

文章编号: 0258-7106 (2013) 05-1035-10

青海祁连山冻土区天然气水合物的气源条件及其指示意义*

卢振权^{1,2}, 祝有海^{1,2}, 张永勤³, 刘 晖^{1,2}, 王 婷²

(1 中国地质科学院矿产资源研究所, 北京 100037; 2 中国地质调查局油气资源调查中心, 北京 100029;
3 中国地质科学院勘探技术研究所, 河北 廊坊 065000)

摘 要 祁连山木里冻土区天然气水合物的气源条件还不清楚,这直接影响到下一步的勘查方向。文章试图以 DK-2 天然气水合物钻孔为例,从天然气水合物及其相关气体组成与同位素特征入手,对比分析天然气水合物产出层段的泥岩、油页岩、煤、油气显示等有机地球化学特征,探讨该区天然气水合物的气源条件及其对天然气水合物勘查的指示意义。该区天然气水合物所在层段的泥岩、油页岩、煤的有机质丰度、类型、热演化程度等参数显示,它们不能成为天然气水合物的主要气源岩层。结合天然气水合物及相关气体组成与同位素特征,判断该区天然气水合物的气体来源可能主要为深部石油(原油)伴生气或深部气源岩层的成熟-过成熟气。该区油气显示现象与天然气水合物密切伴生,或可作为天然气水合物的指示标志。

关键词 天然气水合物;气源条件;指标意义;祁连山冻土;青海

中图分类号 P618.13

文献标志码 A

Gas source conditions for gas hydrate in Qilian Mountain permafrost of Qinghai and their implications

LU ZhenQuan^{1,2}, ZHU YouHai^{1,2}, ZHANG YongQin³, LIU Hui^{1,2} and WANG Ting²

(1 Institute of Mineral Resources, Chinese Academy of Geological Sciences, Beijing 100037, China; 2 Oil & Gas Survey, China Geological Survey, Beijing 100029, China; 3 Institute of Exploration Techniques, Chinese Academy of Geological Sciences, Langfang 065000, Hebei, China)

Abstract

Gas source conditions for gas hydrate in Muli of Qilian Mountain permafrost are not clear, which will obviously affect the direction of its further exploration. With a case study of the gas hydrate in drill hole DK-2, the authors investigated organic geochemical features of mudstone, oil shale, coal, oil and gas indications in relation to the gas hydrate, in consideration of gas composition and isotopic characteristics of gas hydrate and its relevant gas. The aim of this study is to discuss gas source conditions for gas hydrate and their implications for gas hydrate exploration in the study area. Parameters for the abundance, type and thermal evolution of organic matter in mudstone, oil shale and coal in the same interval of gas hydrate indicate that they failed to become the major gas source rock for gas hydrate. In combination with gas composition and isotopic characteristics of gas hydrate and its relevant gases, the authors hold that the gas source for gas hydrate was mainly from deep oil (crude oil).

* 本文得到国家自然科学基金项目(41073040 和 41202076)、国家重点基础研究发展计划项目(2009CB219501)、天然气水合物勘查与试采专项项目(GZHL20110311)、中央公益性科研院所基本科研业务费专项基金项目(K1207)共同资助

第一作者简介 卢振权,男,1972 年生,博士,研究员,从事天然气水合物地球化学勘查等研究。Email: luzhq@vip.sina.com

收稿日期 2012-07-02; 改回日期 2013-07-01。张绮玲编辑。

associated gases or from mature to highly mature gases of deep source rock in the study area, and that oil and gas indications are closely associated with gas hydrate, which may serve as a sign of gas hydrate in the study area.

Key words: gas hydrate, gas source conditions, implication, Qilian Mountain permafrost, Qinghai

天然气水合物(简称水合物)是由水和重量轻的气体分子(如甲烷、乙烷、丙烷、异丁烷、硫化氢、二氧化碳等)在低温(70~350 K,一般在 273.15 K 左右)、高压(一般大于 3~5 MPa)、气体浓度大于其溶解度条件下形成的一种结晶状固体物质(Sloan et al., 2008),因外貌像冰,点火可以燃烧,故俗称“可燃冰”。在自然界中,水合物通常分布于水深大于 300 m 的海底沉积物中(Sloan et al., 2008)或地表 130 m 以下的多年冻土区中(史斗等,1999)。因其巨大的经济意义(Sloan et al., 2008),加之潜在的环境反馈效应(Dickens, 2004)及可能的海底灾害(Mienert et al., 2005)或钻井平台安全(McConnell et al., 2012)影响,水合物已成为一项热点调查研究领域。

自从上世纪 60 年代前苏联在开发西西伯利亚 Messoyakha 气田时发现第一个水合物藏(史斗等,1999)以来,已在加拿大 Mallik 冻土区(Dallimore et al., 2005)、美国阿拉斯加 Elbert 山冻土区(Collett et al., 2011),及各国近海如最近在韩国东部近海(Kim et al., 2011)、印度近海(Shankar et al., 2011)、新西兰近海(Schwalenberg et al., 2010)纷纷发现大量水合物藏。到目前为止,水合物产地或异常区达 230 余处(Makogon, 2010)。

中国除南海北部陆坡于 2007 年钻获到水合物(吴能友等,2009)外,也在祁连山冻土区于 2008 年首次钻采到水合物实物样品(Lu et al., 2011),实现了陆上冻土区水合物的勘查突破(祝有海等,2009)。目前,在祁连山冻土区共钻探 DK-1、DK-2、DK-3、DK-4、DK-5、DK-6、DK-7、DK-8 等 8 口水合物孔,其中,钻到水合物样品的 DK-1、DK-2、DK-3、DK-7、DK-8 等钻孔彼此相距最大不到 30 m,而与它们相距较远的(几百米至 1000 m)DK-4、DK-5、DK-6 等钻孔并未直接钻遇水合物,只观察到与水合物相关的异常现象(卢振权等,2010a),这一方面说明水合物分布较为复杂(卢振权等,2010b;2013),另一方面说明对水合物成藏控制因素还缺乏足够的了解。

前人研究认为,只要温度和压力条件合适且气源充足时就可形成水合物(Dickens, 2004)。对祁连山冻土区而言,气源条件可能是水合物形成的一个

重要制约因素。通过对祁连山冻土区水合物气体组成和同位素比值的分析,表明其具热解成因气的特征(卢振权等,2010c),甚至可能与煤层气有关(祝有海等,2010)。其中值得注意的是,钻探结果揭示,祁连山冻土区水合物产出层段既是煤系地层,同时又常见油页岩分布,并且各种油气显示现象(油斑、油浸、油染等)常与水合物伴生(卢振权等,2010b;2013)。祁连山冻土区水合物气源到底与煤层有关,还是与泥岩、油页岩有关,抑或与油气显示有关,不仅是一个需要探索的科学问题,而且对水合物具有重要指示意义,可直接决定水合物的勘查方向。本文试图从有机岩石学和有机地球化学(岩石热解)入手,根据水合物及相关气体组成与同位素特征,借助常规天然气的成因与来源判别图解,探讨祁连山冻土区水合物的气体来源与煤、泥岩、油页岩、油气显示等有机质演化之间的联系。

1 祁连山木里冻土区地质概况

祁连山地处青藏高原东北部,大地构造单元分为北祁连构造带(河西走廊、走廊南山)、中祁连陆块(托莱山)和南祁连构造带等 3 大构造单元(冯益民,1997)。本次钻探的 DK-1、DK-2、DK-3、DK-4、DK-5、DK-6、DK-7、DK-8 孔,位于祁连山木里冻土区,属木里煤田三露天矿区,大地构造上处于加里东构造运动期(513~386 Ma)形成的中祁连陆块西段,邻近南祁连构造带(张雪亭等,2007)(图 1a),从属南祁连盆地的木里坳陷(符俊辉等,1998;2000)。木里煤田是青海省最大的煤田,主要为一套侏罗系陆相含煤地层(文怀军等,2006)。区内中部为三叠系地层组成的一个背斜,南、北两侧为侏罗系含煤地层组成的两个向斜(文怀军等,2011)。该背向斜的南、北两侧发育规模较大的逆推断裂,致使南、北两个向斜内发育北东向规模较大的剪切断裂,将凹陷切割成断续的不同块段,呈现南北分带、东西分区的构造特征。

钻探区出露的地层除第四系外,主要包括中侏罗统江仓组(J_2j)和木里组(J_2m),大致对应于区域上的享堂组(J_2x)和窑街组(J_2y)(文怀军等,2011)。它们均含多个可采煤层,其中,前者以黑色、灰色油

页岩(页岩)、泥岩为主,夹灰色粉砂岩、细砂岩、中砂岩;后者以灰色、灰白色粉砂岩、细砂岩、中砂岩、(含砾)粗砂岩为主,夹深灰色泥岩、油页岩。

钻孔揭示水合物主要产在深度为 133~396 m 间,呈肉眼可见的白色冰状薄层(混有泥浆时为烟灰色)出露在岩层的裂隙中,或呈肉眼难辨的微细浸染

状产出在岩层的孔隙中,所在层段的岩性主要为泥岩、油页岩、粉砂岩、细砂岩等;相反,中砂岩、粗砂岩中则较少见到天然气水合物。可以看出,该区天然气水合物的产出与砂岩关系不大,相反,与断裂关系较为密切,同时受控于水合物的稳定带条件,特别是受冻土基本特征的约束(卢振权等,2010b)。

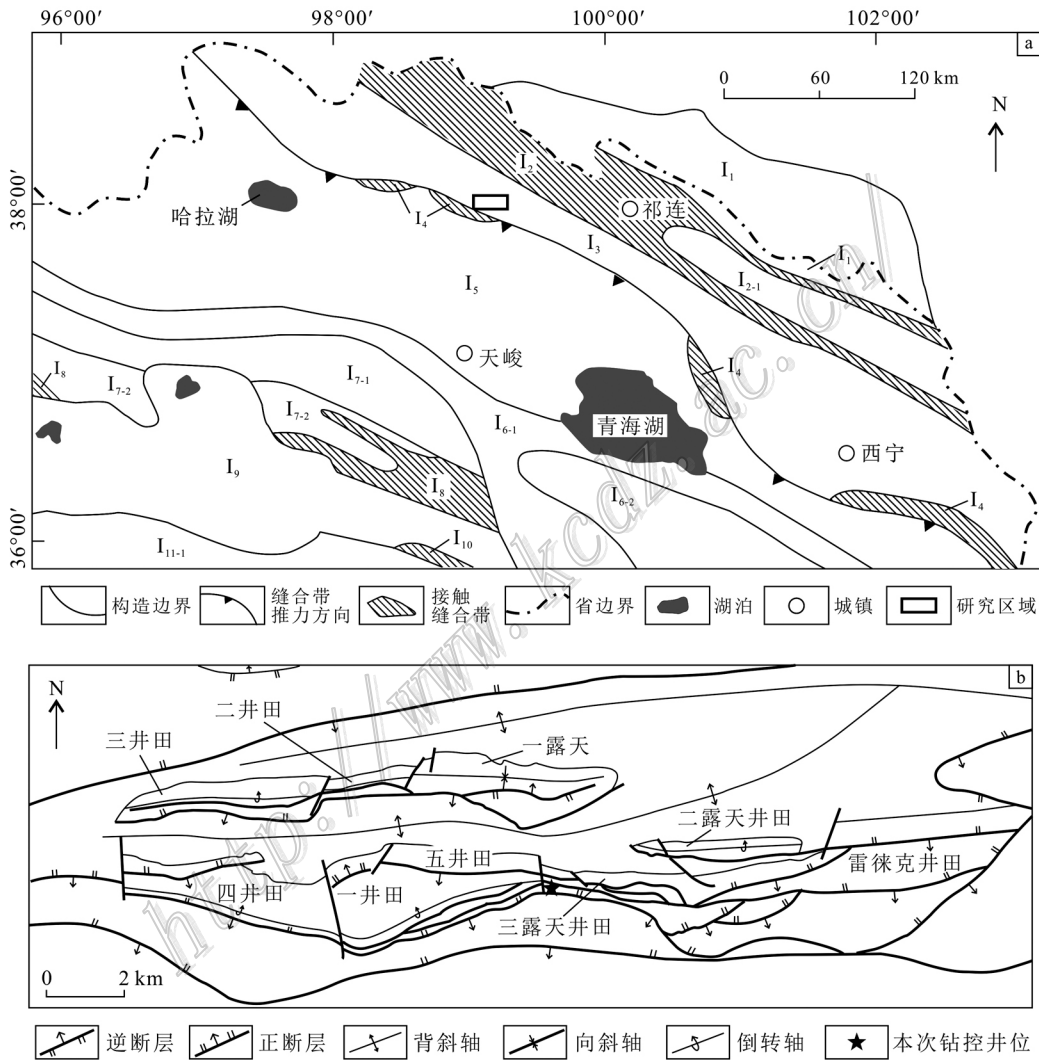


图 1 钻探区大地构造单元背景下(a)的构造纲要图(b)(张雪亭等,2007;文怀军等,2011)

I₁—阿拉善陆块; I₂—北祁连新元古代—早古生代缝合带; I₂₋₁—祁连-门源早古生代中晚期岩浆弧带(O—S); I₃—中祁连陆块; I₄—疏勒南山-拉鸡山早古生代缝合带; I₅—南祁连陆块

Fig. 1 Structural outline map (b) in relation to the background of tectonic units (a) of the drilling area (Zhang et al. , 2007; Wen et al. , 2011)

I₁—Alxa continental block; I₂—North Qilian Neoproterozoic-Early Palaeozoic suture zone; I₂₋₁—Qilian-Menyan Early Palaeozoic middle-late magmatic arc belt (O—S); I₃—Middle Qilian continental block; I₄—South Shule Mountain-Laji Mountain Early Palaeozoic suture zone; I₅—South Qilian continental block

2 样品与分析

本次在 DK-2 孔共采到泥岩样品与油页岩样品 98 件、煤岩样品 8 件。采样深度位于孔口以下 9.7 ~ 642.2 m 之间,采样间隔一般 3~5 m,平均约 4 m。泥岩呈深灰色、灰黑色、黑色,部分样品含一定量粉砂;油页岩呈褐色、黑褐色、灰褐色;煤岩呈黑色块状或粉状。室内对样品分别进行了有机显微组分观察与镜质体(组)反射率测定,以及总有机碳含量(TOC)分析、生油岩热解(Rock-Eval)分析、有机质碳同位素分析,部分样品还开展了氯仿抽提与簇组分分析、干酪根元素与碳同位素分析。煤样有机显微组分及镜质体反射率测定在国家煤炭质量监督检验中心完成,其余分析测试均在中国石油勘探开发研究院石油地质实验研究中心完成。

煤的镜质组反射率测定过程中样品处理依据标准:GB/T6948-2008;显微镜型号:LEICA DM 2500P;光度计型号:MSP200;浸油(Ne):1.518;物镜 50×;室温(℃):20;煤的显微组分观察依据标准:GB/T 8899-1998;显微镜型号:LEICA DM 2500P;测试条件:油浸反光,单偏光,10×,50×,点、行距 0.4 mm×0.6 mm。

岩石热解和有机碳测定执行标准:沉积岩中总有机碳测定过程中样品处理依据标准 GB/T19145-2003、岩石热解分析方法标准依据 GB/T18602-2001;使用仪器:有机碳分析使用 LECO CS-400 碳硫分析仪,岩石热解分析使用 Rock-Eval 2 Plus(法国);测试条件:热解分析(邬立言,1986),300℃恒温 3 分钟分析 S₁,在 300~600℃温度范围 50℃/分钟程序升温分析 S₂,有机二氧化碳入阱温度 390℃,热解氦气 100 ml/min,载气氦气 35 ml/min,氢气 28~30 ml/min,空气 400 ml/min;有机碳分析,常温常压。

有机质碳同位素分析过程中样品处理依据标

准:《有机物和碳酸盐岩碳、氧同位素分析方法》SY/T5238-2008;使用仪器:Finnigan MAT-252;测试条件:将样品制备成纯 CO₂ 气,用 MAT-252 双进样法与 GBW04405 参考气比较测试给出相对 PDB 的值。

3 结果与讨论

3.1 泥岩、油页岩、煤的气源条件

3.1.1 有机质丰度

DK-2 孔不同深度层段上泥岩与油页岩共 99 件样品的 TOC 分析测试结果,如果按照 < 0.4%、0.4% ~ 0.6%、0.6% ~ 1.0%、1.0% ~ 2.0% 和 >2.0% 区间划分(胡见义等,1991;陈荣书,1994),它们在不同区间上所占百分数依次为 0.00%、1.01%、10.10%、23.23% 和 64.65%。可以看出,从总有机碳角度,祁连山木里冻土区泥岩、油页岩以好和最好烃(气)源岩为主。当然,煤岩单从总有机碳含量看无疑是一种好烃(气)源岩。

特别是,DK-2 孔不同深度层段上油页岩共 8 件样品的有机质丰度不同指标统计特征(表 1)显示,H/C、有机碳含量、氯仿‘A’含量、总烃含量、总烃/有机碳等指标显示达到特好烃源层和好烃源层(胡见义等,1991;陈荣书,1994)条件。

3.1.2 有机质类型

DK-2 孔不同深度层段上泥岩与油页岩共 99 件样品的生油岩热解(Rock-Eval)分析测试结果统计结果如表 2 示。可以看出,该区水合物产出层段泥岩与油页岩的生烃潜量(S₁ + S₂)、氢指数(I_H)、氧指数(I_O)、类型指数(S₂/S₃)、降解率(D)等指标显示,泥岩与油页岩有机质类型既有 I 型,也有 II 型和 III 型(Hunt, 1991;蒂索,1989;van Krevelen,1982),其中 II 型(II₁ 型和 II₂ 型)略占优势,III 型次之,I 型也有一定数量分布。泥岩与油页岩的氢指数与氧指

表 1 DK-2 孔油页岩有机质丰度不同指标统计结果

Table 1 Statistics of various indicators for organic matter abundance in oil shale in drill hole DK-2

判别指标	特好 烃源层	占百 分比	好烃 源层	占百 分比	中等 烃源层	占百 分比	差烃 源层	占百 分比	非烃 源层	占百 分比
H/C			1.7~1.3	87.50%	1.3~1.0	0.00%	1.0~0.5*	12.50%	1.0~0.5*	12.50%
有机碳含量/%	>3.5	87.50%	3.5~1.0	12.50%	1.0~0.6	0.00%	0.6~0.4	0.00%	<0.4	0.00%
氯仿‘A’含量/%			>0.12	100.00%	0.12~0.06	0.00%	0.06~0.01	0.00%	<0.01	0.00%
总烃含量/10 ⁻⁶			>500	100.00%	500~250	0.00%	250~100	0.00%	<100	0.00%
总烃/有机碳/%			>6	25.00%	6~3	62.50%	3~1	12.50%	<1	0.00%

* 有认为是差烃源层,也有认为是非烃源层。

表 2 DK-2 孔泥岩与油页岩有机质类型不同指标统计结果

Table 2 Statistics of various indicators for kerogen types in mudstone and oil shale in drill hole DK-2

中国分类	$S_1 + S_2 / (\text{kg/t})$	占百分比	$I_H / (\text{mg/g})$	占百分比	S_2 / S_3	占百分比	$D / \%$	占百分比
I (腐泥型)	>20	20.20%	>600	15.15%	>20	5.05%	>50	18.18%
II ₁ (腐殖腐泥型)	$5 \sim 20$	31.31%	$250 \sim 600$	19.19%	$5 \sim 20$	23.23%	$20 \sim 50$	24.24%
II ₂ (腐泥腐殖型)	$2 \sim 5$	24.24%	$120 \sim 250$	33.33%	$2.5 \sim 5$	26.26%	$10 \sim 20$	28.28%
III (腐殖型)	<2	24.24%	<120	32.32%	<2.5	45.45%	<10	29.29%
Tissot 分类	$S_1 + S_2 / (\text{kg/t})$	占百分比	$I_H / (\text{mg/g})$	占百分比	$I_G / (\text{mg/g})$	占百分比	$D / \%$	占百分比
藻质型 (I)	>6	49.49%	>800	5.05%	<40	22.22%	>50	18.18%
腐泥型 (II)	$6 \sim 4$	12.12%	$800 \sim 500$	19.19%	$60 \sim 40$	13.13%	$10 \sim 50$	52.53%
腐殖型 (III)*	<2	24.24%	<150	40.40%	$150 \sim 50$	53.54%	<10	29.29%
残余型 (IV)	<2	24.24%					<10	29.29%
Espitalié 分类	$S_1 + S_2 / (\text{kg/t})$	占百分比	$I_H / (\text{mg/g})$	占百分比	S_2 / S_3	占百分比	$D / \%$	占百分比
I 类 (腐泥型)	>20	20.20%	>600	15.15%	>5	28.28%	>50	18.18%
II 类 (混合型)	$2 \sim 20$	55.56%	$120 \sim 600$	52.53%	$2.5 \sim 5$	26.26%	$10 \sim 50$	52.53%
III 类 (腐殖型)	<2	24.24%	<120	32.32%	<2.5	45.45%	<10	29.29%

* 腐殖型与残余型因划分不同,计算百分数时只选其一。

数投点图(图 2)、降解率与 $T_{\max}$ 投点图(图 3)、类型指数与 $T_{\max}$ 投点图(图 4)也清楚地显示出这种特征。

DK-2 孔部分层段上泥岩与油页岩共 38 件样品的干酪根碳同位素特征(表 3)也显示,其有机质混合有标准腐泥型(I₁型)、含腐殖的腐泥型(I₂型)、中间型或混合型(II型)、含腐泥的腐殖型(III₁型)、标准腐殖型(III₂型)(黄第藩等,1984)。

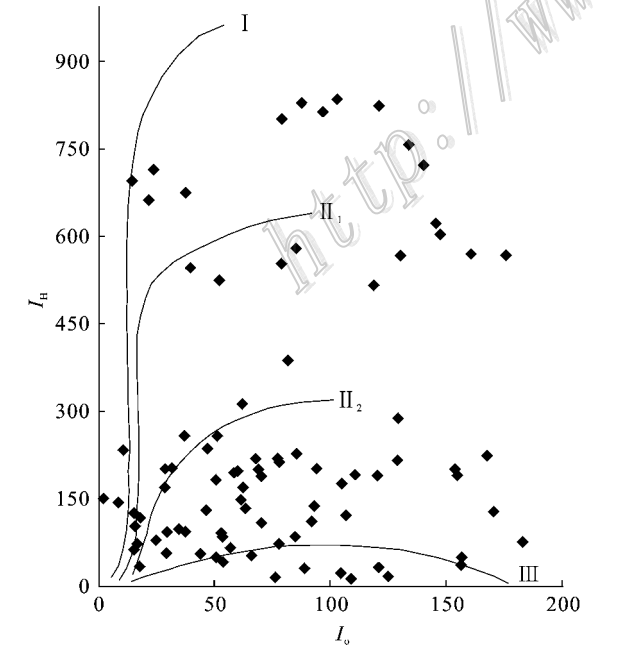


图 2 DK-2 孔泥岩与油页岩 I_H - I_O 投点图

Fig. 2 Plot of I_H to I_O for mudstone and oil shale in drill hole DK-2

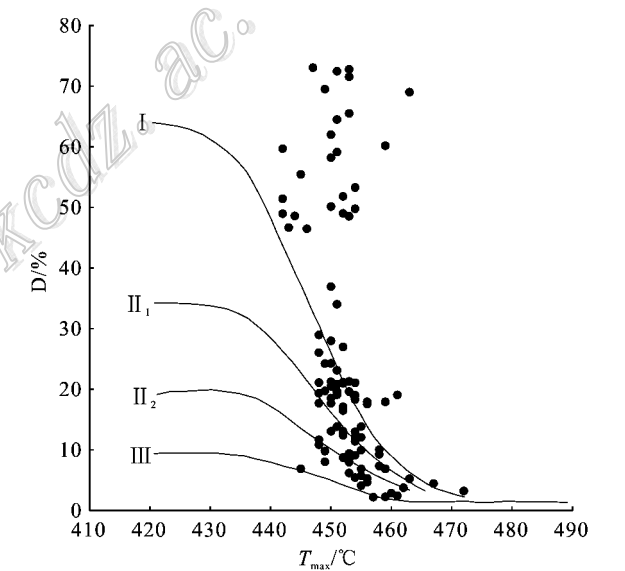


图 3 DK-2 孔泥岩与油页岩样品 D - $T_{\max}$ 投点图

Fig. 3 Plot of D to $T_{\max}$ for mudstone and oil shale in drill hole DK-2

单就 DK-2 孔部分层段油页岩样品的有机显微组分观察结果(表 4)而言,虽然均含镜质组和惰质组,但无一例外地以壳质组为主要部分,其次为腐泥组,其有机质类型相当于 II₁型和 II₂型,且主要为 II₁型。这些油页岩样品的干酪根碳同位素值除一个为 -27.7‰ 外,其余均小于 -30.0‰ (表 4),显示其干酪根类型优于 I 型。同样油页岩样品的干酪根元素 H/C 与 O/C 比值特征也显示其干酪根类型为较好的 I 型(图 5)。

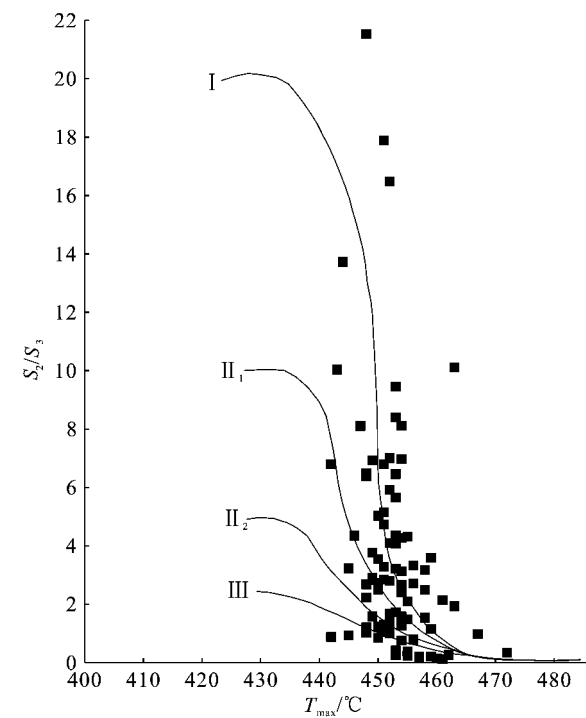


图 4 DK-2 孔泥岩与油页岩样品 S_2/S_3 - T_{max} 投点图
Fig. 4 Plot of S_2/S_3 to T_{max} for mudstone and oil shale in drill hole DK-2

当然,不同参数判定有机质类型的结果并非完全相同,前人对比认为干酪根 H/C 、 O/C 和沉积岩样品 S_2/S_3 等参数为干酪根类型划分的有效参数,其

中沉积岩样品 I_H 和 H/C 具有非常好的相关性(侯读杰等,1990)。这样,该区油页岩样品有机质类型至少为介于 I 型和 II 型之间。

DK-2 孔煤岩样品的有机显微组分观察结果及干酪根碳同位素分析测试结果如表 5 所示。可以看出,该区煤岩有机显微组分以镜质组为主,其含量大多在 60% 以上,其次为惰质组和壳质组,它们含量一般不超过百分之几,此外还含一定数量矿物质,显示其有机质类型为 III 型;该区煤岩干酪根碳同位素的分析测试结果共 6 组,介于 $-23.7\text{‰} \sim -24.8\text{‰}$ 之间,根据黄第藩等(1984)判定标准,其有机质类型为 III₁ 型和 III₂ 型。

3.1.3 有机质热演化程度

DK-2 孔不同层段上泥岩、油页岩样品的生油岩热解(Rock-Eval)参数 I_H 与 T_{max} 投点结果(图 6)显示,该区泥岩与油页岩大多数样品有机质演化程度处于成熟阶段,只有少数几个样品达到高成熟或过成熟阶段。

DK-2 孔部分层段油页岩样品的镜质组反射率测定结果(表 4)也显示,其 R_o 平均值为 0.35% ~ 0.78% 除个别样品的镜质组反射率显示为未成熟和中等成熟外,大多数样品镜质组反射率显示为低成熟。DK-2 孔煤岩样品的镜质体反射率测定结果(表 5)显示,其 R_o 平均值为 0.86% ~ 1.13%,处于成熟阶段。

表 3 DK-2 孔泥岩与油页岩干酪根碳同位素特征
Table 3 Characteristics of carbon isotope in kerogen of mudstone and oil shale in drill hole DK-2

项目	标准腐殖型 III ₂ 型	含腐泥的腐殖型 III ₁ 型	中间型或混合型 II 型	含腐殖的腐泥型 I ₂ 型	标准腐泥型 I ₁ 型
干酪根 $\delta^{13}C$ (‰PDB)	$-22.5\text{‰} \sim -24.5\text{‰}$	$-24.5\text{‰} \sim -26.0\text{‰}$	$-26.0\text{‰} \sim -27.0\text{‰}$	$-27.0\text{‰} \sim -28.0\text{‰}$	$-28.0\text{‰} \sim -29.0\text{‰}$
占百分比	28.95%	10.53%	10.53%	18.42%	73.69%

表 4 DK-2 孔油页岩显微组分与 R_o 特征
Table 4 Characteristics of micro-components and R_o in oil shale in drill hole DK-2

样号	腐泥组	壳质组	镜质组	惰质组	类型系数	有机质类型	R_o /%	成熟度	干酪根 $\delta^{13}C$ /‰
DK2-S-59	10	83	4	3	46	II ₁	0.35	未熟	-32.7
DK2-S-74	5	87	5	3	42	II ₁	0.62	低熟	-32.0
DK2-S-67	10	83	5	2	46	II ₁	0.78	成熟	-30.2
DK2-S-64	5	85	6	4	39	II ₂	0.58	低熟	-31.1
DK2-S-52	20	70	8	2	47	II ₁	0.70	低熟-成熟	-27.7
DK2-S-73	5	83	9	3	37	II ₂	0.55	低熟	-30.3
DK2-S-60	30	60	7	3	57	II ₁	0.66	低熟	-32.8
DK2-S-62	5	80	10	5	33	II ₂	0.60	低熟	-30.4

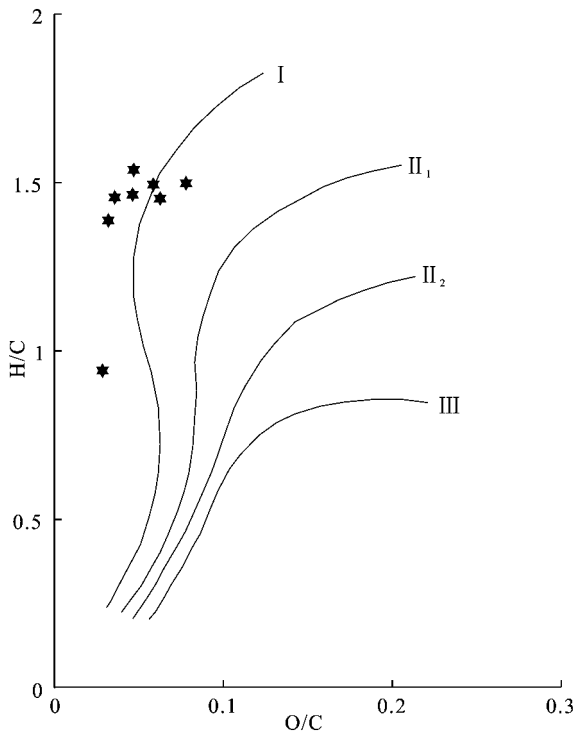


图 5 DK-2 孔部分层段油页岩干酪根中 $H/C-O/C$ 投点图

Fig. 5 Plot of H/C to O/C for some oil shale in drill hole DK-2

按照前人将不同类型有机质划分为未成熟、生油、凝析油、湿气、干气 5 个阶段(胡见义等,1991; 陈荣书,1991; Hunt, 1991; 蒂索,1989; van Krevelen, 1982; 黄第藩等,1984), 该区泥岩、油页岩、煤岩最高只处于凝析油阶段, 还未达到湿气和干气阶段, 不足以产生大量烃类气体来满足水合物形成时所需的气源条件。

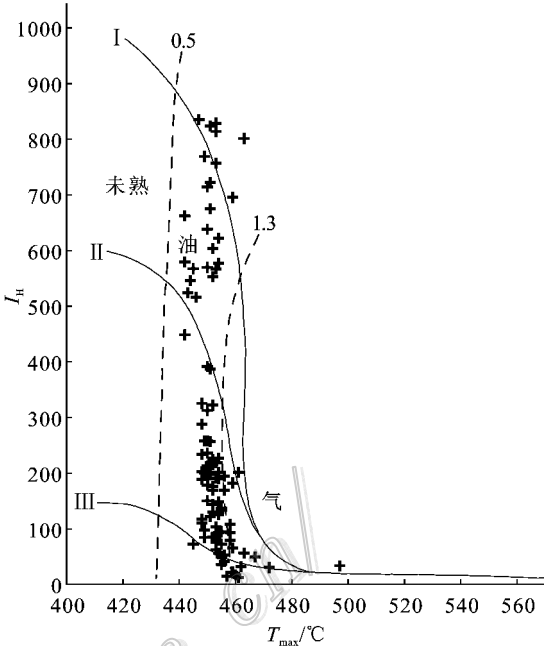


图 6 DK-2 孔不同层段泥岩、油页岩 I_H-T_{max} 投点图

Fig. 6 Plot of I_H to T_{max} for mudstone and oil shale in drill hole DK-2

应该说明, 由于钻孔深度所限, 本次采集的泥岩、油页岩样品基本仅限于水合物稳定带内层段, 更深部的泥岩与油页岩样品能否达到水合物的主力气源条件还不得而知, 考虑到更深部地层经历的热演化程度将会更高, 这样更深部泥岩与油页岩则有可能充当水合物的一种气源。由于该区煤还未达到高熟或过熟阶段, 其不能产生大量烃类气体, 实则难以满足水合物形成的气源条件。

表 5 DK-2 孔煤岩有机显微组分、 R_o 、干酪根碳同位素特征

Table 5 Characteristics of micro-components, R_o and carbon isotope in kerogen of coal in drill hole DK-2

样号	有机显微组分				干酪根 $\delta^{13}C/\text{‰PDB}$	有机质类型	$R_o/\%$	成熟度
	矿物质	壳质组	镜质组	惰质组				
DK2-C-1	31.3%	0.3%	65.6%	2.8%	-24.8	Ⅲ ₁	0.96	成熟
DK2-C-2	43.6%	0.0%	56.4%	0.0%	-24.8	Ⅲ ₁	0.94	成熟
DK2-C-3	4.0%	5.2%	89.5%	1.2%			0.86	成熟
DK2-C-4	5.5%	10.2%	79.0%	5.3%	-24.2	Ⅲ ₂	0.89	成熟
DK2-C-5	15.5%	3.6%	62.8%	18.1%			1.00	成熟
DK2-C-6	2.1%	5.3%	85.2%	7.4%	-24.0	Ⅲ ₂	0.96	成熟
DK2-C-7	1.4%	0.3%	66.7%	31.6%	-24.5	Ⅲ ₂	1.13	成熟
DK2-C-8	1.5%	1.2%	69.9%	27.4%	-23.7	Ⅲ ₂	1.06	成熟

3.2 气体组成及同位素特征

根据 DK-2 孔水合物气的组成特征,水合物气的 $C_1/(C_2 + C_3)$ 比值介于 1.26 ~ 2.213 之间(刘昌岭等,2012),均小于 10。DK-2 孔水合物气中甲烷、乙烷、丙烷、二氧化碳的碳同位素($\delta^{13}C$)变化范围分别在 $-49.23\text{‰} \sim -48.24\text{‰}$ 、 $-38.26\text{‰} \sim -33.24\text{‰}$ 、 $-34.27\text{‰} \sim -31.21\text{‰}$ 和 $-27.29\text{‰} \sim -14.28\text{‰}$ 间,甲烷、乙烷和丙烷的氢同位素(δD)变化范围分别为 $-285\text{‰} \sim -227\text{‰}$ 、 $-276\text{‰} \sim -236\text{‰}$ 和 $-247\text{‰} \sim -198\text{‰}$ (刘昌岭等,2012)。这一结果与相邻的 DK-1 孔的水合物气和泥浆气特征相似。根据 DK-1 孔水合物与泥浆气的组成及其同位素值特征,水合物气与泥浆气的 $C_1/(C_2 + C_3)$ 比值小于 10,其 $\delta^{13}C_1$ 值整体小于 -55‰ (或 -50‰)(卢振权等,2010c)。

按照水合物 $C_1/(C_2 + C_3) - \delta^{13}C_1$ 的成因图解将水合物气体分为微生物气、热解气及它们的混合气 3 类,该区水合物气体显示来源于热解气(卢振权等,2010c 刘昌岭等,2012)。按照陆上常规天然气的 $C_1/(C_2 + C_3)$ 比值与 $\delta^{13}C_1$ 关系图解(陈践发等,2000),可分为生物气、生物和亚生物混合气、亚生物气、原油伴生气、油型裂解气、油型裂解与煤成混合气、凝析油伴生和煤成混合气、煤成气、无机气、无机和煤成混合气等类型。如果将该区水合物气体的 $C_1/(C_2 + C_3)$ 比值和 $\delta^{13}C_1$ 值投射到陆上常规天然气的 $C_1/(C_2 + C_3) - \delta^{13}C_1$ 成因图解上(图 7),则进一步显示该区水合物热解成因气体主要来源于原油伴生气,同时可能混有少量凝析油伴生和煤成混合气(卢振权等,2010c 刘昌岭等,2012)。

Shen 等(1993)依据对中国陆上主要沉积盆地天然气氢同位素组成特征的研究,认为来自海相源岩(或咸水湖泊相)生成的天然气,其甲烷的 δD 值大于 -190‰ ,而陆相淡水环境生成的天然气甲烷的 δD 值常小于 -190‰ 。他们进而根据 δD_{C_1} 值和 $\delta^{13}C_1$ 值将中国陆上主要沉积盆地常规天然气按成因分为生物成因气、生物与热催化过渡气、石油伴生气、凝析油伴生气、煤型气、海相过熟气(Shen et al., 1993 沈平等,1991)。如果将本次钻孔水合物气体的 $\delta^{13}C_{CH_4}$ 值和 δD_{CH_4} 值投射到陆上常规天然气的 $\delta D_{CH_4} - \delta^{13}C_{CH_4}$ 成因分类图解上(图 8),也从另一个方面进一步显示该区水合物热解成因气体主要来源于石油伴生气(卢振权等,2010c 刘昌岭等,2012)。综合看来,本区水合物气体可能主要来源于热解成因的原油伴生气或石油伴生气。

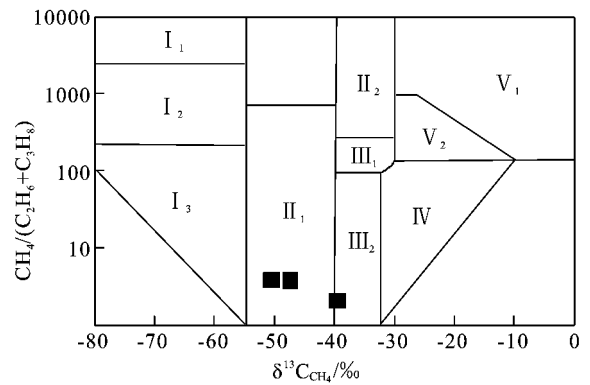


图 7 研究区天然气水合物气体的 $C_1/(C_2 + C_3) - \delta^{13}C_1$ 图解(底图据陈践发等,2000)

$C_1 - CH_4, C_2 - C_2H_6, C_3 - C_3H_8$

I₁—生物气; I₂—生物和亚生物混合气; I₃—亚生物气;
II₁—原油伴生气; II₂—油型裂解气; III₁—油型裂解和煤成混合气;
III₂—凝析油伴生和煤成混合气; IV—煤成气; V₁—无机气;
V₂—无机和煤成混合气

Fig. 7 Plot of $C_1/(C_2 + C_3)$ to $\delta^{13}C_1$ of gases from gas hydrate in the study area (base map from Chen et al., 2000)
I₁—Bacterial gas; I₂—Mixed gas of bacterial and sub-bacterial gas; I₃—Sub-bacterial gas; II₁—Oil-concomitant gas; II₂—Oil-cracking gas; III₁—Mixed gas of oil-cracking gas and coal-genetic gas; III₂—Mixed gas of condensate oil-concomitant gas and coal-genetic gas; IV—Coal-genetic gas; V₁—Abiogenic gas; V₂—Mixed gas of coal-genetic gas and abiogenic gas

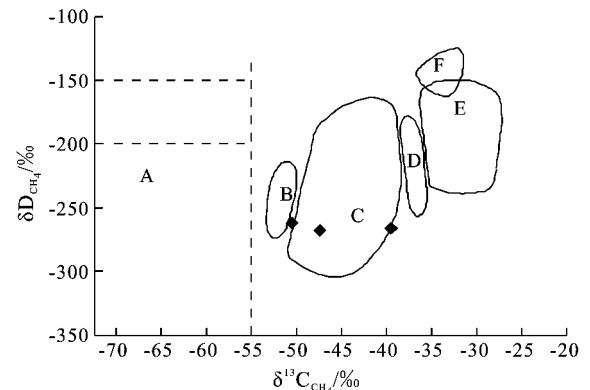


图 8 研究区天然气水合物气体的 $\delta D_{CH_4} - \delta^{13}C_{CH_4}$ 图解(底图据沈平等,1991)

A—生物成因气; B—生物与热催化过渡气; C—石油伴生气;
D—凝析油伴生气; E—煤型气; F—海相过熟气

Fig. 8 Plot of δD_{CH_4} to $\delta^{13}C_{CH_4}$ of gases from gas hydrate in the study area (base map from Shen et al., 1991)

A—Bacterial gas; B—Transition gas from bacterial gas to thermal gas; C—Oil-concomitant gas; D—Condensate oil-concomitant gas;
E—Coal-typed gas; F—Marine over-matured gas

3.3 水合物气源与油气显示关系

祁连山木里冻土区水合物及相关气体组成与同位素特征显示,水合物的气源很可能主要与深部石油或原油伴生气有关。水合物钻孔中泥岩、油页岩、煤的有机质丰度、类型、热演化程度等多种参数指标显示,它们特别在水合物稳定带内不足以提供水合物的气源条件。实际上,在祁连山木里冻土区水合物钻探过程中,DK-1、DK-2、DK-3、DK-7、DK-8等孔均钻获到水合物样品,出现各种相关异常现象,同时伴生各种油气显示现象(油斑、油浸、油染等)(卢振权等,2010b;2013)。

经对含各种油气显示现象的岩芯进行储集岩热解分析,一方面不仅进一步证实该区与水合物伴生各种油气显示是一种普遍现象,而且这些油气显示现象所代表的原油大多为中质油,此外还含重质油、超重油,甚至沥青特征(卢振权等,2013)。另一方面,各种油气显示现象同水合物密切伴生,这与前述根据水合物气体组成及同位素特征判断的石油或原油伴生气认识相一致,暗示着水合物的气源与油气显示现象关系密切。相反,在祁连山木里冻土区水合物钻探过程中,DK-4、DK-5、DK-6等孔特别是后两孔,虽出现各种相关异常现象,但未直接钻获到水合物实物样品,也未明显见到各种油气显示现象。可以推测,祁连山木里冻土区水合物的气源与油气显示现象密切相关。

4 结 论

(1) 祁连山木里冻土区水合物稳定带内的气源岩层难以为水合物提供充足的气源条件。

(2) 祁连山木里冻土区水合物的气源可能主要来自深部石油(原油)伴生气或气源岩层的(过)成熟气。

(3) 祁连山木里冻土区水合物与油气显示现象密切相关。

参考文献/References

陈践发,徐永昌,黄第藩. 2000. 塔里木盆地东部地区天然气地球化学特征及成因探讨(之一)[J]. 沉积学报, 18(4): 606-609.

陈荣书. 1994. 石油及天然气地质学[M]. 武汉:中国地质大学出版社. 1-262.

蒂索·威尔特. 1989. 石油形成与分布[M]. 北京:石油工业出版社.

1-469.

冯益民. 1997. 祁连造山带研究概况——历史、现状及展望[J]. 地球科学进展, 12(4): 307-314.

符俊辉,周立发. 1998. 南祁连盆地石炭-侏罗纪地层区划及石油地质特征[J]. 西北地质科学, 19(2): 47-54.

符俊辉,周立发. 2000. 南祁连盆地三叠纪地层及石油地质特征[J]. 西北地质科学, 21(2): 64-72.

侯读杰,田时芸. 1990. 利用多元统计方法研究干酪根类型参数的相关性及其分类问题[J]. 石油勘探与开发, 5: 33-37.

胡见义,黄第藩,徐树宝,甘克文,薛叔浩,应凤祥. 1991. 中国陆相石油地质理论基础[M]. 北京:石油工业出版社. 1-322.

黄第藩,李晋超,张大江. 1984. 干酪根的类型及其分类参数的有效性、局限性和相关性[J]. 沉积学报, 2(3): 18-32.

刘昌岭,贺行良,孟庆国,业渝光,祝有海,卢振权. 2012. 祁连山冻土区天然气水合物分解气碳氢同位素组成特征[J]. 岩矿测试, 31(3): 489-494.

卢振权,祝有海,张永勤,文怀军,贾志耀,李永红,刘昌岭,王平康,李清海,郭星旺. 2010a. 青海祁连山冻土区天然气水合物存在的主要证据[J]. 现代地质, 24(2): 329-336.

卢振权,祝有海,张永勤,文怀军,李永红,贾志耀,刘昌岭,王平康,李清海. 2010b. 青海省祁连山冻土区天然气水合物基本地质特征[J]. 矿床地质, 29(1): 182-191.

卢振权,祝有海,张永勤,文怀军,李永红,贾志耀,王平康,李清海. 2010c. 青海祁连山冻土区天然气水合物的气体成因研究[J]. 现代地质, 24(3): 581-588.

卢振权,祝有海,刘 晖,张永勤,王平康,黄 霞. 2013. 祁连山冻土区与天然气水合物伴生的油气显示现象[J]. 现代地质, 27(1): 231-238.

沈 平,徐永昌. 1991. 中国陆相成因天然气同位素组成特征[J]. 地球化学, 20(2): 144-151.

史 斗,郑军卫. 1999. 世界水合物研究开发现状和前景[J]. 地球科学进展, 14(4): 330-339.

文怀军,鲁 静,尚璐君,刘天绩,陈江峰,鞠 崎,邵龙义. 2006. 青海聚乎更矿区侏罗纪含煤岩系层序地层研究[J]. 中国煤田地质, 18(5): 19-21.

文怀军,邵龙义,李永红,鲁 静,张少林,王文龙,黄 曼. 2011. 青海省天峻县木里煤田聚乎更矿区构造轮廓和地层格架[J]. 地质通报, 30(12): 1823-1828.

郭立言. 1986. 生油岩热解快速定量评价[M]. 北京:科学出版社. 1-198.

吴能友,杨胜雄,王宏斌,梁金强,龚跃华,卢振权,郭黛黛,管红香. 2009. 南海北部陆坡神狐海域天然气水合物成藏的流体运移体系[J]. 地球物理学报, 52(6): 1641-1650.

张雪亭,杨生德. 2007. 青海省板块构造研究——1:100万青海省大地构造图说明书[M]. 北京:地质出版社. 1-221.

祝有海,张永勤,文怀军,卢振权,贾志耀,李永红,李清海,刘昌岭,王平康,郭星旺. 2009. 青海祁连山冻土区发现天然气水合

- 物[J]. 地质学报, 83(11):1762-1771.
- 祝有海, 张永勤, 文怀军, 卢振权, 王平康. 2010. 祁连山冻土区天然气水合物及其基本特征[J]. 地球学报, 31(1):7-16.
- Collett T S, Lee M W, Avena W F, Miller J J, Lewis K A, Zyrianova M V, Boswell R and Inks T L. 2011. Permafrost-associated natural gas hydrate occurrences on the Alaska North Slope[J]. Marine and Petroleum Geology, 28(2):279-294.
- Dallimore S R and Collett T S. 2005. Scientific results from the Mallik 2002 gas hydrate production research well program, Mackenzie Delta, Northwest Territories, Canada[M]. Ottawa: Geological Survey of Canada Bulletin, 585:1-140.
- Dickens G R. 2004. Global change: hydrocarbon-driven warming[J]. Nature, 429(6991):513-515.
- Hunt J M. 1991. Generation of gas and oil from coal and other terrestrial organic matter[J]. Organic Geochemistry, 17(6):673-680.
- Kim G Y, Yi B Y, Yoo D G, Ryu B J and Riedel M. 2011. Evidence of gas hydrate from downhole logging data in the Ulleung Basin, East Sea[J]. Marine and Petroleum Geology, 28(10):1979-1985.
- Lu Z, Zhu Y, Zhang Y, Wen H, Li Y and Liu C. 2011. Gas hydrate occurrences in the Qilian Mountain permafrost, Qinghai Province, China[J]. Cold Regions Science and Technology, 66(2-3):93-104.
- Makogon Y F. 2010. Natural gas hydrates—a promising source of energy[J]. Journal of Natural Gas Science and Engineering, 2(1):49-59.
- McConnell D R, Zhang Z and Boswell R. 2012. Review of progress in evaluating gas hydrate drilling hazards[J]. Marine and Petroleum Geology, doi:10.1016/j.marpetgeo.2012.02.010.
- Mienert J, Vanneste M, Bünz S, Andreassen K, Haflidason H and Sejrup H P. 2005. Ocean warming and gas hydrate stability on the mid-Norwegian margin at the Storegga Slide[J]. Marine and Petroleum Geology, 22(1-2):233-244.
- Schwalenberg K, Wood W, Pecher I, Hamdan L, Henrys S, Jegen M and Coffin R. 2010. Preliminary interpretation of electromagnetic, heat flow, seismic, and geochemical data for gas hydrate distribution across the Porangahau Ridge, New Zealand[J]. Marine Geology, 272(1-4):89-98.
- Shankar U and Riedel M. 2011. Gas hydrate saturation in the Krishna-Godavari basin from P-wave velocity and electrical resistivity logs[J]. Marine and Petroleum Geology, 28(10):1768-1778.
- Shen P and Xu Y. 1993. Isotopic compositional characteristics of terrigenous natural gases in China[J]. Chinese Journal of Geochemistry, 12(1):14-24.
- Sloan E D and Koh C A. 2008. Clathrate hydrates of natural gases, third edition[M]. New York: CRC Press of Taylor & Francis Group. 1-721.
- van Krevelen D W. 1982. Development of coal research—a review[J]. Fuel, 61(9):786-790.