中国科学: 地球科学 2021 年 第 51 卷 第 4 期: 560 ~ 581
SCIENTIA SINICA Terrae earthcn.scichina.com
《中国科学》杂志社 SCIENCE CHINA PRESS
论 文

甲烷碳同位素判识天然气及其源岩成熟度新公式

陈建平[1*], 王绪龙[2], 陈践发[3], 倪云燕[1], 向宝力[2], 廖凤蓉[1], 何文军[2], 姚立邈[1], 李二庭[2]

1. 中国石油勘探开发研究院, 北京 100083;
2. 中国石油新疆油田公司, 克拉玛依 834000;
3. 中国石油大学(北京)地球科学学院, 北京 102249
* 通讯作者, E-mail: chenjp@petrochina.com.cn

收稿日期: 2020-06-08; 收修改稿日期: 2020-10-11; 接受日期: 2020-10-23; 网络版发表日期: 2021-01-26
中国石油天然气股份有限公司科学研究与技术开发项目(编号: 2019A-0209)资助

摘要 天然气成因与来源判识始终是天然气勘探与研究的难点与热点问题, 国内外许多学者提出了多个应用天然气碳同位素组成判识气源岩成熟度的经验公式. 但是, 随着油气勘探程度的提高, 以往经验公式在判识新发现天然气源岩成熟度时常出现明显偏差, 需要对这些经验公式进行必要的修正. 准噶尔盆地西北缘二叠系湖相烃源岩有机质生成的天然气属于典型油型气, 准噶尔盆地南缘和吐哈盆地侏罗系煤系有机质生成的天然气属于典型煤成气. 本文按照经典的有机质热演化生烃模式, 在准噶尔盆地和吐哈盆地典型油型气与煤成气区域烃源岩热演化生烃地质条件的限定下, 根据大量天然气实测碳同位素组成资料, 构建了油型气和煤成气甲烷碳同位素组成与烃源岩有机质镜质体反射率之间的关系公式, 其中, 油型气$\delta^{13}C_1$=25lgR_o−42.5、煤成气$\delta^{13}C_1$=25lgR_o−37.5. 这些新公式适用于绝大多数以连续埋藏热演化生烃为主的含油气盆地有机热成因天然气源岩成熟度判识, 对天然气勘探具有较高的实用价值, 对完善和发展天然气地质理论具有重要的科学意义.

关键词 天然气, 煤成气, 油型气, 成熟度, 甲烷碳同位素, 镜质体反射率, 准噶尔盆地, 吐哈盆地

1 引言

中国含油气沉积盆地类型复杂多样, 既有古生代大型海相、海陆交互相多旋回沉积叠合盆地, 又有中新生代陆相单旋回沉积盆地. 经过70多年勘探, 在塔里木、四川、准噶尔、柴达木、鄂尔多斯、松辽、渤海湾、东海和莺琼盆地等发现了72个大气田(戴金星等, 2019a, 2019b), 在陆上形成了鄂尔多斯、四川、塔里木、柴达木四大天然气产区(戴金星, 2019), 在海域形成了东海和南海两大天然气产区. 近些年, 深层天然气和非常规页岩气勘探也取得重大突破, 在塔里木和四川盆地均获得重大发现, 展现了良好前景.

在我国含油气盆地发现的天然气, 除柴达木盆地涩北地区为生物气外, 其他盆地基本上为有机热成因天然气, 其中, 四川盆地震旦系-下古生界和塔里木盆地台盆区主要以海相天然气为主; 四川盆地上古生界与上三叠统、塔里木盆地库车坳陷、鄂尔多斯盆地、莺琼盆地、东海盆地等主要以煤系天然气为主(戴金星等, 2019a, 2019b). 然而, 由于中国含油气盆地构造演化的多旋回复杂性, 很多盆地发育了多套不同时代

中文引用格式: 陈建平, 王绪龙, 陈践发, 倪云燕, 向宝力, 廖凤蓉, 何文军, 姚立邈, 李二庭. 2021. 甲烷碳同位素判识天然气及其源岩成熟度新公式. 中国科学: 地球科学, 51(4): 560–581, doi: 10.1360/SSTe-2020-0142
英文引用格式: Chen J, Wang X, Chen J, Ni Y, Xiang B, Liao F, He W, Yao L, Li E. 2021. New equation to decipher the relationship between carbon isotopic composition of methane and maturity of gas source rocks. Science China Earth Sciences, 64(3): 470–493, https://doi.org/10.1007/s11430-020-9692-1

© 2021 《中国科学》杂志社

与沉积环境的烃源岩，经历了漫长的埋藏热演化生烃与复杂的聚集成藏过程，即使是同一套烃源岩生成的天然气其地球化学特征也呈现很大变化. 实际上，天然气成因与来源判识始终是天然气勘探与研究的难点与热点问题，其中天然气及其源岩成熟度判识也成为了天然气地球科学中非常重要的科学问题之一，很多学者进行了大量研究. 但是，由于天然气组成成分简单，有效的判识参数指标与方法不多. 碳同位素组成是最主要的判识指标与方法，一些学者根据实验室模拟数据或盆地实际地质样品分析数据，建立了多个天然气甲烷碳同位素组成与镜质体反射率之间的关系公式(Stahl, 1977; Schoell, 1980, 1983; 戴金星等, 1987, 1992, 1993; 戴金星和戚厚发, 1989; 戴金星, 2011; 沈平等, 1987; 沈平和徐永昌, 1991; 徐永昌等, 1994; 刘文汇和徐永昌, 1999)或与有机热成熟度程度(LOM)之间的关系(James, 1983). 从文献资料看, 目前在国内应用较多的是戴金星等(1987, 1992, 1993)、戴金星和戚厚发(1989)提出的煤成气、油型气公式和沈平等(1987)、刘文汇和徐永昌(1999)提出的煤成气公式. 这些公式在天然气成因与来源判识中发挥了重要作用，但也随着勘探程度不断提高出现了许多以往没有遇到的情形或问题. 例如, 应用煤成气公式计算吐哈盆地天然气源岩的成熟度, 获得的镜质体反射率在0.01~0.68%, 明显低于有机质热降解生烃必须的最低成熟度; 计算库车坳陷克拉2气田天然气源岩的成熟度，获得的镜质体反射率平均值又高于3.0%或低于1.2%，明显高于或低于侏罗系源岩的实际成熟度; 应用油型气公式计算四川盆地东缘焦石坝地区上奥陶-下志留统页岩气源岩的成熟度, 获得的镜质体反射率甚至高达4.7~5.5%, 远远高于实际成熟度. 这样的偏差可能严重影响天然气成因类型与气源的正确判识，因而需要对这些经验公式进行必要的修正.

实际上，国外学者提出天然气碳同位素判识气源岩成熟度公式基本上是在40年前，国内学者的公式也是在20~30年以前提出的，其时天然气的勘探程度不高、能够获得的烃源岩与天然气地球化学资料相对有限，建立的天然气甲烷碳同位素与镜质体反射率之间的经验公式必定不很完善. 随着油气勘探程度不断提高, 获得的烃源岩与天然气地球化学资料越来越多, 有条件对以往的经验公式进行修正，以使其更好地应用于天然气研究与勘探. 准噶尔盆地和吐哈盆地是两个勘探程度较高的盆地, 发现了大量原油和天然气, 为构建天然气碳同位素组成与源岩镜质体反射率之间的关系公式提供了十分有利的条件. 本文以准噶尔盆地西北缘二叠系烃源岩及生成的天然气、准噶尔盆地南缘和吐哈盆地侏罗系煤烃源岩及其生成的天然气，分别构建油型气和煤成气碳同位素组成与烃源岩镜质体反射率之间的关系公式，然后选择国内部分盆地或地区典型煤系来源的天然气、海相或湖相源岩来源的油型气对所构建的公式进行实例验证与对比，检验公式的适用性与实用性. 本文对含油气盆地天然气成因类型与气源判识以及天然气勘探具有良好的实用价值，对完善和发展天然气地质理论具有重要的科学意义.

2　天然气成熟度判识概述

自然界中的天然气按其成因可以分为原生天然气和次生天然气两大类(Whiticar, 1990, 1994, 1996, 1999)，其中原生天然气又可分为细菌气，热成因天然气, 地幔无机成因天然气, 地热、热液、结晶作用成因天然气; 次生天然气按照次生作用类型又可以分为混合气、蚀变/细菌氧化气、水洗/风化气等. 戴金星(1992a, 1992b)、戴金星等(1992)按照天然气的成因将其分为有机成因气、无机成因气和混合成因气三大类，其中有机成因天然气又按照生气母质类型分为腐泥型天然气(油型气)和腐殖型天然气(煤成气)，各自再按生气母质的成熟度进一步分为未熟阶段生物气、成熟阶段热解气和过成熟阶段裂解气. 徐永昌等(1994)将天然气分为有机成因气和无机成因气两大类，其中有机成因气又进一步分为油型气和煤型气.

大量研究表明, 在有机质热解生气过程中, 随着有机质热演化程度增高，生成天然气的组分中甲烷含量逐渐增高, C_2以上重烃气含量逐渐降低. 因此，许多学者以天然气的干燥系数($D=C_1/(C_1-C_5)$)或者湿度系数($W=(C_2-C_5)/(C_1-C_5)$)来衡量天然气的成熟度，戴金星等(2016a)还提出了煤成气湿度与R_o的关系公式. 一般认为(Tissot和Welte, 1984)，在成熟生油阶段(R_o 0.5~1.3%)，I、II型有机质以生油为主，伴生少量湿气，III型有机质以生成湿气为主, 伴生少量原油; 在高成熟阶段(R_o 1.3~2.0%), 早期生成一定量的凝析油与湿气, 中后期生成大量湿气，并随着成熟度增高天然气组分中甲烷相对含量逐渐增高，天然气干燥系数逐渐增大,

此热演化生烃阶段也称之为凝析油-湿气阶段; 在过成熟阶段(R_o>2.0%), 有机质生成以甲烷为主的天然气, 也即所谓的干气. 通常, 将干燥系数0.95定义为湿气与干气的界限, 小于0.95为湿气, 大于0.95为干气, 对应的镜质体反射率R_o为2.0%, 并将R_o>2.0%的热演化生烃阶段称之为干气阶段.

国内外研究发现, 有机质热裂解生成的天然气碳同位素组成与其母质的热演化程度存在良好的相关性, 即随着有机质热演化程度的逐渐增高, 生成天然气的碳同位素逐渐变重. 其中甲烷的碳同位素受热成熟度的影响最明显, 乙烷和丙烷等重烃气碳同位素受成熟度的影响相对较小而主要反映生气母质类型(Stahl, 1974, 1977; Stahl和Carey, 1975; Schoell, 1980; 戴金星等, 1987, 1993; 戴金星和戚厚发, 1989; 沈平等, 1987; 沈平和徐永昌, 1991; 徐永昌等, 1994; 刘文汇和徐永昌, 1999). 因此, 国内外许多学者提出了烃源岩有机质镜质体反射率与碳同位素组成之间的经验计算公式.

Stahl(1977)研究西北欧石炭系和美国Val Verde-Delaware盆地有机成因甲烷碳同位素和其烃源岩成熟度关系, 发现煤成气和油型气甲烷碳同位素$\delta^{13}C_1$值与镜质体反射率对数呈现线性关系, Schoell(1983)根据其发表的数据获得了两者之间的回归方程.

煤成气: $\delta^{13}C_1$=14lgR_o−28;

油型气: $\delta^{13}C_1$=17lgR_o−42.

Schoell(1980)通过对美国德克萨斯州Val Verde-Delaware盆地和西北欧海相腐泥型有机质与煤系有机质生烃过程中碳氢同位素分馏机理及天然气碳同位素组成的研究, 给出了腐泥型油型气和煤成气甲烷碳同位素与镜质体反射率的关系式.

煤成气: $\delta^{13}C_1$=8.6lgR_o−28;

油型气: $\delta^{13}C_1$=14.8lgR_o−41.

戴金星等(1987, 1993)、戴金星和戚厚发(1989)根据对中国松辽、渤海湾、鄂尔多斯、四川、准噶尔及塔里木盆地以及14个煤矿168个原生煤成气和252个原生油型气甲烷碳同位素$\delta^{13}C_1$资料分析研究, 选择出源岩成熟度可靠的32个煤成气和20个油型气$\delta^{13}C_1$值与镜质体反射率资料, 建立了我国煤成气甲烷、乙烷和丙烷$\delta^{13}C$值与镜质体反射率R_o之间及油型气甲烷$\delta^{13}C$值与镜质体反射率R_o之间的回归方程:

煤成气: $\delta^{13}C_1$≈14.12lgR_o−34.39;

$\delta^{13}C_2$≈8.16lgR_o−25.71;

$\delta^{13}C_3$≈7.12lgR_o−24.03;

油型气: $\delta^{13}C_1$≈15.80lgR_o−42.20.

沈平等(1987)、沈平和徐永昌(1991)通过对鄂尔多斯盆地、四川盆地和东濮凹陷有机成因天然气甲烷同位素组成与烃源岩成熟关系研究后, 提出了连续沉积且无大抬升侵蚀作用聚煤盆地煤成甲烷碳同位素组成$\delta^{13}C_1$值与镜质体反射率之间的回归方程:

$\delta^{13}C_1$= 8.641lgR_o−32.8.

徐永昌等(1994)在沈平和徐永昌(1991)经验公式的基础上, 结合渤海湾盆地辽河坳陷过渡带气和松辽盆地高-过成熟煤型气的资料, 回归出煤型气新公式:

$\delta^{13}C_1$=40.49lgR_o−34.

刘文汇和徐永昌(1999)通过对我国不同盆地具有不同成熟度的气源岩与煤成气碳同位素组成的研究, 提出了腐殖型有机质形成煤成气甲烷同位素组成与镜质体反射率二阶段分馏模式的数学表达式:

$\delta^{13}C_1$≈48.77lgR_o−34.1 (R_o≤0.9%);

$\delta^{13}C_1$≈22.42lgR_o−34.8 (R_o>0.9%).

显然, 不同学者建立的甲烷碳同位素组成与镜质体反射率之关系公式有很大差异(图1), 其中油型气经验公式比较相近, 而煤成气公式差异很大. 因此, 由甲烷碳同位素组成计算的气源岩成熟度也就会出现很大差异. 以煤成气甲烷碳同位素$\delta^{13}C_1$值−35‰为例, Stahl (1977)、Schoell(1980)、戴金星等(1987, 1993)、沈平等(1987)、刘文汇和徐永昌(1999)的经验公式计算的镜质体反射率R_o值分别为0.32%、0.15%、0.91%、0.56%和0.98%, 源岩成熟度涵盖了从泥炭阶段至生油高峰阶段, 最大差值达到了0.83%. 这样的偏差可能严重影响天然气成因类型与气源的正确判识. 因此, 在实际应用中研究者通常应用多个经验公式计算, 最终选择一个主观认为可能比较符合实际成熟度的结果.

3 典型区域烃源岩与天然气地球化学

天然气生成与聚集成藏是一个复杂的过程, 且成藏后还可能遭受次生改造, 使气藏中天然气的组分和同位素组成不一定反映其源岩的热演化程度. 因此, 构建天然气甲烷碳同位素组成与气源岩成熟度关系公式对研究区域有很高的要求, 其需要满足4个基本条件. (1) 区域内只有一套有效的油气源岩, 其与该区域天然气之间存在相应的源与产物对应关系, 或者虽然有几套

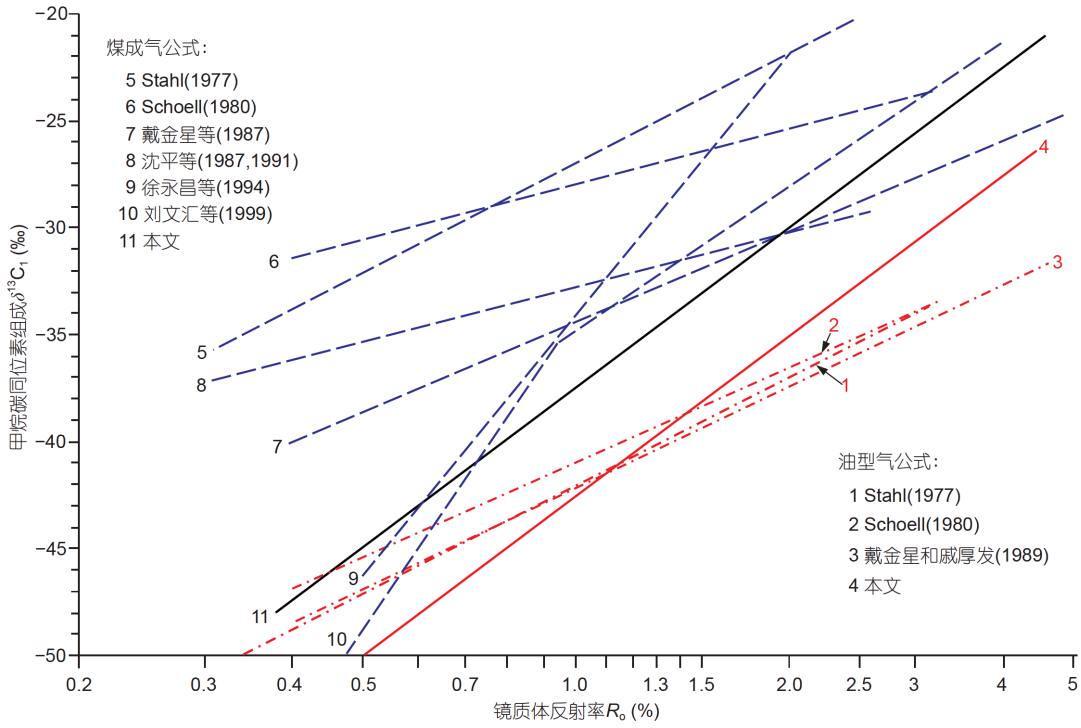


图 1　国内外不同学者构建的天然气甲烷碳同位素组成与源岩成熟度关系公式图

源岩, 但只有一套源岩与该区天然气有对应关系, 其他源岩对该区域天然气的贡献很小或可忽略不计; (2) 该套烃源岩的热演化有足够大的范围, 涵盖未成熟、成熟、高成熟至过成熟的全部油气生成过程的成熟度范围, 而且基本为持续埋藏与热演化生烃, 没有大幅度抬升与早期气藏天然气的散失; (3) 在该区域内该套烃源岩所含有机质类型基本相似或者变化较小, 以保证生成的天然气碳同位素变化主要与成熟度相关; (4) 具有较高的勘探程度, 可以获得烃源岩在不同成熟演化阶段生成的天然气系列样品. 满足这4个基本条件的盆地或凹陷并不多. 我国西北地区准噶尔盆地西北缘二叠系湖相烃源岩和南缘侏罗系煤系烃源岩基本上满足这些条件, 但南缘地区侏罗系生成的天然气成熟度系列不够完整, 紧邻的吐哈盆地吐鲁番坳陷正好弥补了南缘地区的不足. 因此, 本文以准噶尔盆地西北缘二叠系和南缘及吐哈盆地吐鲁番坳陷侏罗系为基础, 构建油型气和煤成气碳同位素与气源岩成熟度之间的关系公式.

3.1　典型区域烃源岩及其成熟度

3.1.1　准噶尔盆地西北缘

准噶尔盆地是我国西北地区主要大型含油气盆地之一, 经过80多年勘探发现了大量石油与天然气(图2), 其中在西北缘地区发现了超过20亿吨石油及350多亿方天然气, 二叠系湖相烃源岩是这些油气的源岩, 包括下二叠统风城组和中二叠统下乌尔禾组源岩, 局部地区还有下二叠统佳木河组源岩(王绪龙等, 2013). 风城组烃源岩广泛分布于玛湖凹陷和沙湾凹陷, 一般厚度在50~250m, 最大超过400m, 是一套在咸化水介质条件下形成的湖相沉积, 岩性为黑灰色泥岩、白云质泥岩、凝灰质泥岩、凝灰质碳酸盐岩与沉凝灰岩, 有机碳含量在0.5~5.0%, 主体在1.0~3.0%, 以I、II型有机质为主, 干酪根碳同位素组成具有明显富集^{12}C而贫^{13}C的特征, $\delta^{13}C$值主要分布在−30~−27‰ (陈建平等, 2016a), 表明其生源以水生物为主, 是该地区最主要的烃源岩(王绪龙等, 2013; 曹剑等, 2015; 陈建平等, 2016a; 支东明等, 2016; 王小军等, 2018). 下乌尔禾组烃源岩在沙湾凹陷比较发育, 厚度一般在50~200m, 以湖相泥岩为主, 有机质丰度、类型与玛湖凹陷风城组很相似, 所生成原油的碳同位素组成与玛湖凹陷风城组烃源岩生成的原油非常相似(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2016a, 2016b), 表明其有机质的碳同位素组成也十分相似. 佳木河组烃源岩有机质丰度变化较大, 且以

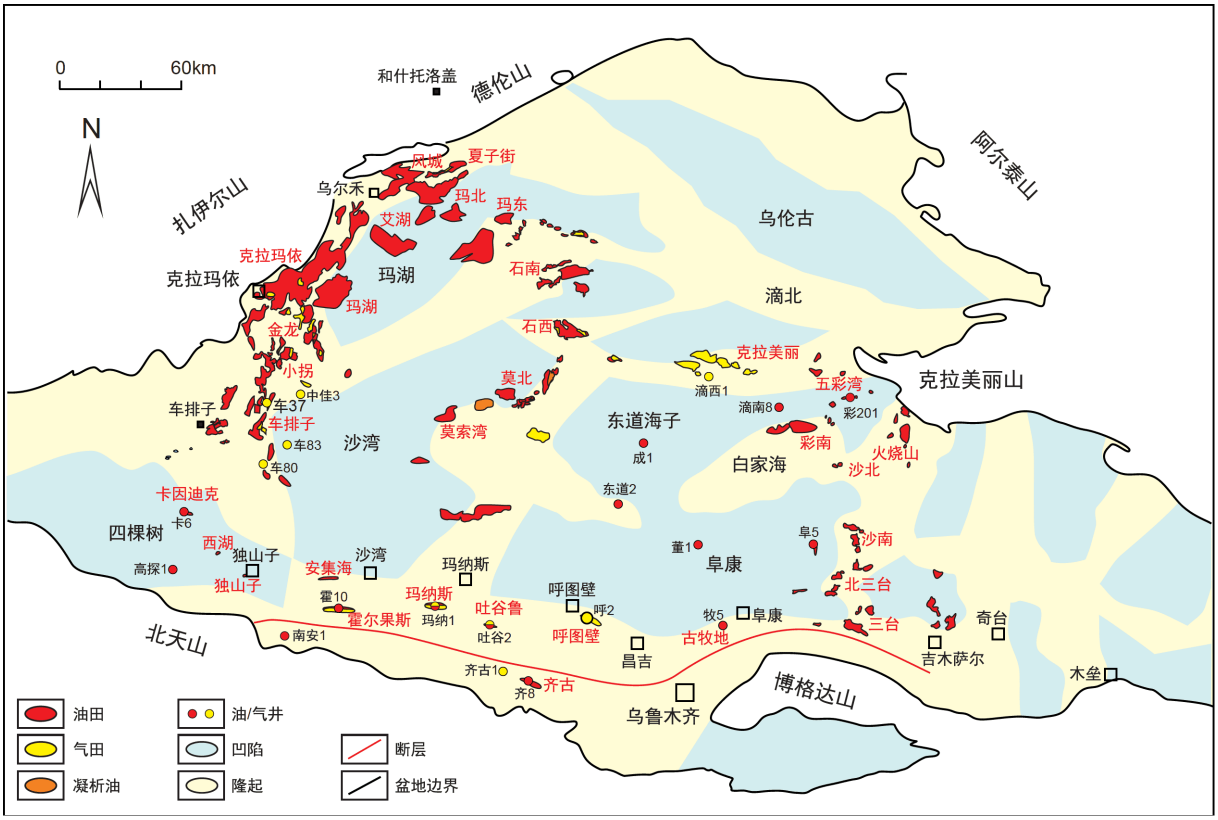


图 2　准噶尔盆地构造与油气田分布图

II型和III型有机质为主.

西北缘地区钻遇二叠系风城组的探井主要分布在西部边缘与斜坡部位，揭示的风城组源岩埋藏深度在300~5700m，干酪根镜质体反射率R_o在0.5~1.2%；在玛湖凹陷东部斜坡区，二叠系源岩的镜质组反射率R_o在1.15~1.56%. 在西北缘地区，二叠系的埋藏深度由北向南逐渐加深，在玛湖凹陷风城组烃源岩的最大埋藏深度可达6.5km，至沙湾凹陷风城组最大埋藏深度可达12km，其成熟度也将更高，盆地模拟计算的成熟度可达过成熟阶段. 由此可见, 在西北缘地区二叠系风城组和下乌尔禾组烃源岩处于低成熟-成熟-高成熟-过成熟演化阶段，具备构建完整的油型天然气碳同位素组成与源岩成熟度之关系的理想条件.

3.1.2　准噶尔盆地南缘

南缘地区存在二叠系、三叠系、侏罗系、白垩系、古近系5套烃源岩, 不同区域发育程度存在明显差异，其中中部地区最多可达5套，东部和西部是2~4套(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2015b). 这些不同层系烃源岩均可能是南缘地区天然气的源岩. 但是, 研究表明(陈建平等, 2019a, 2019b)，南缘中部地区坳陷中二叠系和三叠系烃源岩在新近纪之前就基本上达到了高-过成熟演化阶段，而在此之前该地区现今发现天然气的大多数背斜构造基本上尚未形成，因而它们对这些背斜构造中的天然气基本没有贡献或者只有极少贡献，仅对坳陷边缘早期的背斜构造中的天然气有部分贡献；南缘西部四棵树凹陷二叠系和三叠系烃源岩埋藏比中部地区浅，达到高-过成熟阶段也相对晚一些，对现今背斜构造中的天然气有贡献.

南缘地区中下侏罗统煤系地层广泛分布，煤系烃源岩很发育(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2015b)，其中，下侏罗统八道湾组暗色泥岩厚度一般在200~300m，炭质泥岩厚度在1~10m，煤层厚度在5~50m；三工河组暗色泥岩厚度在50~300m；中侏罗统西山窑组暗色泥岩厚度一般在75~150m，炭质泥岩厚度在2~15m，煤层厚度在5~30m. 中下侏罗统煤系烃源岩有机质丰度变化

很大, 暗色泥岩有机碳含量在0.5~6.0%, 炭质泥岩平均为20%左右, 煤平均为50~60%; 有机质以II_2型和III型为主, 有一定数量II_1型.

侏罗系烃源岩干酪根碳同位素组成总体上比较重(陈建平等, 2016a), $\delta^{13}C$值分布在−29~−21‰, 其中−26~−23‰的样品占80%以上, 三个地层组的泥岩及煤干酪根碳同位素组成有一定差异: 八道湾组泥岩干酪根碳同位素组成相对偏轻, $\delta^{13}C$值分布在−28~−23‰, 三工河组泥岩干酪根$\delta^{13}C$值主要分布在−26~−22‰, 西山窑组$\delta^{13}C$值主要分布在−25~−22‰. 下侏罗统八道湾组煤的碳同位素组成比中侏罗统西山窑组煤也相对偏轻, $\delta^{13}C$值主要分布在−26~−24‰, 中侏罗统煤$\delta^{13}C$值主要分布在−24.5~−23‰.

目前, 该套烃源岩在露头区的反射率R_o一般在0.5~0.7%, 处于低成熟阶段, 但坳陷中最大埋藏深度在8~12km, 盆地模拟计算表明其主要处于高成熟阶段, 且其成熟度呈自西向东逐渐增高的趋势(图3), 西部四棵树凹陷处于成熟阶段, 而中部地区处于高成熟至过成熟阶段(陈建平等, 2019a).

下白垩统清水河组广泛分布于南缘地区, 在南缘中部地区烃源岩的厚度在50~100m, 有机碳含量平均为0.92%, 以I型和II_1型有机质为主, 在坳陷内埋深可达6~8km, 达到了成熟生油高峰阶段, 少量可能进入高成熟凝析油阶段, 是一套有效的油源岩, 生成的原油具有很轻的碳同位素组成, 全油$\delta^{13}C$值在−31~−29‰, 南缘中部地区的原油均来自该套烃源岩(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2015a, 2016c, 2016d). 该套烃源岩尚未达到大量生气阶段, 且其生成的天然气属于碳同位素很轻的油型气, 易与侏罗系煤系烃源岩生成的天然气相区别. 此外, 古近系安集海河组湖相烃源岩在南缘西部四棵树凹陷比较发育, 有机碳含量平均为1.41%, 热解生烃潜量平均为5.02mg g^{-1}, 以II型有机质为主, 其他地区有机质丰度均较低, 属于非烃源岩. 目前该套烃源岩在四棵树凹陷处于低成熟-中等成熟生油阶段, 独山子背斜等古近系-新近系储层中的原油来源于该套烃源岩, 其主要为有效的油源岩, 生气潜力很小(陈建平等, 2015a, 2016c, 2016d).

由此可见, 准噶尔盆地南缘地区虽然发育5套有效烃源岩, 但在南缘中部地区有效的或主要的气源岩只有中下侏罗统煤系烃源岩, 目前发现的天然气主要来源于该套煤系烃源岩(陈建平等, 2019a, 2019b), 这为构建煤成气碳同位素组成与烃源岩有机质成熟度之间关系公式提供了十分有利的条件.

3.1.3　吐哈盆地吐鲁番坳陷

吐哈盆地是我国西北地区最主要的侏罗纪煤系含油气盆地(程克明, 1994; 陈建平等, 1998; 王昌桂等, 1998; Chen等, 2001), 其中吐鲁番坳陷是主要的油气分

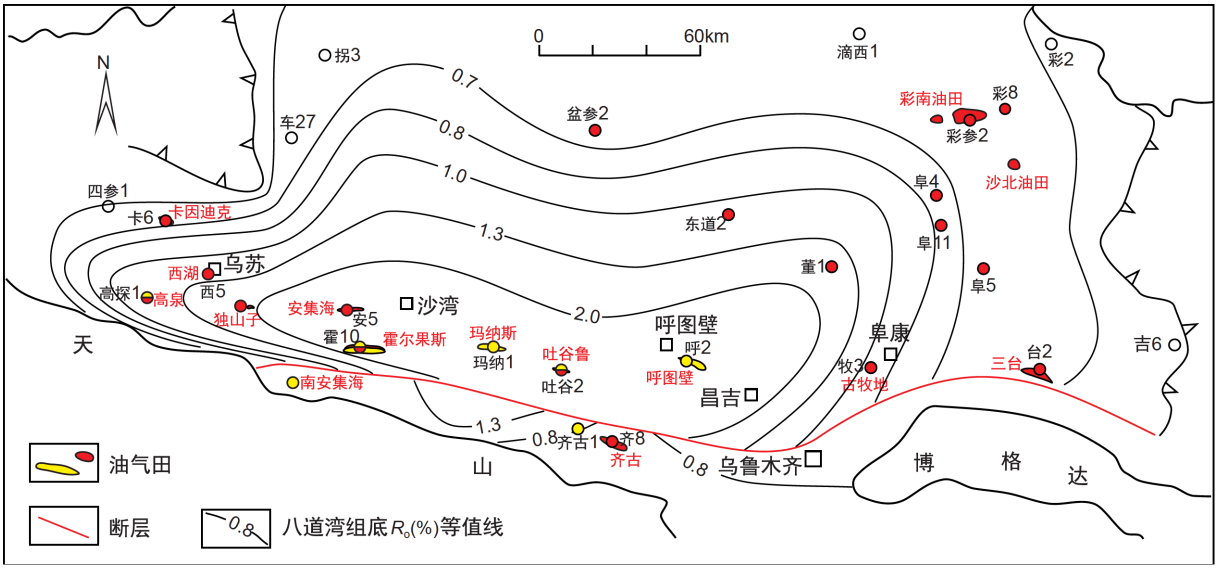


图 3　准噶尔盆地南缘油气田分布及侏罗系煤系源岩成熟度

据陈建平等(2019a), 略有修改

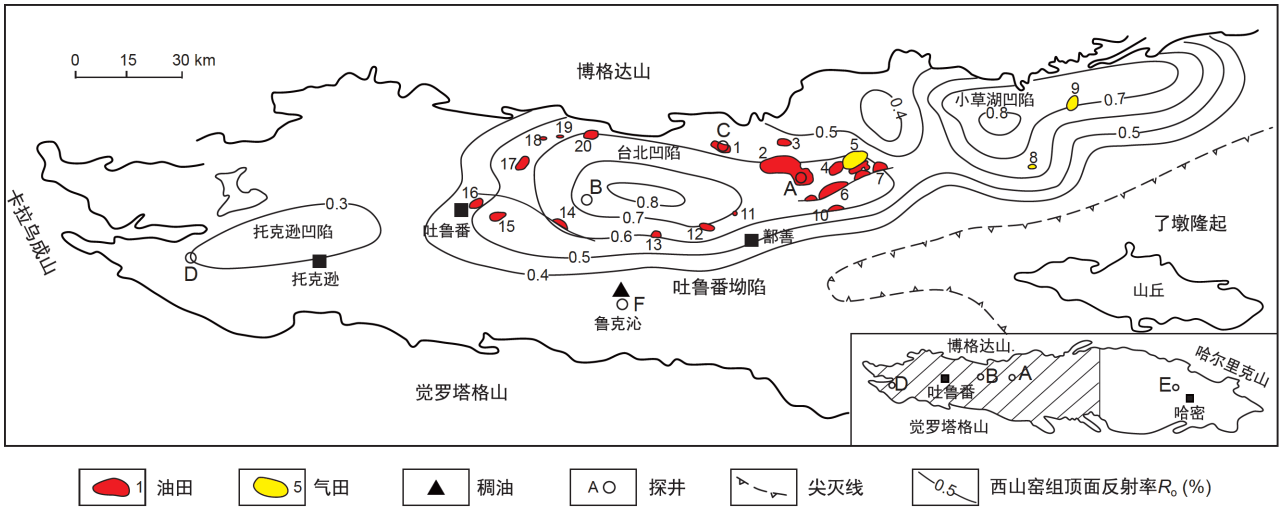
布区(图4). 该坳陷中下侏罗统暗色泥岩累计厚度可达400~1000m, 煤层累计厚度平均70~80m左右(王昌桂等, 1998; 陈建平等, 1999). 中下侏罗统是台北凹陷和小草湖凹陷主要油气源岩, 八道湾组、三工河组和西山窑组煤系泥岩的平均有机碳含量分别为2.08%、2.55%和1.51%, 炭质泥岩有机碳含量在6~40%, 以II、III型有机质为主. 此外, 大多数煤热解生油潜量在100~250mg g^{-1}, 八道湾组和西山窑组煤平均分别为183和154mg g^{-1}左右, 具有良好的油气生成潜力. 此外, 吐鲁番坳陷侏罗系煤系源岩碳同位素δ^{13}C值一般分布在−27~−21‰, 多数分布在−25~−23‰, 煤和煤系泥岩并无明显差异(王昌桂等, 1998; 陈建平等, 1999; Chen等, 2001).

台北凹陷中部台参1井和台参2井两口钻井岩芯样品的系统分析表明, 中下侏罗统煤系源岩的镜质体反射率R_o在0.37~1.06% (王昌桂等, 1998; 陈建平等, 1999; Chen等, 2001). 平面上大量样品的分析数据表明, 台北凹陷西山窑组顶面镜质体反射率R_o在0.4~0.8% (图4), 其下伏八道湾组成熟度高一些, 顶面的镜质体反射率R_o在0.5~1.0% (王昌桂等, 1998). 按照地层埋藏深度推测, 台北凹陷侏罗系煤系底部的最高成熟度基本上不超过镜质体反射率1.3%. 总体上, 中下侏罗统烃源岩主要为低成熟至成熟源岩, 中侏罗统上部七克台组多数是未熟源岩, 少数是低成熟源岩. 因此, 台北凹陷侏罗系煤系源岩很好地弥补了准噶尔盆地南缘侏罗系煤系源岩成熟度偏高的问题, 为构建低成熟至高成熟阶段天然气碳同位素组成与源岩成熟度镜质体反射率的关系提供了十分有利的条件.

3.2 典型区域天然气类型与气源

3.2.1 准噶尔盆地西北缘天然气

截至目前, 西北缘地区已经探明石油地质储量22亿吨, 探明天然气储量为350亿方. 除浅层生物降解稠油外, 原油密度一般在0.92~0.82g cm^{-3}, 也即以正常原油和轻质原油为主, 只有少量低成熟原油和高成熟凝析油, 天然气主要为原油伴生气, 少量为气藏气. 凝析油和气藏气主要分布于西北缘南部沙湾凹陷西侧车拐地区的车排子油田、小拐油田及金龙油田(图2). 目前发现的原油具有十分相似的生物标志物组成特征, 表明它们均来源于二叠系湖相烃源岩(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2016a). 同时, 这些原油也具有十分相似的碳同位素组成特征, 全油碳同位素δ^{13}C值主要在−31~−29.0‰, 平均−29.7‰; 其中北部原油主要在−30.5~−29.0‰, 南部原油主要在−31.0~−29.5‰, 轻质油和凝析油略重一些, 在−29.5~−28.5‰ (王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2016b). 由此可见, 西北缘地区二叠系烃源岩的生烃母质具有非常相似的显微组分组成, 即具有十分相似的有机质类型及碳同位素组成, 这为构建油型



油田: 1-巴喀, 2-丘陵-鄯善, 3-鄯勒, 4-米东, 5-丘东; 6-温西, 7-温吉桑, 8-疙瘩台, 9-红台, 10-七克台, 11-红山, 12-红南, 13-连木沁, 14-胜金口, 15-神泉, 16-胜南, 17-葡北, 18-玉孜, 19-于果尤孜, 20-恰勒坎. 探井: A-台参1; B-台参2; C-柯7; D-托参1; E-哈参1; F-艾参1(稠油)

图 4 吐哈盆地吐鲁番坳陷油气田分布及侏罗系煤系成熟度

据陈建平等(1999)

气碳同位素与成熟度之间的关系奠定了十分良好的地球化学基础.

西北缘地区天然气组分中甲烷含量一般在70~96%, 乙烷含量在2~15% (王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2016b). 天然气干燥系数总体上呈现从东北向西南逐渐变大的特征, 北部地区夏子街-克拉玛依的天然气主要为原油伴生气, 干燥系数一般<0.9, 只有夏子街天然气在0.93左右; 南部地区天然气干燥系数一般>0.9, 部分天然气干燥系数>0.95, 属于干气(表1). 西北缘地区天然气甲烷碳同位素$\delta^{13}C_1$值在−49~−32‰ (图5), 北部天然气一般<−40‰, 南部天然气多数>−40‰. 乙烷碳同位素$\delta^{13}C_2$值主要在−32~−26‰ (图6), 北部天然气多数<−29‰, 而南部多数>−29‰. 丙烷碳同位素$\delta^{13}C_3$值主要在−31~−24‰, 其中北部天然气多数<−28‰, 而南部多数>−28‰. 按照天然气乙烷及丙烷碳同位素组成, 西北缘地区天然气以油型气为主, 少量为混合气和煤成气, 其中北部地区天然气均为油型气, 来源于风城组烃源岩, 南部地区有油型气、混合气和煤成气, 油型气主要来源于风城组和下乌尔禾组烃源岩(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2016b). 这些来源于风城组和下乌尔禾组湖相沉积有机质的天然气适合进行油型气碳同位素组成与源岩成熟度之间关系公式的构建. 南部地区的煤成气和混合气的乙烷和丙烷碳同位素组成与油型气有较大差异(图5、图6), 其中煤成气主要来源于下二叠统佳木河组烃源岩, 混合气则是油型气和煤成气的混合, 因而这些天然气不能用于油型气碳同位素组成与源岩成熟度关系公式的构建.

3.2.2　准噶尔盆地南缘天然气

南缘地区绝大多数背斜构造均发现了油气, 但具有工业价值的油气田主要在齐古、呼图壁、玛纳斯、霍尔果斯、安集海、独山子、西湖、高泉和卡因迪克背斜(图3). 在发现的油气中, 西部地区的原油来自侏罗系煤系烃源岩和古近系安集海河组湖相烃源岩; 中部地区的原油均来源于下白垩统湖相烃源岩, 齐古油田的原油来源于二叠系和侏罗系; 东部古牧地原油来源于侏罗系煤系烃源岩(陈建平等, 2015a, 陈建平等, 2016c, 2016d); 天然气主要来源于侏罗系煤系烃源岩, 有少量来源于二叠系烃源岩(陈建平等, 2019b). 南缘西部、东部古牧地等侏罗系煤系烃源岩生成的原油生物标志物和碳同位素组成十分相似, 碳同位素$\delta^{13}C$值在−27.6~−26.0‰, 与二叠系、三叠系、白垩系等湖相烃源岩生成的原油有明显的差别.

南缘地区天然气烃类组分中甲烷含量分布在40~99%, 绝大多数在70~95% (表2), 平均83.27%; 乙烷含量在0.2~35%, 绝大多数在2~15%, 平均8.46%; 丙烷的含量在0.1~25%, 绝大多数在0.5~8%, 平均3.37%; 丁烷含量在0~10%, 绝大多数在0.2~4%, 平均1.63% (陈建平等, 2019b). 总体上, 该地区天然气以湿气为主, 其中, 西部四棵树凹陷天然气甲烷含量基本上在70~80%, 干燥系数0.73~0.82, 只有西湖背斜天然气的干燥系数达到0.93; 中部地区安集海、霍尔果斯、玛

表 1　准噶尔盆地西北缘主要油气田天然气组分与碳同位素组成统计表

区域	油气田	层位	样品数	C_1(%)	C_2(%)	C_3(%)	C_4(%)	C_5(%)	$C_{1\sim5}$(%)	C_1/C_{1+}	样品数	$\delta^{13}C_1$(‰)	$\delta^{13}C_2$(‰)	$\delta^{13}C_3$(‰)
北部	夏子街	P_1-T_2	1	81.96	5.16	2.53	0.96	0.44	92.75	0.93	3	−44.00	−32.05	−30.25
	风城	P_1-P_2	6	81.12	5.30	2.55	3.48	0.00	92.45	0.89	6	−46.50	−34.08	−31.42
	乌尔禾	P_2-T_2	8	86.94	4.52	2.46	1.54	0.70	96.16	0.90	10	−45.34	−31.89	−29.69
	白碱滩	C-T_2	5	83.84	6.87	3.21	2.68	0.25	96.84	0.87	9	−44.21	−32.55	−30.62
	克拉玛依	C-T_2	12	83.20	6.50	4.07	2.95	1.07	97.79	0.85	24	−43.30	−31.32	−29.95
	玛北	P_1-T_1	7	89.72	3.41	1.06	1.97	0.82	95.44	0.92	9	−45.05	−29.50	−28.32
	艾湖	P_1-T_1	6	80.77	6.09	3.30	4.67	0.00	94.82	0.85	7	−42.00	−31.14	−29.38
南部	红山嘴	C-T_2	–	–	–	–	–	–	–	–	3	−33.83	−29.60	−28.73
	车拐	P_2	2	92.80	3.62	1.31	0.00	0.00	97.73	0.95	6	−39.79	−31.11	−29.21
	车拐[a)]	P_1-J_1	8	92.89	2.94	1.09	1.35	0.30	98.58	0.95	19	−36.15	−27.02	−25.82
	车拐[b)]	P_1-K_1	7	88.94	3.34	1.82	1.81	0.72	96.63	0.93	7	−31.38	−24.09	−22.42

a) 混合气(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2016b); b) 煤成气(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2016b); –表示没有数据

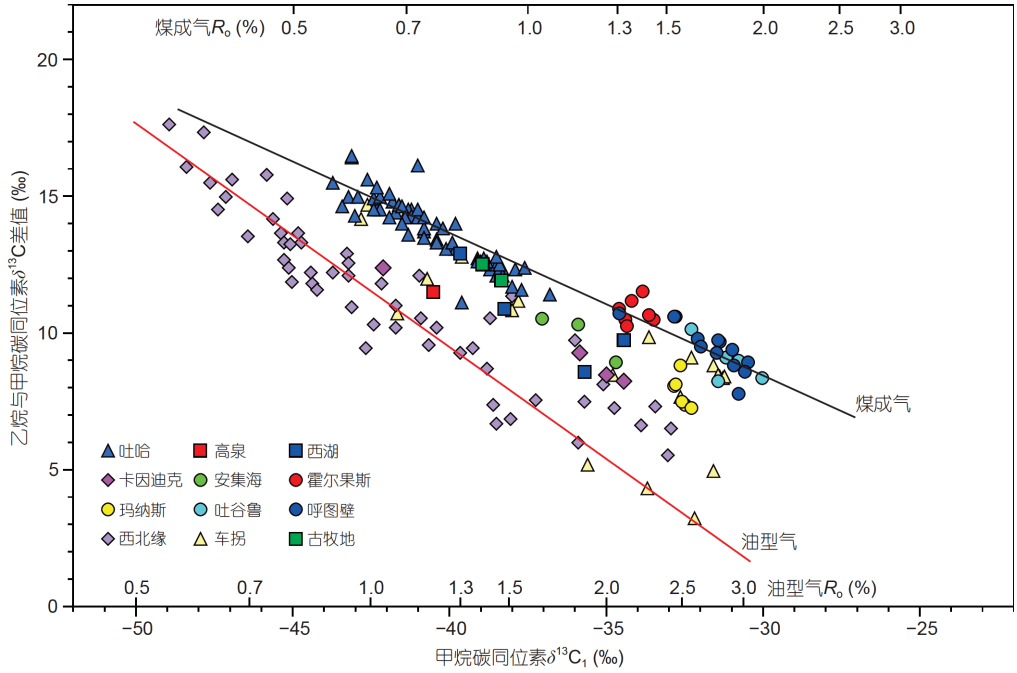


图 5　准噶尔盆地与吐哈盆地天然气甲烷碳同位素与乙烷和甲烷碳同位素差关系图

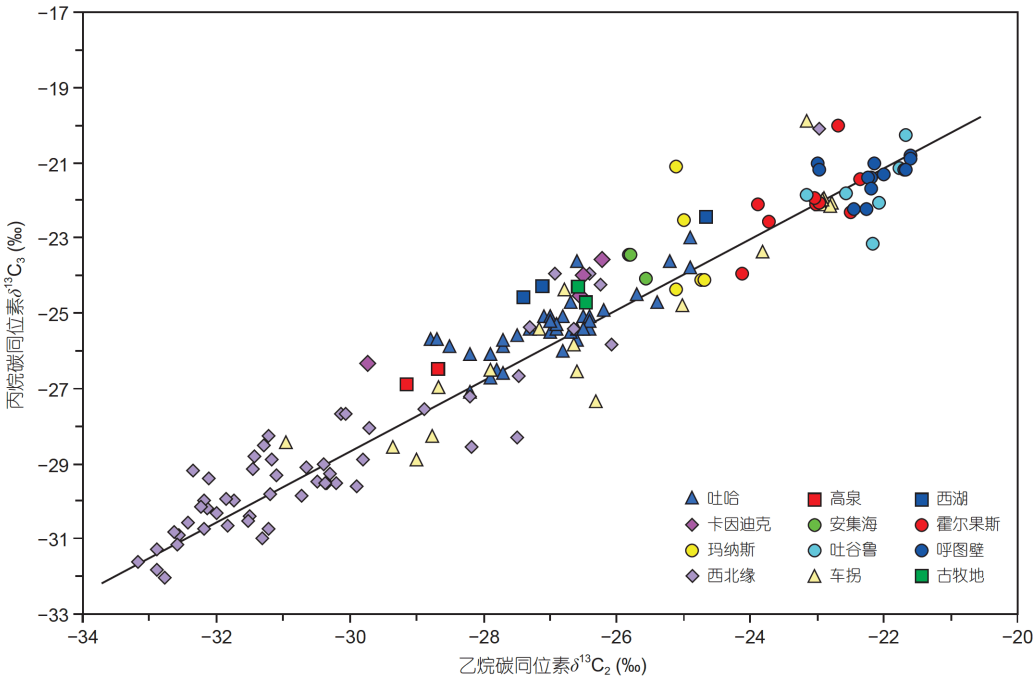


图 6　准噶尔盆地与吐哈盆地天然气乙烷和丙烷碳同位素关系图

纳斯、吐谷鲁、呼图壁背斜构造的天然气甲烷含量自西向东逐渐增高，各构造依次分别为69%、87%、88%、92%和93%，干燥系数分别为0.71、0.88、0.91、0.94和0.95，即由湿气逐渐演变为接近干气，只有南安集海背斜、齐古背斜的天然气为干气，干燥系数分别为1.0和0.99(陈建平等, 2019b).

表 2　准噶尔盆地南缘和吐哈盆地吐鲁番坳陷主要油气田天然气组分与碳同位素组成统计表

区域	油气田	层位	样品数	C_1(%)	C_2(%)	C_3(%)	C_4(%)	C_5(%)	C_{1-5}(%)	C_1/C_{1+}	样品数	$\delta^{13}C_1$(‰)	$\delta^{13}C_2$(‰)	$\delta^{13}C_3$(‰)
南缘中部	呼图壁	$E_{1-2}z$	20	93.12	3.74	0.67	0.34	0.16	97.93	0.95	12	−31.49	−22.09	−21.37
	吐谷鲁	E_{1-2}	8	92.06	5.28	1.41	0.74	0.22	95.86	0.94	7	−30.76	−22.20	−22.02
	玛纳斯	$E_{1-2}z$	41	88.19	5.99	1.49	0.77	0.31	96.75	0.91	7	−32.99	−24.53	−23.00
	霍尔果斯	$E_{1-2}z$	78	86.71	7.96	2.27	1.14	0.44	98.49	0.88	10	−34.53	−23.13	−22.06
	安集海	$E_{2-3}a$	16	68.69	16.33	7.16	3.72	1.13	96.77	0.71	3	−35.88	−25.98	−23.45
南缘西部	独山子	N_1	4	80.12	10.49	4.94	2.15	0.33	97.77	0.82	15	−39.20	−26.38	−22.69
	西湖	J_3-E_2	2	89.24	5.64	1.12	0.40	0.10	96.34	0.93	4	−37.02	−26.49	−22.89
	高泉	K_1q	2	75.47	13.36	6.38	2.77	0.58	96.43	0.77	2	−40.42	−28.94	−26.72
	卡因迪克	J_3-K_1q	66	69.71	13.14	7.67	3.59	1.11	95.22	0.73	3	−35.10	−26.43	−24.04
吐哈	巴喀	J_1b	5	86.18	7.97	3.33	1.86	0.65	99.99	0.86	5	−40.98	−27.02	−25.16
	丘陵	J_2x-J_2q	6	80.24	10.47	5.39	2.41	0.52	99.03	0.81	5	−42.58	−27.58	−25.90
	鄯善	J_2x-J_2s	4	79.39	8.56	6.46	4.39	1.19	99.98	0.81	4	−42.20	−27.78	−26.08
	温米	J_2x-J_2s	15	77.51	11.67	6.40	3.48	0.93	99.99	0.78	14	−41.27	−27.02	−25.40
	丘东	J_2x-J_2s	12	82.54	9.07	4.74	2.78	0.86	99.99	0.82	12	−41.23	−26.93	−25.98
	红台	J_2s-J_2q	15	85.29	8.06	4.04	2.05	0.53	99.98	0.86	15	−38.38	−26.08	−24.97
	台北西部[a)]	J_2s-J_3k	5	65.32	–	–	–	–	–	0.66	6	−39.72	−26.67	−25.03

a) 据王昌桂等(1998). –表示没有数据

南缘地区天然气的碳同位素组成总体上比较重(图5、图6). 甲烷碳同位素$\delta^{13}C_1$值在−47~−29‰, 但绝大多数在−42~−31‰; 乙烷碳同位素$\delta^{13}C_2$值在−30~−21‰, 绝大多数在−28~−22‰; 丙烷碳同位素$\delta^{13}C_3$值在−27~−19‰, 大多数在−25~−20‰. 总体上, 南缘地区天然气碳同位素由西向东呈现逐渐变重的趋势(表2). 南缘西部天然气碳同位素组成明显较轻, 甲烷碳同位素$\delta^{13}C$值均<−35‰, 乙烷$\delta^{13}C$值<−26‰, 其中卡因迪克背斜构造天然气甲烷$\delta^{13}C$值最大, 平均在−35‰左右. 南缘中部安集海背斜天然气甲烷碳同位素组成相对最轻, 霍尔果斯其次, 玛纳斯背斜再重一些, 甲烷碳同位素$\delta^{13}C$值在−35~−33‰, 少数小于−35‰, 乙烷的$\delta^{13}C$值基本上均在−24~−22.5‰, 丙烷在−24~−20‰; 吐谷鲁与呼图壁背斜天然气碳同位素组成很相似, 又明显比玛纳斯、霍尔果斯背斜天然气重一些, 其中甲烷的$\delta^{13}C$值在−33~−31‰, 乙烷在−23~−22‰, 丙烷在−23~−21‰. 南缘东部古牧地天然气甲烷的$\delta^{13}C$值在−38.6‰, 乙烷在−26.5‰, 丙烷在−24.6‰左右, 又比呼图壁气田的天然气轻. 南缘中部地区天然气均来源于深部高成熟的侏罗系煤系烃源岩(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2019b), 其为构建煤成气碳同位素组成与源岩成熟度关系公式提供了十分有利的条件.

南缘地区还有一部分天然气来源与成因相对比较复杂, 不适合用于同位素组成与成熟度关系的构建. 例如, 四棵树凹陷高泉构造高探1井、卡因迪克卡6井及独山子背斜独58井天然气, 均为侏罗系和二叠系烃源岩生成的天然气的混合气(陈建平等, 2019b); 独山子背斜浅层大多数天然气, 尤其是泥火山逸出的天然气(戴金星等, 2012), 丙烷碳同位素异常重, 有些甚至达−9.4‰, 且部分天然气丙烷与丁烷碳同位素倒转, 与该构造深层天然气明显不同, 应该是遭受了次生生物降解作用的结果(陈建平等, 2019b); 齐古背斜和南安集海背斜天然气甲烷的$\delta^{13}C$值在−41~−29‰, 乙烷的$\delta^{13}C$值在−25~−22‰, 丙烷的$\delta^{13}C$值在−27~−23.5‰, 乙烷、丙烷和丁烷碳同位素呈现倒转(陈建平等, 2019b), 主要来源于过成熟的二叠系烃源岩, 可能有少量侏罗系天然气混入.

3.2.3　吐鲁番坳陷天然气

吐哈盆地目前发现的侏罗系煤系油气主要分布于吐鲁番坳陷, 天然气多数以原油伴生气的形式存在, 只有温吉桑地区为凝析油气田, 丘东和红台是以天然气

为主含少量凝析油的气田(图4). 已发现的来源于侏罗系煤系烃源岩的原油和凝析油的碳同位素组成δ^{13}C值分布在−28~−25‰, 主峰位于−27~−26‰, 平均−26.6‰, 其中凝析油的碳同位素比原油略重一些, 在−26~−25‰ (程克明, 1994; 王昌桂等, 1998; 陈建平等, 1999). 这些侏罗系原油与准噶尔盆地、焉耆盆地甚至潮水盆地等侏罗系煤系原油具有十分相似的生物标志物和碳同位素组成(陈建平等, 1998). 由此可见, 中国西北地区侏罗系煤系有机质总体上具有十分相似的显微组分组成与母质类型, 那么煤系天然气碳同位素组成的差异应该主要是成熟度导致的, 这为构建煤系天然气碳同位素与源岩成熟度之间的关系公式奠定了非常好的基础.

吐鲁番坳陷天然气烃类组分中, 甲烷的含量一般在70~90%, 平均82.2%. 台北凹陷东部各油气田天然气甲烷含量差异不大, 丘陵、鄯善和温吉桑油气田天然气中甲烷含量平均在80%左右, 只有丘东和红台气田的天然气甲烷含量略高, 分别为82.54%和85.29%, 巴喀油气田天然气为86%. 台北凹陷西部油气田的天然气甲烷含量相对低一些, 多数在60~75%, 最低仅为42%, 最高仅为89%. 只有在巴喀和红台有极少数天然气甲烷含量超过90%. 由此可见, 吐鲁番坳陷天然气中含有大量的重烃气, 天然气的干燥系数一般在0.42~0.93, 均为湿气为主, 其成熟度应该低于准噶尔盆地南缘地区的天然气.

吐鲁番坳陷天然气碳同位素组成相对比较轻(图5、图6), 绝大多数天然气甲烷碳同位素$\delta^{13}C_1$值在−43~−38‰ (王昌桂等, 1998; Ni等, 2015), 最小值为−43.7‰, 最大值也仅为−37‰左右; 乙烷和丙烷碳同位素δ^{13}C值分别在−29~−24‰和−27~−23‰. 这些天然气的碳同位素组成明显比准噶尔盆地南缘天然气轻, 与南缘天然气构成了从轻至重的完整系列(图5、图6), 为构建煤系天然气甲烷碳同位素组成与源岩成熟度之间关系公式提供了十分有利的条件.

4 成熟度新公式构建

4.1 成熟度判识公式构建思路

构建天然气甲烷碳同位素组成与气源岩成熟度镜质体反射率之间关系公式的关键, 是必须准确地确定已发现天然气所对应的气源岩的镜质体反射率. 然而, 在沉积盆地中绝大多数油气藏是烃源岩生成的油气经过运移后聚集成藏的, 油气藏中的油气与相应的源岩常常是相分离的, 而且这些油气是一定范围内烃源岩体生成产物的混合物. 此外, 由于天然气分子量小而更加容易运移, 因而源藏相分离更是十分普遍的现象. 因此, 要精确地获得与天然气相对应的源岩的镜质体反射率值往往较为困难. 以往学者构建天然气碳同位素组成与气源岩成熟度的关系公式均是通过直接分析天然气样品的碳同位素组成及测定所认为的相应气源岩的镜质体反射率值, 然后采用数学回归的方法(Stahl, 1977; Schoell, 1980; 戴金星等, 1987, 1993; 戴金星和戚厚发, 1989; 沈平等, 1987; 刘文汇和徐永昌, 1999), 其可靠性和准确程度取决于对气源岩成熟度镜质体反射率判断的准确性. 由于不同学者所选择的盆地构造演化历史不同、气源岩时代或性质类型不同、资料的丰富程度与可靠性差异、或者对天然气对应源岩成熟度判识的误差等因素, 因而获得的天然气甲烷碳同位素与镜质体反射率之间的关系公式也就存在较大差异. 实际上, 虽然可以通过石油地质条件、烃源岩与天然气地球化学特征等研究确定天然气来源于某套烃源岩, 但是并不能精确地确定每个天然气样品究竟是镜质体反射率多大的源岩所生成的, 也即无法直接将某一个天然气样品的碳同位素值与精确反射率值的气源岩相关联, 直接测定天然气碳同位素组成和气源岩的反射率然后进行数学回归的方法获得的两者关系公式并不可靠. 因此, 本文采用了另一种思路来建立两者之间的相关性.

按照Tissot和Welte(1984)经典干酪根生烃理论模式, 有机质开始生烃时的成熟度通常在镜质体反射率为0.5%, 1.0%时为生油高峰, 1.3%时为生油窗下限, 1.3~2.0%阶段为凝析油-湿气阶段, 干酪根开始大量生成天然气, 镜质体反射率大于2.0%时进入以生成甲烷为主的干气阶段. 这一生烃模式已经被绝大多数盆地油气勘探的结果证实是正确可靠的模式. 准噶尔盆地二叠系湖相烃源岩和侏罗系煤系烃源岩、吐哈盆地侏罗系煤系烃源岩有机质生烃也应该遵循这一生烃模式. 因此, 本文在经典的有机质生烃模式框架下, 通过分析对比典型地区烃源岩干酪根镜质体反射率、天然气干燥系数以及碳同位素组成之间的对应关系, 确定生烃门限(R_o=0.5%)与湿气/干气成熟度界限(R_o=2.0%)所对应的天然气甲烷碳同位素组成值, 然后按照对数

线性关系构建两者之间的关系方程.

4.2　甲烷碳同位素组成与源岩成熟度对应关系

由前面的讨论可见, 吐鲁番坳陷台北凹陷中心侏罗系煤系烃源岩实测的镜质体反射率在0.37~1.06%, 最高反射率不超过1.3%, 这从烃源岩成熟度上限定了天然气的成熟度范围. 由图5和图6可见, 吐鲁番凹陷天然气甲烷碳同位素δ^{13}C值在−45~−37‰, 其中有相当一部分甲烷碳同位素δ^{13}C值在−45~−42‰, 含有大量的重烃气, 与之伴生的原油主要为低成熟原油(王昌桂等, 1998; 陈建平等, 1999), 因而这些天然气应该是成熟度较低的烃源岩生成. 随着甲烷碳同位素δ^{13}C值的逐渐增大, 乙烷与甲烷碳同位素组成差也逐渐减小, 且呈现非常好的规律性, 说明甲烷碳同位素组成变重主要是由成熟度增高导致的. 台北凹陷八道湾组煤系烃源岩成熟度相对较高, 镜质体反射率为1.0~1.1%, 这些甲烷碳同位素δ^{13}C值在−38~−37‰的天然气应该是成熟度相对较高的八道湾组烃源岩生成的. 因此, 将天然气甲烷碳同位素δ^{13}C值为−45‰时源岩有机质的镜质体反射率设定为0.5%是可以接受和基本合理的(图5).

准噶尔盆地南缘西部四棵树凹陷侏罗系煤系烃源岩生成的天然气干燥系数一般在0.7~0.8, 少数达到0.93 (表2), 甲烷碳同位素δ^{13}C值在−37~−35‰, 比吐哈盆地煤系天然气重一些. 该凹陷侏罗系烃源岩主体的成熟度基本上在镜质体反射率0.7%~1.3% (图3), 已发现的来源于侏罗系煤系的原油为成熟原油, 尚未发现来源于侏罗系的凝析油, 因而这些甲烷碳同位素δ^{13}C值在−37~−35‰的天然气对应的烃源岩成熟度基本上在镜质体反射率1.1~1.3% (图5). 南缘中部地区的背斜构造基本上均含有油气, 但油气不同源(王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2016c, 2016d, 2019b), 其中原油均来源于白垩系湖相烃源岩, 没有发现有侏罗系煤系烃源岩来源的原油, 天然气基本上来源于侏罗系煤系烃源岩, 说明该区域侏罗系烃源岩总体上已经处于高成熟凝析油-湿气阶段. 该区域侏罗系烃源岩主体成熟度也确实在镜质体反射率1.3~2.0% (图3). 目前该地区发现的侏罗系来源的天然气基本上为湿气, 干燥系数总体上高于南缘西部四棵树凹陷的天然气, 而且由西向东逐渐增高, 由安集海背斜的0.71, 至吐谷鲁和呼图壁气田处达到了0.95左右(表2), 处于临界干气状态. 安集海背斜天然气甲烷碳同位素δ^{13}C值平均为−35.88‰, 吐谷鲁和呼图壁背斜天然气甲烷δ^{13}C值平均分别为−30.76‰和−31.49‰ (表2、图6), 最大为−30‰. 因此, 将侏罗系煤成气甲烷δ^{13}C值−30‰对应的源岩镜质体反射率确定为2.0% (图5)应该是合理和符合实际的.

准噶尔盆地西北缘二叠系湖相烃源岩的成熟度基本上在镜质体反射率0.5~2.5%, 北部成熟度低于南部. 北部地区天然气基本上均是与原油伴生的湿气, 南部金龙油田和车拐地区则出现了独立的天然气藏, 而且湿气和干气共存. 西北缘地区天然气的干燥系数也呈现北部低南部高的趋势, 天然气碳同位素组成也呈现北部轻南部重的趋势. 由图5和图6可见, 西北缘地区来源于二叠系的油型气中有相当一部分甲烷碳同位素δ^{13}C值在−48~−45‰, 最低为−49‰, 干燥系数平均0.84, 且与低-中成熟原油相伴生, 因而可以认为镜质体反射率0.5%的烃源岩生成的油型气甲烷δ^{13}C值应该在−50‰ (图5). 随着天然气干燥系数的逐渐增高碳同位素组成也明显变重, 甲烷与乙烷碳同位素组成的差值也随甲烷δ^{13}C值增高而规律性地减小. 西北缘地区甲烷δ^{13}C值在−45~−40‰的天然气干燥系数平均为0.89; 甲烷δ^{13}C值在−40~−35‰的天然气干燥系数平均为0.92; 甲烷δ^{13}C值大于−35‰的天然气干燥系数平均为0.96. 因此, 将油型气的湿气和干气分界镜质体反射率2.0%对应的甲烷碳同位素δ^{13}C值设定为−35‰ (图5)应该是可以接受与合理的.

4.3　成熟度判识公式构建

以往研究表明(Stahl, 1977; Schoell, 1980; 戴金星等, 1987, 1993; 戴金星和戚厚发, 1989; 沈平等, 1987; 徐永昌等, 1994; 刘文汇和徐永昌, 1999), 无论油型气还是煤成气, 甲烷碳同位素δ^{13}C值与镜质体反射率的对数呈现很好的线性关系, 这是符合有机质生烃动力学的(Arrhenius方程, $k=A\mathrm{e}^{(-E/RT)}$). 因此, 可以按照煤成气甲烷碳同位素δ^{13}C值−45‰和−30‰分别对应镜质体反射率0.5%和2.0%、油型气甲烷碳同位素δ^{13}C值−50‰和−35‰分别对应镜质体反射率0.5%和2.0%, 采用镜质体反射率对数的线性方程构建煤成气和油型气甲烷碳同位素与镜质体反射率之间的关系公式:

煤成气: $\delta^{13}C_1=25\lg R_o-37.5$,

或 $\lg R_o=0.04\delta^{13}C_1+1.5$,

油型气: $\delta^{13}C_1=25\lg R_o-42.5$,

或 $\lg R_o=0.04\delta^{13}C_1+1.7$.

由上述两个方程可见，煤成气和油型气线性方程的斜率相同，只是两者截距不同，表明两者为相互平行的直线. 然而，以往学者提出的煤成气与油型气甲烷碳同位素$\delta^{13}C$值与R_o之间的关系的方程斜率却有差异(图1), 其中Stahl(1977)、戴金星等(1987)及戴金星和戚厚发(1989)的两个方程差异之间较小，而Schoell (1980)的两个方程差异较大. Galimov(1988, 2006)曾以两类有机质生烃活化能的不同以及天然气成藏过程的不同(阶段聚集与累积聚集)来解释这种差异. 从理论而言，饱和烷烃C–C之间的键能在315~377kJ mol^{-1}, 因键位不同而呈现一定差异(罗渝然，2005)，同时^{12}C–^{12}C和^{12}C–^{13}C之间的键能也略有差异，这是碳同位素分馏的理论基础. 碳同位素组成是指有机质中^{12}C和^{13}C的相对丰度，碳同位素$\delta^{13}C$值是样品$^{13}C/^{12}C$值与标样$^{13}C/^{12}C$值之差与标样$^{13}C/^{12}C$值之比，是有机质在热演化生烃(分子键裂解)过程中^{12}C与^{13}C同位素含量相对变化的定量化表达. 由于有机质是由C、H、O、N、S等多种元素键合构成的结构十分复杂且没有固定结构形式的复杂聚合物(Tissot和Welte, 1984)，除了C–C键外还有C–S、C–N、C–O等其他共价键，同时还有C=C、C=O等双键甚至三键，分子键能变化非常大. 因此，有机质热裂解生烃过程中碳同位素分馏是十分复杂的热动力学、化学动力学与同位素动力学过程(Galimov, 2006)，基本上无法用分子力学-化学动力学方法定量计算其碳同位素的分馏效应，因而也就无法从理论上证明不同类型有机质生烃过程中碳同位素的分馏程度是否相同或差异多大. 另一方面, 天然气复杂的成藏过程进一步加剧了天然气碳同位素组成的变化(Stahl, 1974; Galimov, 1988, 2006; Schoell, 1988; 徐永昌等, 1994; 刘文汇和徐永昌, 1999). 实际上, 以往学者的经验公式均是以有限的实测数据回归获得的结果, 斜率取决于所采用的数据, 而不是理论计算的结果. 不同学者对于同一类型天然气所获得的回归方程之斜率差异如此之大，表明根本无法依据回归计算结果论证两者之间究竟是否平行. 从本文所研究的持续埋藏热演化生烃成藏区域的实际资料看，湖相腐泥型有机质和煤系腐殖型有机质在镜质体反射率2.0%时生成的天然气与在镜质体反射率0.5%时生成的天然气甲烷碳同位素$\delta^{13}C$值之差均为15‰左右，也即它们在生成天然气的过程中碳同位素的分馏范围基本上相同. 实际上，在沉积盆地中烃源岩有机质类型或干酪根类型是为了描述方便而人为划分的，不同类型有机质之间并没有明确的界限. 虽然不同类型有机质由于结构不同而生烃活化能有差异，但是生成甲烷天然气的温度范围差异并不大(Hunt, 1979; Tissot和Welte, 1984; Tang等, 2000)，意味着生成天然气的活化能差异也不大. 由图5和图6中可见, 虽然油型气和煤成气属于两个不同的系列，但是主要反映母质性质的乙烷和丙烷碳同位素组成变化却呈现为一个系列. 由此也可以看出两类母质的生烃机理和碳同位素分馏机理并无大的差异. 因此, 油型气和煤成气甲烷碳同位素组成随成熟度变化关系方程斜率差异可能很小或者基本一致，而油型气与煤成气碳同位素组成呈现系统性差异是原始生烃母质碳同位素组成不同导致的.

实际上，可以将上述煤成气和油型气经验方程的截距–37.5‰和–42.5‰视作腐殖型有机质和腐泥型有机质在生油高峰(R_o=1.0%，$\lg R_o$=0)时生成的天然气甲烷碳同位素组成$\delta^{13}C$值. 对于任何有机质类型生成的天然气，只要知道其在生油高峰时生成天然气的甲烷碳同位素值($\delta^{13}C_p$)，即可构建符合其自身有机质碳同位素组成特征的甲烷碳同位素$\delta^{13}C$值与镜质体反射率R_o的关系公式：$\delta^{13}C_1=25\lg R_o+\delta^{13}C_p$或$\lg R_o=(\delta^{13}C_1-\delta^{13}C_p)/25$. 通常，从典型I型有机质至典型III型有机质, $\delta^{13}C_p$值在–42.5~–37.5‰. 那么, 对于典型II型有机质(混合型有机质)生成的天然气可以用下列方程计算:

$\delta^{13}C_1=25\lg R_o-40$或$\lg R_o=0.04\delta^{13}C_1+1.6$.

理论上，由于不同地质时代生物种类与有机质沉积环境等差异，即使是相同类型的干酪根其碳同位素组成也会有较大变化，这种差异也将传递到其生成的天然气的碳同位素组成上，从而需要根据实际情况选择合适的计算公式或者合适的截距来构建特定的公式. 由上述煤成气与油型气方程可见, 煤成气与油型气甲烷碳同位素组成$\delta^{13}C$值的差为5‰, 因而油型气截距范围基本上在(–47.5±2.5)‰，煤型气的范围在(–37.5±2.5)‰. 实际上, 对于绝大多数含油气盆地而言, 上述典型油型气、煤成气及混合气方程基本上能够满足源岩成熟度判识，只有一些地球化学研究证明生烃母质碳同位素组成确实存在特殊性的盆地可能才需要适当调整截距构建专门的关系公式. 例如, 古近系咸水或盐湖环境沉积有机质的碳同位素相对比较重，其生成天

然气的碳同位素也相应比较重，即使是油型气也需按照煤成气的公式计算. 典型的实例是柴达木盆地西部古近系咸水沉积有机质，其生成的原油与天然气均具有相对较重的碳同位素组成. 渤海湾盆地古近系沙河街组咸水湖相烃源岩生成的天然气也可以按照煤成气公式计算. 另外, 石炭系有机质的原始碳同位素组成也异常重，甚至比侏罗系煤系有机质的碳同位素组成还重, 因而也应该选择其专有的公式计算.

那么，如何获得有机质在生油高峰时生成天然气的甲烷碳同位素组成? 最直接的方法是通过地质地球化学研究，首先确定研究区烃源岩的成熟度及其所对应的油气，然后分析生油高峰时期生成天然气的碳同位素组成. 为了避免随机误差，区域范围内一批天然气样品的平均值应该更具有代表性. 此外，从原油碳同位素组成也可以获得相应成熟度时生成天然气的碳同位素组成. 例如, 准噶尔盆地二叠系湖相烃源岩生成的原油碳同位素组成差异不大，母质类型好且成熟度低些的源岩生成的原油δ^{13}C值基本上在−32~−30‰, 母质类型稍差一些且成熟度高的源岩生成的原油基本上在−30~−28‰，全盆地二叠系原油的碳同位素δ^{13}C平均值为−30.13‰，西北缘原油平均为−29.7‰ (王绪龙等, 2013; 陈建平等, 2016b), 这可以被视为二叠系烃源岩或西北缘二叠系烃源岩有机质在生油高峰时期生成原油的碳同位素组成代表值. 另一方面, 上述油型气公式的截距(−42.5‰)即为该区域二叠系烃源岩有机质在生油高峰(R_o=1.0%)时生成天然气的甲烷碳同位素δ^{13}C值. 因此, 原油碳同位素与天然气甲烷碳同位素组成之间的差是12‰左右. 再如, 中国西北地区侏罗系煤系原油的平均碳同位素δ^{13}C值在−27‰左右(陈建平等，1998)，上述煤成气公式中的截距(−37.5‰)即为侏罗系煤系有机质在生油高峰(R_o=1.0%)时生成的天然气甲烷碳同位素δ^{13}C值，两者的差是10‰左右. 因此，一般情况下不同类型有机质在生油高峰时生成天然气的甲烷碳同位素组成比相应成熟度原油的碳同位素组成轻约10~12‰, 由此可以根据原油的碳同位素组成获得有机质在生油高峰时生成的天然气的甲烷碳同位素组成. 例如, 准噶尔盆地五彩湾油气田原油和天然气均来源于石炭系烃源岩，该凹陷原油与凝析油平均碳同位素δ^{13}C值为−24.5‰左右(陈建平等，2016b)，比侏罗系煤系原油重2.5‰左右，因而可以在煤成气公式的基础上截距再加2.5‰，其公式可为$\delta^{13}C_1$=25lgR_o−35，其中−35‰即为该区域石炭系烃源岩有机质在生油高峰时生成天然气的甲烷碳同位素组成.

5　天然气源岩成熟度判识实例

由图1可见，对于煤成气而言，在源岩的镜质体反射率R_o约2.0%以前(也即湿气阶段)，戴金星等(1987, 1993)、沈平等(1987)公式计算的结果小于本文构建的公式，而在R_o>2.0%以后又高于本文公式计算结果; 刘文汇和徐永昌(1999)的公式，在R_o<0.7%以前计算结果高于本文公式计算结果，而在0.7%以后略小于本文公式计算结果; Stahl(1977)和Schoell(1980)的公式分别在R_o约10%和4.0%前计算的结果均小于本文公式的计算结果. 对于油型气而言，在源岩镜质体反射率1.1%左右，戴金星和戚厚发(1989)、戴金星等(1993)和Schoell (1980)公式计算值小于本文公式计算值，1.1%之后则高于本文计算值; Stahl(1977)的公式则在镜质体反射率1.4%左右分别小于或者大于本文公式计算值. 本文构建的公式是否符合盆地实际、适用性如何，可以通过一些典型盆地天然气藏的实例来验证. 表3和4分别列出了本文及以往不同学者提出公式计算的我国部分天然气田煤成气或油型气气源岩的成熟度. 值得说明的是，以往不同学者在不同时期提出的经验公式都是根据盆地实际资料构建的，虽然其计算结果可能与本文实例中的成熟度不相符，但其在特定的条件或盆地可能仍然具有适用性，本文构建的经验公式也同样如此.

5.1　煤成气实例

首先, 对于碳同位素组成轻的煤成气, 绝大多数经验公式计算的气源岩成熟度大幅度偏低(表3). 例如, 吐鲁番坳陷的侏罗系煤系烃源岩主体成熟度在镜质体反射率0.5~1.1% (王昌桂等，1998; 陈建平等，1999; Chen等，2001); 天然气甲烷碳同位素δ^{13}C值在−43.7~−36.8‰, 平均−40.4‰ (王昌桂等，1998; Ni等，2015), 甲烷碳同位素的主峰在−42~−39‰，被认为主要为低熟气(徐永昌等，2008; 沈平等，2010). 但是，与这些天然气伴生的原油少数为低成熟油，多数属于成熟原油(王昌桂等，1998; 陈建平等，1998，1999; Chen等，2001). 本文煤型气公式是由吐鲁番坳陷和准噶尔南缘两个地区的侏罗系煤系源岩与相应天然气资料联合构

表 3　不同煤成气经验公式计算的主要盆地煤系天然气源岩成熟度

盆地	气田/气藏	源岩时代	源岩R_o(%)	天然气干燥系数[A)]	$\delta^{13}C_1$值[A)] (‰)	本文公式 R_o(%)[B)]	戴金星公式 R_o(%)[B)]	Stahl公式 R_o(%)[B)]	Shoell公式 R_o(%)[B)]	沈平公式 R_o(%)[B)]	刘文汇公式 R_o(%)[B)]
吐哈	丘陵等[a)]	J_{1-2}	0.4~1.3[a)]	0.41~0.93	−43.7~−36.8	0.56~1.07	0.22~0.68	0.08~0.24	0.01~0.09	0.05~0.34	0.64~0.88
				0.81(65)	−40.64(65)	0.75	0.36	0.13	0.03	0.12	0.73
准噶尔	呼图壁、玛河等	J_{1-2}	1.3~2.0	0.65~0.97	−39.7~−30.0	0.82~2.00	0.42~2.05	0.15~0.72	0.04~0.59	0.16~2.11	0.77~1.64
				0.90(48)	−33.71(48)	1.42	1.12	0.39	0.22	0.78	1.12
	克拉美丽	C_1-C_2	0.8~2.5[h)]	0.89~0.97	−35.3~−28.0	0.97~1.91	0.85~2.86	0.30~1.01	0.14~1.01	0.51~3.65	0.95~2.02
				0.95(25)	−30.92(25)	1.46	1.76	0.62	0.46	1.65	1.49
四川	广安[b)]	T_3x	<1.2[i)]	0.88~0.97	−43.0~−37.1	0.60~1.04	0.24~0.64	0.08~0.22	0.02~0.09	0.07~0.32	0.66~0.87
				0.92(26)	−39.57(30)	0.83	0.43	0.15	0.05	0.16	0.77
	合川[c)]	T_3x	<1.2[i)]	0.87~0.93	−41.4~−38.3	0.70~0.93	0.32~0.53	0.11~0.18	0.03~0.06	0.10~0.23	0.71~0.82
				0.91(8)	−39.33(8)	0.84	0.45	0.16	0.05	0.17	0.78
	中坝[c)]	T_3x	1.0~2.0[i)]	0.89~0.92	−36.9~−31.20	1.06~1.79	0.66~1.68	0.23~0.59	0.09~0.42	0.33~1.53	0.81~1.45
				0.91(12)	35.21(14)	1.24	0.87	0.87	0.15	0.52	0.96
	邛西[c)]	T_3x	1.4~2.0[i)]	0.95~0.98	−33.7~−30.5	1.42~1.91	1.12~1.89	0.39~0.66	0.22~0.51	0.79~1.85	1.12~1.56
				0.96(8)	−32.13(8)	1.64	1.45	0.51	0.33	1.20	1.32
鄂尔多斯	苏里格[d)]	C-P	1.1~2.4[j)]	0.88~1.0	−36.45~−28.1	1.10~2.38	0.71~2.79	0.25~0.98	0.10~0.97	0.38~3.51	0.84~1.99
				0.95(43)	−32.24(47)	1.63	1.42	0.50	0.32	1.16	1.30
塔里木	大北[e)]	T_3t-J_{1-2}	1.2~2.5[k)]	0.89~1.0	−33.4~−28.5	1.46~2.30	1.18~2.61	0.41~0.92	0.24~0.87	0.85~3.16	1.15~1.91
				0.97(30)	−31.03(41)	1.82	1.73	0.61	0.44	1.61	1.47
	克拉2[f)]	T_3t-J_{1-2}	1.5~3.0[k)]	0.98~1.0	−31.1~26.0	1.81~2.89	1.71~3.93	0.60~1.39	0.44~1.71	1.58~6.16	1.46~2.47
				0.99(33)	−27.53(43)	2.51	3.06	1.08	1.13	4.09	2.11
	阿克莫木[g)]	C	>1.5[g)]	1.0	−25.2~−22.6	2.47~3.13	4.48~6.84	1.58~2.43	2.12~4.25	7.63~15.3	2.68~3.50
				1.0(4)	−23.87(6)	2.79	5.56	1.97	3.02	10.89	3.07

A) 数值范围/平均值(样品数); B) 数值范围/平均值; a) 包括台北凹陷丘陵、丘东等气田和小草湖凹陷红台等气田, 据王昌桂等(1998), 陈建平等(1999); Ni等(2015); b) 据李登华等(2007), 戴金星等(2014a), Ni等(2014), 翟俪娜(2017); c) 据戴金星等(2001, 2009, 2014a), Hu等(2013); d) 据胡安平等(2007), 杨华等(2009), 戴金星等(2016a), 黄士鹏等(2019); e) 包括大北和大宛齐气田, 据赵孟军等(2002), 李贤庆等(2005a, 2005b), 刘文汇等(2005), 戴金星等(2014a); f) 据李剑等(2001), 赵孟军等(2004), 秦胜飞等(2005), 戴金星等(2008); g) 据张秋茶等(2003), 赵孟军等(2003, 2005), 李贤庆等(2005c), 王招明等(2005), 张君峰等(2005); h) 据王绪龙等(2010); i) 据王兰生等(2008), Hu等(2013), 戴金星等(2014b), 于聪等(2014); j) 据刘新社等(2000), 戴金星等(2005, 2016b); k) 据王飞宇等(1999), 梁狄刚等(2004)

表 4　不同油型气公式计算的主要盆地油型天然气源岩成熟度

盆地	气田或气藏	源岩/储层	源岩/储层 R_o(%)	天然气干燥系数[A)]	$\delta^{13}C_1$值[A)] (‰)	本文公式 R_o(%)[B)]	戴金星公式 R_o(%)[B)]	Stahl公式 R_o(%)[B)]	Shoell公式 R_o(%)[B)]
准噶尔	西北缘	P_1f, P_2w/P, T	0.5~2.5	0.71~0.99	−48.9~−33.0	0.55~2.40	0.38~3.80	0.39~3.37	0.29~3.45
				0.89(32)	−42.46(62)	1.00	0.96	0.94	0.80
塔里木	塔中[a)]	Є, O/S, C	?[e)]	0.64~0.97	−48.0~−36.6	0.60~1.73	0.43~2.26	0.44~2.08	0.34~1.98
				0.89(25)	42.62(35)	0.99	0.94	0.92	0.78
	轮南[a)]	Є, O/C, T	?[e)]	0.66~0.96	−43.0~−32.0	0.95~2.64	0.89~4.42	0.87~3.87	0.73~4.06
				0.88(37)	36.83(37)	1.69	2.19	2.01	1.91
四川	安岳龙王庙组[b)]	$Є_1q/Є_1l$	>3.0/2.2~2.6	1.0	−34.7~−32.1	2.06~2.61	2.98~4.36	2.69~3.82	2.66~3.99
				1.0(16)	−32.89(16)	2.43	3.88	3.43	3.53
	安岳灯影组[b)]	$Є_1q$, Z_2ds/Z_2dy	>3.0/2.2~2.6	1.0	−33.9~−32.0	2.21~2.64	3.35~4.42	3.00~3.87	3.02~4.06
				1.0(26)	−33.05(26)	2.39	3.79	3.36	3.44
	川东石炭系[c)]	O_3w-S_1l/C_2h	2.5~3.5/1.6~2.8	0.98~1.0	−37.6~−30.33	1.57~3.08	1.95~5.64	1.81~4.86	1.70~5.26
				0.99(40)	−32.94(61)	2.42	3.89	3.41	3.50
	川东焦石坝[d)]	O_3w-S_1l	2.5~3.5	0.99	−32.2~−29.4	2.59~3.36	4.29~6.46	3.77~5.51	3.93~6.08
				0.99(31)	−30.53(31)	3.02	5.48	4.73	5.10

A) 数值范围/平均值(样品数); B) 数值范围/平均值; a) 据Chen等(2000), 王晓峰等(2005), 戴金星等(2008), 刘全有等(2009), Ni等(2013); b) 据魏国齐等(2014, 2015a); c) 据戴金星等(2001, 2010, 2016b), 刘文汇等(2017); d) 页岩气, 据刘若冰(2015), 戴金星等(2016b); e) 气源岩时代及成熟度不清楚

建, 并非由吐鲁番坳陷具体的天然气碳同位素组成和镜质体反射率资料通过数学回归构建, 然而其计算的吐鲁番坳陷气源岩镜质体反射率为0.56~1.07%, 与该坳陷侏罗系煤系烃源岩及原油的成熟度基本上是完全相对应的, 表明该煤型气公式适用于低-中成熟阶段煤系天然气. 另一个实例是四川盆地上三叠统须家河组煤系, 烃源岩实测镜质体反射率在0.8~2.6%, 其中在中东部地区泸州-开江古隆一带起成熟度较低, 镜质体反射率通常小于1.2%, 正处于成熟期(王兰生等, 2008; 胡国艺等, 2012; Hu等, 2013; 戴金星等, 2014b; 于聪等, 2014). 该区域广安与合川气田须家河组天然气甲烷碳同位素$\delta^{13}C$值分别在−43.02~−37.09‰和−41.40~−38.30‰ (李登华等, 2007; 戴金星等, 2009, 2014a; Ni等, 2014; 翟俪娜等, 2017), 应用本文提出的煤成气公式计算的气源岩镜质体反射率分别在0.60~1.04%和0.70~0.93%, 平均分别为0.83%和0.84%, 基本符合该区域须家河组煤系烃源岩的成熟度.

其次, 对于碳同位素组成$\delta^{13}C$值大致在−35~−30.0‰的煤成气, 多数以往公式计算的源岩成熟度仍然偏低(表3), 而本文公式是符合实际成熟度的. 例如, 准噶尔盆地南缘中部地区侏罗系煤系烃源岩主体成熟度在镜质体反射率1.3~2.0% (图3). 本文煤成气公式并非由南缘地区具体的天然气碳同位素组成和镜质体反射率资料通过数学回归构建, 但其计算的该区域呼图壁、玛河气田天然气源岩镜质体反射率与该地区坳陷中侏罗系煤系源岩成熟度相符(表3). 另外, 四川盆地西部上三叠统须家河组成熟度基本上在1.0~2.0% (王兰生等, 2008; 胡国艺等, 2012; Hu等, 2013; 戴金星等, 2014b; 于聪等, 2014). 本文构建的煤成气公式计算的该地区中坝气田和邛西气田天然气源岩镜质体反射率(表3)与该区域须家河组煤系烃源岩的成熟度完全吻合. 鄂尔多斯盆地苏里格气田天然气来源于石炭-二叠系煤系烃源岩, 石炭系底界的成熟度在镜质体反射率1.0~2.6% (刘新社等, 2000; 戴金星等, 2016b), 二叠系煤系源岩成熟度应该略低于石炭系源岩, 因而石炭-二叠系源岩主体成熟度基本上应该在1.2~2.4%. 本文公式计算的气源岩成熟度与该区域石炭-二叠系煤系烃源岩的成熟度完全相符合(表3).

准噶尔盆地东部地区克拉美丽气田的天然气来源于石炭系(达江等, 2010; 王绪龙等, 2013; 陈建平等,

2016b), 滴南凸起石炭系烃源岩的成熟度镜质体反射率在1.25~1.83%, 白家海凸起一带为0.84~1.04% (王绪龙等, 2010), 主要气源区东道海子凹陷石炭系最大埋藏深度达10km, 成熟度应该高于滴南凸起, 盆地模拟计算获得石炭系底界成熟度最高可达2.5%以上. 本文采用针对石炭系煤系天然气的公式$\delta^{13}C_1=25\lg R_o-35$计算的克拉美丽气田天然气源岩成熟度在1.01~1.98%, 与该地区石炭系烃源岩的实际成熟度相符. 刘文汇和徐永昌(1999)公式也符合该区源岩成熟度, 戴金星等(1987)公式计算结果平均值基本相符, 只是成熟度范围更宽些, 其他公式计算的成熟略偏低或大幅度偏低.

再次, 对于碳同位素组成重的煤成气, 一些公式计算的源岩成熟度偏高, 但仍然有严重偏低的(表3). 例如, 塔里木盆地库车坳陷的上三叠统和中下侏罗统煤系烃源岩在拜城凹陷北部露头实测镜质体反射率在1.2~2.3%, 拜城凹陷中心超过3.0% (王飞宇等, 1999; 梁狄刚等, 2004). 本文构建的煤成气公式计算的大宛齐-大北气田天然气(李贤庆等, 2005c; 刘文汇等, 2005; 刘全有等, 2007; 戴金星等, 2014a)源岩成熟度与该区域侏罗系煤系烃源岩的成熟度非常吻合. 克拉2气田天然气甲烷、乙烷碳同位素$\delta^{13}C$值高于大宛齐-大北气田(李剑等, 2001; 赵孟军等, 2002, 2004; 李贤庆等, 2005c; 秦胜飞等, 2005; 刘全有等, 2007; 戴金星等, 2008), 气源岩的成熟度也应该高于大宛齐-大北气田. 应用本文构建的煤成气公式计算获得的源岩成熟度也高于大宛齐-大北天然气源岩的成熟度, 虽然在拜城凹陷上三叠统塔里奇克组和中下侏罗统煤系源岩的成熟度范围内, 但平均值似乎略偏高. 实际上, 有观点认为克拉2气田聚集成藏的天然气主要为侏罗系煤系烃源岩在高-过成熟阶段生成的天然气(梁狄刚等, 2004; 赵孟军等, 2004; 李贤庆等, 2005a), 早期低成熟-成熟阶段生成的天然气没有聚集成藏. 此外, 克拉2气田中有少量残留稠油, 呈现石炭系海相烃源岩来源的生物标志物特征, 意味着该气藏天然气中可能有石炭系源岩的贡献, 而石炭系源岩生成的原油和天然气碳同位素组成是偏重的. 因此, 本文煤成气公式计算结果基本上符合拜城凹陷烃源岩实际情况.

塔里木盆地西部喀什凹陷阿克莫木石炭系天然气可能是我国目前发现的碳同位素最重的天然气之一, 这么重碳同位素组成的有机成因天然气并不多见. 该天然气来源于喀什凹陷石炭系烃源岩(张秋茶等, 2003; 赵孟军等, 2003, 2005; 李贤庆等, 2005b; 王招明等, 2005; Xiao等, 2005; 张君峰等, 2005). 喀什地区下石炭统烃源岩出露于库山河剖面, 实测其镜质体反射率1.40~1.66%, 但源岩T_{max}值为500~590℃, 相当于R_o 1.9~2.7% (赵孟军等, 2003; 王招明等, 2005), 主要处于过成熟阶段. 喀什凹陷石炭系在晚白垩世即达到了镜质体反射率1.5~1.8%, 中新世以来又沉积了巨厚的新近系和第四系, 石炭系埋藏深度达到10km以上, 模拟计算的成熟度R_o超过2.0% (王招明等, 2005). 阿克1井天然气具有晚期阶段聚气的特征, 主要是在喜山期聚集了石炭系在过成熟阶段生成的干气(赵孟军等, 2003; 张君峰等, 2005; 王招明等, 2005). 李贤庆等(2005b)认为阿克1井气藏天然气为主要捕获了R_o在2.0~3.6%阶段的天然气; Xiao等(2005)认为其为聚集了甲烷转化率0.64~1.0阶段的天然气. 本文采用针对石炭系烃源岩的公式$\delta^{13}C_1=25\lg R_o-35$计算的气源岩成熟度在2.47~3.13%, 平均2.79%, 与石炭系烃源岩成熟度基本相符. Stahl(1977)公式计算的成熟度最低, 但似乎与其基本上为甲烷的组成特征不符, 而其他经验公式计算的成熟度似乎偏高或明显偏高.

5.2 油型气实例

虽然以往不同学者提出的油型气经验公式比较相近, 但与本文获得的公式有较大差异(图1), 计算结果也将不同. 以准噶尔盆地西北缘为例, 该地区二叠系烃源岩实测的镜质体反射率在0.5~1.56%, 按照烃源岩埋藏深度与盆地模拟计算结果看, 其主体成熟度应该在0.5~2.0%, 少量可能达到2.0%以上. 70多年的勘探发现以原油为主, 天然气大多数为原油伴生气, 只有少量的气藏气, 干燥系数在0.71~0.99, 平均仅0.89, 甲烷碳同位素$\delta^{13}C$值在−48.9~−33‰, 平均为−42.46‰, 显然二叠系源岩成熟度不可能达到3.0%以上. 本文油型气公式按该区域烃源岩成熟度和天然气甲烷碳同位素组成总体特征构建, 并非由具体的天然气碳同位素组成和镜质体反射率资料通过数学回归构建, 计算的成熟度在镜质体反射率0.55~2.4%, 显然是符合该区域烃源岩实际成熟度的(表4). 其他油型气公式计算的R_o值在0.38~3.80%, 涵盖了未成熟阶段至过成熟阶段, 成熟度显然范围过宽, 也即低成熟度明显偏低, 而最高成熟度又明显偏高.

对于塔里木盆地塔中和塔北轮南地区的天然气而言，由于目前并不清楚这些天然气的源岩究竟是下寒武统还是中上奥陶统，其源岩的成熟度也不明确，而且究竟是直接来源于干酪根的天然气还是原油裂解气也不是很清楚，因而只能以天然气干燥系数比较究竟哪个公式计算的成熟度更合理. 由表4可见，塔中地区天然气的干燥系数、甲烷碳同位素组成(Chen等, 2000; 王晓锋等, 2005; 肖中尧等, 2007; 戴金星等, 2008; Liu等, 2008; 刘全有等, 2009)与准噶尔盆地西北缘天然气很相似. 如果其为干酪根直接裂解生成的天然气，那么按照油型气公式计算，本文公式计算结果似乎更合理一些. 如果其为原油裂解气，那么其反映的是原油刚刚开始裂解的阶段，相当于低成熟-高成熟有机质生气，其与生成这些原油的源岩的实际成熟度并没有直接的相关性. 塔北轮南-桑塔木、解放渠-吉拉克地区天然气干燥系数与碳同位素组成很相似，以湿气为主，但碳同位素组成比塔中地区天然气重(Chen等, 2000; 王晓锋等, 2005; 肖中尧等, 2007; 戴金星等, 2008; Liu等, 2008; 刘全有等, 2009; Ni等, 2013)，表明其成熟度应该高于塔中地区天然气，或者裂解的程度或温度高于塔中原油与天然气. 无论其为干酪根直接生成的天然气还是原油裂解气，相对而言，本文计算的成熟度明显符合其主要为湿气的总体特征，其他公式计算的成熟度范围很大，最高反射率已经超过3.0%，平均值也明显偏高(处于湿气与干气过渡阶段)，已经与其平均0.88的干燥系数不相符.

5.3　原油裂解气与页岩气实例

原油裂解形成的天然气与干酪根直接热裂解生成的天然气不同，其组分及碳同位素组成反映的是原油裂解时储层的成熟度(或温度)，与生成其前身物(原油)的源岩的成熟度没有直接关系，因而在应用经验公式计算及解释成熟度时应该十分注意这个问题. 四川盆地下古生界天然气主要为原油裂解气，不同公式计算的成熟度差异很大. 以川中地区安岳气田寒武系龙王庙组和震旦系灯影组气藏天然气为例，目前气藏储层埋藏深度在4200~5500m，其中寒武系龙王庙组气藏地质历史上最大埋藏深度基本上没有超过6000m，计算的储层成熟度没有超过等效镜质体反射率2.6% (魏国齐等, 2014, 2015a, 2015b). 戴金星等(1993)、Stahl (1977)和Schoell(1980)油型气公式计算的R_o值在2.66~4.36%，平均值均在3.4%以上，似乎与寒武系烃源岩的成熟度比较一致. 但是，这些天然气是原油裂解气，与寒武系源岩的成熟度并没有直接关系，而是与古油藏裂解时储层的成熟度(温度)相关，因而这些公式计算的成熟度明显高于储层的成熟度. 本文油型气公式计算的等效镜质体反射率为2.06~2.61%，平均为2.43%，符合该气藏储层的成熟度，也符合该气藏均为干气的总体特征. 对于川中安岳气田震旦系灯影组气藏天然气(魏国齐等, 2014, 2015b)和川东石炭系气田天然气(戴金星等, 2001, 2010; 刘文汇等, 2017)，上述不同公式计算结果与寒武系龙王庙气藏天然气很相似(表4).

页岩气则与常规原油裂解气不同，其基本上未曾离开生气源岩体，属于烃源岩内自生自储的天然气，因而理论上其甲烷碳同位素计算的成熟度应该与源岩的实际成熟度一致. 四川盆地东缘焦石坝地区上奥陶-下志留统五峰-龙马溪组页岩成熟度基本上在镜质体反射率2.5~3.5% (董大忠等, 2010; 王玉满等, 2018; 王晔等, 2019)，页岩气干燥系数为0.99，甲烷碳同位素δ^{13}C值在−32.2~−29.4‰，平均−30.53‰ (刘若冰, 2015; 戴金星等, 2016b). 由表4可见，本文构建的油型气公式计算的成熟度与源岩成熟度基本一致，而其他油型气公式计算成熟度在3.77~6.46%，平均值均在4.7%以上，明显高于页岩的实际成熟度.

5.4　公式适用性

理论上，油气藏中天然气碳同位素组成与聚集成藏过程密切相关(Stahl, 1974; Galimov, 1988, 2006; 沈平等, 1987; Schoell, 1988; 徐永昌等, 1994; 刘文汇和徐永昌, 1999)，即使是同一套烃源岩，由于生烃成藏阶段不同或过程不同，天然气的碳同位素组成也会出现差异. 如果气藏中只聚集了干酪根生成天然气的一部分，其碳同位素组成通常比连续聚集成藏的天然气偏重(Rooney等, 1995; Tang等, 2000). 因此，天然气甲烷碳同位素组成与源岩镜质体反射率之间关系经验公式的适用性不仅与构建公式所用资料及方法相关，而且与天然气成藏过程也密切相关. 以往不同学者在不同时期提出的经验公式都是根据盆地实际资料构建的，有其适用的地质地球化学条件和区域. Galimov(1988, 2006)、刘文汇和徐永昌(1999)认为Stahl(1977)的煤成气经验公式适用于“瞬时”成藏的天然气，而戴金星等

(1987)和沈平等(1987)的经验公式适用于连续生烃与聚集成藏的天然气. 沈平等(1987)也明确说明其经验关系公式适合于连续沉降生烃的盆地. Schoell(1980)构建煤成气经验公式的数据来源与Stahl(1977)基本相同, 因而也只是适用于大幅度抬升剥蚀后再次埋藏生烃聚集了晚期阶段天然气的情况(也即所谓的"瞬时"成藏天然气); 刘文汇和徐永昌(1999)的经验公式则考虑了低成熟和高成熟阶段天然气生成可能存在差异性, 并且更关注低成熟阶段天然气碳同位素组成与成熟度的关系, 可能更适用于低成熟阶段的天然气.

准噶尔盆地西北缘、南缘及吐哈盆地吐鲁番坳陷, 均为连续埋藏热演化生烃的坳陷, 天然气藏中的天然气属于连续埋藏生烃过程中随机聚集成藏过程的产物. 因此, 本文构建的经验公式总体上适用于连续埋藏热演化生烃的沉积盆地和凹陷. 同时, 由前文我国主要含油气盆地典型天然气藏计算成熟度与实际气源岩成熟度的验证结果可见, 本文构建的油型气、煤成气及混合气方程对于我国大多数连续沉降埋藏生烃的含油气盆地或者虽然有抬升剥蚀但气藏没有遭受严重次生改造地区的有机热成因天然气具有较好的适用性. 对于一些地球化学研究证明生烃母质碳同位素组成确实存在特殊性的盆地, 如盐湖相沉积有机质或石炭系煤系有机质, 可能需要适当调整公式的截距. 此外, 对于只是捕获了非常有限生烃阶段的天然气、或者经历过严重抬升剥蚀又再次埋藏二次生烃、仅仅捕获了源岩在高过成熟阶段生成的天然气的情况, 本文的经验公式可能会出现一定的偏差甚至较大幅度的偏差; 遭受了明显次生生物改造、碳同位素组成出现明显异常的天然气也不能使用这些经验公式判识其成熟度.

需要指出的是, 任何经验公式只是提供了一种判识天然气及其源岩成熟度的工具, 究竟应用什么公式计算天然气及其源岩的成熟度, 需要根据实际区域地质地球化学特征来选择, 而不是机械地套用公式, 而且最终计算结果正确与否需要根据实际地质条件去判断.

6 结论

(1) 准噶尔盆地西北缘地区二叠系湖相烃源岩有机质生成的天然气具有轻的碳同位素组成, 属于典型的油型气. 吐哈盆地吐鲁番坳陷和准噶尔盆地南缘侏罗系煤系有机质生成的天然气具有较重的碳同位素组成, 属于典型的煤成气.

(2) 按照经典生烃模式、典型区域实际地质条件下烃源岩热演化成熟度及相应天然气碳同位素组成, 构建了油型气和煤成气甲烷碳同位素组成与气源岩镜质体反射率关系公式, 油型气$\delta^{13}C_1=25\lg R_o-42.5$或$\lg R_o=0.04\delta^{13}C_1+1.7$, 煤成气$\delta^{13}C_1=25\lg R_o-37.5$或$\lg R_o=0.04\delta^{13}C_1+1.5$.

(3) 本文构建的油型气和煤成气甲烷碳同位素组成与源岩成熟度关系公式适用于绝大多数以连续埋藏热演化生烃为主的含油气盆地有机热成因天然气, 对于异常轻或异常重碳同位素组成母质生成的天然气或只是聚集了某一阶段天然气的情况可能会出现偏差甚至较大幅度偏差, 需要根据生烃母质的碳同位素组成或者地质地球化学条件适当调整计算公式.

致谢 中国石油勘探开发研究院、新疆油田公司对本文依托项目的完成提供了大力支持与帮助, 张越迁博士、蒋宜勤博士、廖健德高工等提供了大量地质与地球化学资料, 在此一并致以诚挚的感谢.

参考文献

曹剑, 雷德文, 李玉文, 唐勇, 阿布力米提, 常秋生, 王婷. 2015. 古老碱湖优质烃源岩: 准噶尔盆地下二叠统风城组. 石油学报, 36: 781–790

陈建平, 黄第藩, 李晋超, 秦勇. 1999. 吐哈盆地侏罗纪煤系油气主力源岩探讨. 地质学报, 73: 140–152

陈建平, 王绪龙, 邓春萍, 梁狄刚, 张越迁, 赵喆, 支东明, 倪云燕, 杨海波, 王屿涛. 2016a. 准噶尔盆地烃源岩与原油地球化学特征. 地质学报, 90: 37–67

陈建平, 王绪龙, 邓春萍, 梁狄刚, 张越迁, 赵喆, 支东明, 倪云燕, 杨海波, 王屿涛. 2016b. 准噶尔盆地油气源、油气分布与油气系统. 地质学报, 90: 421–450

陈建平, 王绪龙, 邓春萍, 赵喆, 倪云燕, 孙永革, 杨海波, 王汇彤, 梁狄刚. 2016c 准噶尔盆地南缘油气生成与分布规律——典型原油油源对比. 石油学报, 37: 160–171

陈建平, 王绪龙, 邓春萍, 赵喆, 倪云燕, 孙永革, 杨海波, 王汇彤, 梁狄刚. 2016d. 准噶尔盆地南缘油气生成与分布规律——典型油藏油源解剖与原油分布规律. 石油学报, 37: 415–429

陈建平, 王绪龙, 邓春萍, 赵喆, 倪云燕, 孙永革, 杨海波, 王汇彤, 梁狄刚. 2015a. 准噶尔盆地南缘油气生成与分布规律——原油地球化学特征与分类. 石油学报, 36: 1315–1331

陈建平, 王绪龙, 邓春萍, 赵喆, 倪云燕, 孙永革, 杨海波, 王汇彤, 梁

狄刚, 朱如凯, 彭希龄. 2015b. 准噶尔盆地南缘油气生成与分布规律—烃源岩地球化学特征与生烃史. 石油学报, 36: 767–780
陈建平, 王绪龙, 倪云燕, 向宝力, 廖凤蓉, 廖键德. 2019a. 准噶尔盆地南缘天然气成藏及勘探方向. 地质学报, 93: 1002–1019
陈建平, 王绪龙, 倪云燕, 向宝力, 廖凤蓉, 廖键德, 赵长毅. 2019b. 准噶尔盆地南缘天然气成因类型与气源. 石油勘探与开发, 46: 461–473
陈建平, 赵长毅, 王兆云, 何忠华, 秦勇. 1998. 西北地区侏罗纪煤系烃源岩和油气地球化学特征. 地质论评, 44: 149–159
程克明. 1994. 吐哈盆地油气生成. 北京: 石油工业出版社. 1–199
达江, 胡咏, 赵孟军, 宋岩, 向宝力, 秦胜飞. 2010. 准噶尔盆地克拉美丽气田油气源特征及成藏分析. 石油与天然气地质, 31: 187–192
戴金星. 1992a. 各类烷烃气的鉴别. 中国科学B辑: 化学 生命科学 地学, 22: 185–193
戴金星. 1992b. 各类天然气的成因鉴别. 中国海上油气, 6: 11–19
戴金星. 2011. 天然气中烷烃气碳同位素研究的意义. 天然气工业, 33: 1–6
戴金星. 2019. 中国陆上四大天然气产区. 天然气与石油, 37: 1–6
戴金星, 李剑, 罗霞, 张文正, 胡国艺, 马成华, 郭建民, 葛守国. 2005. 鄂尔多斯盆地大气田的烷烃气碳同位素组成特征及其气源对比. 石油学报, 26: 18–26
戴金星, 倪云燕, 李剑, 胡国艺, 朱光有. 2008. 塔里木盆地和准噶尔盆地烷烃气碳同位素类型及其意义. 新疆石油地质, 29: 403–410
戴金星, 倪云燕, 邹才能, 陶士振, 胡国艺, 胡安平, 杨春, 陶小晚. 2009. 四川盆地须家河组煤系烷烃气碳同位素特征及气源对比意义. 石油与天然气地质, 30: 519–530
戴金星, 倪云燕, 黄士鹏. 2010. 四川盆地黄龙组烷烃气碳同位素倒转成因的探讨. 石油学报, 31: 710–717
戴金星, 倪云燕, 胡国艺, 黄士鹏, 廖凤蓉, 于聪, 龚德瑜, 吴伟. 2014a. 中国致密砂岩大气田的稳定碳氢同位素组成特征. 中国科学: 地球科学, 44: 563–578
戴金星, 倪云燕, 黄士鹏, 廖凤蓉, 于聪, 龚德瑜, 吴伟. 2014b. 煤成气研究对中国天然气工业发展的重要意义. 天然气地球科学, 26: 1–22
戴金星, 倪云燕, 张文正, 黄士鹏, 龚德瑜, 刘丹, 冯子齐. 2016a. 中国煤成气湿度和成熟度关系. 石油勘探与开发, 43: 675–677
戴金星, 倪云燕, 黄士鹏, 龚德瑜, 刘丹, 冯子齐, 彭威龙, 韩文学. 2016b. 次生型负碳同位素系列成因. 天然气地球科学, 27: 1–7
戴金星, 倪云燕, 廖凤蓉, 洪峰, 姚立邈. 2019a. 煤成气在产气大国中的重大作用. 石油勘探与开发, 46: 417–432
戴金星, 秦胜飞, 胡国艺, 倪云燕, 甘利灯, 黄士鹏, 洪峰. 2019b. 新中国天然气勘探开发70年来的重大进展.石油勘探与开发, 46: 1037–1046
戴金星, 裴锡古, 戚厚发. 1992. 中国天然气地质学(卷一). 北京: 石油工业出版社. 1–298
戴金星, 戚厚发. 1989. 我国煤成烃气的δ^{13}C-R_o关系. 科学通报, 34: 690–692
戴金星, 宋岩, 程坤芳, 洪峰, 樊广峰. 1993. 中国含油气盆地有机烷烃气碳同位素特征. 石油学报, 14: 23–31
戴金星, 宋岩, 关德师, 甘利灯. 1987. 鉴别煤成气的指标. 见: 戴金星文集(卷三). 北京: 科学出版社. 156–157
戴金星, 夏新宇, 卫延召, 陶士振. 2001. 四川盆地天然气的碳同位素特征. 石油实验地质, 23: 115–121
戴金星, 吴小奇, 倪云燕, 汪泽成, 赵长毅, 王兆云, 刘桂侠. 2012. 准噶尔盆地南缘泥火山天然气的地球化学特征. 中国科学: 地球科学, 42: 178–190
董大忠, 程克明, 王玉满, 李新景, 王社教, 黄金亮. 2010. 中国上扬子区下古生界页岩气形成条件及特征. 石油与天然气地质, 31: 288–308
胡安平, 李剑, 张文正, 李志生, 侯路, 刘全有. 2007. 鄂尔多斯盆地上、下古生界和中生界天然气地球化学特征及成因类型对比. 中国科学(D辑): 地球科学, 37: 157–166
胡国艺, 汪为胜, 廖凤蓉. 2012. 煤成气轻烃地球化学特征及其影响因素—以四川盆地须家河组为例. 岩石学报, 28: 905–916
黄士鹏, 段书府, 汪泽成, 江青春, 姜华, 苏旺, 冯庆付, 黄彤飞, 袁苗, 任梦怡, 陈晓月. 2019. 烷烃气稳定氢同位素组成影响因素及应用. 石油勘探与开发, 46: 496–508
李登华, 李伟, 汪泽成, 杨家静. 2007. 川中广安气田天然气成因类型及气源分析. 中国地质, 34: 829–836
李剑, 谢增业, 李志生, 罗霞, 胡国艺, 宫色. 2001. 塔里木盆地库车坳陷天然气气源对比. 石油勘探与开发, 28: 29–32
李贤庆, 肖贤明, 唐永春, 肖中尧, 米敬奎, 刘德汉, 申家贵. 2005a. 天然气甲烷碳同位素动力学研究及其应用: 以塔里木盆地库车坳陷克拉2气田为例. 高校地质学报, 11: 137–144
李贤庆, 肖贤明, 唐永春, 肖中尧, 米敬奎, 田辉, 刘德汉, 申家贵, 刘金钟. 2005b. 应用碳同位素动力学方法探讨阿克1气藏天然气的来源. 地球化学, 34: 525–532
李贤庆, 肖中尧, 胡国艺, 田辉, 周强. 2005c. 库车坳陷天然气地球化学特征和成因. 新疆石油地质, 26: 31–34
梁狄刚, 陈建平, 张宝民, 张水昌, 王飞宇, 赵孟军. 2004. 塔里木盆地库车坳陷陆相油气的生成. 北京: 石油工业出版社. 1–265
刘全有, 戴金星, 金之钧, 李剑. 2009. 塔里木盆地前陆区和台盆区天然气的地球化学特征及成因. 地质学报, 83: 107–114
刘全有, 秦胜飞, 李剑, 刘文汇, 张殿伟, 周庆华, 胡安平. 2007. 库车坳陷天然气地球化学以及成因类型剖析. 中国科学D辑: 地球科学, 37: 149–156
刘若冰. 2015. 中国首个大型页岩气田典型特征. 天然气地球科学, 26: 1488–1498
刘文汇, 腾格尔, 张中宁, 罗厚勇, 张殿伟, 王杰, 李立武, 高波, 卢龙飞, 赵恒. 2017. 四川盆地高硫天然气成藏机理的同位素研究. 中国科学: 地球科学, 47: 166–178
刘文汇, 徐永昌. 1999. 煤成气碳同位素演化二阶段分馏模式及机理.

地球化学, 28: 359–366
刘文汇, 张殿伟, 郑建京, 陈孟晋, 王晓锋, 高波. 2005. 地球化学动态示踪油气成藏过程初探——以库车坳陷大宛齐构造为例. 石油与天然气地质, 26: 717–723
刘新社, 席胜利, 付金华, 王涛, 王欣. 2000. 鄂尔多斯盆地上古生界天然气生成. 天然气工业, 20: 19–23
罗渝然. 2005. 化学键能数据手册. 北京: 科学出版社. 1–397
秦胜飞, 李先奇, 肖中尧, 李梅, 张秋茶. 2005. 塔里木盆地天然气地球化学及成因与分布特征. 石油勘探与开发, 35: 70–78
沈平, 申歧祥, 王先彬, 徐永昌. 1987. 气态烃同位素组成特征及煤成气判识. 中国科学(B辑), 17: 647–656
沈平, 徐永昌. 1991. 中国陆相成因天然气同位素组成特征. 地球化学, 20: 144–152
沈平, 王晓锋, 王志勇, 孟仟祥, 徐永昌. 2010. 吐哈盆地天然气轻烃地球化学特征与低熟气判识. 科学通报, 55: 2307–2311
王昌桂, 程克明, 徐永昌. 1998. 吐哈盆地侏罗系煤成烃地球化学. 北京: 科学出版社. 1–342
王飞宇, 张水昌, 张宝民, 赵孟军. 1999. 塔里木盆地库车坳陷中生界烃源岩有机质成熟度. 新疆石油地质, 20: 221–224
王兰生, 陈盛吉, 杜敏, 张鉴, 谢邦华, 李子荣. 2008. 四川盆地三叠系天然气地球化学特征及资源潜力分析. 天然气地球科学, 19: 222–228
王小军, 王婷婷, 曹剑. 2018. 玛湖凹陷风城组碱湖烃源岩基本特征及其高效生烃. 新疆石油地质, 39: 9–15
王晓锋, 刘文汇, 徐永昌, 郑建京, 张殿伟, 南青云. 2005. 塔里木盆地天然气碳、氢同位素地球化学特征. 石油勘探与开发, 32: 55–58
王绪龙, 赵孟军, 向宝力, 达江, 蒋宜勤, 刘翠敏. 2010. 准噶尔盆地陆东-五彩湾地区石炭系烃源岩. 石油勘探与开发, 37: 523–530
王绪龙, 支东明, 王屿涛, 陈建平, 秦志军, 刘德光, 向英, 蓝文芳, 李娜. 2013. 准噶尔盆地烃源岩与油气地球化学. 北京: 石油工业出版社. 1–565
王晔, 邱楠生, 仰云峰, 芮晓庆, 周圆圆, 方光建, 吴航, 申宝剑, 程礼军, 腾格尔. 2019. 四川盆地五峰-龙马溪组页岩成熟度研究. 地球科学, 44: 953–971
王玉满, 李新景, 陈波, 吴伟, 董大忠, 张鉴, 韩京, 马杰, 代兵, 王浩, 蒋珊. 2018. 海相页岩有机质炭化的热成熟度下限及勘探风险. 石油勘探与开发, 45: 385–395
王招明, 赵孟军, 张水昌, 宋岩, 肖中尧, 王清华, 秦胜飞. 2005. 塔里木盆地西部阿克莫木气田形成初探. 地质科学, 40: 237–247
魏国齐, 杜金虎, 徐春春, 邹才能, 杨威, 沈平, 谢增业, 张健. 2015a. 四川盆地高石梯-磨溪地区震旦系-寒武系大型气藏特征与聚集模式. 石油学报, 42: 1–12
魏国齐, 谢增业, 宋家荣, 杨威, 王志宏, 李剑, 王东良, 李志生, 谢武仁. 2015b. 四川盆地川中古隆起震旦系-寒武系天然气特征及成因. 石油勘探与开发, 42: 283–292
魏国齐, 谢增业, 白贵林, 李剑, 王志宏, 李爱国, 李志生. 2014. 四川盆地震旦系-下古生界天然气地球化学特征及成因判识. 天然气工业, 34: 44–49
肖中尧, 崔会英, 谢增业, 马德明. 2007. 塔里木盆地台盆区天然气地球化学特征. 天然气地球科学, 18: 782–788
徐永昌等. 1994. 天然气成因理论及应用. 北京: 科学出版社. 1–414
徐永昌, 王志勇, 王晓锋, 郑建京, 杜宏宇. 2008. 低熟气及我国典型低熟气田. 中国科学(D辑): 地球科学, 38: 87–93
杨华, 张文正, 昝川莉, 马军. 2009. 鄂尔多斯盆地东部奥陶系盐下天然气地球化学特征. 天然气地球科学, 20: 8–14
于聪, 龚德瑜, 黄士鹏, 吴伟, 廖凤蓉, 刘丹. 2014. 四川盆地须家河组天然气碳、氢同位素特征及其指示意义. 天然气地球科学, 25: 87–97
翟俪娜, 倪云燕, 吴朝东, 高金亮. 2017. 川中地区须家河组天然气地球化学特征. 天然气地球科学, 28: 539–549
张君峰, 王东良, 王招明, 李欣, 苏雪峰. 2005. 喀什凹陷阿克莫木气田天然气成藏地球化学. 天然气地球科学, 16: 507–513
张秋茶, 王福焕, 肖中尧, 卢玉红, 吴懿. 2003. 阿克1井天然气气源探讨. 天然气地球科学, 14: 484–487
赵孟军, 卢双舫, 李剑. 2002. 库车油气系统天然气地球化学特征及气源探讨. 石油勘探与开发, 29: 4–7
赵孟军, 夏新宇, 秦胜飞, 宋岩, 柳少波, 刘胜, 邱斌, 杨芝林. 2003. 塔里木盆地阿克1井气藏气源研究. 天然气工业, 23: 31–33
赵孟军, 潘文庆, 张水昌, 韩剑发. 2004. 成藏过程对天然气地球化学特征的控制作用. 沉积学报, 22: 683–688
赵孟军, 王招明, 宋岩, 张水昌, 肖中尧, 王清华, 秦胜飞. 2005. 塔里木盆地喀什凹陷油气来源及其成藏过程. 石油勘探与开发, 32: 50–54
支东明, 曹剑, 向宝力, 秦志军, 王婷婷. 2016. 玛湖凹陷风城组碱湖烃源岩生烃机理及资源量新认识. 新疆石油地质, 37: 499–506
Chen J F, Xu Y C, Huang D F. 2000. Geochemical characteristics and origin of natural gas in Tarim Basin. AAPG Bull, 84: 591–606
Chen J P, Qin Y, Huff B G, Wang D R, Han D X, Huang D F. 2001. Geochemical evidence for mudstone as the possible major oil source rock in the Jurassic Turpan Basin, Northwest China. Org Geochem, 32: 1103–1125
Galimov E M. 1988. Sources and mechanisms of formation of gaseous hydrocarbons in sedimentary rocks. Chem Geol, 71: 77–95
Galimov E M. 2006. Isotope organic geochemistry. Org Geochem, 37: 1200–1262
Hunt J M. 1979. Petroleum Geochemistry and Geology. San Francisco: W. H. Freeman. 617
Hu G Y, Yu C, Ni Y Y, Huang S P, Tian X W. 2013. Comparative study of stable carbon and hydrogen isotopes of alkane gases sourced from the Longtan and Xujiahe coal-bearing measures in the Sichuan Basin, China. Int J Coal Geol, 116-117: 293–301
James A T. 1983. Correlation of natural gas by use of carbon isotopic

distribution between hydrocarbon components. AAPG Bull, 67: 1176–1191

Liu Q Y, Dai J X, Li J, Zhou Q H. 2008. Hydrogen isotope composition of natural gases from the Tarim Basin and its indication of depositional environments of the source rocks. Sci China Ser D-Earth Sci, 51: 300–311

Ni Y, Dai J, Zhu G, Zhang S, Zhang D, Su J, Tao X, Liao F, Wu W, Gong D, Liu Q. 2013. Stable hydrogen and carbon isotopic ratios of coal-derived and oil-derived gases: A case study in the Tarim basin, NW China. Int J Coalgeol, 116-117: 302–313

Ni Y Y, Liao F R, Dai J X, Zou C N, Wu X Q, Zhang D J, Huang S P, Chen R Y, Wang T S. 2014. Studies on gas origin and gas source correlation using stable carbon isotopes—A case study of the giant gas fields in the Sichuan Basin, China. Energy Explor Exploit, 32: 41–74

Ni Y, Zhang D, Liao F, Gong D, Xue P, Yu F, Yu J, Chen J, Zhao C, Hu J, Jin Y. 2015. Stable hydrogen and carbon isotopic ratios of coal-derived gases from the Turpan-Hami Basin, NW China. Int J Coalgeol, 152: 144–155

Rooney M A, Claypool G E, Chung H M. 1995. Modeling thermogenic gas generation using carbon isotope ratios of natural gas hydrocarbons. Chem Geol, 126: 219–232

Schoell M. 1980. The hydrogen and carbon isotopic composition of methane from natural gases of various origins. Geochim Cosmochim Acta, 44: 649–661

Schoell M. 1983. Genetic characterization of natural gases. AAPG Bull, 67: 2225–2238

Schoell M. 1988. Multiple origins of methane in the earth. Chem Geol, 71: 1–10

Stahl W J. 1974. Carbon isotope fractionations in natural gases. Nature, 251: 134–135

Stahl W J, Carey B D Jr.. 1975. Source-rock identification by isotope analyses of natural gases from fields in the Val Verde and Delaware basins, west Texas. Chem Geol, 16: 257–267

Stahl W J. 1977. Carbon and nitrogen isotopes in hydrocarbon research and exploration. Chem Geol, 20: 121–149

Tang Y, Perry J K, Jenden P D, Schoell M. 2000. Mathematical modeling of stable carbon isotope ratios in natural gases. Geochim Cosmochim Acta, 64: 2673–2687

Tissot B P, Welte D H. 1984. Petroleum Formation and Occurrence. 2nd ed. Berlin, Heidelberg, New York: Springer-Vevlag. 1−699

Whiticar M J. 1990. A geochemial perspective of natural gas and atmospheric methane. Org Geochem, 16: 531–547

Whiticar M J. 1994. Correlation of natural gases with their sources. In: Magoon L, Dow W, eds. The Petroleum System—From Source to Trap. AAPG Memoir, 60: 261–284

Whiticar M J. 1996. Stable isotope geochemistry of coals, humic kerogens and related natural gases. Int J Coalgeol, 32: 191–215

Whiticar M J. 1999. Carbon and hydrogen isotope systematics of bacterial formation and oxidation of methane. Chem Geol, 161: 291–314

Xiao X M, Zeng Q H, Tian H, Wilkins R W T, Tang Y C. 2005. Origin and accumulation model of the AK-1 natural gas pool from the Tarim Basin, China. Org Geochem, 36: 1285–1298

(责任编委: 谢树成)