科 学 通 报
第 42 卷 第 1 期 Chinese Science Bulletin 1997 年 1 月

【研究简报】

中国东部盆地天然气中氙同位素过剩

徐 胜 徐永昌 沈 平 王先彬 杜建国 中井俊一 胁田 宏
(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；日本东京大学理学部，东京)

关键词 东部盆地天然气 氙同位素 幔源

在大陆环境中，相对于大气的^{129}Xe过剩在美国的 Harding County[1]和澳大利亚 Caroline 的二氧化碳气井[2]，以及美国 Navajo[3]和印度 Gujarat[4]的烃类气中发现．这些^{129}Xe过剩，是地球早期形成现已灭绝的放射性核素^{129}I的衰变产物[5]，它代表着地壳中地球原始组成的加入．中国东部由于拉张，沿北东～南西向断裂构造带分布着一系列中-新生代沉积盆地，其中普遍存在着幔源氦和氖[6, 7]．本文继续以前的工作，试图探讨天然气中氙的来源及其地质意义．

1 样品及实验

本项研究采集了中国东部的松辽、渤海湾、苏北和三水等 4 个沉积盆地共 30 个天然气样品．气体类型包括有二氧化碳、烃类和二氧化碳-甲烷-氮气混合气[6]．天然气藏储层，松辽盆地为白垩系，其余 3 个盆地以第三系为主．利用全金属稀有气体净化系统和 VG5400 静态真空质谱计，测定氙同位素组成．制备系统和质谱计的氙本底变化为$(5\sim8)\times10^{-15}$ cm^3(STP)，对样品测量的影响可忽略不计．以大气作为标准，测定结果以既非放射性衰变成因核素也非裂变产物的^{130}Xe归一化绘于图 1，同位素比值误差为 1σ．

2 结果与讨论

中国东部盆地天然气的氙同位素组成的一般特征为：所有样品的$^{124, 126, 128}Xe/^{130}Xe$比值在实验误差范围内与大气值一致，然而，尽管在实验误差范围内$^{129, 131, 132, 134, 136}Xe/^{130}Xe$比值在渤海湾盆地中也与大气值一致，但松辽、苏北和三水盆地的若干样品则高于大气比值．

2.1 $^{131, 132, 134, 136}Xe$的过剩及其来源

图 1 所示的是中国东部盆地天然气中氙同位素组成图，大洋中脊玄武岩(MORB)以及四川盆地威远震旦系天然气的氙同位素组成[8]也列于图中，便于进行对比．图中未加说明的实

2 赵振华，周玲棣，包志伟等．东坪式金矿——与碱性正长岩有关的改造型金矿床．见：第五届全国矿床会议论文集．北京：地质出版社，1993．312～314

3 陆松年，李惠民．蓟县长城系大红峪组火山岩锆石 U-Pb 准确定年．中国地质科学院院报，1991，22：139～143

4 彭 岚，马配学，金光惠等．冀北超基性岩区金矿床地质特征及其找矿方向．北京：地质出版社，1992

5 赵景德，任英忱，Tatsumoto M 等．以多种证据建立的白云鄂博稀土矿床成矿矿物的生成顺序．地质找矿论丛，1991，6(4)：1～15

6 任英忱，张英臣，张宗清．白云鄂博稀土超大型矿床的成矿时代及其主要地质事件．地球学报，1994，(1～2)：95～100

7 张允平．内蒙古中部地区加里东期陆壳增生旋回．见：中国地质科学院沈阳矿产地质研究所集刊(1)．北京：地质出版社，1992．130～140

(1996-02-05 收稿，1996-04-05 收修改稿)

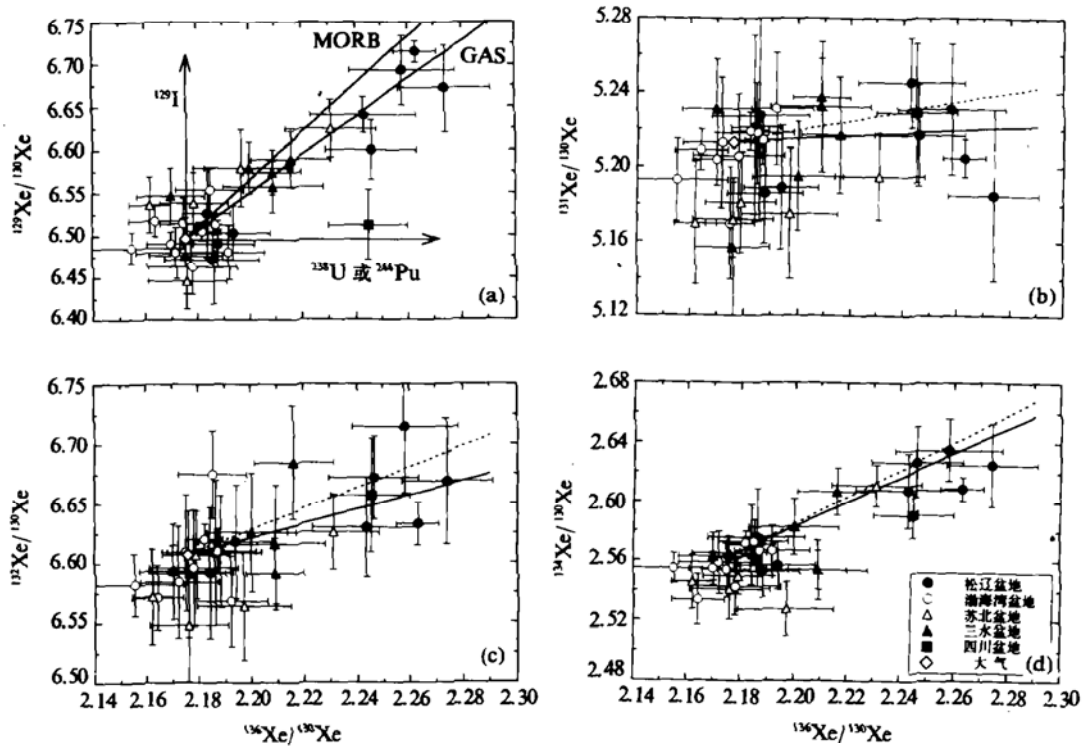


图 1　中国东部盆地天然气中氙同位素组成图

图中未加说明的实线和虚线分别代表^{238}U 和^{244}Pu 的裂变成因氙同位素与大气氙的混合线性关系

线代表由^{238}U 裂变形成的氙同位素与大气氙的混合，而虚线为^{244}Pu 裂变形成的氙同位素与大气氙的混合．从图 1(b)、(c)、(d)中可以看到，松辽盆地南部万金塔地区^{136}Xe 的最大过剩为 5%．单个样品中^{136}Xe 的过剩大于^{134}Xe＞^{132}Xe＞^{131}Xe．尽管自然界 中质量分馏效应可使 $^{131, 132, 134, 136}$Xe/^{130}Xe 比值增大，但与质量分馏效应相矛盾的是：样品中其他非放射性成因和裂变成因氙同位素组成，以及氪同位素组成均具有大气比值．由于这些样品中$^{131, 132, 134, 136}$Xe 的过剩类似于裂变成因氙同位素谱，因而可归因于地幔中^{244}Pu 或^{238}U，或地壳中^{238}U 的裂变产物．然而，一方面由于^{244}Pu 和^{238}U 的裂变成因氙同位素谱的差异较小(图 1(b)、(c)、(d))，另一方面由于所测样品中较小的氙过剩和较大的实验误差，使得$^{131, 132, 134, 136}$Xe 的过剩是来源于^{244}Pu(或^{238}U)及其物质是幔源的还是壳源的不易分辨．结合下述^{129}Xe 的数据将有助于这一问题的进一步讨论．

2.2　^{129}Xe 的过剩及其来源

松辽、苏北和三水盆地天然气中存在着相对于大气^{129}Xe 的过剩(图 1(a))，松辽盆地南部万金塔地区样品中最大过剩为 4%．由于地球元素合成时期形成的放射性核素^{129}I 的半衰期极短(17 Ma)，因而，在地壳形成以前^{129}I 就经 β 衰变已经完全变成^{129}Xe．后者便滞留在地幔之中，例如大洋中脊玄武岩(MORB)和美国、澳大利亚的二氧化碳气井中^{129}Xe 的过剩．尽管中国东部天然气样品中^{129}Xe 的过剩远小于 MORB 中^{129}Xe 的过剩(15%)，但地壳物质中存在^{129}Xe 的异常仍然清晰地反映了地球深部幔源物质成分的加入．

2.3　放射性衰变成因氙与裂变成因氙的相关关系

从东部天然气^{129}Xe/^{130}Xe 和^{136}Xe/^{130}Xe 的相关图中(图 1(a))可以看出，两者呈正线性关

系(GAS线),其回归方程为 $^{129}Xe/^{130}Xe=(2.09\pm1.53)+(2.03\pm0.70)^{136}Xe/^{130}Xe$. 值得强调的是,该线性关系通过了大气氙($^{129}Xe/^{130}Xe=6.495$ 和 $^{136}Xe/^{130}Xe=2.176$),它反映了两个端员组分的混合特征,即一个为大气,而另一个具有高$^{129}Xe/^{130}Xe$和$^{136}Xe/^{130}Xe$比值.

图1(a)中所示东部天然气与四川盆地威远震旦系天然气中氙的过剩纯粹来源地壳组成($^{129}Xe/^{130}Xe=6.495$ 和 $^{136}Xe/^{130}Xe\gg2.176$)的不同,而与MORB中氙同位素组成特征($^{129}Xe/^{130}Xe=(0.27\pm1.20)+(2.86\pm0.54)^{136}Xe/^{130}Xe$)相类似. 因此,天然气中高$^{129}Xe/^{130}Xe$和$^{136}Xe/^{130}Xe$比值可认为是代表着来自幔源的地球原始成分.

对比MORB和中国东部天然气的氙同位素组成可以看出(图1(a)),由于MORB中氙同位素数据的分散和天然气样品中较小的氙同位素过剩,使得我们很难将天然气与MORB进行区别. 如果我们视两者等同的话,那么,毫无疑问地中国东部盆地中幔源氙是通过新生代岩浆活动来源于软流圈地幔. 然而,尽管MORB中氙同位素数据的极大分散,但多数MORB的点落在天然气样品的左边. 这似乎反映了天然气样品相对于MORB更富集裂变成因氙,天然气中氙同位素的回归直线的斜率也似乎小于MORB. 产于相距甚远而且储层时代不同的松辽、苏北和三水盆地的样品服从于单一的线性关系,暗示着相对富集裂变成因氙的地幔源区的存在,即大陆富集地幔相对于MORB富集裂变成因氙并具有较小的Xe/U比值. 这一推论似乎与天然气中氦和氖同位素组成所反映的大陆富集地幔特征相吻合[6, 7],即:较小的Xe/U比值并非反映的是地幔脱气程度的差异,而可能反映的是大陆地幔相对于MORB地幔更富集铀和钍等不相容元素. 后者已从中国东部新生代火山岩和幔源包体的元素和同位素组成研究得以证实[9, 10]. 更大范围的天然气样品,特别是二氧化碳气的采集,以及对新生代火山岩和幔源包体中稀有气体的精确测定,将有助于区别大陆地幔和MORB地幔的稀有气体特征.

致谢 本工作为国家自然科学基金(批准号:49172106)资助项目.

参 考 文 献

1 Phinney D, Tennyson J, Frick U. *Xenon in CO_2 well gas revisited*, J Geophys Res, 1978, 83: 2313~2319
2 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
3 Lin W J, Manuel O K. Xenon decay products of extinct radionuclides in the Navajo, New Mexico well gas. Geochem J, 1987, 21: 197~207
4 Murty S V S. Noble gases and nitrogen in natural gases from Gujarat, India. Chem Geol, 1992, 94: 229~240
5 Staudacher T, Allègre C J. Terrestrial xenology. Earth Planet Sci Lett, 1982, 60: 389~406
6 Xu S, Nakai S, Wakita, et al. Helium isotope compositions in sedimentary basins in China. Appl Geochem, 1995, 10: 643~656
7 徐 胜,徐永昌,沈 平等. 中国东部盆地天然气中氖同位素组成及其地质意义. 科学通报, 1996, 41(21): 1 970~1 972
8 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
9 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
10 Nohda S, Chen H, Tatsumi Y. Geochemical stratification in the upper mantle beneath NE China. Geophys Res Lett, 1991, 18: 97~100

(1996-02-12 收稿, 1996-07-2 收修改稿)