

# 南华北盆地山西组砂岩的气体来源、成岩阶段与成藏过程研究

刘瑞, 郭少斌\*, 屈凯旋, 郭予斌

中国地质大学(北京)能源学院, 北京 100083

\* 通信作者, guosb58@126.com

收稿日期: 2021-05-11

国家科技重大专项“不同类型页岩气生成机理及富集规律研究”(2016ZX05034-001)资助

**摘要** 为了系统深入的研究南华北盆地太康隆起和蚌埠隆起上古生界山西组砂岩的气体来源、成岩阶段与成藏过程, 本文采用伊利石的结晶度、流体包裹体岩相学、显微激光拉曼测试技术, 结合稀有气体同位素, 对砂岩的成岩阶段, 致密砂岩气体的成藏过程、气体来源和贡献率进行了详细的研究。砂岩中伊利石结晶度介于0.64~1.06( $\Delta 2\theta$ )之间, 指示早—中成岩阶段; I/S混层中蒙皂石含量范围为0%~50%, 指示中成岩阶段A-B期; 流体包裹体均一温度分布在110~120 °C和130~150 °C两个范围内, 同样指示中成岩阶段A-B期。综合伊利石的结晶度、I/S混层中蒙皂石含量和古温度三种研究方法, 共同界定南华北盆地山西组致密砂岩成岩作用阶段为中成岩阶段A-B期。通过流体包裹体岩相学观察结合显微激光拉曼测试技术, 准确确定包裹体的类型、成分和世代关系等, 确定油气成藏期次为1期。利用含烃盐水包裹体的均一温度, 将之“投影”到附有古地温演化的埋藏史图中, 确定山西组致密砂岩气的成藏时间为印支期末期—燕山期早期。利用稀有气体同位素 $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值, 计算气源岩年龄, 确定山西组致密砂岩中的天然气来自于石炭—二叠纪。按照泥页岩、煤岩二端元混合模型, 计算了不同烃源岩产生的天然气对砂岩样品中天然气的贡献率, 结果表明南华北盆地山西组致密砂岩中天然气的主力烃源岩为煤系泥页岩, 贡献率约为73.5%; 煤岩在整个生烃过程中发挥次要作用, 贡献率约为26.5%。

**关键词** 成岩阶段; 成藏; 致密砂岩气; 稀有气体同位素; 南华北盆地

## Study of gas source, diagenesis stage and accumulation process of the sandstone of the Shanxi Formation in the southern north China Basin

LIU Rui, GUO Shaobin, QU Kaixuan, GUO Yubin

School of Energy Resources, China University of Geosciences-Beijing, Beijing 100083, China

**Abstract** In order to systematically and deeply study the gas source, diagenesis stage and accumulation process of the upper Paleozoic Shanxi Formation in Taikang and the Bengbu Uplift in the Southern North China Basin, this paper adopted the crystallinity of illite, fluid inclusion petrography, and Micro-Laser Raman, combined with rare gas isotopes, which provides a detailed study of the diagenesis stage of sandstone, the accumulation process of tight sandstone gas and its source and contribution rate. The crystallinity of illite in the sandstone ranges from 0.64 to 1.06 ( $\Delta 2\theta$ ), indicating an early to middle diagenesis stage. The

引用格式: 刘瑞, 郭少斌, 屈凯旋, 郭予斌. 南华北盆地山西组砂岩的气体来源、成岩阶段与成藏过程研究. 石油科学通报, 2021, 03: 356-368  
LIU Rui, GUO Shaobin, QU Kaixuan, GUO Yubin. Study of gas source, diagenesis stage and accumulation process of the sandstone of the Shanxi Formation in the southern north China Basin. Petroleum Science Bulletin, 2021, 03: 356-368. doi: 10.3969/j.issn.2096-1693.2021.03.029

smectite content in the I/S mixed layer ranges from 0 to 50%, indicating a middle diagenetic stage A-B. The temperature of fluid inclusions is in two ranges of 110~120 °C and 130~150 °C, which also indicates in the middle diagenetic stage A-B. Integrating the three research methods of illite crystallinity, smectite content in mixed layer I/S and paleo-temperature, the diagenesis stage of tight sandstone in the Shanxi Formation is in the middle diagenetic stage A-B. Through fluid inclusion petrographic observations combined with Micro-laser Raman testing, the type, composition, and generation relationship of the inclusions are accurately determined, and there is only one hydrocarbon accumulation period. Using the homogenization temperatures of the hydrocarbon-bearing brine inclusions, “projecting” these onto the burial history map with paleotemperature evolution, the accumulation time of tight sandstone gas in the Shanxi Formation is determined to be the end of the Indosinian to the early Yanshan period. By using rare gas isotope  $^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  values to calculate the age of the gas source rock, it is determined that the natural gas in tight sandstone in the Shanxi Formation comes from the Carboniferous-Permian. According to the mud shale and coal rock two-end-member mixing model, the contribution rate of natural gas produced by different source rocks to natural gas in sandstone samples was calculated. The results indicate that the main source rock of natural gas in tight sandstone of the Shanxi Formation in the southern north China Basin is the mud shale, and the contribution rate of shale is about 73%. Coal rock plays a secondary role in the entire hydrocarbon generation process, and the contribution rate is about 27%.

**Keywords** diagenesis stage; accumulation; tight sandstone gas; rare gas isotope; southern north China Basin

**doi:** 10.3969/j.issn.2096-1693.2021.03.029

## 0 引言

随着我国经济的快速发展和能源结构的不断调整,天然气在能源格局中占比日益增长。作为天然气的重要组成部分,致密砂岩气受到越来越多的重视<sup>[1]</sup>。因此,加快致密砂岩气的勘探和研究步伐具有重要意义。

致密砂岩气是指孔隙度小于 10%,覆压基质渗透率小于或等于 0.1 mD(空气渗透率小于 1 mD)的砂岩气层,单井一般无自然产能或自然产能低于工业气流下限,但在一定经济条件和技术措施下可获得工业天然气产量<sup>[2]</sup>。全球致密砂岩储层特征参数统计表明<sup>[3]</sup>:海相和陆相致密砂岩气占比相对较高,而海陆过渡相占比相对较少。对比美国和中国典型致密砂岩气藏的地质特征发现,中美致密砂岩气既有共同点,又有异同点<sup>[4]</sup>,中国致密气的勘探工作难度相对较大。

当前,我国的致密气勘探开发工作主要集中在鄂尔多斯盆地上古生界二叠系山西组和石盒子组<sup>[5]</sup>、四川盆地中生界三叠系须家河组<sup>[6-7]</sup>、松辽盆地中生界白垩系沙河子组<sup>[8]</sup>、渤海湾盆地新生界古近系沙河街组等<sup>[9]</sup>。南华北盆地的油气勘探始于 1955 年,经过 60 余年的油气勘探,发现多个层位不同程度的油气显示,但是至今仍然没有形成油气田。针对南华北盆地上古生界二叠系山西组致密砂岩气的研究相对薄弱<sup>[10-11]</sup>,尚处于早期阶段。因此,本文借鉴前人的研究经验<sup>[12-16]</sup>,结合南华北盆地上古生界二叠系自身的特点,对山西组致密砂岩的成岩阶段和致密砂岩气的成藏期次、成藏时间、气体来源及贡献率等方面展开

研究,旨在为南华北盆地山西组致密砂岩气的进一步勘探提供借鉴。

## 1 区域地质概况

南华北盆地是中国东部的一个大型叠合盆地,构造上隶属于华北盆地南部及其边缘<sup>[17]</sup>,东到徐蚌隆起,西含豫西隆起区,南以周口坳陷南部边界断裂—长山隆起北断裂为界,北为焦作—商丘断裂<sup>[18]</sup>,总面积约为  $15 \times 10^4 \text{ km}^2$ 。南华北盆地构造演化主要受控于秦岭—大别山造山带和郯庐断裂影响<sup>[19]</sup>,现今构造具有“南北分带、东西分块”的特征。根据内部新生界的展布特征,可以将其划分为如下 7 个构造单元:开封坳陷、太康隆起、徐蚌隆起、周口坳陷、长山隆起、鲁西隆起、豫西隆起(图 1)。

本次的研究区位于南华北盆地的太康隆起和蚌埠隆起,其上古生界二叠系山西组为一套海陆过渡相沉积,沉积相整体上以三角洲和泻湖相为主,其中三角洲主要发育于盆地北部,向中南方向过渡为泻湖相。岩性主要为砂岩、泥岩和煤层。

## 2 实验样品及方法

### 2.1 样品

本次研究的砂岩样品来自南华北盆地太康隆起的尉参 1 井和蚌埠隆起的皖潘地 1 井上古生界二叠系山西组,孔隙度的范围为 0.6%~4.4%,渗透率的范围为

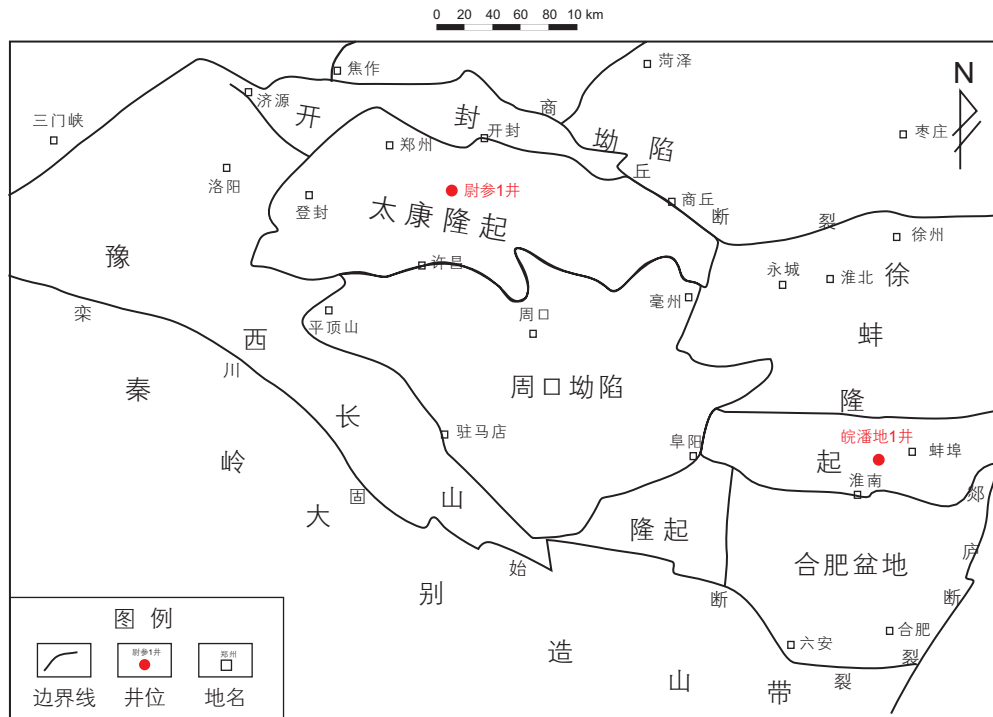


图1 区域概况

Fig. 1 Location map of the study area

0.0022~1.3000 mD, 属于超低孔、超低渗储层。尉参1井和皖潘地1井各取砂岩样品1组。将实验样品分为两份, 分别对其进行流体包裹体、稀有气体实验分析(表1)。伊利石的结晶度和有机地化实验(有机质的类型、丰度、成熟度)涉及山西组的样品非常多, 在此不逐一列表显示。

表1 实验样品信息表

Table 1 Experimental sample information

| 井名    | 深度/m   | 层位              | 岩性 | 实验分析       |
|-------|--------|-----------------|----|------------|
| 尉参1井  | 2695.6 | P <sub>1s</sub> | 砂岩 | 流体包裹体、稀有气体 |
| 皖潘地1井 | 1473.2 | P <sub>1s</sub> | 砂岩 | 流体包裹体、稀有气体 |

## 2.2 方法

### 2.2.1 伊利石的结晶度实验

1964年Kubler采用X射线衍射技术(XRD)测量得到伊利石的结晶度(IC), 也被称作为Kubler(*K.I*)指数<sup>[20]</sup>, 它是指黏土矿物伊利石1 nm衍射峰的半高宽。具体的实验操作包括: ①首先将岩样粉碎后过筛得到岩粉, 按照《SY/T 5163-1995 沉积岩中黏土矿物相对含量X射线衍射分析方法》分离出黏土矿物; ②XRD分析自生伊利石测试过程执行《SY/T 6210-1996 沉积岩中黏土矿物总量和常见非黏土矿物X射线衍射定量分析方法》; ③获得样品的XRD图谱, 用于测试伊利石*K.I*指数的XRD图谱 $2\theta$ 范围为 $3^{\circ}\sim 15^{\circ}$ , 对XRD图

谱进行拟合, 最后得出伊利石的*K.I*指数。

### 2.2.2 流体包裹体实验

流体包裹体蕴藏着古温度、压力和流体信息, 对其进行实验测量常包括如下步骤: ①将砂岩样品制成双面抛光的薄片; ②对制成的包裹体薄片在岩相学显微镜下进行观察、拍照, 主要包括包裹体的赋存状态、类型、大小、形态和分布等, 挑选出合适的样品, 然后进行接下来的测试; ③利用岩相学显微镜对流体包裹体样品进行显微测温, 得到包裹体的盐度和均一温度; ④利用RENISHAW RM2000激光拉曼探针对样品测量拉曼光谱, 通过拉曼光谱的特征分析, 识别包裹体的成分。实验室测试过程依据《EJ/T 1105-1999 矿物流体包裹体温度的测定》标准。

### 2.2.3 稀有气体实验

稀有气体丰度和同位素组成在漫长的地质历史过程中, 几乎不受太大的影响。在地质体中, 不管是核过程, 还是物理过程产生的稀有气体及其同位素组成的变化都十分明显, 这使得稀有气体同位素组成分析方法能够成为地学研究中一种非常有效的示踪手段<sup>[21]</sup>。

本次实验分别称取样品500 mg, 在真空条件下加热至103 °C, 持续数周时间以除去样品内部吸附的空气。将样品放进电子轰击炉的坩埚中, 约30 min内升至1600 °C, 保温30 min, 使样品能够完全融化, 彻底释放内部所含的气体。通过真空管道将得到的天然

气输送至稀有气体制样装置中<sup>[22-23]</sup>，在 800 °C 下，将天然气样品中活性气体净化处理，只留下稀有气体。由于各种稀有气体的沸点不同，分别对其组分进行分离。将分离出的气体组分送入 VG5400MS 质谱仪，然后进行同位素测量<sup>[24-25]</sup>。

### 3 实验结果与分析

#### 3.1 烃源岩评价

根据南华北盆地目前已有的资料显示，南华北盆地上古生界共发育 2 套烃源岩，分别为二叠系太原组—山西组和二叠系下石盒子组泥页岩。干酪根碳同位素可以反映原始物质的组成特征且相当稳定，一直以来被认为是判别高一过成熟烃源岩有机质类型最可靠指标之一。利用同位素质谱仪测定南华北盆地皖潘地 1 井山西组泥页岩中碳稳定同位素  $\delta^{13}C$  的组成，实验结果见表 2。依据《SY/T 5735-1999 烃源岩地球化学评价方法》，山西组有机质类型全为 III 型，且以生气为主。TOC 含量范围为 0.14%~6.94%，平均值为 1.59%，主要分布范围为 1.5%~3.0%，TOC 含量范围在 3.0% 以上的样品数量占 14.89% (图 2)。太康隆起镜质组反射率 ( $R_o$ ) 的范围为 2.25%~4.48%，平均值

为 3.36%；蚌埠隆起  $R_o$  范围为 0.65%~1.23%，平均值为 0.85%。太康隆起的镜质组反射率明显比蚌埠隆起的高。泥页岩厚度分布范围为 7.2~133.3 m，平均值为 43.7 m，主要分布范围为 40.0~60.0 m。煤岩厚度分布范围为 0.4~20.8 m，平均值为 5.3 m，主要分布范围为 2.0~6.0 m。由此可见，南华北盆地太康隆起山西组烃源岩处于生气的高峰期，能够提供足够的气源；蚌埠隆起生气相对较少。

#### 3.2 成岩阶段划分

砂岩成岩阶段划分的依据主要包括：自生矿物分布、形成顺序；伊利石的结晶度；I/S 混层中蒙皂石的含量；岩石的结构、构造特点及孔隙类型；有机质成熟度；古温度等<sup>[26]</sup>。本次采用伊利石的结晶度、I/S 混层中蒙皂石的含量和古温度三种方法，对南华北盆地太康隆起和蚌埠隆起山西组砂岩的成岩阶段综合分析，最终确定其成岩演化阶段。

##### 3.2.1 伊利石的结晶度

根据 XRD 测量伊利石的结晶度实验，得到太康隆起和蚌埠隆起山西组 25 块岩样的 Kubler 指数  $K.I$  数据，对实验数据做频率分布直方图可知 (图 3)， $K.I$  介于 0.64~1.06 ( $\Delta 2\theta$ ) 之间。对于成岩伊利石的结晶度与成岩及变质作用的关系，国际上采用的划分标准为：

表 2 山西组碳稳定同位素  $\delta^{13}C$

Table 2 Stable carbon isotope  $\delta^{13}C$  of Shanxi Formation

| 序号 | 井名      | 深度/m   | 层位              | 岩性  | $\delta^{13}C_{\text{‰}}/PDB$ |
|----|---------|--------|-----------------|-----|-------------------------------|
| 1  | 皖潘地 1 井 | 1407.8 | P <sub>1s</sub> | 泥页岩 | -23.3                         |
| 2  | 皖潘地 1 井 | 1427.9 | P <sub>1s</sub> | 泥页岩 | -23.5                         |
| 3  | 皖潘地 1 井 | 1435.7 | P <sub>1s</sub> | 泥页岩 | -23.8                         |
| 4  | 皖潘地 1 井 | 1447.4 | P <sub>1s</sub> | 泥页岩 | -23.6                         |
| 5  | 皖潘地 1 井 | 1478.8 | P <sub>1s</sub> | 泥页岩 | -23.4                         |

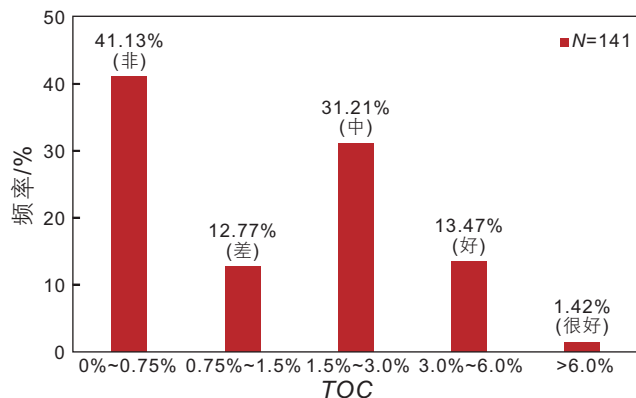


图 2 山西组 TOC 频率直方图

Fig. 2 TOC frequency histogram of Shanxi Formation

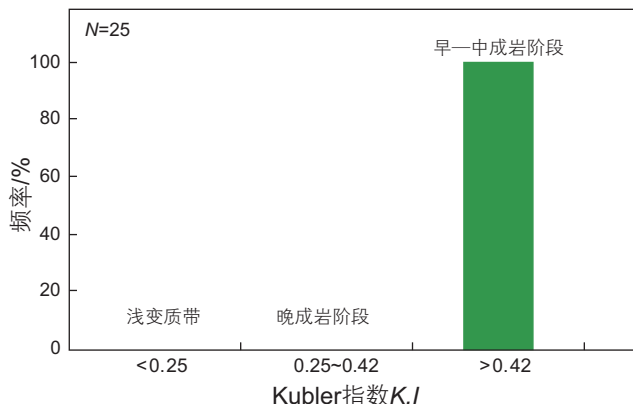


图 3 Kubler 指数  $K.I$  划分成岩阶段

Fig. 3 The division of diagenesis stages using Kubler index  $K.I$



$K.I > 0.42(\Delta 2\theta)$  为早—中成岩阶段;  $0.25(\Delta 2\theta) < K.I < 0.42(\Delta 2\theta)$  为晚成岩阶段;  $K.I < 0.25(\Delta 2\theta)$  为浅变质作用。由此可知, 南华北盆地山西组致密砂岩处于早—中成岩阶段。但是, 砂岩究竟处于早—中成岩阶段中的具体某一阶段(早成岩阶段A期、B期, 中成岩阶段A、B期以及晚成岩阶段), 通过伊利石的结晶度实验方法无法判识, 还需要结合其他方法共同判定具体的成岩阶段期次。

### 3.2.2 I/S混层中蒙皂石的含量

利用XRD实验, 得到南华北盆地太康隆起和蚌埠隆起山西组 21 块岩样的 I/S 混层中蒙皂石的含量数据, 对实验数据做频率分布直方图可知(图 4), I/S 混层中蒙皂石含量范围为 0%~50%。根据《SY/T 5477-2003 碎屑岩成岩阶段划分》标准: I/S 混层中蒙皂石含量范围为 0%~15%, 为中成岩阶段B期; 15%~50% 为中成岩阶段A期; 50%~70% 为早成岩阶段B期; >70% 为早成岩阶段A期。由此可知, 南华北盆地山西组致密砂岩处于中成岩阶段A-B期。

表 3 流体包裹体实验数据表

Table 3 Overview of fluid inclusions experimental data

| 井名      | 赋存矿物产状     | 测温包裹体类型          | 大小/mm   | 气液比/% | 均一温度/°C | 盐度/% |      |
|---------|------------|------------------|---------|-------|---------|------|------|
| 尉参 1 井  | 切穿石英颗粒的微裂隙 | 含烃盐水包裹体          | 5×3     | ≤5    | 142     | 5.41 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 6×1     | ≤5    | 147     | 5.56 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 2×4     | ≤5    | 133     | 5.41 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 1×7     | ≤5    | 132     | 5.56 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 5×2     | ≤5    | 135     | 5.41 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 6×2     | ≤5    | 146     | 5.56 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 7×3     | ≤5    | 140     | 5.41 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 6×3     | ≤5    | 145     | 5.56 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 4×2     | ≤5    | 134     | 5.41 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 2×3     | ≤5    | 148     | 5.56 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 1×3     | ≤5    | 129     | 5.41 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 2×2     | ≤5    | 120     | 5.41 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 3×3     | ≤5    | 141     | 5.26 |      |
|         |            | 沿切穿石英颗粒的成岩期后微裂隙群 | 含烃盐水包裹体 | 6×10  | ≤5      | 121  | 5.41 |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 4×2     | ≤5    | 142     | 5.26 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 6×3     | ≤5    | 133     | 5.41 |      |
| 含烃盐水包裹体 | 5×3        | ≤5               | 134     | 5.26  |         |      |      |
| 皖潘地 1 井 | 切穿石英颗粒的微裂隙 | 含烃盐水包裹体          | 3×2     | ≤5    | 120     | 6.45 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 1×3     | ≤5    | 122     | 6.45 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 2×4     | ≤5    | 108     | 6.01 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 4×3     | ≤5    | 119     | 6.01 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 1×6     | ≤5    | 118     | 5.41 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 1×3     | ≤5    | 109     | 5.41 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 2×5     | ≤5    | 114     | 5.56 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 2×3     | ≤5    | 119     | 5.56 |      |
|         |            | 含烃盐水包裹体          | 8×5     | ≤5    | 115     | 5.56 |      |

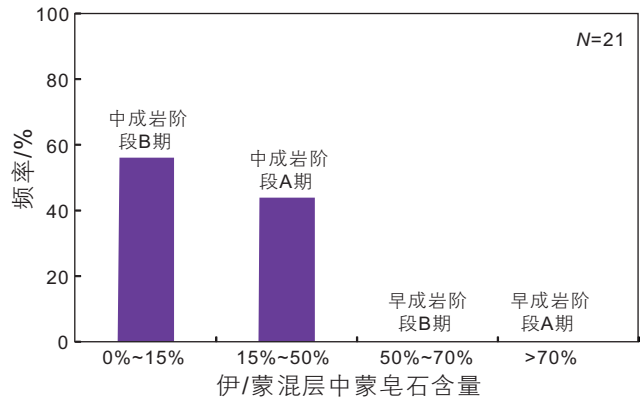


图 4 伊/蒙混层中蒙皂石含量划分成岩阶段

Fig. 4 The division of diagenesis stages using smectite content of I/S

### 3.2.3 古温度

根据流体包裹体实验分析, 得到尉参 1、皖潘地 1 井山西组共 26 个砂岩样品的均一温度测试结果(表 3), 所有样品的宿主矿物均为石英。通过含烃盐水包裹体均一温度直方图可知(图 5), 均一温度分布的主

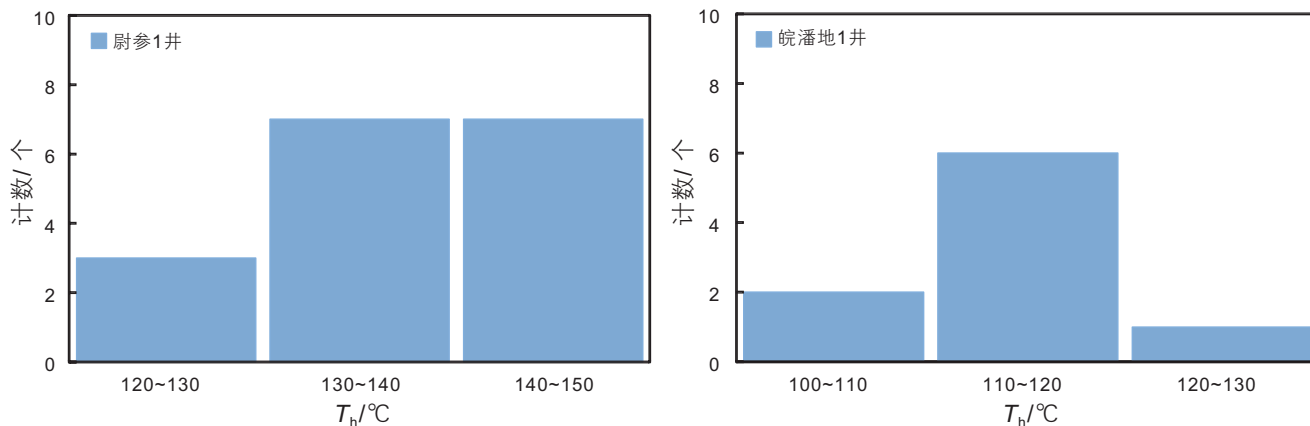


图5 包裹体均一温度直方图

Fig. 5 The histogram of uniform temperature of fluid inclusions

要范围分为两段：分别为 110~120 °C 和 130~150 °C。根据《SY/T 5477-2003 碎屑岩成岩阶段划分》标准：古常温~65 °C 为早成岩阶段 A 期；65~85 °C 为早成岩阶段 B 期；85~140 °C 为中成岩阶段 A 期；140~175 °C 为中成岩阶段 B 期；175~200 °C 为晚成岩阶段。由古温度可知，南华北盆地山西组致密砂岩处于中成岩阶段 A-B 期。

综合伊利石的结晶度、I/S 混层中蒙皂石含量和古温度三种研究方法，共同界定南华北盆地山西组致密砂岩成岩作用阶段为中成岩阶段 A-B 期。

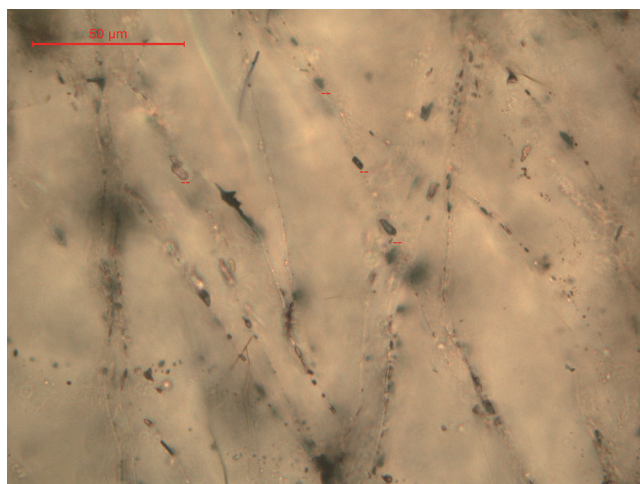
### 3.3 成藏过程研究

油气成藏过程非常复杂，特别是叠合盆地，具有多套烃源岩、多期构造运动、多期油气运聚成藏和调整改造，这类复杂油气藏的成藏过程研究难度更大。

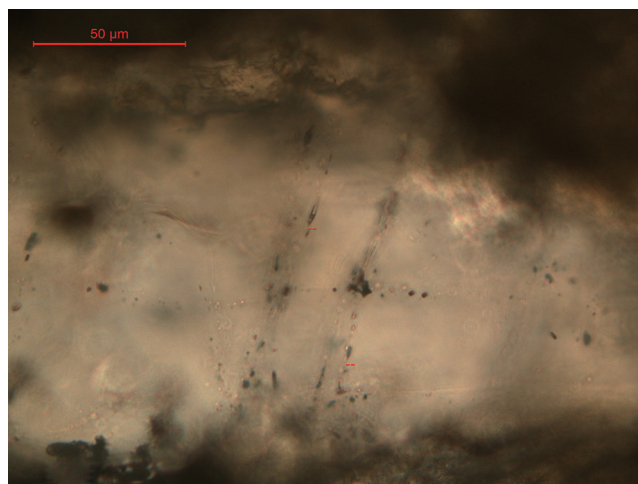
流体包裹体富含丰富的油气成藏信息<sup>[12,27]</sup>，已成为研究沉积盆地内流体活动的有利工具<sup>[28]</sup>。赵孟军等<sup>[13]</sup>将油气成藏期的分析方法归纳为“正演”和“反演”两大类，这是因为油气成藏演化历史是一个动态的过程，必须将各地质要素和地质作用过程在时间和空间上有机结合起来。成藏期次的研究应该做到间接与直接、宏观与微观、定期与定年相结合，才能准确恢复油气成藏过程<sup>[29]</sup>。因此，利用流体包裹体分析结合盆地演化的热史和埋藏史，可以确定油气的成藏时间<sup>[30-33]</sup>。

#### 3.3.1 成藏期次的划分

南华北盆地太康隆起和蚌埠隆起尉参 1、皖潘地 1 井山西组砂岩样品中含烃盐水包裹体的宿主矿物均为石英。流体包裹体单偏光照片可以看到(图 6)：尉参 1、皖潘地 1 井砂岩局部石英颗粒的微裂隙具有典型的次生加大特征，油气包裹体发育于砂岩石英颗粒成岩



(a) 尉参 1 井, 2695.06 m, 单偏光



(b) 皖潘地 1 井, 1473.17 m, 单偏光

图 6 流体包裹体显微照片

Fig. 6 Micrograph of fluid inclusions

次生加大期后, 这些包裹体大多为沿着切穿宿主矿物石英颗粒的成岩期后微裂隙成线状分布或成带分布, 多呈深灰色的天然气包裹体、淡褐色或透明无色的含烃盐水包裹体。通过岩相学观察包裹体的世代关系和类型组合可知, 太康—蚌埠隆起致密砂岩发育1期次的油气包裹体。

在流体包裹体岩相学观察中, 含烃盐水包裹体一般较难与纯水包裹体区分。随着甲烷浓度的增加, 气泡的颜色逐渐加深变黑, 通过气泡的颜色变化可以大致将含甲烷的盐水包裹体和纯水包裹体区分开来。但如果想准确确定含烃盐水包裹体和纯水包裹体, 可以借用激光拉曼光谱技术, 检测包裹体气泡中是否有甲烷的存在。利用LABHR-VIS LabRAM HR800 显微激

光拉曼光谱仪, 对尉参1井山西组的流体包裹体进行测量, 镜下特征为气体包裹体。通过激光拉曼光谱特征值可知, 右边拉曼光谱特征峰值为  $2912.8\text{ cm}^{-1}$  (图7), 采用“常见包裹体组分和矿物的激光拉曼特征参数表”<sup>[34]</sup> 评价标准可以确定测点位置为气体, 主要成分为甲烷, 这说明该包裹体为甲烷气包裹体。

同理, 对尉参1井山西组另一宿主矿物为石英, 镜下特征为气液两相的包裹体进行显微激光拉曼光谱测量, 右边拉曼特征峰值为  $2914.2\text{ cm}^{-1}$  (图8), 采用相同的评价标准可知, 测点位置为气体, 成分同样为甲烷; 左边有一个拉曼特征峰为  $464.7\text{ cm}^{-1}$  的主峰, 该峰为主矿物石英的主峰, 这也进一步说明宿主矿物为石英。由此可知, 该包裹体为甲烷气液两相包裹体。

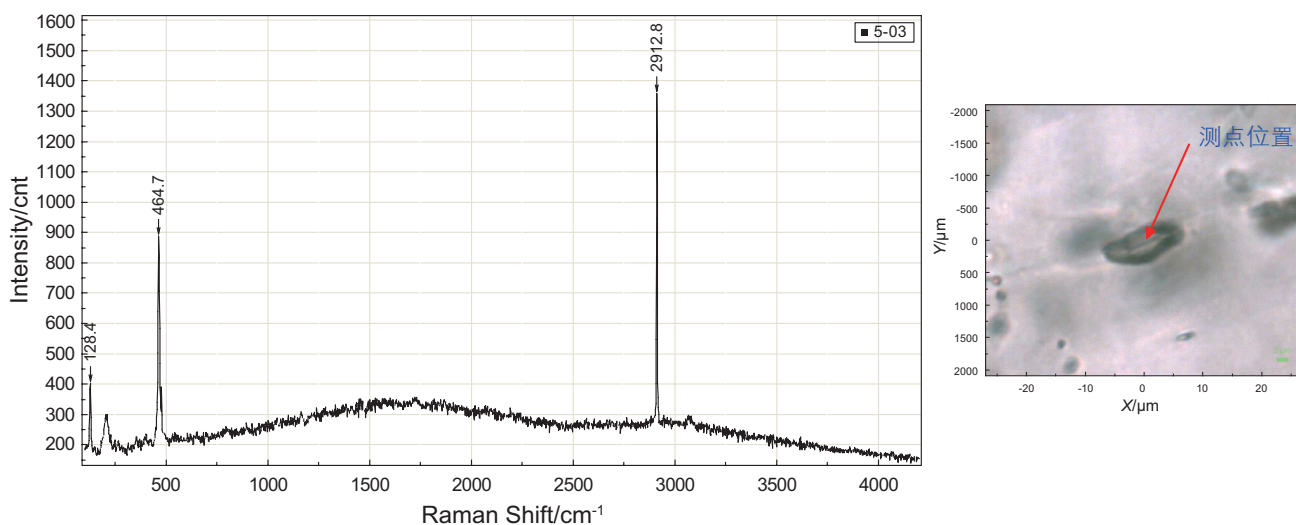


图7 气包裹体的激光拉曼光谱

Fig. 7 Laser Raman Spectroscopy of gas inclusion

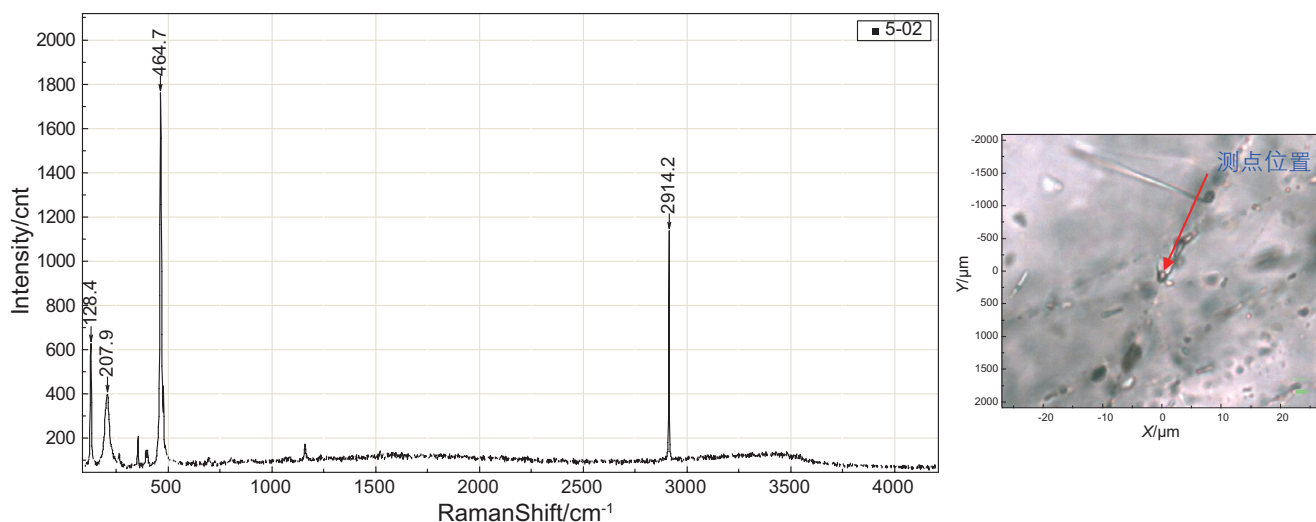


图8 气液两相包裹体激光拉曼光谱

Fig. 8 Laser Raman Spectroscopy of gas-liquid two-phase inclusion



综上所述,本次通过流体包裹体岩相学结合激光拉曼测试技术,准确确定了研究区山西组致密砂岩的包裹体的类型、成分和世代关系,为油气成藏期次划分的定性研究提供科学的依据。

### 3.3.2 成藏时限厘定

油气藏的形成时间就是油气进入圈闭储层中的时间。流体包裹体在形成时会捕获油、气和水等流体信息,可以运用流体包裹体方法确定各期油气的成藏时间<sup>[12-13]</sup>,该方法如今已经成为油气成藏年代学研究中最重要方法之一<sup>[35-36]</sup>。烃类包裹体的形成时间反映了天然气大规模进入储层时的时间<sup>[35]</sup>。将含烃盐水包裹体的均一温度“投影”到附有古地温演化的埋藏史图上,其对应的地层时代即为油气成藏的时间<sup>[38-39]</sup>。

太康隆起尉参1井二叠系山西组经历了二叠纪(284.4 Ma)—三叠纪末期(199.6 Ma)的快速沉积阶段,到达三叠纪末期时,山西组地层沉降量达到最大值,埋藏深度达到最高。随后由于燕山运动和喜马拉雅运动,三叠纪末期—古近纪末期(23.03 Ma),构造抬升作用使得地层大幅度抬升剥蚀,且在这一过程中伴随着最强的一期岩浆活动,该期次岩浆活动发生的

时期为燕山运动的中侏罗世晚期—早白垩世<sup>[40]</sup>。当南华北盆地二叠系煤系烃源岩在快速沉积阶段进入到生烃门限后,有机质开始生烃。当埋深达到最大埋藏深度后,虽然地层在抬升剥蚀,但是岩浆的作用会导致地层温度继续升高,有机质生烃过程仍然会持续一段时期,直到地层温度下降,生烃过程才会停止。利用声波时差法结合Dow<sup>[41]</sup>最先提出的镜质组反射率法,计算剥蚀面上、下邻近地层的剥蚀量,得到尉参1井的剥蚀厚度为2150.65 m。将含烃盐水包裹体均一温度“投影”到Petromod软件中绘制的附有古地温演化的埋藏史图上,可以判定天然气充注的时间为210~178 Ma(图9)。从古近纪末期—新近纪末期,上古生界地层重新沉降,但未达到印支期的最大埋藏深度,此时的温度明显低于印支期最大埋深时的温度,有机质不具有生烃潜力,二次生烃基本不可能。

同理,蚌埠隆起皖潘地1井二叠系山西组经历了二叠纪(284.4 Ma)—晚侏罗世(约157.2 Ma)的快速沉积阶段,到达侏罗纪末期时,山西组地层沉降量达到最大值。根据流体包裹体在Petromod软件中绘制的附有古地温演化的埋藏史图上的“投影”,可以判断天然

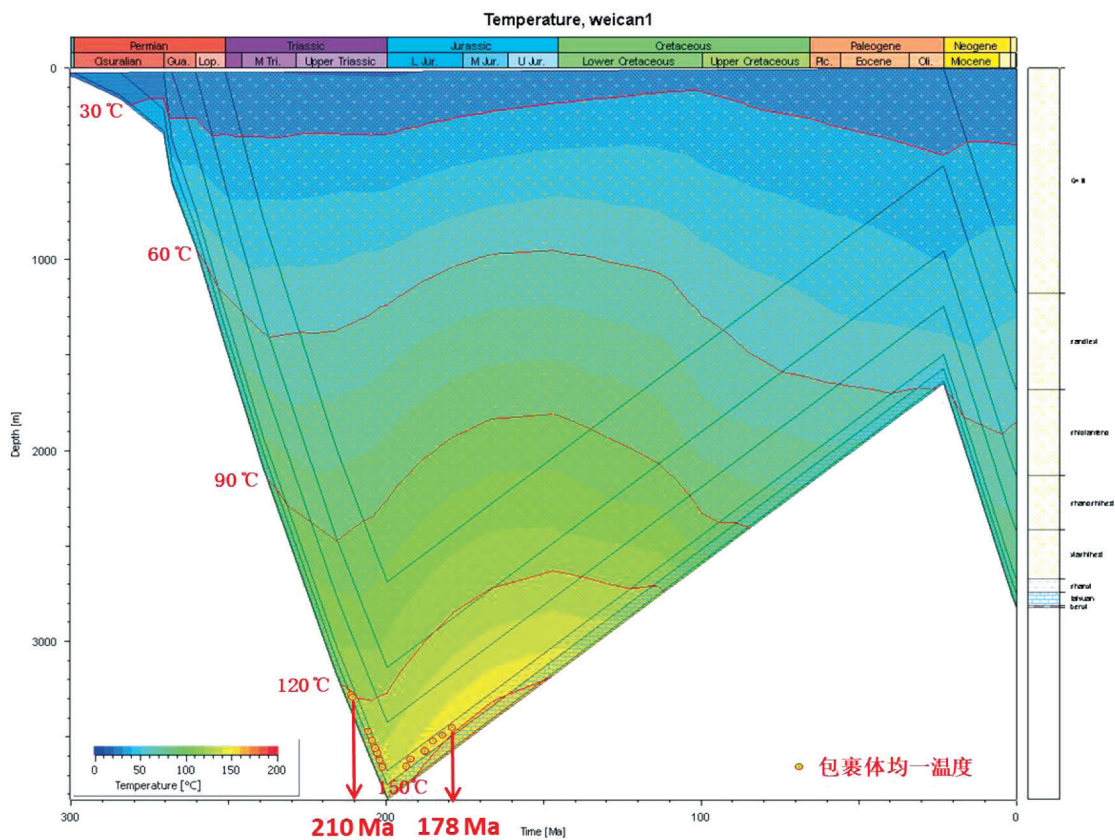


图9 尉参1井成藏时间

Fig. 9 Accumulation time of Well Weican 1



气充注的时间为 192~171 Ma(图 10), 结合实验测量得到砂岩包裹体发育丰度为中等偏低( $GOI$ 为  $\pm 2\%$ ), 可知蚌埠隆起山西组致密砂岩中天然气的充注度不高。

### 3.4 稀有气体同位素分析

#### 3.4.1 致密砂岩气的来源

天然气中He、Ar同位素组成是追索源岩进行气源对比最有效的手段之一。根据天然气中稀有气体同位素源岩年代积累效应<sup>[42-43]</sup>, 结合地质年代学基本原理, 得到稀有气体及其同位素组成计算壳源源岩年龄的公式<sup>[28]</sup>:

氩同位素法:  

$$T = 530.8 \lg \left( \frac{{}^{40}\text{Ar}}{{}^{36}\text{Ar}} \right) - 1323.1 \quad (1)$$

氦同位素法:

$$T = -315.5 \lg \left( \frac{{}^3\text{He}}{{}^4\text{He}} \right) - 1959.2 \quad (2)$$

式中,  $T$ 为壳源源岩年龄, Ma;  $({}^3\text{He}/{}^4\text{He})_s$ 为天然气样品中 ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ 值;  $({}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar})_s$ 为天然气样品中 ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$ 值。

两种不同的壳源源岩年龄计算方法, 有着各自不同的适用范围。由于氦同位素法不适用煤、碳酸盐岩烃源岩, 结合南华北盆地山西组致密砂岩天然气资料及取心实验分析结果, 建议采用 ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$ 值计算气源岩的年龄, 计算结果见表4。根据不同时代源岩中天然气He、Ar同位素组成分布可知<sup>[16]</sup>: 尉参1井、皖潘地1井致密砂岩气源岩都来自于石炭—二叠纪。

当天然气中烃源岩为同一时代时,  ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$ 值只和烃源岩中K的含量线性相关, 不同烃源岩所产生天然气的 ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$ 值的计算公式为<sup>[16]</sup>:

表4 稀有气体同位素实验数据及气源岩年代计算表

Table 4 Overview of rare gas isotope experimental data and the age of source rocks

| 井名    | 深度/m   | 层位               | ${}^3\text{He}/{}^4\text{He}$ | He含量/(ml/g)           | ${}^{40}\text{Ar}/{}^{36}\text{Ar}$ 值 | Ar含量/(ml/g)           | 气源岩时代  |
|-------|--------|------------------|-------------------------------|-----------------------|---------------------------------------|-----------------------|--------|
| 尉参1井  | 2695.6 | P <sub>1</sub> S | $1.89 \times 10^{-7}$         | $4.65 \times 10^{-6}$ | 1331                                  | $9.35 \times 10^{-6}$ | 石炭—二叠纪 |
| 皖潘地1井 | 1473.2 | P <sub>1</sub> S | $1.39 \times 10^{-7}$         | $3.52 \times 10^{-6}$ | 1380                                  | $1.58 \times 10^{-5}$ | 石炭—二叠纪 |

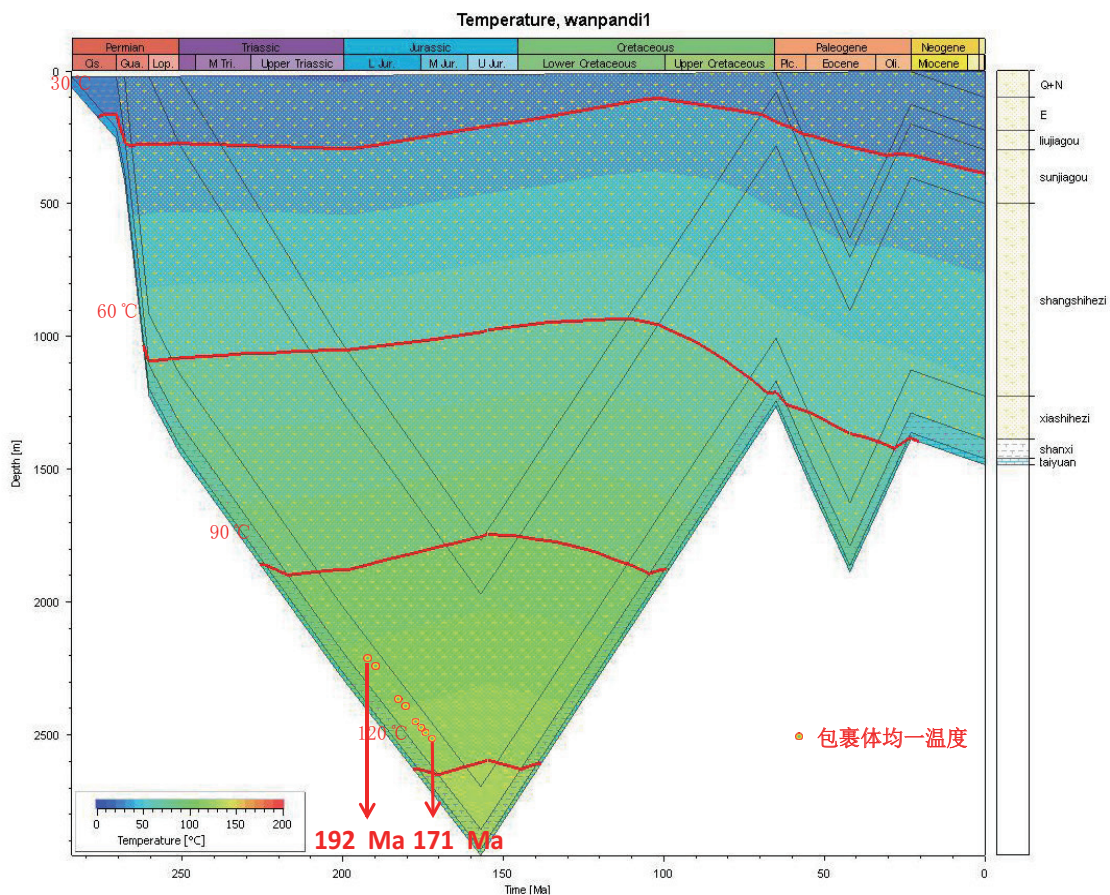


图10 皖潘地1井成藏时间

Fig. 10 Accumulation time of Well Wanpandi 1

$$\frac{\left( {}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \right)_{\text{shale}} - \left( {}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \right)_{\text{air}}}{\left( {}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \right)_{\text{coal}} - \left( {}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \right)_{\text{air}}} = \frac{a}{b} \quad (3)$$

式中,  $a$ 为泥页岩中K的含量, 取值 3.6%<sup>[44]</sup>;  $b$ 为煤岩中K的含量, 取值 0.214<sup>[45]</sup>;  $({}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{air}}$ 为空气的  ${}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值, 取 295.5;  $({}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{shale}}$ 为泥页岩生成的天然气的  ${}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值;  $({}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{coal}}$ 为煤岩生成的天然气的  ${}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值。

通过上面公式计算, 得到煤岩产生的天然气  $({}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{coal}}$ 值与实测天然气  ${}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值, 通过直方图对比可知(图 11), 尉参 1 井山西组煤岩产生的天然气  $({}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{coal}}$ 值为 357, 实际测量结果为 1331; 皖潘地 1 井山西组煤岩产生的天然气  $({}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{coal}}$ 值为 360, 实际测量结果为 1380。由此可知, 煤岩产生的天然气  $({}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{coal}}$ 值远小于实测天然气  ${}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值。由于山西组烃源岩主要为泥页岩和煤岩, 这说明主力烃源岩为泥页岩, 煤岩在整个生烃过程中发挥次要作用。

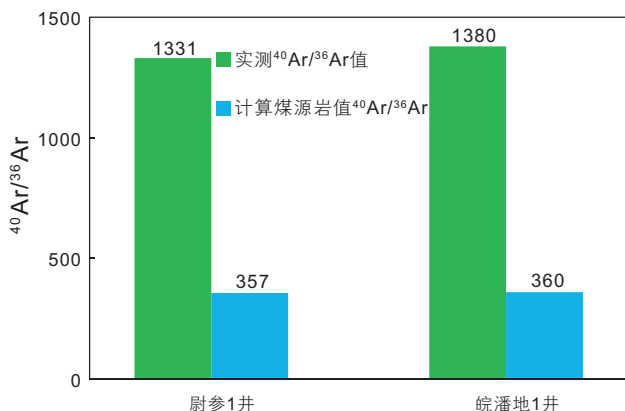


图 11 计算得到煤源岩产生的天然气  ${}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值与实测结果对比图

Fig. 11 Comparison the calculated  ${}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$  of natural gas produced by coal source rocks and the measured results

### 3.4.2 不同类型烃源岩贡献率

为了定量评价泥页岩和煤岩两种烃源岩分别对砂岩样品中天然气的贡献量, 按照泥页岩、煤岩二端元混合模型, 计算不同烃源岩产生的天然气对砂岩样品中天然气的贡献率:

$$\varphi_{\text{shale}} = \frac{\left( {}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \right)_{\text{s}} - \left( {}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \right)_{\text{coal}}}{\left( {}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \right)_{\text{shale}} - \left( {}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar} \right)_{\text{coal}}} \times 100\% \quad (4)$$

式中,  $\varphi_{\text{shale}}$ 为泥岩生成的天然气中的Ar对砂岩天然气样品中Ar的贡献率, %;  $({}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{s}}$ 为天然气样品中的  ${}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值;  $({}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{shale}}$ 为泥页岩生成的天然气的  ${}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值;  $({}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar})_{\text{coal}}$ 为煤岩生成的天然气的  ${}^{40}\text{Ar}/^{36}\text{Ar}$ 值。

根据上式可以分别求得泥页岩、煤岩对南华北盆地太康隆起和蚌埠隆起山西组致密砂岩气的贡献(图 12): 尉参 1 井中, 煤岩对天然气的贡献小于泥页岩对天然气的贡献, 泥页岩的贡献率为 73.2%, 煤岩的贡献率为 26.8%。皖潘地 1 井中, 煤岩对天然气的贡献也小于泥页岩对天然气的贡献, 泥页岩的贡献率为 73.9%, 煤岩的贡献率为 26.1%。因此, 南华北盆地山西组致密砂岩气的主力烃源岩为泥页岩, 贡献率约为 73.5%; 煤在整个生烃过程中发挥次要作用, 贡献率约为 26.5%。

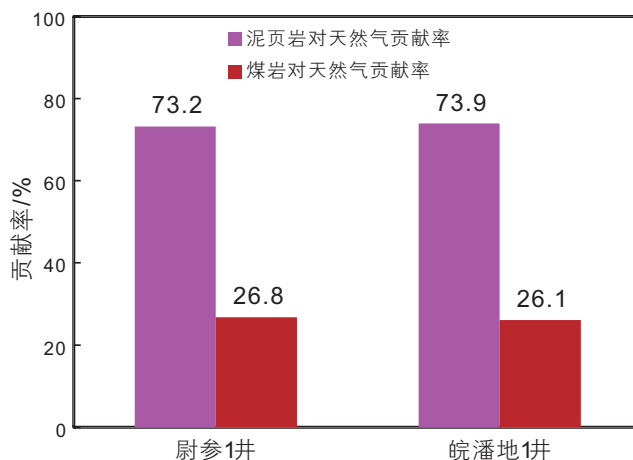


图 12 泥页岩和煤岩对致密砂岩气的贡献率

Fig. 12 Contribution rate of shale and coal rock to tight sandstone gas

## 4 结论

研究区砂岩中伊利石结晶度介于 0.64~1.06 ( $\Delta 2\theta$ ) 之间, 指示早—中成岩阶段; I/S 混层中蒙皂石含量范围为 0%~50%, 指示中成岩阶段 A—B 期; 流体包裹体均一温度分布的主要范围分为两段: 分别为 110~120 °C 和 130~150 °C, 同样指示中成岩阶段 A—B 期; 综合上述三项指标确定研究区致密砂岩处于中成岩阶段 A—B 期。

流体包裹体岩相学和显微激光拉曼测试结果显示, 研究区砂岩内的油气包裹体发育于石英颗粒成岩次生加大期后, 二者世代关系和类型组合表明太康隆起和蚌埠隆起致密砂岩天然气成藏期为 1 期; 综合包裹体数据、埋藏史和古地温恢复结果确定研究区山西组致密砂岩气成藏时间为印支期末期—燕山期早期。

应用泥页岩和煤岩二端元混合模型, 计算了不同烃源岩产生的天然气对砂岩样品中天然气的贡献率, 结果显示南华北盆地山西组致密砂岩中天然气的主力烃源岩为煤系泥页岩, 其贡献率约为 73.5%; 煤在整个生烃过程中发挥次要作用, 贡献率约为 26.5%。

## 参考文献

- [1] 康玉柱. 中扬子地区非常规天然气资源潜力及勘查方向[J]. 石油科学通报, 2020, 5(2): 141–147. [KANG Y Z. Potential and exploration direction of unconventional natural gas resources in the middle Yangtze Region[J]. Petroleum Science Bulletin, 2020, 5(2): 141–147.]
- [2] 邹才能, 朱如凯, 吴松涛, 等. 常规与非常规油气聚集类型、特征、机理及展望: 以中国致密油和致密气为例[J]. 石油学报, 2012, 33(2): 173–187. [ZOU C N, ZHU R K, WU S T, et al. Types, characteristics, genesis and prospects of conventional and unconventional hydrocarbon accumulations: Taking tight oil and tight gas in China as an instance[J]. Acta Petrolei Sinica, 2012, 33(2): 173–187.]
- [3] 李耀华, 宋岩, 姜振学, 等. 全球致密砂岩气盆地参数统计分析[J]. 天然气地球科学, 2017, 28(6): 952–964. [LI Y H, SONG Y, JINAG Z X, et al. Parameters statistic analysis of global tight sand gas basins[J]. Natural Gas Geoscience, 2017, 28(6): 952–964.]
- [4] 童晓光, 郭彬程, 李建忠, 等. 中美致密砂岩气成藏分布异同点比较研究意义[J]. 中国工程科学, 2012, 14(6): 9–15. [TONG X G, GUO B C, LI J Z, et al. Comparison study on accumulation & distribution of tight sandstone gas between China and the United States and its significance[J]. China Engineering Science, 2012, 14(6): 9–15.]
- [5] 杨华, 刘新社, 闫小雄. 鄂尔多斯盆地晚古生代以来构造—沉积演化与致密砂岩气成藏[J]. 地学前缘, 2015, 22(3): 174–183. [YANG H, LIU X S, YAN X X. The relationship between tectonic-sedimentary evolution and tight sandstone gas reservoir since the late Paleozoic in Ordos Basin[J]. Earth Science Frontiers, 2015, 22(3): 174–183.]
- [6] 谢增业, 杨春龙, 董才源, 等. 四川盆地中泥盆统和中二叠统天然气地球化学特征及成因[J]. 天然气地球科学, 2020, 31(4): 447–461. [XIE Z Y, YANG C L, DONG C Y, et al. Geochemical characteristics and genesis of Middle Devonian and Middle Permian natural gas in Sichuan Basin, China[J]. Natural Gas Geoscience, 2020, 31(4): 447–461.]
- [7] 廖宗湖, 陈伟伦, 李薇, 等. 川东须家河组致密砂岩断缝系统I: 断层破碎带的平面分别特征[J]. 石油科学通报, 2020, 5(4): 441–448. [LIAO Z H, CHEN W L, LI W, et al. Fault-fracture systems of the Xujiahe tight sandstone in the Northeast Sichuan Basin, Part I: Distribution of fault damage zones[J]. Petroleum Science Bulletin, 2020, 5(4): 441–448.]
- [8] 李剑, 姜晓华, 王秀芹, 等. 裂谷盆地致密砂岩气成藏机制与富集规律—以松辽盆地与渤海湾盆地为例[J]. 石油与天然气地质, 2017, 38(6): 1005–1018. [LI J, JIANG X H, WANG X Q, et al. Mechanisms for gas accumulation and enrichment in tight sandstone reservoir in rift basins: Cases from the Songliao Basin and the Bohai Bay[J]. Oil & Gas Geology, 2017, 38(6): 1005–1018.]
- [9] 赵长毅, 李永新, 王居峰, 等. 渤海湾盆地天然气成因类型与勘探潜力分析[J]. 天然气地球科学, 2019, 30(6): 783–789. [ZHAO C Y, LI Y X, WANG J F, et al. Genetic types and exploration of natural gas in Bohai Bay Basin[J]. Natural Gas Geoscience, 2019, 30(6): 783–789.]
- [10] 张交东, 曾秋楠, 周新桂, 等. 南华北盆地太康隆起西部新区上古生界天然气成藏条件与钻探发现[J]. 天然气地球科学, 2017, 28(11): 1637–1649. [ZHANG J D, ZENG Q N, ZHOU X G, et al. Drilling achievements and gas accumulation in the Upper Paleozoic in western new area of Taikang Uplift, southern north China Basin[J]. Natural Gas Geoscience, 2017, 28(11): 1637–1649.]
- [11] 何明喜, 王敏, 邱荣华, 等. 南华北多期复合叠合盆地与油气[M]. 北京地质出版社, 2012. [HE M X, WANG M, QIU R H, et al. Oil and gas in the superimposed South North China Basin[M]. Beijing Geological Press, 2012.]
- [12] 刘建章, 陈红汉, 李剑, 等. 运用流体包裹体确定鄂尔多斯盆地上古生界油气成藏期次和时期[J]. 地质科技情报, 2005, 24(4): 60–66. [LIU J Z, CHEN H H, LI J, et al. Using fluid inclusion of reservoir to determine hydrocarbon charging orders and times in the Upper Paleozoic of Ordos basin[J]. Geological Science and Technology Information, 2005, 24(4): 60–66.]
- [13] 赵孟军, 宋岩, 潘文庆, 等. 沉积盆地油气成藏期研究及成藏过程综合分析方法[J]. 地球科学进展, 2004, 19(6): 939–946. [ZHAO M J, SONG Y, PAN W Q, et al. The overall approach of hydrocarbon filling periods and process in sedimentary basins[J]. Advances in Earth Science, 2004, 19(6): 939–946.]
- [14] MIDDLETON D, PARNELL J, CAREY P, et al. Reconstruction of fluid migration history Northwest Ireland using fluid inclusion studies[J]. Journal of Geochemical Exploration, 2000, 69: 673–677.
- [15] KELLY J, PARNELL J, CHEN H G. Application of fluid inclusion to studies of fractured sandstone reservoirs [J]. Journal of Geochemical Exploration, 2000, 69: 705–709.
- [16] 张殿伟, 刘文汇, 郑建京, 等. 塔中地区天然气氦、氩同位素地球化学特征[J]. 石油勘探与开发, 2005, 32(6): 38–41. [ZHANG D W, LIU W H, ZHENG J J, et al. Helium and argon isotopic compositions of natural gases in the Tazhong area, Tarim Basin[J]. Petroleum Exploration and Development, 2005, 32(6): 38–41.]
- [17] 刘绍龙. 华北地区大型三叠纪原始沉积盆地的存在[J]. 地质学报, 1986, 60(2): 128–138. [LIU S L. The existence of a large-scale Triassic sedimentary basin in north China. [J]. Acta Geologica Sinica, 1986, 60(2): 213–218.]
- [18] 胡俊卿, 严永新, 吴官生, 等. 南华北地区石炭系—二叠系有机质热演化成因类型研究[J]. 石油天然气学报(江汉石油学院学报), 2005, 27(5): 554–556. [HU J Q, YAN Y X, WU G S, et al. Carboniferous-Permian organic mass thermal evolution and genesis in North



- Huabei Area[J]. *Journal of Oil and Gas Technology(J. JPI)*, 2005, 27(5): 554–556.]
- [19] 田景春, 张翔, 王峰, 等. 南华北叠合盆地新元古界—中生界沉积, 层序及生储盖特征研究[M]. 北京: 科学出版社, 2014. [TIAN J C, ZHANG X, WANG F, et al. Study on the Neoproterozoic-Mesozoic deposits, sequences and characteristics of source, reservoir and cap in north southern China superimposed basin[M]. Beijing: Science Press, 2014.]
- [20] KUBLER B. Les argiles indicateurs de metamorphisme[J]. *Revue Institut Francais du Petrole*, 1964, 19: 1093–1113.
- [21] 徐永昌. 天然气成因理论及应用[M]. 北京: 科学出版社, 1994. [XU Y C. Origin theory and application of natural gas[M]. Beijing: Science Press, 1994.]
- [22] 孙明良. 稀有气体同位素的测量与VG5400质谱计的特点[C]. 甘肃科学技术出版社, 1987, 246–250. [SUN M L. Determination of rare-gas isotope and function of VG5400 mass spectrograph[C]. Gansu Publishing House of Science and Technology, 1987, 246–250.]
- [23] SUN M L, YE X R. Measured on He and Ar isotopic compositions in solid samples by mass spectrometry[J]. *Acta Sedimentologica Sinica*. 1997, 7(3): 51–53.
- [24] SUN, M L. Measurement technology of noble gas isotopes in natural gases[J]. *Acta Sedimentologica Sinica*, 2001, 19 (2), 271–275.
- [25] 邢蓝田, 李中平, 张平中, 等. 不同采样装置及储存时间对非烃气体碳、氢、氧同位素的影响[J]. *天然气地球科学*, 2020, 31(4): 483–487. [XING L T, LI Z P, ZHANG P Z, et al. Effect of different sampling devices and storage time on carbon, hydrogen and oxygen isotopes of non-hydrocarbon gases[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2020, 31(4): 483–487.]
- [26] 李松, 刘玲, 吴疆, 等. 鄂尔多斯盆地南部山西组一下石盒子组致密砂岩成岩演化[J]. *天然气地球科学*, 2021, 32(1): 1–10. [LI S, LIU L, WU J, et al. Diagenetic evolution of tight sandstone of Shanxi-Lower Shihezi formations in the southern Ordos Basin[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2021, 32(1): 1–10.]
- [27] ROBERT H. GOLDSTEIN and T. JAMES REYNOLDS. Systematics of fluid inclusions in diagenetic minerals[M]. Society for Sedimentary Geology, 1994.
- [28] 欧光习, 李林强, 孙玉梅. 沉积盆地流体包裹体研究的理论与实践[J]. *矿物岩石地球化学通报*, 2006, 25(1): 1–11. [OU G X, LI L Q, SUN Y M. Theory and application of the fluid inclusion research on the sedimentary basins[J]. *Bulletion of Mineralogy, Petrology and Geochemistry*, 2006, 25(1): 1–11.]
- [29] 赵靖舟. 成藏年代学研究现状[J]. *新疆石油地质*, 2002, 23(3): 257–261. [ZHAO J Z. Method of geochronology of petroleum accumulation[J]. *Xinjiang Petroleum Geology*, 2002, 23(3): 257–261.]
- [30] MCLIMANS R K. The application of fluid inclusions to migration of oil and diagenesis in petroleum reservoirs[J]. *Applied Geochemistry*, 1987, 2(5): 585–603.
- [31] NEDKVITNE T, KARLSEN D A, BJORLYKKE K, et al. Relationship between reservoir diagenetic evolution and petroleum emplacement in the Ula Field, North Sea[J]. *Marine and Petroleum Geology*, 1993, 10(2): 255–270.
- [32] LISK M, EADINGTON P J, O'Brien GW. Unraveling complex filling histories by constraining the timing of events which modify oil fields after initial charge[J]. *Geological Society, London, Special Publications*, 1998, 144(6): 189–203.
- [33] PARNELL J. Potential of palaeofluid analysis for understanding oil charge history[J]. *Geofluids*, 2010, 10(5): 73–82.
- [34] 刘德汉, 卢焕章, 肖贤明. 油气包裹体及其在石油勘探和开发中的应用[M]. 广州: 广东科技出版社, 2007. [LIU D H, LU H Z, XIAO X M. Oil and gas inclusions and their applications in petroleum exploration and development[M]. Guangzhou: Guangdong Science and Technology Press, 2007.]
- [35] HASZELDINE R S, SAMSON I M, CONFORT C. Dating diagenesis in a petroleum basin: A new fluid inclusion method[J]. *Nature*, 1984, 307(5949): 354–357.
- [36] MCLIMANS R K. The application of fluid inclusions to migration of oil and diagenesis in petroleum reservoirs[J]. *Applied Geochemistry*, 1987, 2(5): 585–603.
- [37] 肖贤明, 刘祖发, 刘德汉, 等. 应用储层流体包裹体信息研究天然气气藏的成藏时间[J]. *科学通报*, 2002, 47(12): 957–960. [XIAO X M, LIU Z F, LIU D H, et al. Using reservoir fluid inclusion information to study the accumulation time of natural gas reservoirs[J]. *Chinese Science Bulletin*, 2002, 47(12): 957–960.]
- [38] 陈红汉, 李纯泉, 张希明, 等. 运用流体包裹体确定塔河油田油气成藏期次及主成藏期[J]. *地学前缘*, 2003, 10(1): 190. [CHEN H H, LI C Q, ZHANG X M, et al. Using fluid inclusions to determine the oil and gas accumulation period and main accumulation period[J]. *Earth Science Frontiers(China University of Geosciences, Beijing)*, 2003, 10(1): 190.]
- [39] 薛楠, 朱光有, 吕修祥, 等. 油气成藏年代学研究进展[J]. *天然气地球科学*, 2020, 31(12): 1733–1748. [XUE N, ZHU G Y, LÜ X X, et al. Advances in geochronology of hydrocarbon accumulation[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2020, 31(12): 1733–1748.]
- [40] 任战利. 中国北方沉积盆地构造热演化史研究[M]. 北京: 石油工业出版社, 1999. [REN Z L. Study on the tectonic thermal evolution history of sedimentary basins in Northern China[M]. Beijing: Petroleum Industry Press, 1999.]
- [41] DOW W G. Kerogen studies and geological interpretations[J]. *Journal of Geochemical Exploration*, 1977, 7(2): 79–99.
- [42] 刘文汇, 徐永昌. 天然气中氦氩同位素组成的意义[J]. *科学通报*, 1993, 38(9): 818–821. [LIU W H, XU Y C. Significance of the isotopic composition of He and Ar in natural gases[J]. *Chinese Science Bulletin*, 1993, 38(9), 818–821.]

- [43] 沈平, 徐永昌, 刘文汇 等. 天然气研究中的稀有气体地球化学应用模式[J]. 沉积学报, 1995, 13(2): 48–58. [SHEN P, XU Y C, LIU W H, et al. Applied models of rare gas geochemistry in the research of natural gases[J]. Acta Sedimentologica Sinica, 1995, 13(2): 48–58.]
- [44] 郑建京, 胡慧芳, 刘文汇, 等. K-Ar关系在天然气气源对比研究中的应用[J]. 天然气地球科学, 2005, 16(4): 499–502. [ZHENG J J, HU H F, LIU W H, et al. Discussion about the relationship between Kalium and Argon in research of gas and source rock correlation of natural gas, 2005, 16(4): 499–502.]
- [45] 张殿伟, 刘文汇, 郑建京, 等. 氩同位素用于库车坳陷天然气主力气源岩判识[J]. 地球化学, 2005, 34(4): 405–409. [ZHANG D W, LIU W H, ZHENG J J, et al. Identification of main gas source in Kuqa Depression using argon isotope ratios, 2005, 34(4): 405–409.]

(责任编辑 刘冬冬 编辑 付娟娟)