas in the Xujiaweizi fault depression[ J ]. Acta Geologica Sinica( English Edition ), 2008, 82( 3 ): 629 - 635.
- [ 24 ] 付广, 吕延防, 王剑秦. 徐家围子断陷 CO<sub>2</sub> 气成藏与分布的主控因素及有利区预测[ J ]. 断块油气田, 2002, 9( 3 ): 1 - 4.  
Fu Guang, Lü Yanfang, Wang Jianqin. Main factors controlling the formation and distribution of carbon dioxide gas reservoirs and favorable areas prospecting in Xujiaweizi depression[ J ]. Fault-block Oil & Gas Field, 2002, 9( 3 ): 1 - 4.
- [ 25 ] 米敬奎, 张水昌, 陶士振, 等. 松辽盆地南部长岭断陷 CO<sub>2</sub> 成因与成藏期研究[ J ]. 天然气地球科学, 2008, 19( 4 ): 452 - 456.  
Mi Jingkui, Zhang Shuichang, Tao Shizhen, et al. Genesis and accumulation period of the CO<sub>2</sub> in Changling fault depression of Songliao basin, northeastern China[ J ]. Natural Gas Geoscience, 2008, 19( 4 ): 452 - 456.
- [ 26 ] 李景坤, 方伟, 曾花森, 等. 徐家围子断陷烷烃气碳同位素反序机制[ J ]. 石油学报, 2011, 32( 1 ): 54 - 61.  
Li Jingkun, Fang Wei, Zeng Huasen, et al. Possible origins for inverse stable carbon isotopes of gaseous alkanes from the Xujiaweizi fault depression[ J ]. Acta Petrolei Sinica, 2011, 32( 1 ): 54 - 61.
- [ 27 ] 戴金星, 戴春森, 宋岩, 等. 中国一些地区温泉中天然气的地球化学特征及碳、氮同位素组成[ J ]. 中国科学( B 辑 ), 1994, 24( 4 ): 426 - 433.  
Dai Jinxing, Dai Chunsen, Song Yan, et al. Geochemical characters, carbon and Helium isotopic compositions of natural gas from hot springs of some areas in China[ J ]. Science in China( Series B ), 1994, 24( 4 ): 426 - 433.
- [ 28 ] 李吉君. 天然气生成过程中氢同位素分馏动力学研究及应用[ D ]. 大庆: 大庆石油学院, 2008.  
Li Jijun. Kinetic study of hydrogen isotopic fractionation during the generation of natural gas and its application[ D ]. Daqing: Daqing Petroleum Institute, 2008.
- [ 29 ] 高岗, 王延斌, 韩德馨, 等. 两种海相未成熟烃源岩热解气特征比较研究[ J ]. 石油实验地质, 2003, 25( 2 ): 197 - 201.  
Gao Gang, Wang Yanbin, Han Dexin, et al. Characteristic contrast of natural gas with marine shale and marl[ J ]. Petroleum Geology & Experiment, 2003, 25( 2 ): 197 - 201.
- [ 30 ] 汪泽成, 赵文智, 胡素云, 等. 我国海相碳酸盐岩大油气田油气藏类型及分布特征[ J ]. 石油与天然气地质, 2013, 34, ( 2 ): 152 - 160.  
Wang Zecheng, Zhao Wenzhi, Hu Suyun, et al. Reservoir types and distribution characteristics of large marine carbonate oil and gas fields in China[ J ]. Oil & Gas Geology, 2013, 34( 2 ): 153 - 160.
- [ 31 ] 李永新, 王红军, 王兆云. 影响烃源岩中分散液态烃滞留数量因素研究[ J ]. 石油与天然气地质, 2010, 32( 6 ): 588 - 591.  
Li Yuanxin, Wang Hongjun, Wang Zhaoyun. Simulation of influential factors of dispersive resoluble organic Materials in source rocks[ J ]. Petroleum Geology & Experiment, 2010, 32( 6 ): 588 - 591.

( 编辑 董 立 )