科学通报
第41卷 第21期 CHINESE SCIENCE BULLETIN 1996年11月

中国东部盆地天然气中氖同位素组成及其地质意义*

徐 胜 徐永昌 沈 平 王先彬 杜建国
(中国科学院兰州地质研究所气体地球化学国家重点实验室,兰州 730000)

中井俊一 胁田 宏
(日本东京大学理学部)

关键词 东部盆地天然气 氖同位素 大陆地幔

在自然界中,氖有3个稳定同位素: ^{20}Ne, ^{21}Ne 和 ^{22}Ne. 其中,由于放射性核反应,如 $^{18}O(n,\alpha)^{21}Ne$ 和 $^{19}F(n,\alpha)^{22}Ne$ 等引起相对于大气组成 ^{21}Ne 和 ^{22}Ne 的富集. 在大洋中脊玄武岩(MORB)和洋岛玄武岩(OIB)等幔源物质中,发现的 ^{20}Ne 过剩被认为是地幔中太阳风型氖的存在[1],代表着地球原始组成. 由于上、下地幔脱气程度的差异,而导致其 He/U 和 Ne/U 比值的不同[1]. 然而,对于大陆地幔的稀有气体特征尚没有得到清楚的认识. 近来,Dunai 和 Baur[2]观测到欧洲次大陆地幔相对于海洋地幔富集放射性成因 ^4He,并将此归因于欧洲次大陆地幔的富集. 中国东部由于中新生代拉张,沿郯庐断裂带喷发了大量新生代火山岩和幔源包体,其微量元素、稀土同位素组成的研究表明,东部地幔具有 EM Ⅰ 和 EM Ⅱ 特征[3]. 本文试图以天然气中氖同位素组成作为示踪剂对东部富集地幔作进一步探讨.

1 样品及实验

本文中30个天然气样品采集于东部5个沉积盆地(松辽、辽河、渤海湾、苏北和三水). 气体类型包括二氧化碳、烃类和二氧化碳-甲烷-氮气混合气等. 天然气藏储层为松辽盆地的白垩系,其他盆地的以第三系为主,深度从近地表到5 000 m深. 在实验室内,利用全金属高真空系统,首先将氖与活性气体(如烃类、二氧化碳和氮气等)和其他稀有气体进行分离,然后将其导入 VG-5400 质谱计在静态下进行氖同位素组成的测定. 以大气作为参考标准,系统本底以及 $^{40}Ar^{++}$, $^{21}NeH^+$ 和 $^{44}CO_2^{++}$ 分别对 ^{20}Ne, ^{21}和 ^{22}Ne 的干扰,在本实验中均可忽略不计.

2 结果与讨论

图1中绘出了本研究中所测的中国东部天然气中氖同位素组成数据,其实验误差为 1σ. 图中同时也列出了其他大陆地区产出的天然气样品(如美国的 Harding[4]、澳大利亚的 Caroline[5]以及奥地利的 Vienna 盆地[6])的数据. 此外, 以中国中西部盆地天然气的氖同位素组

1996-01-04 收稿,1996-04-15 收修改稿
* 中国科学院气体地球化学国家重点实验室资助项目

成为代表的大气-地壳混合线[7]，大气氖的质量分馏效应线(MEL)，以 MORB 为代表的上地幔氖同位素组成线[8]和以夏威夷 Loihi-Kilauea 的 OIB 为代表的下地幔氖同位素组成线[1]也绘于图中便于对比.

中国东部盆地天然气的氖同位素组成的变化为：$^{20}Ne/^{22}Ne$ 比值从 9.71 ± 0.04 到 10.93 ± 0.05，$^{21}Ne/^{22}Ne$ 比值从 0.029 3 ± 0.000 3到 0.050 8 ± 0.000 6. 从图 1 中可以看出，该研究中的天然气样品既有别于大气氖的质量分馏效应，也与中西部盆地天然气中氖的过剩纯粹来源地壳组成($^{20}Ne/^{22}Ne = 0 \sim 0.3$，$^{21}Ne/^{22}Ne \approx 0.47$)不同. 同一盆地的天然气样品在图 1 中虽然变化很大，但$^{20}Ne/^{22}Ne$ 和$^{21}Ne/^{22}Ne$ 比值与储层时代和深度却没有明显的相关性. 对东部天然气的氖同位素组成变化的一种最为简单的解释是：它反映了大气、地幔(MORB 型)和地壳三组分的混合. 其中，松辽、渤海湾和三水盆地的共 5 个烃类气体具有低于大气的 $^{20}Ne/^{22}Ne$ 比值(9.71 ± 0.04 到 9.76 ± 0.03)而位于中西部盆地天然气的氖同位素组成线上，反映了大气和地壳两组分的简单混合. 然而，基于前人对新生代火山岩和幔源包体中微量元素、同位素组成的研究结果，我们试图探讨另一种可能的解释.

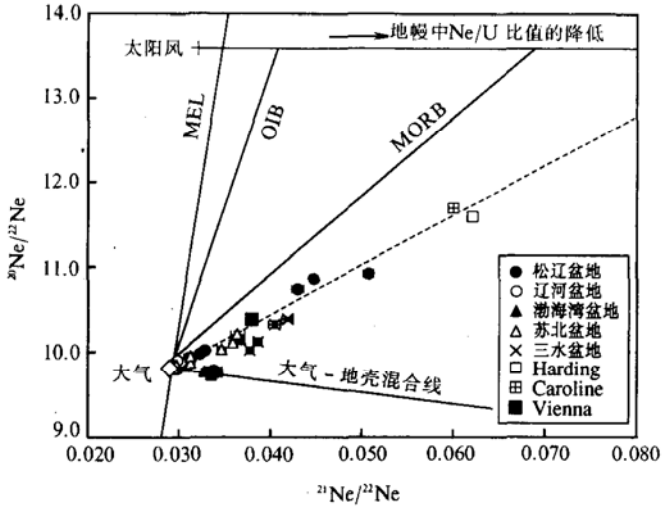


图 1　中国东部盆地天然气中氖同位素组成图

除了松辽、渤海湾和三水盆地的 5 个样品位于大气-地壳氖同位素组成线上之外，其他主要以 CO_2 和 CO_2-CH_4-N_2 为主的样品的$^{20}Ne/^{22}Ne$ 和$^{21}Ne/^{22}Ne$ 两者呈正线性关系(图 1 中虚线所示)，其回归方程为

$$^{20}Ne/^{22}Ne = (8.13 \pm 0.29) + (57.78 \pm 7.97)^{21}Ne/^{22}Ne.$$

值得提出的是，该相关线通过了大气氖($^{20}Ne/^{22}Ne = 9.8$，　$^{21}Ne/^{22}Ne = 0.029$)，也通过了包括 Harding, Caroline 和 Vienna 盆地在内的其他大陆地区产出的天然气样品. 众所周知，在氖同位素组成图中，任意两个端员组成的混合必将形成一个线性关系. 因此，中国东部天然气中氖同位素组成反映了一个端员为大气而另一个端员则具有高$^{20}Ne/^{22}Ne$ 和$^{21}Ne/^{22}Ne$ 比值的特征. 延长回归线到$^{20}Ne/^{22}Ne = 13.6$(太阳风型氖)，可得到$^{21}Ne/^{22}Ne = 0.095$. 这一比值既大于下地幔的 0.042，也高于上地幔的 0.069. 因此，天然气样品的幔源氖同位素组成中相对于 MORB 和 OIB 更富集核反应成因^{21}Ne. 这暗示着天然气样品的地幔源区相对于 MORB 和 OIB 具有更低的 Ne/U 比值. 导致低的 Ne/U 比值既可由于地幔的更进一步脱气(如同上、下

地幔的差异),也可能由于相对于 MORB 和 OIB 地幔更进一步富集 U 和 Th 等不相容元素,或者两者共存.

中国东部沉积盆地具有不同的形成和发展历史. 产于不同年代气藏储层的天然气中氖同位素组成变化服从于单一的线性关系,使我们认为具有高$^{20}Ne/^{22}Ne$和$^{21}Ne/^{22}Ne$比值的端员可能代表着一个相对独立的来源,即大陆富集地幔. 尽管得出这一推论之前尚需更进一步研究,但它与新生代火山岩和幔源包体的研究结果相一致. 火山岩和幔源包体的微量元素和稀土元素同位素(Sr, Nd 和 Pb)组成表明,中国东部地幔具有 EM Ⅰ 和 EM Ⅱ 特点[3]. 并且,$^{87}Sr/^{86}Sr$和$^{143}Nd/^{144}Nd$比值分别与火山岩形成深度呈现的正和负相关关系反映了上地幔的双层结构[9],即上部的岩石圈地幔和其下部的软流圈地幔. 前者为大陆地幔的主要组成部分,而后者为 MORB 地幔. 这样,相对于 MORB 和 OIB 地幔,大陆地幔具有更富集 U 和 Th 等不相容元素,从而使其 Ne/U 比值变小.

上述东部天然气中氖同位素组成变化的第 2 种可能性解释正确与否,将有待于从对新生代火山岩以及幔源包体中稀有气体的进一步研究中加以阐明.

参 考 文 献

1 Honda M, McDougall I, Patterson D B *et al*. Possible solar noble-gas component in Hawaiian basalts. Nature, 1991, 349: 149～151

2 Dunai T, Baur H. He-Ne-Ar-systematics of the European subcontinental mantle: implications for its geochemical evolution. Geochim Cosmochim Acta, 1995, 59: 2 767～2 783

3 Tatsumoto M, Basu A R, Huang W *et al*. Sr, Nd and Pb isotopes of ultramafic xenoliths in volcanic rocks of Eastern China: enriched components EMI and EMII in subcontinental lithosphere. Earth Planet Sci Lett, 1992, 113: 107～128

4 Phinney D, Tennyson J, Frick U. Xenon in CO_2 well gas revisited. J Geophys Res, 1978, 83: 2 313～2 319

5 Caffee M W, Hudson G B, Velsko C *et al*. Non-atmospheric noble gases from CO_2 well gases. Lunar Planet Sci, 1988, XIX: 154～155

6 Ballentine C J, O'Nions R K. The nature of mantle neon contributions to Vienna Basin hydrocarbon reservoirs. Earth Planet Sci Lett, 1992, 113: 553～567

7 徐胜,徐永昌,沈平等. 中国中西部盆地若干天然气中稀有气体同位素组成. 科学通报,1996, 41(12):1 115～1 118.

8 Sarda P, Staudacher T, Allègre C J. Neon isotopes in submarine Basalts. Earth Planet Sci Lett, 1988, 91: 73～88

9 Nohda S, Chen H, Tatsumi Y. Geochemical stratification in the upper mantle beneath NE China. Geophys Res Lett, 1991, 18: 97～100