

南海北部边缘盆地氮气气源追踪与判识

何家雄¹, 颜文¹, 崔浩², 马文宏³, 祝有海⁴, 龚晓峰¹, 张景茹¹

(1 中国科学院边缘海地质重点实验室; 2 广东省技术经济研究发展中心)

(3 中海石油有限公司湛江分公司勘探开发部; 4 中国地质科学院矿产资源研究所)

摘要 南海北部边缘盆地油气勘探中陆续发现较丰富的二氧化碳(CO₂)和氮气(N₂)等非烃气气藏,同时亦发现了一些含N₂、富N₂的天然层。这些CO₂和N₂非烃气主要富集于西北部边缘莺歌海盆地中央泥底辟带新近系及第四系浅层中。根据N₂地质地球化学特征,可将本区N₂划分为大气成因、壳源型有机成因和壳源型有机-无机混合成因三种主要成因类型。结合温压双控热模拟岩石产氮气实验结果,以及N₂等非烃气在平面上分区分块、剖面上分带分层的局部性富集特点,追踪判识并确定N₂气源主要来自不同成熟演化阶段的中新统及上新统海相泥岩气源岩的N₂与多种物理化学和岩石脱气作用所形成的无机N₂相互混合而构成。

关键词 南海北部; 新近系; 古近系; 海相气源岩; 氮气; 气体成因; 成因类型

中图分类号: TE112.111

文献标识码: A

南海北部边缘盆地天然气勘探自 20 世纪 90 年代以来,不仅发现了较大规模的烃类气藏,亦陆续发现了一些储量及资源量规模大的 CO₂ 气藏及富含 CO₂ 气藏,同时还发现了一些含 N₂ 或富 N₂ 的天然气层。这些非烃气主要分布于盆地西北部边缘莺歌海盆地中央泥底辟带新近系及第四系浅层粉细砂岩储层之中。鉴于这些非烃气在该区分布的普遍性和特殊性,近 20 年来国家及中国海洋石油总公司,对这些非烃气的成因、地质地球化学特征以及运聚成藏规律等开展了系统研究,取得很多重要的认识与研究成果^[1-15],但由于氮同位素分析技术及研究方法不太成熟和规范,可借鉴的国内外研究成果亦较少,因此对于非烃气 N₂ 成因类型及地质地球化学特征与气源构成等诸方面的研究和认识程度仍然较低,迄今尚处在分析探索之中。

氮气(N₂)是天然气中常见的非烃组分之一,其成因及来源较为复杂,判识难度亦较大,且 N₂ 气源比 CO₂ 等其他非烃气及烃类气更为广泛,这无疑给 N₂ 气源追踪对比及判识增加了极大的难度。但由于其物理化学性质比其它非烃气体更接近烃类气,故

其成因及分布规律常常与烃类气体存在一定的成因耦合关系,且其运聚成藏要素及富集规律亦与烃类气具有一定的相似性,即必须具备生、运、聚、圈、保等基本地质条件。因此,研究 N₂ 的成因来源及其分布富集规律,不仅可以与烃类气成因及运聚成藏规律的研究有机地结合起来,而且可以通过伴生烃类气及其它非烃气(如 CO₂)的成因分析来综合判识与确定 N₂ 成因及气源构成特点。

南海北部边缘盆地迄今仅在西北部的莺歌海盆地新近系及第四系钻遇富 N₂ 天然气,且获得了较多氮气地质地球化学分析资料。鉴于此,笔者在对 N₂ 与 CO₂ 富集的莺歌海盆地中央泥底辟带新近系与第四系浅层 N₂ 的成因类型及地质地球化学特征研究^[16]和对 N₂ 相对成熟度(主要借助伴生烃类气的成熟度判识)研究的基础上,以 N₂ 可能的气源岩——新近系不同层位海相泥岩——温压双控热模拟实验所获 N₂ 产率为主要依据,结合研究区 N₂ 等非烃气平面上分区分块、剖面上分带分层的局部性富集特点,重点对 N₂ 气源的构成特点与气源追踪等进行综合剖析与研究。

收稿日期: 2011-03-27; 改回日期: 2012-05-11

基金项目: 本文受国家自然科学基金项目(编号:41176052)和国家重点基础研究发展计划项目(编号:2009CB219501)联合资助

何家雄: 1956 年生, 博士, 研究员。长期从事海洋油气勘探与地质综合研究,先后主持和完成多项中海油、中石油科技攻关项目和国家“八五”、“九五”科技攻关课题以及国家 863 海洋高新技术课题、973 重大基础研究课题等;发表论文 130 多篇,出版专著 2 部。通讯地址: 510640 广州市天河区科华街 511 号; 电话: (020)85292710

1 氮气成因类型

根据N₂的地质地球化学特征和N同位素组成,以及与其伴生的稀有气体He、Ar同位素特点,采用国内外较实用和较通用的成因类型划分方法^[17-19],可将南海西北部莺歌海盆地中央泥底辟带浅层新近系及第四系砂岩气藏的N₂划分为大气成因、壳源有机成因及壳源有机-无机混合成因等三种主要类型。火山幔源成因的N₂在该区尚未钻遇和发现。关于氮气的成因类型,笔者已对此作过判识评价^[16],此处不再赘述。本区各类成因氮气的地球化学特征详见表1。

2 氮气成熟度与气源判识

对于N₂相对成熟度的判识,可以借助与它伴生的烃类气的成熟度之间的相互关系,以及与它伴生的稀有气体He同位素值的高低,间接地从中获得其成熟度相对值的信息。亦即,从N₂-³He/⁴He关系图(图1)和N₂-δ¹³C₁关系图(图2)中可以大致判识与确定南海西北部莺歌海盆地中央泥底辟带新近系及第四系浅层气藏含N₂或富N₂天然气的成熟度。

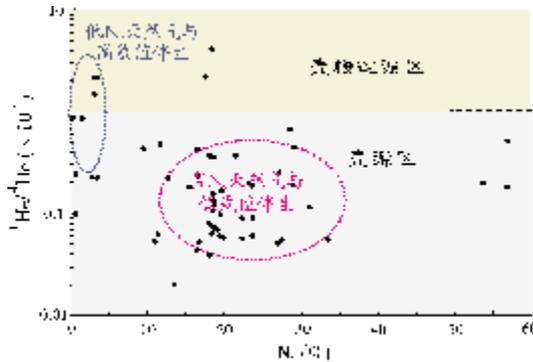


图1 莺歌海盆地中央泥底辟带浅层天然气中N₂与伴生氦值的关系

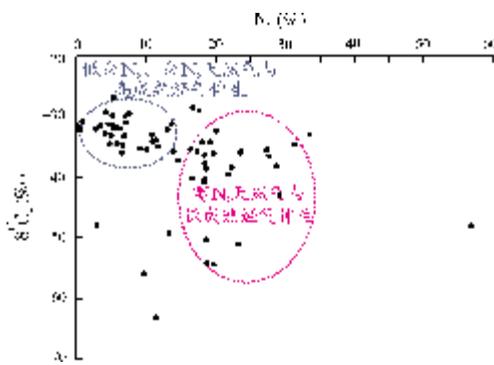


图2 莺歌海盆地中央泥底辟带浅层天然气中N₂与不同成熟度烃类气伴生关系

表1 莺歌海盆地中央泥底辟带及邻区氮气成因类型划分及其地球化学特征

N ₂ 成因类型	分布区	分布层位	N ₂ 含量(%)	伴生气	α系数	Ar含量(%)	δ ¹⁵ N(‰)	⁴⁰ Ar/ ³⁶ Ar	N ₂ /Ar	³ He/ ⁴ He (×10 ⁻⁶)
大气成因	东方区 乐东区 莺东斜坡带	N _{VI} , N _{II}	低含(<15) (变化大)	高含量无机成因 CO ₂	≥1	0.044~0.086	-1~3 (标准空气值范围)	295~396 (标准空气值范围)	34~78 (标准空气值范围)	1.4 (标准空气值范围)
壳源型有机成因	东方区 乐东区	N _{VI} , Q	富含(>15) (18.6~33.5)	低含量有机成因 CO ₂ , 低成熟—成熟烃类气	<1	0.012~0.091	-9~-1 (稳定分布)	296~406 (偏低)	260~406 (变化小)	偏低 (低于标准空气值范围)
壳源型有机-无机混合成因	东方区 乐东区	N _{VI} , Q	低—含(<7% (个别>15))	高含量无机成因 CO ₂ , 高成熟烃类气	<1 或 >1	0.005~1.058	-8~-2 (稳定分布)	293~326 (偏低, 稳定分布)	205~876 (变化大, 稳定)	值偏低, 稳定分布 (极少量样品为壳幔过渡型)

表中: 系数 α = (100Ar/1.18N₂); 当 α=1, 为大气成因; α<1, 为有机成因; α>1, 为无机成因。
N₂/Ar = 35~83.5 时, 为大气成因。
N_{II}——上新统黄流组; N_{VI}——上新统莺歌海组一段。

由图1可以看出,富 N_2 天然气成熟度相对较低, N_2 大于10%以上的天然气,其伴生氦值($^3He/^4He$)偏低,且随 N_2 含量增加,氦值逐渐递减;而当 N_2 小于10%,则氦值逐渐递增。已有研究表明,氦值的高低表征了大地热流值的大小^[20],因此 N_2 与 $^3He/^4He$ 值伴生且呈规律性变化(富 N_2 天然气与低氦值伴生;低 N_2 、含 N_2 天然气与高氦值伴生),表明了与低氦值伴生的富 N_2 天然气成熟度要比与高氦值伴生的低含 N_2 或含 N_2 天然气($N_2 < 10%$)的成熟度要低。

由 $N_2-\delta^{13}C_1$ 关系图(图2),可进一步判识与确定富 N_2 天然气和(低)含 N_2 天然气的成熟度。在图2中,富 N_2 天然气所伴生烃类气样品点群,其 $\delta^{13}C_1$ 值主要分布于 $-56.0‰\sim-32.0‰$ 的区间,成熟度相当于有机质成熟度(R_o)为0.47%~1.18%的范围,即为有机质低成熟—成熟演化阶段。而该富 N_2 天然气中(即壳源型有机成因的 N_2 及低含量有机成因 CO_2 等非烃气($N_2 > 15\%$, $CO_2 < 9\%$),则是来自生物低温化学作用与低成熟—成熟热演化阶段的产物。(低)含 N_2 天然气(即壳源型有机与无机混合成因 N_2),成熟度相对较高,且与无机 CO_2 伴生(图3)。在 $N_2-\delta^{13}C_1$ 关系图(图2)上,(低)含 N_2 天然气及所伴生烃类气的样品点群, $\delta^{13}C_1$ 值主要分布于 $-36.6‰\sim-26.9‰$ 的区间,其成熟度相当于 R_o 为1.00%~1.43%的范围,即为成熟—高熟阶段的产物。

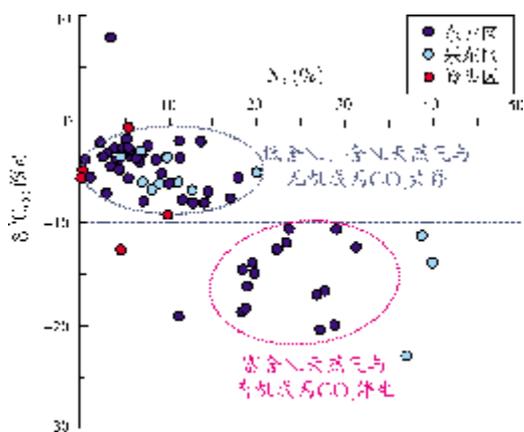


图3 莺歌海盆地中央泥底辟带浅层天然气中 N_2 与不同成因 CO_2 伴生关系

基于以上氮气构成与成熟度的特点,笔者认为该区壳源型有机成因富 N_2 天然气之氮气源应与低含量有机成因的 CO_2 及烃类气同源,且均为上新统一中新统莺歌海组—黄流组及中新统梅山组—三亚组

海相泥岩有机质在低熟—成熟演化阶段之产物。而壳源型有机-无机混合成因 N_2 (低含 N_2 、含 N_2 天然气)的气源则主要来自该套海相泥岩在成熟—高熟晚期阶段所形成的含 N_2 产物与多种物理化学及岩石脱气作用所形成的无机 N_2 相互混合而成。

必须强调指出的是,岩石脱气作用及多种物理化学作用产氮,是形成 N_2 气源不可忽视的重要因素。大量研究及实验均表明,无论何种岩石,均含有一定数量的氮,其中尤以沉积岩、煤及硝酸盐中含氮量最高,一般均大于 $1\ 000\times 10^{-6}$,最高可达 $100\ 000\times 10^{-6}$ 以上^[21],很显然,这些富含氮的岩石,在一定的物理化学环境和热力作用下,必然会脱放和逸出大量的氮,这些氮在储、运、圈、保等条件具备时,则可富集形成 N_2 气藏。另外,含 N_2 非烃气在长距离运聚过程中,亦可沿运移途径中适宜的圈闭富集成藏,由此也能指示和追踪烃类天然气的运聚方向^[22]。

3 岩石热模拟产氮实验与气源判识

为了进一步判识与确定 N_2 气源,笔者采集了南海西北部莺歌海盆地及邻区琼东南盆地的第三系不同区带不同层位泥岩及前第三系基底碳酸盐岩样品,开展了温压双控条件下的岩石产氮气热模拟实验,热模拟温阶从 $100\ ^\circ C$ 到 $550\ ^\circ C$ (相当 $R_o=0.55\%\sim 3.33\%$ 以上),获取的 N_2 产率及 N_2 含量变化特征非常明显。从不同区带、不同层位的泥岩和基底碳酸盐岩平均最大 N_2 产率($550\ ^\circ C$ 温阶)的对比结果(表2)可明显看出,莺歌海盆地泥底辟构造带乐东区上新统莺歌海组一段(N_{2y1})及莺东斜坡带的下中新统三亚组(N_{1s})海相泥岩的平均产 N_2 率最高,分别可达 $7.30\ m^3/t$ 和 $7.84\ m^3/t$;上新统莺歌海组二段(N_{2y2})及中中新统梅山组(N_{1m})海相泥岩次之,其产 N_2 率亦分别达 $4.14\ m^3/t$ 和 $5.45\ m^3/t$ 。而邻区琼东南盆地古近系渐新统崖城组(E_3y)煤系泥岩产 N_2 率最低,平均仅 $0.17\ m^3/t$;琼东南盆地前古近系基底碳酸盐岩和莺歌海盆地莺东斜坡带的前古近系基底碳酸盐岩产 N_2 率一样,均为 $3.08\ m^3/t$ 。

由热模拟实验结果来看,研究区氮气的主气源应来自上新统莺歌海组一段和中新统梅山组、三亚组。

4 氮气气源追踪与综合判识

综上所述,不同类型岩石温压双控热模拟产 N_2 实验结果,结合研究区地质条件与氮气成因类型及

表2 温压双控条件下不同类型岩石产氮气热模拟实验结果与气源判识及综合评价

分布区	地层	气源岩	平均产N ₂ 率* (m ³ /t)	N ₂ 气源评价	
莺歌海盆地	东方区	上新统莺歌海组二段	海相泥岩	4.14	次气源
	乐东区	上新统莺歌海组一段	海相泥岩	7.30	主气源
	莺东斜坡带	中新统三亚组	海相泥岩	7.84	主气源
	莺东斜坡带	中新统梅山组	海相泥岩	5.45	主气源
	莺东斜坡带	前古近系基底	碳酸盐岩	3.08	次气源
琼东南盆地	崖南凹陷	渐新统崖城组	煤系泥岩	0.17	不能作为气源
	崖南凹陷	前古近系基底	碳酸盐岩	3.08	次气源

* 为550℃温阶条件下。

其特点,可以对研究区不同区带及层位不同岩类产N₂潜力及N₂气源等进行进一步的综合分析判识(表2)。即:莺歌海盆地中央泥底辟带新近系上新统莺歌海组一段与中新统梅山组、三亚组海相泥岩产N₂率高,产N₂潜力大,应是该区含N₂、富N₂天然气的主气源。换言之,该区的N₂主要来自受泥底辟热流体作用和影响强烈的新近系海相泥岩,这与该区的烃类气相伴生且同源。莺歌海盆地边缘斜坡区及邻区琼东南盆地前古近系基底碳酸盐岩产N₂潜力较低,可作为N₂的次气源。琼东南盆地古近系渐新统崖城组煤系泥岩产N₂率甚低,产N₂潜力非常小,基本不具备产N₂的能力,故不能提供N₂气源。

总之,通过研究区氮气成因类型及气源构成的地质地球化学分析,结合不同类型岩石温压双控热模拟产氮气实验结果,综合判识与确定研究区的含N₂、富(高)N₂非烃气主要属于壳源有机成因和壳源有机-无机混合成因,少量为大气成因。而壳源型有机成因N₂气源与有机成因CO₂及烃类气同源,均为上新统莺歌海组一段及中新统梅山组、三亚组海相泥岩有机质在低熟—成熟早期演化阶段的产物。壳源型有机-无机混合成因N₂气源,则主要由那套海相泥岩地层在成熟—高熟晚期所形成的含N₂产物与多种物理化学及岩石脱气作用所形成的无机N₂相互混合而成。

5 结论与认识

(1)南海北部边缘盆地含氮和富氮天然气(N₂>10%),主要富集于西北部的莺歌海盆地中央泥底辟带新近系及第四系浅层粉细砂岩储层中。根据氮气地质地球化学特点及伴生烃类气和稀有气体氦、氩

的同位素特征,其成因类型可以综合判识划分为壳源有机成因和壳源有机-无机混合成因两种类型,少量为大气成因类型。壳源型有机成因N₂与低含量有机成因CO₂及烃类气同源。壳源型有机-无机混合成因N₂可能与高含量无机CO₂同源伴生。

(2)根据南海北部边缘盆地含N₂和富N₂天然气地质地球化学特征,以及平面上分区块、剖面上分带分层的局部性分布富集特点,结合温压双控热模拟岩石产氮气实验结果综合判识,可确定研究区的壳源型有机成因富(高)N₂天然气,主要为上新统莺歌海组一段及中新统梅山组、三亚组海相泥岩有机质在热演化成熟阶段的产物,而壳源型有机-无机混合成因的低N₂、含N₂非烃气则主要由多种物理化学及岩石脱气作用形成的无机N₂与有机质成熟演化伴生的有机N₂相互混合而构成。

参考文献

- [1] 戴金星,戴春森,宋岩,等. 中国东部无机成因CO₂气藏及其特征[J]. 中国海上油气(地质),1994,8(4):215-222.
- [2] 戴金星. 中国东部和大陆架CO₂气田(藏)及其气的类型[J]. 大自然探索,1996,15(4):18-20.
- [3] 何家雄,钟启祥,陈伟煌,等. 莺歌海盆地浅层天然气成因及烃源探讨[J]. 天然气地球科学,1994,5(6):15-27.
- [4] 何家雄,陈刚. 莺歌海盆地CO₂成因及运聚特征的初步研究[J]. 石油勘探与开发,1995,22(6):8-15.
- [5] 何家雄,陈刚. 莺歌海盆地CO₂分布富集特征及初步预测[J]. 天然气地球科学,1997,8(3):9-17.
- [6] 何家雄,陈刚. 莺歌海盆地CO₂分布及预测方法研究[J]. 石油勘探与开发,1998,25(2):20-23.
- [7] 何家雄,李明兴,陈胜红,等. 莺歌海盆地泥底辟带中深层天然气勘探中的CO₂风险分析与预测[J]. 中国海上油气,2000,14(5):332-338.
- [8] 何家雄,陈伟煌,李明兴,等. 莺歌海盆地热流体上侵活动与

- 天然气运聚富集关系探讨[J]. 天然气地球科学, 2000, 11(6): 29-43.
- [9] 何家雄, 李明兴, 陈伟煌, 等. 莺-琼盆地天然气中CO₂成因类型及气源综合判识[J]. 天然气工业, 2001, 21(3): 15-21.
- [10] 何家雄, 王振峰, 刘宝明, 等. 南海北部边缘盆地CO₂成藏主控因素[J]. 天然气工业, 2004, 24(9): 19-22.
- [11] 何家雄, 刘全稳. 南海北部大陆架边缘盆地CO₂成因及运聚规律分析与预测[J]. 天然气地球科学, 2004, 15(1): 1-8.
- [12] 何家雄, 夏斌, 刘宝明, 等. 中国东部及近海陆架盆地CO₂成因及运聚规律与控制因素研究[J]. 石油勘探与开发, 2005, 32(4): 42-49.
- [13] 何家雄, 夏斌, 王志欣, 等. 中国东部陆相断陷盆地及近海陆架盆地CO₂成因判识与运聚规律研究[J]. 中国海上油气, 2005, 17(3): 153-162.
- [14] 何家雄, 祝有海, 姚永坚, 等. 南海北部边缘盆地二氧化碳地质及资源化利用[M]. 北京: 石油工业出版社, 2009: 6-193.
- [15] 何家雄, 李明兴. 南海北部大陆架Y盆地天然气中N₂成因及气源剖析与探讨[J]. 天然气地球科学, 2000, 11(3): 25-34.
- [16] 何家雄, 祝有海, 马文宏, 等. 南海北部边缘盆地N₂分布及成因类型判识[J]. 天然气地球科学, 2011, 22(3): 440-449.
- [17] Polyak B G, Prasolov E M, Čermák V, et al. Isotopic composition of noble gases in geothermal fluids of the Krusne Hory Mts, Czechoslovakia and the nature of the local geothermal anomaly[J]. Geochimica et Cosmochimica Acta, 1985, 49(3): 695-699.
- [18] 杜建国, 刘文汇. 广东三水盆地非烃天然气同位素地球化学[J]. 地球化学, 1993, 15(1): 24-28.
- [19] 杜建国, 刘文汇, 邵波, 等. 天然气中氮的地球化学特征[J]. 沉积学报, 1996, 14(1): 143-147.
- [20] 杜建国, 刘文汇. 三水盆地天然气中氮和氩同位素地球化学研究[J]. 天然气地球科学, 1991, 2(6): 283-285.
- [21] Littke R, Kroose B, Idiz E, et al. Molecular nitrogen in natural gas accumulations: Generation from sedimentary organic matter at high temperature[J]. AAPG Bulletin, 1995, 79(3): 410-430.
- [22] 戴金星, 戚厚发, 郝石生, 等. 天然气地质学概论[M]. 北京: 石油工业出版社, 1989: 8-89.

编辑: 赵国宪

Nitrogen Gas Source Tracking and Distinguishing in Margin Basins, Northern South China Sea

He Jiaxiong, Yanwen, Cui Jie, Ma Wenhong, Zhu Youhai,
Gong Xiaofeng, Zhang Jingru

Abstract: Abundant CO₂ and N₂ gas reservoirs and other N₂-bearing gas reservoirs are discovered in the Neogene and Quaternary shallow beds of Central Mud diapir Zone in Yinggehai Basin, South China Sea during recent 20 years' oil and gas exploration. According to geological and geochemical characteristics of N₂, the N₂ gas in this area can be divided into three types in genesis, i.e. the atmosphere genesis, the crust organic genesis and the crust-derived organic-inorganic-mixed genesis. Combined with results from the nitrogen-producing experiments under T- and P-controlled thermal simulation and the characteristics of partial enrichment in plane and layering and zoning enrichment in vertical, it is determined the N₂ gas is tracked to the mixture of the N₂ that mainly yielded from Pliocene and Miocene marine gas source mudstone during different stages of maturation with the N₂ that formed from physical and chemical actions and rock degassing.

Key words: Paleogene; Neogene; Gas source rock; Nitrogen gas; Gas genesis; Genesis classification; South China Sea
He Jiaxiong; male, Ph.D., Professor. Add: Key Laboratory of Marginal Sea Geology, CAS, 511 Kehua Str., Guangzhou, Guangdong, 510640, China