

地球化学指标示踪天然气运移机理及有效性分析 ——以川西坳陷侏罗系天然气为例

王 鹏¹, 刘四兵², 沈忠民², 黄 飞¹, 张文凯², 邹黎明²

(1. 宜宾学院矿业与安全工程学院, 四川 宜宾 644000;

2. 油气藏地质及开发工程国家重点实验室(成都理工大学), 四川 成都 610059)

摘要:对常用天然气运移示踪指标示踪天然气运移机理进行了分析,并以川西坳陷侏罗系天然气为例,对不同指标示踪天然气运移有效性进行了探讨。结果表明,CH₄含量、N₂含量、芳烃/烷烃值在不同相态的运移过程中均有较好的示踪能力,是较为有效的天然气运移示踪指标,而CO₂含量与*i*C₄/*n*C₄值示踪效果相对较差。CH₄含量在不同的运移相态下,均随运移距离的增加而增加,是最有效的天然气运移方向示踪指标。N₂含量、芳烃/烷烃值在不同的运移相态下均有不同的变化规律,选择这2个指标时应充分考虑天然气的运移相态。若已知天然气运移相态,就可依据这2个指标能确定天然气的运移方向;若已知天然气运移方向,则可据这2个指标确定天然气的运移相态。当天然气中CO₂含量受碳酸盐矿物影响较大时,CO₂可能失去示踪天然气运移的功能。*i*C₄/*n*C₄值能否示踪天然气运移及其示踪机理均存在较多争议,选择该指标示踪天然气运移应慎重。

关键词:天然气运移;示踪指标;水溶相;游离相;川西坳陷

中图分类号:TE122.2

文献标志码:A

文章编号:1672-1926(2015)06-1147-09

引用格式:Wang Peng, Liu Sibing, Shen Zhongmin, *et al.* Mechanism and effectiveness of geochemical index trace natural gas migration: A case study of Jurassic natural gas in western Sichuan Depression[J]. Natural Gas Geoscience, 2015, 26(6): 1147-1155. [王鹏, 刘四兵, 沈忠民, 等. 地球化学指标示踪天然气运移机理及有效性分析——以川西坳陷侏罗系天然气为例[J]. 天然气地球科学, 2015, 26(6): 1147-1155.]

0 引言

油气生成后,通常需要经过一定的运移才能聚集成藏,所以认识油气运移过程是油气研究的重要内容之一。油气地球化学家通过实验模拟与实例分析,提出了多种示踪天然气运移的地球化学指标,包括天然气常规组分、天然气轻烃组分、天然气稀有气体组分及其同位素、天然气碳同位素等。研究中发现,对于部分指标,不同的学者有截然相反的观点^[1-5]:部分指标在某些特定条件下可能失去示踪意义^[5-6],部分指标在不同运移相态下,可能有完全相反的变化趋势^[7-8]。这些问题给天然气运移示踪指

标的选择带来了困难。

天然气运移示踪指标在示踪天然气运移过程中存在多解性或者不能示踪天然气运移过程,其主要原因是这些指标在地质过程中受到的影响因素较多。这些因素可以分为2类:内因,包括天然气成因类型、天然气母质类型、天然气母质成熟度^[9-10];外因,包括混合作用、运移作用、生物降解作用^[10-12]。这些因素都可能改变天然气运移示踪指标,从而影响示踪指标示踪天然气运移效果。同时天然气存在多种运移相态,不同运移相态下天然气组分及同位素也可能出现不同的变化趋势:在溶解相运移过程中,对天然气组分与同位素起主要控制作用的是溶

解作用,沿着运移方向难溶组分先脱溶,易溶组分后脱溶,所以最终水溶气富易溶组分、贫难溶组分;在游离相运移中,对天然气组分与同位素起主要控制作用的是地质色层效应,在地质色层效应下,极性化合物被岩石吸附,使非极性化合物含量相对增加,所以沿运移方向天然气富非极性化合物、贫极性化合物^[7-8]。因此不同的运移相态也增加了天然气运移示踪指标的多解性。所以,在利用某些指标判别天然气运移时,应考虑天然气的运移相态,否则指标示踪的天然气运移方向可能与实际情况恰好相反。实际上部分研究在利用这些指标示踪天然气运移时,并没有考虑天然气的运移相态,这是在示踪天然气运移研究中需要特别注意的。

因此,有必要系统地认识天然气运移示踪指标示踪天然气运移的机理,明确天然气运移示踪指标在不同运移相态下的变化规律,探讨天然气运移示踪指标的有效性,确定适应性较强的示踪指标,为天然气运移研究及天然气勘探服务。基于上述目的,本文以较为常用的几项天然气运移示踪指标为对象,对其示踪机理进行分析,并以川西坳陷侏罗系天然气的实例来说明这些指标的示踪效果。

1 地质背景

川西坳陷位于四川盆地西部,是四川盆地西部晚三叠世以来陆相盆地的深坳部分,为龙门山推覆构造带的前陆盆地。受印支期龙门山逆冲推覆作用,古特提斯海逐渐退出四川盆地,川西坳陷随之形成。随后,在川西坳陷依次沉积了上三叠统须家河组、侏罗系及白垩系等地层^[6]。川西坳陷油气主要分布在上三叠统须家河组、中侏罗统沙溪庙组、上侏罗统遂宁组与蓬莱镇组,油气资源丰富。由于该区侏罗系沉积时多为氧化环境,烃源岩发育条件较差,所以侏罗系天然气主要来自下伏须家河组第5段煤系烃源岩^[13-14]。由于侏罗系天然气来自下伏须家河组烃源岩,因此天然气成因类型、天然气母质类型、有机质成熟度等较为相似,即内因对侏罗系天然气组分与碳同位素差异影响不大。川西坳陷侏罗系天然气为煤型气^[13-14],不存在不同成因气混合;川西坳陷侏罗系天然气保存条件较好,未曾有过遭受生物降解的报道。所以,混合作用与生物降解作用对川西坳陷侏罗系天然气影响也较小。显然,川西侏罗系天然气组分与碳同位素变化主要受垂向运移分馏控制,这为检验天然气运移示踪指标有效性创造了条件。同时,天然气运移相态研究表明,该区侏罗系

天然气运移相态明显不同:上侏罗统以游离相运移为主,中侏罗统水溶相与游离相都存在,水溶相更占优势^[7,14-16]。这为探讨不同运移相态下,天然气运移示踪指标的变化规律创造了条件。

2 示踪指标

通过对国内外有关天然气运移示踪的文献调研,发现用于示踪天然气运移的地球化学指标多达数十种,可以简单的分为以下4个大类:

(1)常规天然气组分指标:包括CH₄含量、C₂⁺含量、N₂含量、CO₂含量、干燥系数、C₁/C₂值、C₂/C₃值、iC₄/nC₄值、iC₅/nC₅值,应用较广、效果较好的有CH₄含量、N₂含量、CO₂含量、iC₄/nC₄值^[1-3,17]。

(2)天然气轻烃组分指标:包括芳烃含量、芳烃同碳数的烷烃含量、芳烃/烷烃值。其中,以芳烃与同碳数烷烃比值应用最广、效果最好^[4-5,7-8]。

(3)稀有气体指标:包括⁴He丰度、²⁰Ne/³⁶Ar值、²²Ne/²¹Ne值、⁴He/⁴⁰Ar值、³He/⁴He值。国内外应用稀有气体同位素示踪天然气研究相对较弱、应用相对较少^[12,18-19],对部分指标的示踪机理存在较大分歧^[18-19]。

(4)天然气碳同位素:包括δ¹³C₁值、δ¹³C₂值、δ¹³C₃值、δ¹³C₂ - δ¹³C₁值,其中以δ¹³C₁值的示踪效果最好^[3-5]。

本文重点对应用较广的CH₄含量、N₂含量、CO₂含量、iC₄/nC₄、苯/烷烃等示踪指标,示踪天然气运移的机理及有效性进行探讨。

3 示踪机理及有效性

3.1 CH₄含量

CH₄通常是天然气中含量最高的组分,同时也是烷烃中分子量最小、分子直径最小、分子极性最弱的组分。因此地层对CH₄吸附能力相对较弱,其迁移能力相对较强。所以在游离相运移过程中,沿天然气运移方向CH₄含量(本文所指含量均为各组分在天然气中的相对百分含量)逐渐增加,天然气逐渐变干,表现出“甲烷化”的趋势^[2,9]。一系列的模拟实验也证实了天然气游离相运移过程中CH₄优先运移的特征^[2,20-21]。所以,在游离相运移过程中,沿天然气运移方向,CH₄含量会增加。

天然气烷烃组分中,CH₄的溶解度最大^[22-23]。所以当天然气以水溶相运移时,随着运移距离的增加,天然气中CH₄含量会增加。水溶气运移模拟实验及水溶气成藏实例都证实了该结论^[5,24]。

所以,CH₄是示踪天然气运移的有效指标,不论是水溶相运移还是游离相运移过程中,CH₄增加方向都指示天然气运移的方向。从川西坳陷孝泉—新场气田天然气CH₄垂向变化特征来看(图1),不论是在以水溶相占优势的中侏罗统,还是以游离相为主的上侏罗统,天然气中CH₄含量总体上都表现出随埋深变浅而增加的特征,即随天然气运移距离的增加,CH₄含量增加。说明不论是以游离相运移还是以水溶相运移,天然气CH₄含量都是较有效的天然气运移示踪指标。另外,从总体来看,上侏罗统天然气CH₄含量明显高于中侏罗统天然气CH₄含量,符合上侏罗统天然气由中侏罗统垂向向上运移的特征,这进一步肯定了CH₄示踪天然气运移的有效性。

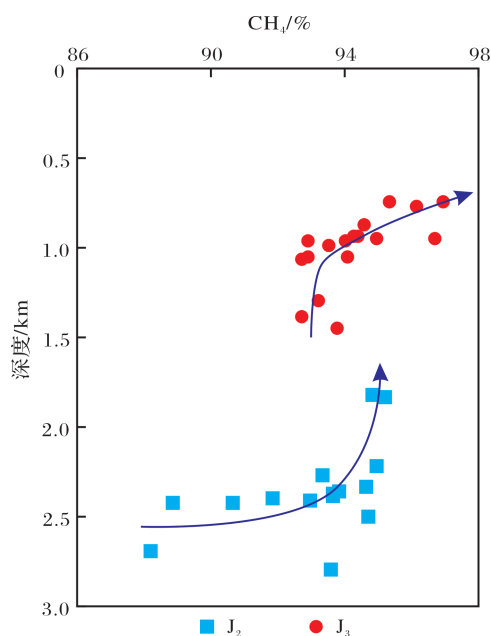


图1 孝泉—新场气田侏罗系天然气CH₄含量特征

Fig.1 CH₄ content of Jurassic natural gas in Xiaoquan-Xinchang Gasfield

3.2 N₂含量

N₂是天然气中常见的非烃组分之一,化学性质不活泼、运移过程中受围岩影响较小^[13],是天然气运移示踪的重要指标。N₂分子直径明显小于CH₄^[17],地层对N₂的吸附能力明显小于CH₄^[25],N₂的扩散系数明显大于CH₄^[26]。所以,天然气游离相运移过程中N₂运移速度明显大于CH₄,沿运移方向N₂也会出现类似CH₄的富集特征。

N₂的溶解度较小^[26],所以水溶相运移过程中,N₂含量会逐渐降低。水溶气运移成藏物理模拟实验结果也表明,水溶相运移过程中N₂含量会不断降

低^[4-5],水溶气成藏的实例也证实了该结论^[24]。

所以N₂含量变化特征示踪天然气运移方向,与天然气运移相态有关。当天然气以游离相运移时,N₂含量增加的方向为天然气运移方向;当天然气以水溶相运移时,N₂含量降低的方向为天然气运移方向。从川西坳陷孝泉—新场气田侏罗系天然气N₂含量特征来看(图2),在中侏罗统中,随埋深变浅天然气N₂含量总体上表现为降低,即随天然气运移距离的增加,N₂含量降低。中侏罗统多相运移中,水溶相占优势,水溶相运移过程中N₂含量降低。因此,中侏罗统天然气中N₂含量的垂向降低能示踪天然气的垂向运移。而上侏罗统天然气,随埋深变浅,N₂含量总体上有增加的趋势,即在上侏罗统中,随天然气运移距离的增加,N₂含量增加。上侏罗统天然气以游离相运移为主,游离相运移过程中N₂含量会增加。所以,上侏罗统N₂含量的垂向增加能示踪天然气的垂向运移。显然,N₂在研究区不同地层、不同相态运移过程都能示踪天然气的运移,N₂是较为有效的天然气运移示踪指标。另外,从总体来看,上侏罗统天然气N₂含量也明显高于中侏罗统天然气,符合上侏罗统天然气由中侏罗统垂向向上游离相运移的特征,这进一步肯定了N₂示踪天然气运移的有效性。

川西坳陷侏罗系天然气N₂含量变化特征肯定了N₂在不同相态下对天然气的运移过程都有较好的示踪能力。由于天然气以不同运移相态进行运移时,N₂含量有明显不同的变化规律。因此,如果能确定天然气的运移相态,可以根据天然气中N₂含量的变化特征确定天然气的运移方向;反之,如果确定了天然气运移方向,则可以根据天然气中N₂含量的变化特征确定天然气的运移相态。所以,天然气中N₂是非常有效的天然气运移示踪指标,对天然气运移方向与运移相态都能起到示踪作用。

3.3 CO₂含量

CO₂也是天然气中常见的非烃组分之一,但其含量通常较N₂更低^[10,27]。CO₂分子量、分子直径都明显大于CH₄与N₂^[17],地层对其吸附能力也明显大于CH₄与N₂,所以CO₂的运移速率明显不如CH₄与N₂。因此,在天然气游离相运移过程中,CO₂表现出与CH₄、N₂相反的富集规律,即随运移距离增加CO₂含量会逐渐降低。

但是,CO₂在水中的溶解度明显大于天然气中其他任何烃类与非烃类组分^[22-23]。这使得CO₂在水溶相运移过程中不断增加,最终的水溶气有较高的

CO₂ 含量。水溶气运移成藏物理模拟实验及水溶气成藏的实例^[4-5,24],都肯定了水溶相运移过程富 CO₂ 的特征。

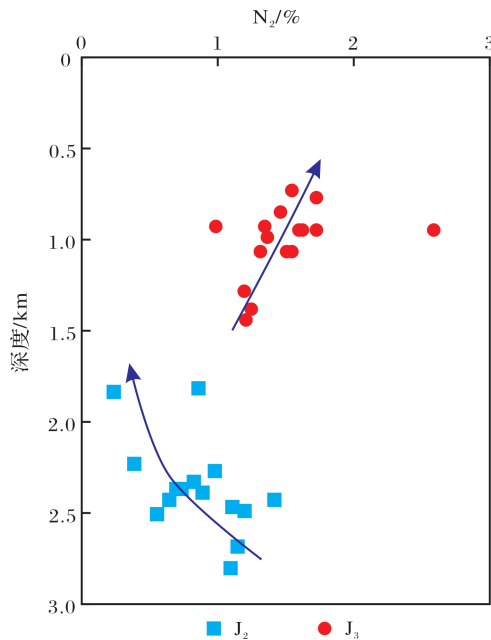


图 2 孝泉—新场气田侏罗系天然气 N₂ 含量特征
Fig. 2 N₂ content of Jurassic natural gas in Xiaquan-Xinchang Gasfield

所以,CO₂ 含量变化特征示踪天然气运移方向,与天然气运移相态密切相关。当天然气以游离相运移时,CO₂ 含量降低的方向为天然气运移的方向;当天然气以水溶相运移时,CO₂ 含量增加的方向为天然气运移的方向。从川西拗陷孝泉—新场气田侏罗系天然气中 CO₂ 含量特征来看(图 3),中侏罗统天然气中 CO₂ 含量随深度并没有明显的变化规律,即随运移距离的增加,CO₂ 并没有明显的变化。而上侏罗统天然气中,CO₂ 含量随深度变化关系也不明显。即在中侏罗统与上侏罗统中,CO₂ 含量随运移距离的增加并没出现理论上的增加或降低的变化特征。所以,在研究区 CO₂ 未能有效地示踪水溶相或游离相天然气的垂向运移过程。另外,从孝泉—新场气田侏罗系天然气总体特征来看,上侏罗统天然气 CO₂ 含量明显高于中侏罗统,在川西拗陷其他地区也有类似特征^[16]。来自须家河组的天然气垂向向上运移,经中侏罗统后以游离相进入上侏罗统,根据天然气游离相运移过程中 CO₂ 降低的变化特征,上侏罗统天然气中 CO₂ 含量应低于中侏罗统,但是研究区的实例却表现出相反的特征。显然中侏罗统与上侏罗统 CO₂ 含量差异不是运移过程中的分离作用造成的,CO₂ 含量特征不能示踪中侏罗统至上侏

罗统的天然气运移过程。

CO₂ 在研究区失去了示踪天然气运移的功能,不能作为天然气运移示踪的指标。其原因可能是该区天然气中 CO₂ 受围岩影响较大。笔者根据川西地区天然气中 CO₂ 含量及其同位素等资料,已证实该区天然气中 CO₂ 多为无机成因,主要来自地层中碳酸盐矿物的溶解^[6]。天然气中 CO₂ 含量通常就比较低^[10],如果更多的 CO₂ 是来自天然气运移经过地层中碳酸盐矿物的溶解,那么天然气中 CO₂ 含量则主要受地层碳酸盐矿物溶解作用控制,碳酸盐矿物产生的 CO₂ 就可能完全模糊运移过程造成的 CO₂ 分离特征,此时 CO₂ 含量不能示踪天然气运移就不难理解。对川西地区侏罗系岩石学特征研究已证实,上侏罗统岩石较中侏罗统更富碳酸盐碎屑^[28-29],碳酸盐碎屑的溶蚀提供无机 CO₂,这可能是研究区上侏罗统比中侏罗统富 CO₂ 的重要原因之一。

所以,CO₂ 示踪天然气运移的效果不如 CH₄ 与 N₂,主要原因是 CO₂ 更容易受地层中碳酸盐矿物溶解的影响。尤其是天然气中 CO₂ 含量受碳酸盐矿物溶解影响较大时,CO₂ 就可能失去其作为示踪天然气运移指标的功能。

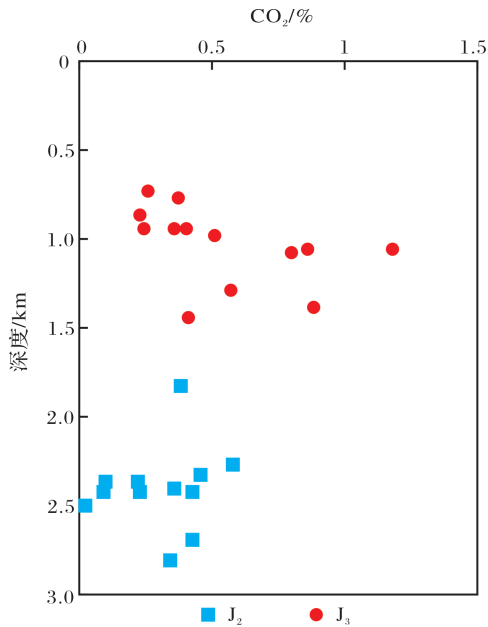


图 3 孝泉—新场气田侏罗系天然气 CO₂ 含量特征
Fig. 3 CO₂ content of Jurassic natural gas in Xiaquan-Xinchang Gasfield

3.4 iC₄/nC₄ 值

由于丁烷同分异构体分子直径、分子体积、分子溶解度等均存在一定的差异,所以丁烷同分异构体受到的地层吸附作用与地层水溶解作用也明显不

同。因此,当天然气以游离相或溶解相运移时,随天然气运移距离的增加,天然气中就可能出现逐渐富某一组分的特征。所以, iC_4/nC_4 值也是天然气中常用的运移示踪指标之一。从已有的报道来看, iC_4/nC_4 值虽然已被用于天然气运移示踪,但是对其示踪机理仍存在较大争议:天然气气相运移时,一种观点认为 iC_4/nC_4 值应降低^[1],另一种观点则认为 iC_4/nC_4 值应增加^[2-4];天然气水溶相运移时,一种观点认为 iC_4/nC_4 值应增加^[4],另一种观点认为 iC_4/nC_4 值应降低^[5]。所以, iC_4/nC_4 值作为天然气运移指标表现出多解性。其原因主要有以下几个方面:

关于地层对同分异构体吸附能力认识不同:一种观点认为异丁烷分子比正丁烷分子的极性大,使得地层对异丁烷的吸附作用大于正丁烷^[1],因而异丁烷的运移速率小于正丁烷;另一种观点认为正丁烷分子比异丁烷分子的极性大,使得地层对正丁烷的吸附作用大于异丁烷^[3],因而正丁烷的运移速率小于异丁烷;也有观点认为地层中同时存在物理吸附与化学吸附,正构烷烃更易被物理吸附,异构烷烃更易被化学吸附^[26],但是哪种吸附作用更占优势,尚不清楚。所以,地层对丁烷异构体吸附能力认识的差异,是造成对 iC_4/nC_4 值示踪天然气运移多解的一个重要原因。

关于水溶作用对同分异构体组分影响的认识不同:刘朝露等^[6]水溶气运移模拟实验结果显示,随着运移距离的增加, iC_4/nC_4 值逐渐增大;而陈安定等^[4]水溶气运移模拟实验则得到了相反的结论。所以,天然气水溶相运移过程中 iC_4/nC_4 值应增大还是降低,也存在争议。

关于天然气在致密地层中运移, iC_4/nC_4 值变化规律认识不同:一种观点认为正构烷烃的线性分子结构,使其更容易通过细小孔喉,因而正构烷烃的运移速率更大,随运移距离增加 iC_4/nC_4 值会降低^[26];相反的观点则认为,正构烷烃的线性分子结构使得它易于进入孔道并造成滞留,异构烷烃由于支链存在而不易进入,从而可造成运移路径前方异构烷烃的相对富集和正构烷烃的不断丢失,即运移路径前方 iC_4/nC_4 值更大^[4];另一种观点认为,异构烷烃的支链存在,使得其分子更接近球形,因而更容易通过细小孔喉,更容易运移,从而使得运移路径前方 iC_4/nC_4 值更大^[30]。显然,在致密层中 iC_4/nC_4 值指示天然气运移方向存在不同的认识。

关于天然气在疏松地层中运移, iC_4/nC_4 值变化规律认识不同:卢家烂等^[2]实验结果认为在疏松岩

层中,随天然气运移, iC_4/nC_4 值变化较小;史基安等^[21]、张佳佳等^[30]实验结果则认为随天然气运移, iC_4/nC_4 值会减小;李广之等^[26]则认为天然气在疏松岩层中运移, iC_4/nC_4 值会增大。因此,在疏松岩层中 iC_4/nC_4 值指示天然气运移方向也存在不同的认识。

所以,在运移过程中 iC_4/nC_4 值是否具有明显的变化规律、天然气游离相或水溶相运移过程中 iC_4/nC_4 值是增加还是降低、天然气在致密层或疏松层中运移时 iC_4/nC_4 值是增加还是降低,这些问题都没有统一的认识,天然气中 iC_4/nC_4 值示踪天然气运移的机理有待深入。从川西坳陷孝泉—新场气田侏罗系天然气的 iC_4/nC_4 值来看(图4),不论是中侏罗统还是上侏罗统中,天然气 iC_4/nC_4 值随深度均没有较明显的变化规律,说明 iC_4/nC_4 值在研究区不能示踪天然气运移。

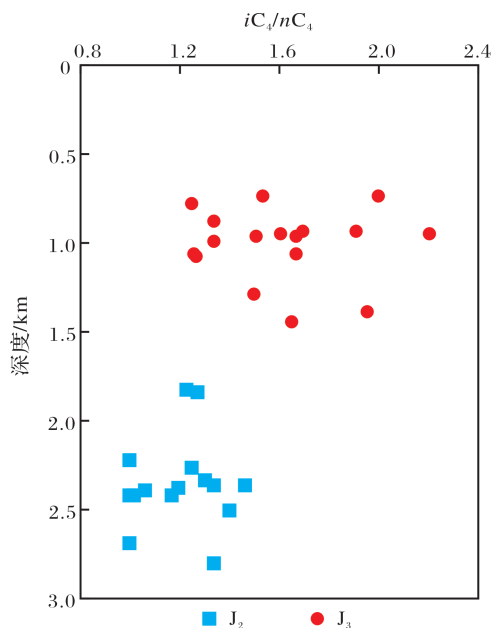


图4 孝泉—新场气田侏罗系天然气 iC_4/nC_4 值特征

Fig. 4 iC_4/nC_4 ratio of Jurassic natural gas in Xiaoquan-Xinchang Gasfield

不难发现,目前关于 iC_4/nC_4 值能否示踪天然气运移及其在示踪天然气运移中存在诸多争议, iC_4/nC_4 值示踪天然气运移的机理有待深入。例如,单从地层吸附对 iC_4/nC_4 值的作用来看,物理吸附与化学吸附对正丁烷与异丁烷的吸附能力恰好相反^[26],如果在物理吸附明显大于化学吸附的地质条件下运移, iC_4/nC_4 值随运移可能会有一个明显的变化趋势,如果在物理吸附明显小于化学吸附的地质条件下运移, iC_4/nC_4 值随运移则可能会出现相反的

变化趋势,如果在物理吸附与化学吸附相当的条件下运移,那么 iC_4/nC_4 值随运移则可能没有明显的变化趋势。所以,就目前来看, iC_4/nC_4 值示踪天然气运移还存在较大争议,其示踪天然气运移效果不如 CH_4 与 N_2 。

3.5 芳烃/烷烃值

天然气中芳烃的极性明显大于其同碳数烷烃^[7-8],因而地层对其吸附能力更强。所以天然气以游离相运移为主时,随运移路径的增加,芳烃/烷烃值会降低。而天然气中芳烃的溶解度明显大于其同碳数烷烃^[8,14],所以天然气以水溶相运移为主时,随运移路径的增加,芳烃/烷烃值会增加。因此,天然气中芳烃/烷烃值常被用于示踪天然气的运移。同时,由于不同运移相态下,芳烃/烷值有相反的变化规律。所以,若已知天然气运移相态,根据芳烃/烷烃值的变化特征,就能确定天然气的运移方向;反

之,若已知天然气的运移方向,根据芳烃/烷烃值的变化特征,就能确定天然气的运移相态。

以川西坳陷孝泉—新场气田侏罗系天然气 C_6 芳烃及其同碳数烷烃比值,来说明芳烃/烷烃值示踪天然气运移的有效性。从孝泉—新场气田苯/烷烃特征来看(图 5),中侏罗统天然气苯/正己烷、苯/环己烷分布范围较广,体现了中侏罗统水溶相与游离相混合相运移的特征。上侏罗统天然气苯/正己烷、苯/环己烷值明显较低,与其游离相特征相符。上侏罗统天然气苯/正己烷、苯/环己烷随深度变浅而降低,即随天然气运移距离的增加而降低,与上侏罗统天然气游离相运移相符。这说明上侏罗统天然气中苯/正己烷、苯/环己烷能示踪上侏罗统天然气的垂向运移。所以,从研究区苯/烷烃值来看,其是较为有效的天然气运移示踪指标,对天然气运移方向与运移相态都具有较强的示踪能力。

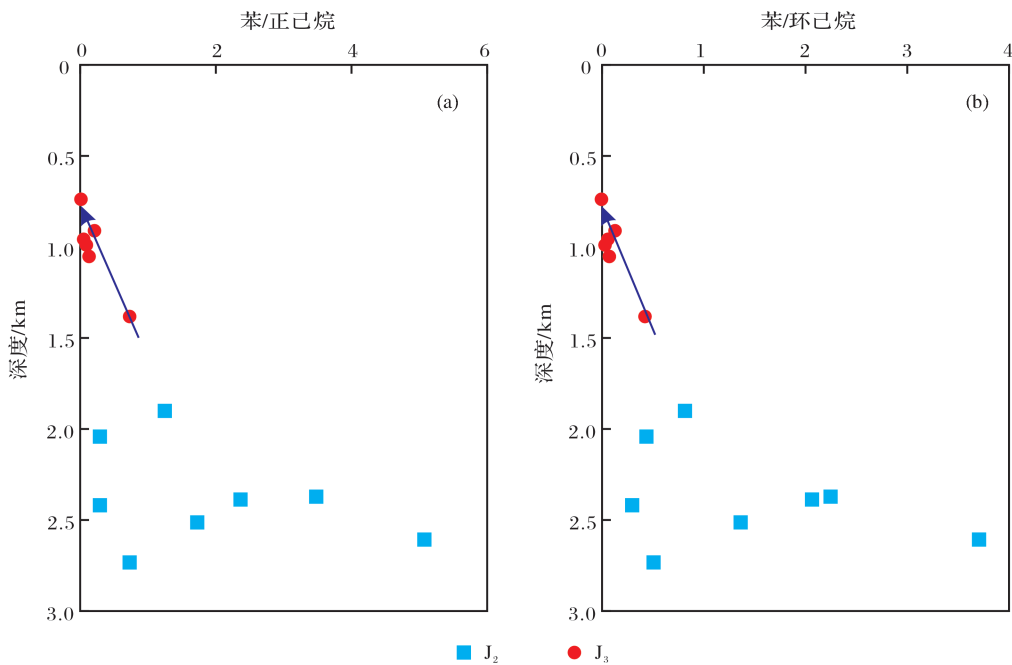


图 5 孝泉—新场气田侏罗系天然气苯/正己烷、苯/正己烷特征

Fig. 5 Benzene/hexane and the benzene/cyclohexane ratio of Jurassic natural gas in Xiaoquan-Xinchang Gasfield

综合上述对 CH_4 含量、 N_2 含量、 CO_2 含量、 iC_4/nC_4 值、芳烃/烷烃值示踪天然气运移机理及这些指标在川西地区示踪天然气运移的实际效果来看, CH_4 含量、 N_2 含量、芳烃/烷烃值是较为有效的天然气运移示踪指标。不论天然气以游离相还是水溶相运移, CH_4 增大的方向均示踪天然气运移的方向(图 1,表 1)。当天然气以游离相运移时, N_2 含量增加的方向为天然气运移的方向,水溶相运移时, N_2

含量降低的方向为天然气运移的方向(图 2,表 1)。当天然气以游离相运移时,芳烃/烷烃值降低的方向为天然气运移的方向,水溶相运移时,芳烃/烷烃值增加的方向为天然气运移的方向(图 5,表 1)。当确定了天然气运移方向, N_2 含量与芳烃/烷烃值都能示踪天然气的运移相态,反之,若确定了天然气的运移相态, N_2 含量与芳烃/烷烃值也能示踪天然气的运移方向。理论上 CO_2 与芳烃/烷烃值在不同相态运

移过程中有相似的变化规律。但是,当天然气中CO₂受地层中碳酸盐矿物溶蚀产生的无机CO₂影响较大时,CO₂将失去其示踪天然气运移的功能(图3)。目前关于*i*C₄/*n*C₄值示踪天然气运移仍存在较大的争议,在研究区*i*C₄/*n*C₄值未能有效示踪天然气的运移。

表 1 天然气运移过程中示踪指标变化特征
Table 1 Variation rules of trace index
during the natural migration process

指标	游离相	水溶相	说明
CH ₄ 含量	增加	增加	
N ₂ 含量	增加	降低	
CO ₂ 含量	降低	增加	受无机CO ₂ 影响较大时,不能示踪天然气运移过程
芳烃/烷烃值	降低	增加	

4 结论

(1)常用天然气运移示踪指标中,CH₄含量、N₂含量、芳烃/烷烃值示踪天然气运移效果较好,是较为有效的天然气运移示踪指标,而CO₂含量与*i*C₄/*n*C₄值示踪效果相对较差。

(2)CH₄含量示踪天然气运移方向最为便捷有效,不论游离相还是水溶相,其增加方向均代表天然气运移方向。N₂含量、芳烃/烷烃值在不同的运移相态过程中的示踪效果也较好,且不同运移相态下有相反的变化规律。所以,如果确定了运移相态,它们能示踪天然气的运移方向,如果确定了运移方向,它们则能示踪天然气的运移相态。

(3)理论上,CO₂含量与芳烃/烷烃值在不同相态的运移过程中有相似的变化规律。但是当CO₂含量受无机成因CO₂影响较大时,其可能失去示踪天然气运移的功能。

(4)*i*C₄/*n*C₄值示踪天然气运移的机理仍存在较多的分歧,*i*C₄/*n*C₄值示踪天然气运移效果明显不如CH₄含量、N₂含量、芳烃/烷烃值,在川西孝泉—新场气田*i*C₄/*n*C₄值不能示踪天然气运移过程。

参考文献(References):

[1] Wang Tingdong, Yang Yuancong. Geological chromatograph and natural gas migration in Upper Triassic in the central part of Sichuan[J]. Natural Gas Industry, 1986, 6(1): 15-20. [王廷栋, 杨远聪. 地质色层作用与川中上三叠统天然气的运移[J].

天然气工业, 1986, 6(1): 15-20.]
[2] Lu Jialan, Fu Jiamo. Study on simulation of natural gas migration in different conditions[J]. Oil & Gas Geology, 1991, 12(2): 153-160. [卢家烂, 傅家谟. 不同条件下天然气运移影响的模拟实验研究[J]. 石油与天然气地质, 1991, 12(2): 153-160.]
[3] Fu Jiamu, Liu Dehan. The Migration, Eservoir Conditions and Sealing Condition of Natural Gas[M]. Beijing: Science Press, 1992: 80-85. [傅家谟, 刘德汉. 天然气运移·储集及封盖条件[M]. 北京: 科学出版社, 1992: 80-85.]
[4] Chen Anding, Li Jianfeng. Study on geochemical index during natural gas migration [J]. Natural Gas Geoscience, 1994, 5(4): 38-67. [陈安定, 李剑锋. 天然气运移的地球化学指标研究[J]. 天然气地球科学, 1994, 5(4): 38-67.]
[5] Liu Zhaolu, Li Jian, Fang Jiahu, et al. Experimental investigation on physical simulation of gas dissolved in water during migration[J]. Natural Gas Geoscience, 2004, 15(1): 32-36. [刘朝露, 李剑, 方家虎, 等. 水溶气运移成藏物理模拟实验技术[J]. 天然气地球科学, 2004, 15(1): 32-36.]
[6] Wang Peng, Shen Zhongmin, Liu Sibing, et al. Geochemical characteristics of nonhydrocarbon in natural gas in west Sichuan Depression and their implications[J]. Natural Gas Geoscience, 2014, 25(3): 394-401. [王鹏, 沈忠民, 刘四兵, 等. 川西坳陷天然气中非烃气地球化学特征及应用[J]. 天然气地球科学, 2014, 25(3): 394-401.]
[7] Tang Yan, Ye Jun. The sedimentary environment of Jurassic depression in the west of Sichuan[J]. Petroleum Geology and Recovery Efficiency, 2001, 8(6): 17-21. [唐艳, 叶军. 轻烃指纹参数在川西坳陷天然气成藏研究中的应用[J]. 油气地质与采收率, 2001, 8(6): 17-21.]
[8] Liu Wenhui, Chen Mengjin, Guan Ping, et al. Ternary Geochemical Tracing System in Natural Gas Generation and Accumulation and Its Application[M]. Beijing: Science Press, 2009: 75-84. [刘文汇, 陈孟晋, 关平, 等. 天然气成烃·成藏三元地球化学示踪体系及实践[M]. 北京: 科学出版社, 2009: 75-84.]
[9] Song Yan. Main factors affecting the changes in compositions of natural gas[J]. Petroleum Exploration and Development, 1991, 18(2): 42-49. [宋岩. 影响天然气组分变化的主要因素[J]. 石油勘探与开发, 1991, 18(2): 42-49.]
[10] Dai Jinxing, Pei Xigu, Qi Houfa. Geology of Natural Gas in China[M]. Beijing: Petroleum Industry Press, 1992. [戴金星, 裴锡古, 戚厚发. 中国天然气地质学[M]. 北京: 石油工业出版社, 1992.]
[11] Prinzhofer A, Marcio R M, Tikae T. Geochemical characterization of natural gas: A physical multivariable approach and its applications in maturity and migration estimates [J]. AAPG Bulletin, 2000, 84, (8): 1152-1172.
[12] Prinzhofer A, Santos Neto E V, Battani Anne. Coupled use of carbon isotopes and noble gas isotopes in the Potiguar Basin

- (Brazil): Fluids migration and mantle influence[J]. *Marine Petroleum Geology*, 2010, 27(6): 1273-1284.
- [13] Cai Kaiping, Wang Yingrong, Liu Xuemei, *et al.* Characteristics of vertical hydrocarbon migration in the Jurassic in southern part of west Sichuan Basin[J]. *Journal of Southwest Petroleum University*, 2000, 22(4): 1-4. [蔡开平, 王应蓉, 刘雪梅, 等. 川西南部侏罗系油气垂向运移特征[J]. 西南石油大学学报, 2000, 22(4): 1-4]
- [14] Shen Zhongmin, Wang Peng, Liu Sibing, *et al.* Geochemical characteristics of light hydrocarbon in natural gas in the middle member of west Sichuan Depression, China[J]. *Journal of Chengdu University of Technology: Science & Technology Edition*, 2011, 38(5): 500-506. [沈忠民, 王鹏, 刘四兵, 等. 川西坳陷中段天然气轻烃地球化学特征[J]. 成都理工大学学报: 自然科学版, 2011, 38(5): 500-506.]
- [15] Xu Guosheng, Liu Shugen, Li Guorong, *et al.* Phase state evolution in the cross formational flow of natural gas in the west Sichuan foreland basin, China[J]. *Journal of Chengdu University of Technology*, 2001, 28(4): 383-389. [徐国盛, 刘树根, 李国蓉, 等. 川西前陆盆地碎屑岩天然气跨层运移过程中的相态演变[J]. 成都理工大学学报, 2001, 28(4): 383-389.]
- [16] Tang Yu, Lü Zhengxiang, Ye Sujuan, *et al.* Characteristics and controlling factors of natural gas migration and accumulation in the Upper Jurassic Penglaizhen Formation of Chengdu Sag[J]. *Oil & Gas Geology*, 2013, 34(3): 281-287. [唐宇, 吕正祥, 叶素娟, 等. 成都凹陷上侏罗统蓬莱镇组天然气运移特征与富集主控因素[J]. 石油与天然气地质, 2013, 34(3): 281-287.]
- [17] Leythaeuser D, Mackenzie A, Schaefer R G, *et al.* A novel approach for recognition and quantification of hydrocarbon migration effects in shales and stone sequences[J]. *AAPG Bulletin*, 1984, 68(2): 196-219.
- [18] Liu Quanyou, Liu Wenhui, Xu Yongchang, *et al.* Geochemistry of natural gas and crude computation of gas-generated contribution for various source rocks in Sulige Gasfield, Ordos Basin[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2007, 18(5): 697-702. [刘全有, 刘文汇, 徐永昌, 等. 苏里格气田天然气运移和气源分析[J]. 天然气地球科学, 2007, 18(5): 697-702.]
- [19] Wang Peng, Shen Zhongmin, Liu Sibing, *et al.* Geochemical characteristics of noble gases in natural gas and their application in tracing natural gas migration in the middle part of the western Sichuan Depression, China[J]. *Petroleum Science*, 2013, 10(3): 327-335.
- [20] Ma Liyuan, Zhang Xiaobao, Li Jian, *et al.* Experimental investigation on variation of geochemical compositions of natural gas during diffusion under stratigraphic condition[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2004, 26(4): 365-369. [马立元, 张晓宝, 李剑, 等. 地层条件下天然气扩散过程中地球化学组分变化的模拟实验研究[J]. 石油实验地质, 2004, 26(4): 365-369]
- [21] Shi Ji'an, Sun Xiujian, Wang Jinpeng, *et al.* Physical simulating experiment of natural gas migration and its characteristics of composition differentiation and carbon isotope fractionation[J]. *Petroleum Geology & Experiment*, 2005, 27(3): 293-298. [史基安, 孙秀建, 王金鹏, 等. 天然气运移物理模拟实验及其组分分异与碳同位素分馏特征[J]. 石油实验地质, 2005, 27(3): 293-298.]
- [22] Hao Shisheng, Zhang Zhenying. The characteristic of the solubility of natural gas in formation waters and its geological significance[J]. *Acta Petrolei Sinica*, 1993, 14(2): 12-22. [郝石生, 张振英. 天然气在地层水中的溶解度变化特征及地质意义[J]. 石油学报, 1993, 14(2): 12-22.]
- [23] Fu Xiaotai, Wang Zhenping, Lu Shuangfang. Solution mechanism and solubility equation of gas in water[J]. *Scientia Sinica: Series B*, 1996, 26(2): 124-130. [付晓泰, 王振平, 卢双舫. 气体在水中的溶解机理及溶解度方程[J]. 中国科学: B辑, 1996, 26(2): 124-130.]
- [24] Qin Shengfei, Zhao Jingzhou, Li Mei, *et al.* A case study: Geochemical tracing indices on the migration of water-soluble gases in Hetianhe Gasfield, Tarim Basin[J]. *Earth Science Frontiers*, 2006, 13(5): 524-532. [秦胜飞, 赵靖舟, 李梅, 等. 水溶天然气运移地球化学示踪: 以塔里木盆地和田河气田为例[J]. 地学前缘, 2006, 13(5): 524-532.]
- [25] Cui Yongjun, Zhang Qun, Zhang Hong, *et al.* Adsorption of different rank coals to single component gases[J]. *Natural Gas Industry*, 2005, 25(1): 61-65. [崔永君, 张群, 张泓, 等. 不同煤级煤对 CH₄、N₂ 和 CO₂ 单组分气体的吸附[J]. 天然气工业, 2005, 25(1): 61-65.]
- [26] Li Guangzhi, Wu Xianghua. The petroleum geological significance of isomerization rates $\phi iC_4/\phi nC_4$ and $\phi iC_5/\phi nC_5$ [J]. *Geophysical & Geochemical Exploration*, 2002, 26(2): 135-139. [李广之, 吴向华. 异构比 $\phi iC_4/\phi nC_4$ 和 $\phi iC_5/\phi nC_5$ 的石油地质意义[J]. 物探与化探, 2002, 26(2): 135-139.]
- [27] Wang Peng, Shen Zhongmin, Liu Sibing, *et al.* Geochemical characteristics of nonhydrocarbon in natural gas in Western Sichuan Depression and its implications[J]. *Natural Gas Geoscience*, 2014, 25(3): 394-401. [王鹏, 沈忠民, 刘四兵, 等. 川西坳陷天然气中非烃气地球化学特征及应用[J]. 天然气地球科学, 2014, 25(3): 394-401.]
- [28] Luo Xiaoquan, Zhang Jian, Bu Tao. Reservoiring pattern of Suining Formation gas pool in Luodai area of the Western Sichuan Depression[J]. *Natural Gas Industry*, 2007, 27(3): 13-16. [罗啸泉, 张箭, 卜涛. 川西坳陷洛带地区遂宁组气藏成藏模式. 天然气工业, 2007, 27(3): 13-16.]
- [29] Zhu Hongquan. Depositional Facies and reservoir Characteristics Research and Evaluation of Shaximiao Formation, Middle Area of Western Sichuan Depression[D]. Chengdu: Chengdu University of Technology, 2009. [朱宏权. 川西坳陷中段沙溪庙组沉积相与储层评价研究[D]. 成都: 成都理工大学, 2009]
- [30] Zhang Jiajia, Zhao Zhen, Duan Aijun, *et al.* Study on adsorp-

tion and diffusion of C_4 alkanes in ZSM-5 and Y zeolites[J].
Industrial Catalysis, 2007, 15(9): 5-9. [张佳佳, 赵震, 段爱军,

等. C_4 烷烃在 ZSM-5 分子筛和 Y 分子筛上的吸附和扩散研究[J]. 工业催化, 2007, 15(9): 5-9.]

Mechanism and Effectiveness of Geochemical Index Trace Natural Gas Migration: A case Study of Jurassic Natural Gas in Western Sichuan Depression

WANG Peng¹, LIU Si-bing², SHEN Zhong-min², HUANG Fei¹, ZHANG Wen-kai², ZOU Li-ming²

(1. College of Mining and Safety Engineering, Yibin University, Yibin 644000, China;

2. State Key Laboratory of Oil and Gas Reservoir Geology and Exploration,

Chengdu University of Technology, Chengdu 610059, China)

Abstract: Analyzed the trace mechanism of the common tracer natural gas migration index, and took the Jurassic natural gas in western Sichuan Depression as an example to examine the trace effect. The results show that the CH_4 content, N_2 content and arene/alkane ratio have a better trace ability in the process of migration in different phase, which all are effective migration tracer index. However, the CO_2 content and iC_4/nC_4 ratio are relatively poor in tracing gas migration. The CH_4 content is the most effective trace index for the migration direction of natural gas, because it increases with the increasing of the migration distance under the different migration phase. Whether the N_2 content or the arene/alkane ratio had the opposite changes in different migration phase, therefore it is need to fully consider the migration phase of natural gas when choosing the two tracer index. When gas migration phase is known, the two tracer indexes can determine gas migration direction; if gas migration direction is known, they can determine gas migration phase. When CO_2 content in natural gas was greatly influenced by carbonate minerals, it is likely to lose the function of tracing gas migration. Whether the iC_4/nC_4 can trace natural gas migration and what is the trace mechanism, both are still more controversial, so choose it to trace gas migration should be carefully.

Key words: Natural gas migration; Trace index; Water-dissolving phase; Separate phase; Western Sichuan Depression

简讯

《中国页岩气资源调查报告(2014)》发布

2015年6月9日,国土资源部中国地质调查局发布《中国页岩气资源调查报告(2014)》。报告总结了我国页岩气资源调查评价、勘查开发、理论研究、技术装备和环境保护等方面的主要进展和成果,并对下一步工作提出了建议。报告显示,截至2014年底,累计投资230亿元,完成二维地震21818km,三维地震2134km²,钻井780口(其中,调查井197口,直井探井238口,水平井345口),铺设管线235km。全国共设置页岩气探矿权54个,面积 17×10^4 km²,相继在四川长宁、威远、井研一犍为,重庆涪陵、彭水,云南昭通,贵州习水和陕西延安等地取得重大突破和重要发现,获得页岩气三级地质储量近 5000×10^8 m³,其中涪陵区块探明地质储量 1067.5×10^8 m³。2014年生产页岩气 13×10^8 m³。报告还显示,已经初步形成了适合我国地质条件的页岩气勘查开发技术体系,装备基本实现了国产化,页岩气勘查开发基本实现了绿色环保。

(据中国地质调查局《中国页岩气资源调查报告(2014)》)