

文章编号: 0253-9985(2007)01-0012-06

塔里木盆地天然气中氮地球化学特征与成因

刘全有¹, 戴金星¹, 刘文汇², 秦胜飞¹, 张殿伟²

(中国石油天然气股份有限公司 勘探开发研究院, 北京 100083)

中国石油化工股份有限公司 石油勘探开发研究院, 北京 100083)

摘要: 通过统计分析塔里木盆地 103 个天然气样品, 发现塔里木盆地天然气主要存在两种成因类型, 即油型气和煤成气, 且氮气含量在油型气中明显高于煤成气。在台盆区产自古生界地层的塔中、东河塘、哈得和中生界的轮南地区为异常高氮气天然气, 氮气含量大于 20%; 新生界地层与塔西南和库车坳陷的中生界地层产出的天然气氮气含量最低 (< 5%), 主要为煤成气; 塔北地区, 天然气氮气含量变化较大, 低含量氮气主要为煤成气, 而高氮气含量天然气为油型气, 在高氮气含量的油型气中, 不同热演化阶段氮气来源不同, 其含量也不相同。雅克拉天然气高氮气含量可能是来源于高演化形成的氮气与少量深部气体的混合。

关键词: 天然气; 氮气; 地球化学; 成因类型; 塔里木盆地

中图分类号: TE122.2 **文献标识码:** A

Geochemical characteristics and genesis of nitrogen in natural gas from Tarim Basin

Liu Quanyou¹, Dai Jinxing¹, Liu Wenhui², Qin Shengfei¹, Zhang Dianwei²

(1. Exploration & Development Research Institute, PetroChina, Beijing 100083, China;

2. Exploration & Production Research Institute, SINOPEC, Beijing 100083, China)

Abstract Statistical measurements of 103 gas samples from the Tarim Basin indicate that the oil-type gas and the coal-derived gas dominate the basin and that the former contains much more nitrogen than that of the latter. The gas with abnormal high concentration of nitrogen (more than 20%) occurs in the Paleozoic gas reservoirs of Tazhong, Donghetang and Hade regions, and the Mesozoic gas reservoirs of Lunnan region (in the Paleozoic craton area). The gas with the lowest N_2 content ($N_2 < 5\%$) are mainly coal-derived and are distributed in the Cenozoic strata of the basin and the Mesozoic strata of southwestern Tarim and Kuqa depressions. In the Tabei area, the N_2 contents in natural gas are considerably varied. Gases with low nitrogen concentration are mostly coal-derived, while those with high nitrogen concentration are often oil-type gas, in which the origins and contents of nitrogen are changed with the different thermal stages of sapropelic source rocks. The nitrogen molecular in Yakela gas may be explained by the mixture of organic nitrogen formed by sapropel-type kerogen during over-mature stages and a little amount of inorganic nitrogen derived from deep crust.

Key words natural gas; nitrogen; geochemistry; genetic type; Tarim Basin

氮是天然气中常见的非烃组分, 较其他非烃组分的物性更接近烃类。上世纪 50 年代以前, 主要从气体组分和产状方面研究天然气中的氮; 从 50 年代开始利用其他地球化学和同位素地球化学

方法研究氮的文献陆续发表, 同时在全世界各地发现了许多高含氮天然气^[1~3]。迄今为止, 人们根据天然气各组分含量、组分浓度比以及同位素组成等特征并结合地质资料对比研究天然气中

氮^[3~7]。Jenden 等^[8]统计了美国矿业局分析的 12 000 个天然气分析数据, 发现天然气中 N_2 平均含量为 3%, 10% 气样中的 $N_2 \geq 25\%$, 3.5% 气样的 $N_2 \geq 50\%$, 1% 气样的 $N_2 \geq 90\%$; 戴金星等^[9]统计了我国 1 000 多个气样的分析结果, $N_2 \leq 4\%$ 的占 76%, $N_2 \leq 8\%$ 占 86%。世界范围内对非烃天然气的研究日趋注重, 可望解决一系列地质理论及生产实践中因非烃气体含量过高而带来的投资风险问题。由于氮比甲烷分子小, 易于扩散而优先形成气藏; 因而氮气藏的发现有利于找到大型的煤成甲烷气藏^[10]。塔里木盆地天然气中氮气的分布较为复杂, 高氮含量天然气会给天然气勘探带来一定的风险。为了进一步研究其分布规律与成因类型, 收集了塔里木盆地天然气样品化学组成和同位素分析的部分数据^[11~15]。通过研究塔里木盆地天然气中氮地球化学特征、来源等为油气勘探开发提供更多的科学依据。

1 地质概括

塔里木盆地是我国最大的内陆含油气盆地。塔里木盆地基底为元古宇变质岩系, 其上发育震旦系—古生界海相沉积和中、新生界陆相沉积两套盖层, 是一个在古生代地台上叠置的中、新生代沉积盆地^[16~17]。塔里木盆地在震旦系、古生界、中生界和新生界地层十分发育, 整个地层均未变质, 一般厚度为 12 000~13 000 m, 最厚达 17 000~18 000 m。古生代曾经历了两次较大的海侵, 晚白垩世—早第三纪仅在盆地西部有局部海侵^[18]。塔里木盆地主要存在两套主力烃源岩, 一套为海相寒武系、奥陶系泥质碳酸岩^[19], 热成熟度普遍较高, 塔中地区等较镜质体反射率最高为 2.25%, 塔北为 2.21%^[20]; 另一套为陆相三叠系、侏罗系泥岩, 主要与煤系地层有关^[21]。

2 地球化学特征

2.1 化学组分

塔里木盆地天然气主要以烃类气体为主, 伴有少量氮气 N_2 和 CO_2 。在 103 个样品中, 烃类气体 (C_1-C_4) 含量大于 90% 的样品 59 个, 小于 70% 的仅为 9 个 (图 1)。 N_2 含量一般小于 5%, 占

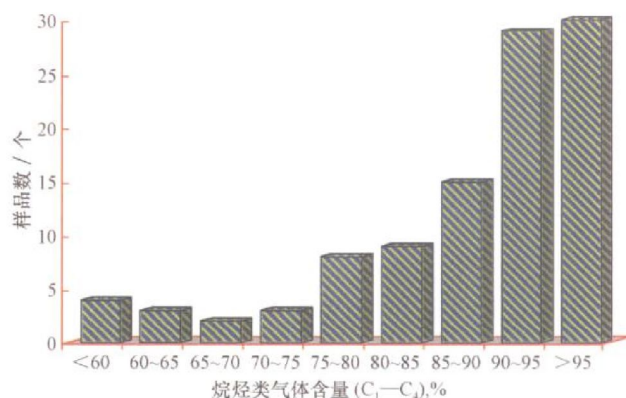


图 1 塔里木盆地天然气中烷烃气频率分布 (样品数 103 个)

Fig. 1 Alkane frequency distribution in natural gas of Tarim Basin (103 samples)

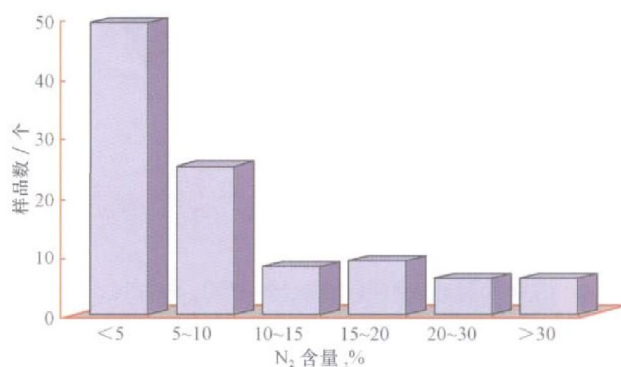


图 2 塔里木盆地天然气中 N_2 频率分布 (样品数 103 个)

Fig. 2 Nitrogen frequency distribution in natural gas of Tarim Basin (103 samples)

总样品数的 54.4%, 大于 20% 的仅有 12 个样品 (图 2)。主要分布在台盆区的古生界和中生界地层, 包括塔中、轮南、哈得、东河塘等; 古生界和中生界的 N_2 含量变化较大, 且高于新生界 N_2 。 CO_2 普遍含量低, 小于 10% 的 CO_2 样品数占总数的 90% 以上。

2.2 同位素组成

塔里木盆地甲烷碳同位素变化较大, 新生界 $\delta^{13}C_1$ 值较重, 介于 -21% ~ -38% 之间, 古、中生界 $\delta^{13}C_1$ 数值较轻, 一般介于 -30% ~ -45% 。塔里木盆地中天然气 $\delta^{13}C_2$ 和 $\delta^{13}C_3$ 明显以 $\delta^{13}C_2 > -28\%$ 且 $\delta^{13}C_3 > -25\%$ 划分为两种不同类型的天然气 (图 3 图 4)。在新生界地层中天然气 $\delta^{13}C_2$ 重于 -28% 在中生界除塔西南和库车凹陷南缘地区外, 天然气的 $\delta^{13}C_2$ 值一般轻于 -28% 而古生界地层中的天然气普遍具有较轻的 $\delta^{13}C_2$ 组成, 且轻于 -28% 。新生界天然气氮同位素 X 素一般重于古、中生界氮气同位素; 新生界 $\delta^{15}N$ 值介于 6.2% ~

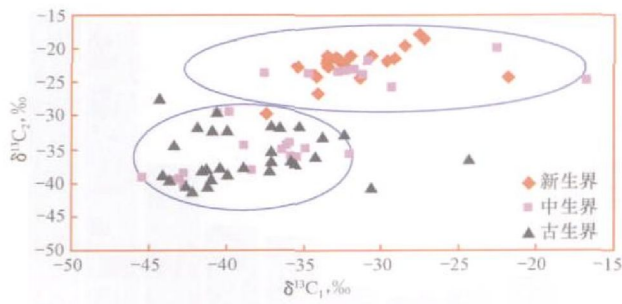


图 3 塔里木盆地天然气中烷烃气 $\delta^{13}\text{C}_1$ 与 $\delta^{13}\text{C}_2$ 的关系

Fig. 3 Relationship between $\delta^{13}\text{C}_1$ and $\delta^{13}\text{C}_2$ values of alkane in natural gas of Tarim Basin

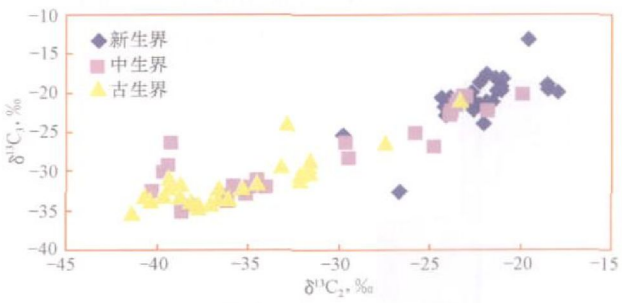


图 4 塔里木盆地天然气中烷烃气 $\delta^{13}\text{C}_2$ 与 $\delta^{13}\text{C}_3$ 的关系

Fig. 4 Relationship between $\delta^{13}\text{C}_2$ and $\delta^{13}\text{C}_3$ values of alkane in natural gas of Tarim Basin

25.5‰(除台 2 井 $\delta^{15}\text{N}$ 为 -6.0‰ 外), 古、中生界氮气同位素一般小于 6‰ (除 DH1-6-8 井 $\delta^{15}\text{N}$ 为 -14.6‰ 外)。塔里木盆地天然气中稀有气体氦同位素 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 均小于 $n \times 10^{-6}$, 变化范围为 $1.92 \times 10^{-8} \sim 76.90 \times 10^{-8}$, 最高为塔西南的 AK1 井, $^3\text{He}/^4\text{He}$ 组成为 76.9×10^{-8} 。在古生界 YH7X-1、曲 3、YM2 和中生界 YK1、S7 为 $n \times 10^{-7}$ 数量级。

3 天然气氮成因探讨

塔里木盆地天然气主要以烃类气体为主, 一般烃类气体含量大于 90%, 其次为 N_2 , 古生界 N_2 含量一般高于中生界和新生界, 最高可达 50%, 如 DH1-6-8 井 N_2 含量为 52.56%, 新生界 N_2 含量最低, 一般小于 10%。利用碳同位素可以区分不同类型天然气, 从图 3 可以发现, 在塔里木盆地明显存在两种不同的天然气类型, 在新生界 $\delta^{13}\text{C}_{\text{CH}_4}$ 、 $\delta^{13}\text{C}_2$ 和 $\delta^{13}\text{C}_3$ 一般重于古、中生界, $\delta^{13}\text{C}_1$ 介于 $-38\text{‰} \sim -21\text{‰}$, $\delta^{13}\text{C}_2 > -28\text{‰}$, $\delta^{13}\text{C}_3 > -25\text{‰}$ 为典型的煤成气, 古生界和中生界产层的天然气碳

同位素较轻, $\delta^{13}\text{C}_2 < -34\text{‰}$, $\delta^{13}\text{C}_3 < -28\text{‰}$ 反映了天然气母质类型为腐泥型有机质^[22]。在中生界只有塔西南 (AK1 和 KS102) 和库车凹陷南缘地区 (包括 QL1、YTK、YD、YH 和 TRG 气藏) 碳同位素较重, 表现为煤成气。图 4 中 $\delta^{13}\text{C}_2$ 和 $\delta^{13}\text{C}_3$ 的正斜关系说明塔里木盆地天然气主要为热成因作用下形成的天然气藏, 不存在生物气与深部非生物气, 稀有气体 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 同位素比值主要表现为 $n \times 10^{-8}$ 也证明了没有大量深部气体的混入^[15 23 24], 仅在雅克拉气田 (YK1 和 S7) 和轮南地区 $^3\text{He}/^4\text{He}$ 比值偏高, 表现为 $n \times 10^{-7}$ 。以上地球化学指标特征表明, 塔里木盆地天然气来源于以腐质型和腐泥型为主要有机质类型的热成因作用。在塔里木盆地天然气中, 随着烃类气体含量的变化, N_2 的含量也发生相应的变化 (图 5), 这种线性关系能够反映烃类气体与 N_2 具有同源性。根据 N_2 与 $\delta^{13}\text{C}_2$ 、 $\delta^{15}\text{N}$ 与 $\delta^{13}\text{C}_2$ 和 N_2/Ar 与 $\delta^{13}\text{C}_2$ 各的关系分布图 (图 6—图 8), 将塔里木盆地天然气中 N_2 划

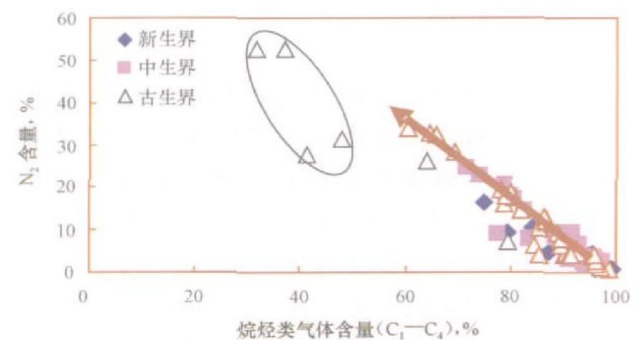


图 5 塔里木盆地天然气中烷烃气 (C_1-C_4) 与 N_2 含量的关系

Fig. 5 Relationship between the content of alkane (C_1-C_4) and that of N_2 in natural gas of Tarim Basin

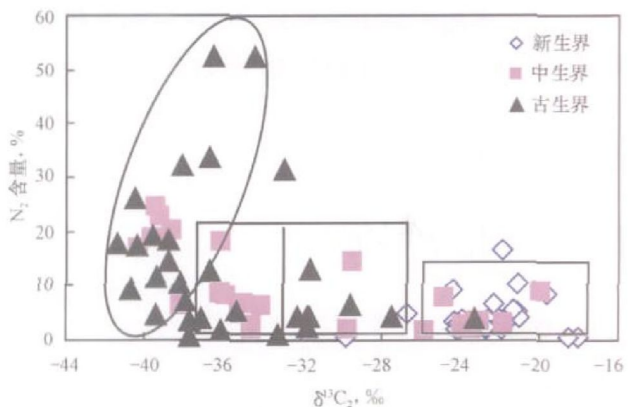
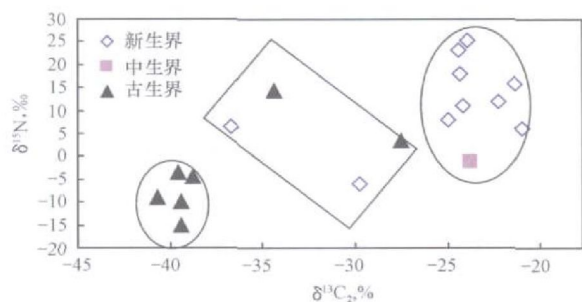
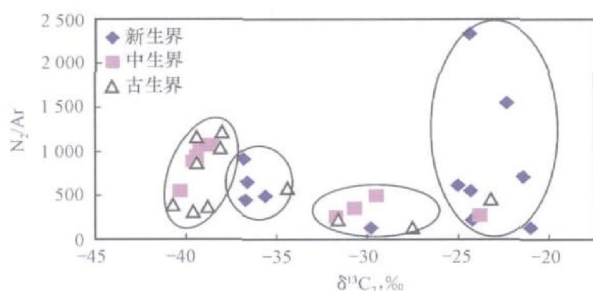


图 6 塔里木盆地天然气中烷烃气 $\delta^{13}\text{C}_2$ 与 N_2 含量的关系

Fig. 6 Relationship between $\delta^{13}\text{C}_2$ of alkane and the content of N_2 in natural gas of Tarim Basin

图 7 塔里木盆地天然气中烷烃气 $\delta^{13}\text{C}_2$ 与 $\delta^{15}\text{N}$ 的关系Fig. 7 Relationship between $\delta^{13}\text{C}_2$ of alkane and $\delta^{15}\text{N}$ in natural gas of Tarim Basin图 8 塔里木盆地天然气中烷烃气 $\delta^{13}\text{C}_2$ 与 N_2/Ar 的关系Fig. 8 Relationship between $\delta^{13}\text{C}_2$ of alkane and N_2/Ar ratio in natural gas of Tarim Basin

分为 3 个分布区。1) 以低含 N_2 、重碳同位素 ($\delta^{13}\text{C}_2 > -26\text{‰}$) 为特征的煤成气, 包括产于中新世地层的库车坳陷和中生界地层塔西南坳陷; 2) 以古、中生界异常高含 N_2 ($\text{N}_2 > 17\%$), 轻碳同位素 ($\delta^{13}\text{C}_2 < -34\text{‰}$) 为特征的油型气, 包括塔中、轮南、东河塘等; 3) 以中、高 N_2 含量 ($\text{N}_2 < 16\%$), 较轻烷烃碳同位素 ($\delta^{13}\text{C}_2$ 介于 $-36\text{‰} \sim -29\text{‰}$) 为特征的天然气, 主要分布在牙哈、轮南、解放区、雅克拉等为主要含油气区, 地层年代从古生代到新生代各地质年代。轮南地区天然气中 N_2 含量变化较大。

3.1 低 N_2 含量和重碳同位素

塔里木盆地天然气中氮气含量普遍偏低, 低于 5% 的占统计样品数 (103 个) 的 54.4%。在库车坳陷天然气中氮气含量一般小于 5%, 包括英买力、红旗、提尔根、牙哈、克拉 2 羊塔克、大宛齐等气藏, 且碳同位素组成明显偏重, 具有 $\delta^{13}\text{C}_1 > -35\text{‰}$, $\delta^{13}\text{C}_2 > -28\text{‰}$, $\delta^{13}\text{C}_3 > -25\text{‰}$ 。它们重的碳同位素组成和烃类气体占总组分的绝对优势,

说明它们的母质类型为腐质型有机物^[22-25]。这些天然气中氮同位素组成在塔里木盆地表现最重, $\delta^{15}\text{N}$ 一般均重于 5‰。Boigk 等^[26]认为随着成熟度增加, $\delta^{15}\text{N}$ 趋于变重。当成熟度处于高-过成熟阶段时 ($R_o > 2.0\%$), 天然气中 $\delta^{15}\text{N}$ 明显偏重, $4\text{‰} < \delta^{15}\text{N} \leq 18\text{‰}$ ^[4]。Drechsler^[27]利用实验结果表明上石炭统煤岩在低温 (650℃) 时, $\delta^{15}\text{N}$ 为 2.5‰, 当温度达到 1000℃ 时, $\delta^{15}\text{N}$ 会高于 5‰。

3.2 异常高 N_2 含量和轻碳同位素

塔里木盆地在古、中生界 (特别是古生界) 天然气中 N_2 普遍高, 且在异常高 N_2 含量的天然气中一般具有较轻的碳同位素组成。在塔中、部分轮南、东河塘、哈得等地区, 天然气中 N_2 含量大于 20%, 属于异常高 N_2 含量天然气藏, 碳同位素组成明显偏轻, $\delta^{13}\text{C}_1 < -40\text{‰}$, $\delta^{13}\text{C}_2 < -34\text{‰}$ 为典型的油型气。根据塔里木盆地烃源岩特征可以确定上述地区的天然气应该来源于寒武系—奥陶系的泥质碳酸岩。异常高 N_2 含量可能与该地区烃源岩成熟度普遍偏高有关。因为在塔里木盆地塔中地区的寒武系—奥陶系的泥质碳酸岩的热成熟度已处于高成熟—过成熟阶段^[19]。Kettel^[28]对德国异常高氮天然气含量和同位素进行了评价后, 认为 N_2 含量与成熟度有关。在塔里木盆地异常高 N_2 含量的天然气中, $\delta^{15}\text{N}$ 数值变化较大, 在塔中地区 $\delta^{15}\text{N}$ 最轻, 一般 $\delta^{15}\text{N} < -3\text{‰}$, 东河塘天然气中氮气含量异常高, $\delta^{15}\text{N}$ 也比较重, 在 DH1-6-8 井 $\delta^{15}\text{N}$ 重达 14.6‰。沉积有机质经热解作用生成的 N_2 , $\delta^{15}\text{N}$ 值分布在 $-10\text{‰} \sim -4\text{‰}$, 其 $\delta^{15}\text{N}$ 值随着气源岩演化程度的增加而变重^[29]。由于在沉积岩中有机质经微生物和热解作用形成的 N_2 , 其 N_2/Ar 远大于 84, 有机质微生物生成的 N_2 的 $\delta^{15}\text{N}$ 通常小于 -10‰ , 有机质热解形成的 N_2 , $\delta^{15}\text{N} > -10\text{‰}$, 天然气中 N_2 的 $\delta^{15}\text{N}$ 值随着演化程度的升高而变重。天然气中 $\delta^{15}\text{N}$ 介于 $-10\text{‰} \sim -2\text{‰}$ 之间时, 氮气可能来源于成熟—高成熟有机质 ($R_o \approx 0.6\% \sim 2.0\%$), 在过成熟阶段 ($R_o > 2.0\%$) $\delta^{15}\text{N}$ 可达 18‰^[4]。因此, 塔里木盆地塔中、部分轮南、东河塘、哈得等地区天然气中异常高 N_2 含量主要为高-过成熟寒武系—奥陶系的泥质碳酸岩生成的。

3.3 低-高 N_2 含量和轻碳同位素

塔里木盆地塔北地区天然气中氮气含量变化

较分散,一般 N_2 含量具有低-高含量, N_2 含量分布在 2% ~ 20% 之间, $\delta^{13}C_1$ 为 -44‰ ~ -30‰, $\delta^{13}C_2$ 为 -40‰ ~ -21‰, $\delta^{13}C_3$ 为 -34‰ ~ -18‰, 主要包括解放区、雅克拉和部分轮南地区。从碳同位素组成上,天然气的碳同位素组成为: $\delta^{13}C_2 < -29$ ‰, $\delta^{13}C_3 < -25$ ‰, 主要表现为油型气。利用乙烷碳同位素与 N_2 之间的关系还可以进一步将 N_2 分为两个部分,即解放区氮气同位素组成 $\delta^{15}N$ 为 1.5‰ ~ 6.5‰, 烷烃碳同位素组成 $\delta^{13}C_1$ 为 -40‰ ~ -34‰, $\delta^{13}C_2$ 为 -38‰ ~ -34‰, 雅克拉天然气的 $\delta^{15}N$ 为 -6.0‰ ~ 6.0‰, $\delta^{13}C_1$ 为 -42‰ ~ -36‰, $\delta^{13}C_2$ 为 -32‰ ~ -30‰。在解放区具有轻的乙烷同位素值 ($\delta^{13}C_2 < -33$ ‰), 甲、乙烷碳同位素差值小,且 $\delta^{15}N$ 均表现为正值,而雅克拉和轮南部分具有较重的乙烷碳同位素 ($\delta^{13}C_2 > -32$ ‰), $\delta^{15}N$ 组成变化较大,为 -6.0‰ ~ 6.0‰。在解放区 $^3He/^4He$ 比值为 $n \times 10^{-8}$, 排除了深部气体的混入; 较小的 $\delta^{13}C_{CH_4} - \delta^{13}C_2$ 差值反映了这些地区的热演化程度偏高^[30-31]; $\delta^{15}N$ 介于 1.4‰ ~ 6.7‰ 之间,反映了 N_2 可能来源于含铵粘土矿物、蒸发岩中硝石以及过成熟阶段有机质,因为页岩和泥岩在变质作用过程中含铵粘土矿物会释放一定量的氮气, $\delta^{15}N$ 介于 1‰ ~ 4‰, 来源于蒸发岩的硝石形成的 $\delta^{15}N$ 为 4‰, 在有机质处于过成熟阶段 ($R_o > 2.0\%$) 时, $\delta^{15}N$ 可达 18‰^[41]。雅克拉天然气中由于 $^3He/^4He$ 比值已表现为 $n \times 10^{-7}$, 除了高演化阶段形成 N_2 的生成,可能有少量深部气体的混入。在我国西部的前陆盆地,天然气中 $^3He/^4He$ 比值有时表现为 $n \times 10^{-7}$, 与盆地构造处于次稳定状态有关^[15-23], M•ller 等^[32] 在研究东德二叠纪异常高氮天然气藏时,指出有机氮与无机深部氮是东德二叠纪气藏的主要来源,当气体长距离运移时,氮丰度增加, $\delta^{15}N$ 减小。Prasolov^[33] 认为来源于地壳深部或上地幔 N_2 , 其 $\delta^{15}N$ 值主要集中在 -20‰ ~ 1‰ 之间。

3.4 轮南地区天然气成因与氮气变化特征

塔里木盆地轮南地区的天然气氮气分布较为复杂。在轮南地区天然气烷烃碳同位素组成为: $\delta^{13}C_1 < -32$ ‰, $\delta^{13}C_2 < -29$ ‰, $\delta^{13}C_3 < -26$ ‰, 表现为典型的油型气。天然气中氮气含量变化比较大,从 1.1% 到 24.6%。在高 N_2 含量 ($N_2 > 14\%$)

的天然气具有 $\delta^{13}C_1 < -42$ ‰, $\delta^{13}C_2 < -36$ ‰, $\delta^{13}C_3 < -26$ ‰, 如 LN10-2, LN2-25-H1, LN3-H1 和 LN3-H5, 而在其他较低 N_2 含量 ($N_2 < 8\%$) 的地区天然气具有 $\delta^{13}C_1$ 为 -32‰ ~ -41‰, $\delta^{13}C_2$ 为 -38‰ ~ -33‰, $\delta^{13}C_3$ 为 -34‰ ~ -29‰。对于同一类型的天然气,不同演化阶段的同位素通常反映了气体生成和生成后期(裂解)相关的同位素分馏,因为母质的不均一性会伴随同位素分馏现象^[31]。对于轮南地区,天然气为典型的油型气,同位素组成的不同应与形成天然气所处的热演化阶段有关。如 LN2-34-5 井,烷烃碳同位素组成 $\delta^{13}C_1$ 为 -39.8‰, $\delta^{13}C_2$ 为 -29.5‰, $\delta^{13}C_3$ 为 -28.3‰, 而 N_2 含量较高,为 14.5%。在 LN10-2, LN2-25-H1, LN3-H1 和 LN3-H5 井 $\delta^{13}C_2 - \delta^{13}C_3$ 差值较大 (> 3.0), 而在其他地区的 $\delta^{13}C_2 - \delta^{13}C_3$ 差值较小,一般小于 3.0。James^[35-36] 认为随着热演化程度增加, $\delta^{13}C_2 - \delta^{13}C_3$ 将趋于零。因此,在 LN10-2, LN2-25-H1, LN3-H1 和 LN3-H5 的热演化程度要低于轮南其他地区,其 N_2 含量的偏高主要是因高演化阶段大分子气体的二次裂解引起烃类气体相对丰度的增加而造成的。

4 结论

通过对塔里木盆地主要含油气区 103 个天然气样品的统计分析,塔里木盆地天然气存在明显不同的 N_2 含量分布区域。在煤成气中一般 N_2 含量低,烷烃碳同位素重,主要分布在新生界与塔西南和库车坳陷的中生界地层中, N_2 含量与烃源岩的热成熟度有关;古、中生界储层的塔中、东河塘、哈得和部分轮南地区天然气 N_2 含量异常高,烷烃碳同位素轻,属于典型油型气,氮气可能主要来源于高-过成熟有机质。在塔北其他地区,包括雅克拉和轮南地区,天然气氮气含量变化较分散,一般 N_2 具有中-高含量,烷烃碳同位素较轻,属于油型气。解放区天然气中 N_2 可能来源于含铵粘土矿物、蒸发岩中的硝石以及过成熟阶段的有机质,而雅克拉地区除了高演化阶段 N_2 , 可能有少量深部气体的混入。牙哈地区天然气既有煤成气,也有油型气,煤成气中 N_2 含量低于油型气,而轮南天然气中 N_2 含量变化较大,与该地区天然气处于不同热演化阶段有关。

参 考 文 献

- Hoering T C, Moore H. The isotopic composition of the nitrogen in natural gases and associated crude oils[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1958, 13: 225– 232
- Stahl W J. Carbon and nitrogen isotope in hydrocarbon research and exploration[J]. *Chemical Geology*, 1977, 20: 121– 149
- 戴金星, 戚厚发, 郝石生. 天然气地质学概论 [M]. 北京: 石油工业出版社, 1989: 9~ 53
- Zhu Y, Shi B, Fang C. The isotopic composition of molecular nitrogen: implications on their origins in natural gas accumulations [J]. *Chemical Geology*, 2000, 164(3– 4): 321– 330
- 徐永昌. 天然气成因理论及应用 [M]. 北京: 科学出版社, 1994: 413
- 杜建国. 天然气中氮的研究现状 [J]. *天然气地球科学*, 1992, 3(2): 36– 40
- Zhu Y, Shi B Q. Analysis on origins of molecular nitrogen in natural gases and their geochemical features[J]. *Geology Geochemistry*, 1998, 26(4): 50– 58
- Jenden P D, Kaplan I R, Poreda R J, et al. Origin of nitrogen-rich natural gases in the California Great Valley: evidence from helium, carbon and nitrogen isotope ratios[J]. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 1988, 52: 815– 861
- 戴金星, 裴锡古, 戚厚发. 中国天然气地质学 [M]. 北京: 石油工业出版社, 1992: 298
- Getz F A. Molecular nitrogen: clue in coal-derived methane hunt [J]. *The Oil and Gas Journal*, 1977, 75(17): 220– 221
- Chen J, Xu C, Huang D. Geochemical characteristics and origin of natural gas in Tarim Basin, China[J]. *AAPG Bulletin*, 2000, 84(5): 591– 606
- 王国安, 申建中, 何宏, 等. 塔北、塔中天然气中烷烃同系物碳同位素组成系列倒转现象的解释 [J]. *沉积学报*, 2002, 20(3): 482~ 487
- 陈传平, 梅博文, 朱翠山. 塔里木天然气氮同位素组成与分布 [J]. *地质地球化学*, 2002, 29(4): 46~ 49
- 刘朝露, 夏斌. 塔里木盆地天然气中氮气成因与油气勘探风险分析 [J]. *天然气地球科学*, 2005, 16(2): 224~ 228
- Xu S, Nakai S, Wakita H, et al. Helium isotope compositions in sedimentary basins in China[J]. *Applied Geochemistry*, 1995, 10(6): 643– 656
- 徐永昌, 沈平, 刘文汇, 等. 天然气中稀有气体地球化学 [M]. 北京: 科学出版社, 1998: 231
- Jia C, Wei G. Structural characteristics and petroliferous features of Tarim Basin[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2002, 47: 1– 11
- Yang S, Jia C, Chen H, et al. Tectonic evolution of Tethyan tectonic field, formation of Northern Margin basin and explorative perspective of natural gas in Tarim Basin[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2002, 47: 34– 41
- Zhang G, Wang H, Li H. Main controlling factors for hydrocarbon reservoir formation and petroleum distribution in Cratonic Area of Tarim Basin[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2002, 47: 139– 146
- 张水昌, 梁狄刚, 张宝民, 等. 塔里木盆地海相油气的生成 [M]. 北京: 石油工业出版社, 2004: 433
- Liang D, Zhang S, Zhao M, et al. Hydrocarbon sources and stages of reservoir formation in Kuqa depression, Tarim Basin[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2002, 47: 56– 63
- 戴金星, 戚厚发, 宋岩. 鉴别煤成气和油型气若干指标的初步探讨 [J]. *石油学报*, 1985, 6(2): 31~ 38
- 徐永昌, 沈平, 刘文汇, 等. 天然气中稀有气体地球化学 [M]. 北京: 科学出版社, 1998: 231
- Xu Y, Shen P. A study of natural gas origins in China[J]. *AAPG Bulletin*, 1996, 80(10): 1 604– 1 614
- Dai J, Xia X, Qian S, et al. Origins of partially reversed alkane $\delta^{13}\text{C}$ values for biogenic gases in China [J]. *Organic Geochemistry*, 2004, 35(4): 405– 411
- Boigk H, Hagemann H W, Stahl W, et al. Isotopenphysikalische Untersuchungen zur Herkunft und Migration des Stickstoffs nordwestdeutscher Erdgase aus Oberkarbon und Rotliegend Erd[J]? I und Kohle - Erdgas - Petrochemie, 1976, 29(3): 103– 112
- Drechsler M. Entwicklung einer probenchemischen methode zur prozisionsisotopen analyse an Stickstoff biogener sedimente[M]. *Diss Akad D W iss*, 1976: 76– 113
- Kettel D. The east Gron nitrogen Massif: detection of an intrusive body by means of coalification [J]. *Geominbouw*, 1983, 62: 204– 210
- Wellman R P, Cook F D, Krouse H R. Nitrogen-15 microbiological alteration of abundance[J]. *Science*, 1968, 161: 269– 270
- Prinzhofer A A, Huc A Y. Genetic and post-genetic molecular and isotopic fractionations in natural gases[J]. *Chemical Geology*, 1995, 126(3– 4): 281– 290
- Battani A, Sarda P, Prinzhofer A. Basin scale natural gas source migration and trapping traced by noble gases and major elements in the Pakistan Indus basin[J]. *Earth and Planetary Science Letters*, 2000, 181(1– 2): 229– 249
- Muller E P, May F. Zur Isotopengeochemie des Stickstoffs und zur Genese stickstoffreicher Erdgase[J]. *Zeitschrift für Angewandte Geologie*, 1976, 22(7): 319– 323
- Prasolov E M. Isotope geochemistry and formation of natural gas [M]. *Leningrad Nedra*, 1990: 283
- James A T. Correlation of reservoir gases using the carbon isotopic compositions of wet gas components[J]. *AAPG Bulletin*, 1990, 74(9): 1 441– 1 458
- James A T. Correlation of natural gas by use of carbon isotopic distribution between hydrocarbon components[J]. *AAPG Bulletin*, 1983, 67: 1 176– 1 191

(编辑 高 岩)